

THESE

Présentée à l'Université de Lille 1 Sciences & Technologies

par

Dinh Trinh TRAN

pour l'obtention du grade de

DOCTEUR de l'Université de Lille 1 Sciences et Technologies

**Ecole Doctorale des Sciences de la Matière, du Rayonnement et de l'Environnement
Discipline : Optique et Lasers, Physico-Chimie, Atmosphère**

<p>IDENTIFICATION DES SOURCES ET MODELISATION DU COMPORTEMENT DYNAMIQUE DES PARTICULES DANS L'AIR INTERIEUR DES ECOLES</p>

Membres du jury :

Denis PETITPREZ	Professeur à l'Université de Lille 1	Président du jury
Evelyne GEHIN	Professeur à l'Université de Paris 12	Rapporteuse
Laurence LE COQ	Professeur à l'Ecole des Mines de Nantes	Rapporteuse
Patrice BLONDEAU	Maître de Conférences, HDR, Univ. de La Rochelle	Examineur
Laurent ALLEMAN	Maître-Assistant à l'Ecole des Mines de Douai	Examineur
Patrice CODDEVILLE	Professeur à l'Ecole des Mines de Douai	Directeur de thèse
Jean-Claude GALLOO	Professeur à l'Ecole des Mines de Douai	Directeur de thèse

Remerciements

Ce travail de recherche a été réalisé au sein du Département Chimie et Environnement de l'Ecole des Mines de Douai, sous la direction des Professeurs Jean-Claude Galloo et Patrice Coddeville.

Je tiens à leur exprimer toute ma gratitude pour m'avoir accueilli dans leur laboratoire ainsi que pour avoir dirigé mes travaux. La confiance qu'ils m'ont accordée et leurs précieux conseils ont permis la réalisation de cette thèse.

J'exprime ma profonde reconnaissance envers mon encadrant Monsieur Laurent Alleman, Enseignant Chercheur au Département Chimie et Environnement de l'Ecole des Mines de Douai, pour m'avoir épaulé au cours de la thèse. Merci d'avoir partagé mon enthousiasme, mes interrogations et mes doutes et de m'avoir accompagné depuis les campagnes de mesures dans des écoles de la région Nord Pas de Calais jusqu'à l'impression de la dernière page du manuscrit.

Je remercie également ARMINE et le Conseil Régional de Nord Pas de Calais pour leur soutien financier à la réalisation de ce projet de recherche.

J'exprime ma profonde gratitude à Monsieur Denis Petitprez, Professeur de l'Université des Sciences et Technologies de Lille, de m'avoir fait l'honneur de présider le jury de soutenance. Je remercie également Madame Laurence Le Coq, Professeur de l'Ecole des Mines de Nantes, et Madame Evelyne Gehin, Professeur de l'Université Paris 12, d'avoir accepté d'évaluer et de discuter ces travaux de thèse ainsi que pour leurs remarques pertinentes. Je suis très reconnaissant envers Monsieur Patrice Blondeau, Maître de conférence-HDR de l'Université de La Rochelle, de m'avoir conseillé sur mes travaux de modélisation et d'avoir accepté de juger mon travail de thèse en tant qu'examineur.

Je tiens à remercier la joyeuse équipe d'Atmo Nord Pas de Calais pour sa collaboration précieuse et efficace qui m'a aidé de mener à bien ce travail lors des campagnes de terrain. Merci aux directeurs et aux enseignants des écoles où j'ai effectué les campagnes de mesures pour leur sympathique accueil et leur collaboration.

Un grand merci à toutes les personnes, au sein du département ou à l'extérieur, qui m'ont aidée dans ces travaux de thèse : Hervé Plaisance, Stéphane Sauvage, André Wroblewski, et bien d'autres.... En particulier, merci à Bruno Malet qui m'a tout appris sur les mystères de

l'ICP-MS et AES. Bruno, merci de m'avoir accompagné plusieurs fois pour les campagnes de mesures dans des écoles de la région Nord Pas de Calais. Merci pour tout.

Je remercie également Monsieur Laurent Bako, Enseignant Chercheur au Département Informatique et Automatique de l'école des Mines de Douai pour ses précieux conseils pour la programmation dans l'environnement Matlab.

Je tiens à remercier tous les membres du laboratoire pour l'ambiance amicale qui y règne. Merci à tous les collègues thésards qui ont croisé ma route, pour les merveilleux moments d'entraides, de discussions, et d'amitiés. Et surtout merci à mes compagnons de bureau, Joëlle et Olivier, pour m'avoir écouté soutenu et partagé les moments difficiles. Merci à mes collègues préférés Kévin, Saliou, Moktar, Zaher, Loganathan pour l'ambiance amicale "multiculturelle", les fous rires et les petits secrets qui resteront inoubliables.

Un grand merci aux collègues Vietnamien(ne)s pour tous ces moments de solidarité et de convivialité. Et en particulier, merci à Hung et Hau pour leur écoute et soutien jusqu'à la soutenance de la thèse.

Je remercie mes parents, qui malgré la distance, m'ont donné la force, le courage et la motivation d'aller au bout de mes objectifs, par leur amour et leur encouragement sans faille. Je tiens à remercier vivement mes frères et sœurs Chien, Tuyen et Viet pour leur encouragement, leur soutien, leur solidarité. Leur progrès et succès dans la vie personnelle et professionnelle m'ont beaucoup motivé pour la réalisation de tout ce travail, surtout lors de la dernière ligne droite.

TABLE DES MATIERES

TABLE DES MATIERES	5
INTRODUCTION GENERALE	11
CHAPITRE I : SYNTHESE BIBLIOGRAPHIQUE	17
1. Généralité concernant les particules atmosphériques	19
2. Caractérisation physico-chimique des particules.....	20
<i>2.1. La distribution en taille des particules.....</i>	<i>20</i>
2.1.1. Le mode	20
2.1.2. Le seuil de coupure	21
2.2. Composition chimique des particules	22
2.2.1. En air extérieur	22
2.2.2. En air intérieur.....	23
3. Les sources de particules.....	25
3.1. En air extérieur	25
3.1.1. Sources naturelles	25
3.1.2. Sources anthropiques	26
3.2. En air intérieur.....	28
3.2.1. Particules provenant de sources extérieures	28
3.2.2. Particules provenant de sources intérieures.....	29
3.2.3. Sources intérieures des autres polluants présents dans l'air intérieur.....	31
3.2.3.1. Composés organiques volatils (COV), carbone organique et carbone élémentaire	31
3.2.3.2. Polluants gazeux inorganiques (CO, NO ₂ , O ₃)	32
4. Impacts de la pollution atmosphérique particulaire.....	34
4.1. Les impacts sur la santé de l'Homme.....	34
4.1.1. Etudes épidémiologiques.....	34
4.1.2. Etudes toxicologiques.....	35
4.1.2.1. La pénétration des particules en fonction de leur taille.....	35
4.1.2.2. Effets toxicologiques.....	36
4.2. Les impacts sur l'environnement.....	37
5. Valeurs réglementaires dans le domaine de la qualité de l'air	38
5.1. Valeurs réglementaires pour l'air extérieur.....	38
5.2. Valeurs réglementaires pour l'air intérieur	38
6. Etudes publiées sur la qualité de l'air intérieur.....	39

7. La modélisation du comportement dynamique des particules dans l'air intérieur	41
7.1. Mécanismes de formation et d'élimination des aérosols particuliers	41
7.1.1. Formation des aérosols particuliers	41
7.1.2. Elimination des aérosols particuliers	41
7.2. Présentation des modèles monozones et multizones	43
7.2.1. Les modèles monozones	43
7.2.2. Les modèles multizones	43
7.3. Présentation du modèle de régression stochastique	44
8. Conclusion	45
CHAPITRE II : MATERIEL ET METHODES	47
1. Prélèvement et analyse	49
1.1. Différentes méthodes de prélèvement de la pollution particulaire	49
1.1.1. Prélèvement par collection sur filtre.....	50
1.1.2. Prélèvement par impaction en cascade.....	52
2. Mesure et analyse des particules	54
2.1. Concentration en masse (CM)	54
2.2. Techniques de mesure de la concentration en nombre - Comptage	55
2.3. L'analyse physico-chimique des particules	57
2.3.1. La mesure des métaux	57
2.3.2. Méthode d'analyse du Carbone (EC/OC).....	58
2.3.3. Analyse du Black Carbon (BC) et des composés organiques aromatiques absorbants dans l'UV à 370 nm par la méthode d'absorption optique semi-continue	60
2.3.4. Comparaison entre EC et BC.....	62
2.3.5. La mesure des polluants inorganiques gazeux (CO ₂ , CO) et des paramètres de confort	63
3. Validation des protocoles de mesure et d'analyse des polluants particuliers	63
3.1. La mise en œuvre de la mesure des métaux dans les particules	63
3.1.1. La mise en solution des particules	63
3.1.2. Les différentes techniques de mise en solution.....	63
3.1.3. La digestion micro-onde en milieu acide	64
3.1.4. Matériel et réactifs utilisés.....	65
3.2. La mesure par ICP-AES et ICP-MS	66
3.2.1. Principe de l'ICP-AES	66
3.2.2. Matériel ICP-AES utilisé dans le cadre de notre étude	66
3.2.3. Optimisation des performances ICP-AES.....	66
3.2.4. Principe de l'ICP-MS.....	67
3.2.5. Matériel ICP-MS utilisé dans le cadre de notre étude.....	67

3.2.6. Les interférences en ICP-MS.....	68
3.2.7. L'optimisation des performances ICP-MS.....	69
3.2.7.1. Le contrôle de la qualité des analyses	69
3.3. Validation des méthodes d'analyse.....	70
3.3.1.1. Limites de détection et blancs	70
3.3.1.2. La contamination.....	71
3.3.1.3. Blanc.....	72
3.3.1.4. La justesse	72
3.4. La mise en œuvre de la mesure EC et OC.....	73
4. Le calcul d'incertitude.....	74
4.1. Incertitude sur la concentration en masse de particules	74
4.1.1. Spécifier le mesurande	74
4.1.2. Identification des sources de l'incertitude	75
4.1.3. Quantification des composantes de l'incertitude.....	75
4.1.4. Calcul de l'incertitude composée et de l'incertitude élargie	76
4.1.5. Présentation du résultat final.....	77
4.2. Incertitude sur la concentration en OC et EC.....	78
4.3. Incertitude de la concentration en métaux.....	78
5. Les méthodes d'identification et traçage des sources d'émission des polluants.....	79
5.1. Introduction	79
5.2. Les facteurs d'enrichissement.....	79
5.3. Les ratios élémentaires.....	80
5.4. La classification hiérarchique (CH).....	81
6. Modélisation du comportement dynamique des particules dans l'air intérieur	82
6.1. L'équation de conservation de la masse.....	83
6.1.1. La généralisation de l'équation du bilan de masse.....	83
6.1.2. Le volume effectif	84
6.1.3. Le facteur de mélange m	85
6.2. Détermination des paramètres du modèle	85
6.2.1. Mesure du taux de renouvellement d'air.....	86
6.2.1.1. Méthode du traceur gazeux CO_2 en absence des élèves.....	86
6.2.1.2. Méthode du traceur gazeux CO_2 en présence des élèves	88
6.2.1.3. Méthode de pression différentielle.....	89
6.2.2. Détermination du taux de dépôt λ , et du facteur de pénétration p	93
6.2.3. La vitesse d'émission des particules et le taux de remise en suspension de particules.....	96

7. Conclusion.....	97
CHAPITRE III : CHOIX DES SITES D'ETUDE ET DESCRIPTION DE LA CAMPAGNE DE MESURE 2009	99
1. Description de la campagne test de prélèvement et de mesure dans l'air intérieur de 8 écoles de la région NPdC en 2008.....	101
1.1. <i>Présentation des sites d'étude</i>	101
1.2. <i>Présentation des écoles</i>	102
1.3. <i>Stratégie de mesure et de prélèvement</i>	110
1.4. <i>Les séries de prélèvements et de mesures</i>	111
2. Description et validation des données de la campagne test pour 8 écoles en 2008.....	111
2.1. <i>Description des données</i>	111
2.2. <i>Validation des données</i>	112
3. Résultats de la campagne test 2008.....	113
3.1. <i>Les paramètres de confort (CO₂; Température ; Humidité relative ; CO)</i>	113
3.2. <i>Concentrations en masse des particules</i>	114
3.3. <i>Composition en éléments majeurs et traces dans les particules</i>	116
3.4. <i>Caractérisation du profil des écoles par l'analyse en Classification Hiérarchique</i>	117
4. Description de la campagne de mesure 2009 dans trois écoles cibles du NPdC.....	120
4.1. <i>Présentation de la campagne</i>	120
4.2. <i>Les séries de prélèvements et de mesures</i>	123
4.3. <i>Description et validation des données de la campagne de mesures 2009</i>	123
5. Conclusion.....	125
CHAPITRE IV : RESULTATS DE LA CAMPAGNE DE MESURE 2009.....	127
1. Données météorologiques.....	129
2. Paramètres de confort à l'extérieur et l'intérieur des écoles.....	131
3. Concentrations en masse et nombre des particules à l'extérieur et à l'intérieur des écoles	134
3.1. <i>Concentrations moyennes hebdomadaires en masse des particules PM₁₀ extérieures</i>	134
3.2. <i>Concentrations moyennes hebdomadaires en masse de particules PM₁₀ intérieures</i>	135
3.3. <i>Pourcentage en masse des différentes fractions granulométriques de particules</i> .	137
3.4. <i>Rapport intérieur/extérieur en masse des différentes fractions granulométriques de particules</i>	139
3.5. <i>Variation des concentrations en masse de particules au cours du temps</i>	141
3.6. <i>Concentration en nombre de particules dans l'air intérieur et extérieur</i>	144
4. Concentrations en carbone organique et élémentaire	146

4.1. Concentrations moyennes en carbone organique.....	146
4.2. Concentrations moyennes en carbone élémentaire	148
4.3. Rapport Int/Ext en carbone élémentaire	149
5. Concentration en “Black Carbon” (BC) et en composés organiques aromatiques absorbant dans l’UV à 370 nm	150
6. Composition en métaux de l’air extérieur et intérieur des écoles.....	152
6.1. Concentrations moyennes en métaux de l’air à l’extérieur des écoles	152
6.2. Concentrations moyennes en métaux dans l’air intérieur des écoles	155
6.2.1. Comparaison avec la littérature	155
6.2.2. Concentration en éléments dans les PM ₁₀ (ng/μg)	156
6.2.3. Répartition des métaux dans différentes fractions granulométriques.....	159
7. Identification des sources de pollution en air intérieur et extérieur des écoles.....	162
7.1. Identification des sources de métaux à l’extérieur des écoles	162
7.1.1. Facteurs d’enrichissement	162
7.1.2. Classification Hiérarchique (CH).....	163
7.1.3. Corrélation métaux, OC et EC à l’extérieur des écoles.....	170
7.1.4. Rapports OC/EC à l’extérieur des écoles	170
7.2. Identification des sources de particules à l’intérieur des écoles	171
7.2.1. Rapport intérieur/extérieur (Int/Ext) en métaux dans différentes fractions granulométriques particulières.....	171
7.2.2. Facteur d’enrichissement par rapport à des éléments provenant de l’extérieur	176
7.2.3. Rapport OC/EC à l’intérieur des écoles	179
8. Conclusion.....	180
CHAPITRE V : MODELISATION DU COMPORTEMENT DYNAMIQUE DES PARTICULES DANS L’AIR INTERIEUR.....	183
1. Du développement à l’application du modèle sur Matlab 7.11.....	185
2. Résultats de détermination des paramètres du modèle	189
2.1. Détermination du taux de renouvellement d’air α	189
2.1.1. Comparaison des deux méthodes en absence des élèves.....	190
2.1.1.1. Méthode du traceur CO ₂	190
2.1.1.2. Méthode de pression différentielle	191
2.1.2. Taux de renouvellement d’air α dans les classes d’Arras et de St Pol sur Mer	192
2.2. Détermination des paramètres d’entrée λ , p et G	193
2.2.1. Détermination du taux de dépôt λ	193
2.2.2. Détermination du facteur de pénétration p	196

2.2.3. Détermination de la vitesse de génération G	197
3. Comparaison de l'évolution des concentrations en particules intérieures mesurées et calculées par le Modèle à l'école d'Arras.....	199
4. Tests de sensibilité, calage et robustesse du modèle.....	202
4.1. Tests de sensibilité du modèle.....	202
4.2. Calage du modèle.....	203
4.3. Robustesse du modèle.....	205
4.3.1. Robustesse du modèle vis-à-vis de la variation d' α	205
4.3.1.1. Scénario de jour.....	206
4.3.1.2. Scénario de nuit.....	206
4.3.2. Robustesse du modèle vis-à-vis de la variation de concentration en PM extérieures.....	207
5. Validation du modèle.....	208
6. Application du modèle pour les écoles lors de la campagne 2008.....	212
7. Scénario en vue d'atteindre les concentrations en particules recommandées en air intérieur dans les écoles d'Arras et de Saint Pol sur Mer (campagne 2009).....	215
8. Optimisation du calcul de G.....	217
9. Conclusion.....	220
CONCLUSION GENERALE.....	223
REFERENCES BIBLIOGRAPHIQUES.....	229
LISTE DES ILLUSTRATIONS.....	247
ANNEXES.....	255

INTRODUCTION GENERALE

Les études épidémiologiques récentes montrent qu'il y a un lien entre la pollution de l'air, notamment par les particules fines et ultrafines et la mortalité dont les causes peuvent être cardio-vasculaires, cardiaques et respiratoires. Ainsi en Europe, 100 000 décès et 725 000 années de vie perdues par an seraient attribuables à l'exposition aux particules fines (OQAI, 2004). Ces dernières années, plusieurs études indiquent que l'air intérieur des lieux clos (bâtiments, maisons, écoles,...) est souvent plus pollué qu'à l'extérieur, y compris dans les villes les plus industrialisées (EPA, 2004). De plus, nous passons plus de 80% de notre temps dans des environnements intérieurs dans les pays développés (WHO-Europe, 2003). En conséquence, la contribution des polluants de l'air intérieur sur la santé de l'homme en terme d'exposition personnelle sera souvent plus importante que celle de l'air extérieur. Globalement, l'étude de la pollution de l'air intérieur et son impact sur la santé humaine sont encore peu documentés. La qualité de l'air dans les écoles, qui touche une population fragile et confinée dans un milieu clos et souvent mal ventilé a également été peu étudiée.

La concentration en particules dans l'air intérieur et sa composition chimique sont fonction de nombreux paramètres en liaison avec les sources et les puits de particules ainsi que les processus de transfert entre l'air intérieur et extérieur. Dans l'air intérieur, elles présentent un comportement spécifique qui nécessite des méthodologies de prélèvements, des techniques de mesures et d'analyses propres à ce type d'environnement (volume des pièces, forte variabilité temporelle, type d'activité, régime de ventilation, ...). Or, les particules atmosphériques induisent une toxicité pulmonaire et cardiovasculaire, liée à leurs caractéristiques physico-chimiques (taille, nombre, surface spécifique, composition chimique,...). L'étude fine de l'origine de la pollution de l'air intérieur et son impact corollaire sur la santé est donc indispensable. Une connaissance approfondie des sources, des processus de transformation et du devenir des particules atmosphériques doit permettre de répondre à la demande des responsables politiques et du public de pouvoir respirer un air sain à l'intérieur comme à l'extérieur.

Cette thèse de doctorat a été effectuée dans le cadre du projet fédérateur de l'Institut de Recherche en ENvironnement Industriel - IRENI (2007-2013) - Action 1 "Qualité de l'air" - Axe 2 "Particules", cofinancée par la région Nord-Pas-de-Calais et ARMINES. L'objectif de cette thèse était d'identifier les sources majeures de pollution particulaire dans des écoles de la région Nord Pas de Calais soumises à des influences urbaines, rurales et industrielles, en utilisant des traceurs spécifiques de sources (traceurs métalliques ou organiques particuliers). Nous avons mis en place des campagnes de terrain dans des écoles de différentes typologies (industrielle, urbaine, rurale). Des mesures en masse et nombre de particules, des prélèvements pour l'analyse de la composition chimique (EC, OC, éléments métalliques majeurs et traces) ont été effectués en air intérieur et extérieur des bâtiments, ainsi que la mesure des paramètres de confort (T°C, HR %, CO₂, ...) et de la perméabilité des bâtiments. Ces travaux avaient notamment pour but de :

- Identifier les principales sources de particules dans l'air intérieur de classes d'écoles,
- Etudier le comportement dynamique des particules dans l'air intérieur,
- Modéliser les phénomènes physiques mis en jeu afin de prévoir la qualité de l'air intérieur en relation avec les teneurs extérieures, les caractéristiques des bâtiments et les activités des occupants.

Ce mémoire de thèse se découpe en 5 chapitres :

❶ Le premier chapitre présente le contexte général de nos travaux sur la qualité de l'air intérieur, notamment en milieu scolaire. Cette partie consiste en une synthèse bibliographique des travaux scientifiques réalisés dans ce domaine.

❷ Le deuxième chapitre présente les différents matériels utilisés lors des campagnes de prélèvement des particules sur le terrain et les méthodes physico-chimiques de leur analyse. Il discute des différentes étapes d'optimisation et de validation de ces techniques en vue d'obtenir un jeu de données robuste.

Ce chapitre synthétise également les différents traitements statistiques employés pour le traçage des sources de polluants tels que la Classification Hiérarchique (CH), les ratios élémentaires et les facteurs d'enrichissement. Enfin, le principe conceptuel du modèle reproduisant le comportement dynamique des particules dans l'air intérieur est décrit.

❸ Le troisième chapitre de ce travail présente la campagne test effectuée dans l'air intérieur de 8 écoles de la région Nord Pas de Calais en 2008. L'exploitation des résultats de cette campagne a pour but :

- D'optimiser le choix des matériels, des protocoles et de la stratégie de prélèvement et de valider les techniques analytiques mises en œuvre,
- De classer les écoles selon leur environnement,
- De sélectionner les écoles cibles pour la campagne 2009.

❹ Le quatrième chapitre concerne la caractérisation des particules en air intérieur et extérieur de trois écoles de la région Nord Pas de Calais au niveau de la masse, du nombre de particules, de la composition élémentaire (EC, OC, black Carbon, éléments métalliques majeur et traces) et en prenant en compte la distribution granulométrique des PM collectées. L'exploitation statistique (CH, facteur d'enrichissement, ...) des données est orientée vers le traçage et l'identification des sources de particules à l'extérieur et à l'intérieur des classes. L'impact de la remise en suspension des particules sur leur composition chimique est également discuté.

⑤ Le cinquième et dernier chapitre se focalise sur le développement du modèle déterministe monozone permettant de prévoir la variation de concentration en masse des particules (fraction fine et grossière) dans les classes d'écoles. Les paramètres du modèle (taux de dépôt λ , facteur de pénétration p , taux de renouvellement d'air α et vitesse de génération des particules G) sont définis et calculés à Arras et St Pol sur Mer.

Le modèle développé à partir de la base de données d'Arras est ensuite appliqué à St Pol sur Mer pour validation et des tests de sensibilité et de robustesse sont appliqués. Il est ensuite appliqué dans des conditions réelles d'utilisation sur une école à Lille et quelques perspectives d'utilisation sont alors évoquées.

CHAPITRE I : SYNTHESE BIBLIOGRAPHIQUE

Dans l'atmosphère, les éléments majeurs et traces, des métaux et métalloïdes, le carbone élémentaire et une partie de la matière organique non volatile, sont à température ambiante, principalement présents sous forme particulaire. Afin de connaître la composition chimique des particules atmosphériques, notamment en milieu clos, et leur effet sur la santé humaine, il est fondamental de comprendre les phénomènes régissant la formation et les transformations physico-chimiques, l'origine et les transferts de ces particules au sein des bâtiments jusqu'à leur élimination.

1. Généralité concernant les particules atmosphériques

Les aérosols sont des particules solides ou liquides en suspension dans l'air. La génération d'aérosols peut être de nature primaire (introduite directement dans l'atmosphère sous forme de particules par des processus mécaniques ou thermiques) ou secondaire (formée dans l'atmosphère par des processus de transformation/réaction des gaz en particules) (Chow et Watson, 1998; WHO-Europe, 2006). Parmi les aérosols secondaires d'origine anthropique, on peut citer ceux provenant de l'oxydation (chimiques ou photochimiques) des dérivés gazeux de l'azote et du soufre tels que NO_x, NH₃, SO₂, transformés en nitrates, ammoniums et sulfates particulaires et ceux, issus de la conversion de composés organiques volatils (COV) (EPA- USA, 2004).

Les particules résultent essentiellement d'émissions naturelles (érosion des sols, embruns, volcanisme, feux de forêts,...) ou anthropiques (activités humaines industrielles ou agricoles, transport, chauffage, construction,...). L'ensemble des particules en suspension présente une large gamme de tailles pouvant varier de quelques nanomètres à quelques dizaines de micromètres (Renoux et Boulaud, 1998).

Dans la littérature, on emploie souvent indistinctement les différents termes "particules" et "aérosols" pour définir des composants dans l'air intérieur et extérieur. La définition stricte des aérosols est la "suspension, dans un milieu gazeux, de particules solides ou liquides présentant une vitesse de chute négligeable" (Fontan, 2003). Les aérosols correspondent donc aux plus fines fractions. Le terme de "particules" est l'expression générique qui englobe l'ensemble des définitions, indifféremment des propriétés physico-chimiques de chacune d'elle. D'autres termes sont utilisés pour décrire des types particuliers d'aérosols (Fontan, 2003) :

- Au terme "poussières" (Dust) correspondent des particules solides, le plus souvent de taille supérieure à 1 µm et inférieure à 75 µm, les plus grosses retombant près de la source d'émission sont issues de procédés mécaniques anthropiques ou naturels tels que l'érosion éolienne.
- Le terme "fumées noires" (Black Smoke) est lié à la mesure de la réflectivité du filtre sur lequel les particules ont été collectées et à des particules carbonées de diamètre compris entre 0,1 et 5 µm environ.

D'autres terminologies sont utilisées pour désigner la composition des particules. Les termes EC (Elemental Carbon), OC (Organic Carbon), IC (Inorganic Carbon) et TC (Total Carbon) correspondent respectivement au carbone élémentaire, organique, inorganique et total (Chao et al., 2003; Wilson et al., 2002). Le terme TSP (Total Suspended Particles) correspond à l'ensemble des particules en suspension.

2. Caractérisation physico-chimique des particules

Il existe plusieurs classifications possibles pour les particules selon les effets qu'elles induisent sur la santé, leurs caractéristiques physiques et chimiques, ou suivant les méthodes utilisées pour les détecter. Cependant, elles sont communément réparties en fonction de leur taille. Dans cette optique, on les mesure en donnant le diamètre qu'aurait une sphère de masse volumique égale à 1 g/cm^3 ayant la même vitesse de dépôt que la particule mesurée et un comportement aérodynamique équivalent. Ainsi, les termes PM_{10} , $\text{PM}_{2,5}$ représentent la fraction de l'aérosol atmosphérique qui contient les particules ayant un diamètre aérodynamique inférieur ou égal à $10 \text{ }\mu\text{m}$ et $2,5 \text{ }\mu\text{m}$ respectivement (Monn, 2001). Le terme ultrafines correspond aux particules dont le diamètre aérodynamique est inférieur à $0,1 \text{ }\mu\text{m}$ (Chow et Watson, 1998 ; WHO- Europe, 2006).

2.1. La distribution en taille des particules

La taille des particules dans l'air est souvent caractérisée par les quatre conventions suivantes (Wilson et al., 2002; EPA- USA, 2004):

- Le mode, basé sur le mécanisme observé de la distribution et de la formation des particules,
- Le seuil de coupure, sur la base de 50% d'efficacité du seuil de coupure de dispositifs d'échantillonnage spécifiques,
- Le seuil de coupure appliqué à la santé,
- l'Indication juridique et la taille réglementaire pour les normes de qualité de l'air.

2.1.1. Le mode

Les différents mécanisme de formation, de transformation physico-chimique et d'élimination des particules sont récapitulés par un schéma (Figure 1) élaboré par Raes et al. (2000) faisant intervenir les 3 modes principaux de répartition des particules : le mode de nucléation ou mode d'Aitken (particules ultrafines), le mode d'accumulation (particules fines) et le mode grossier (grosses particules). Ces trois types de particules ont des modes de formation, de transformations chimiques et d'élimination différents.

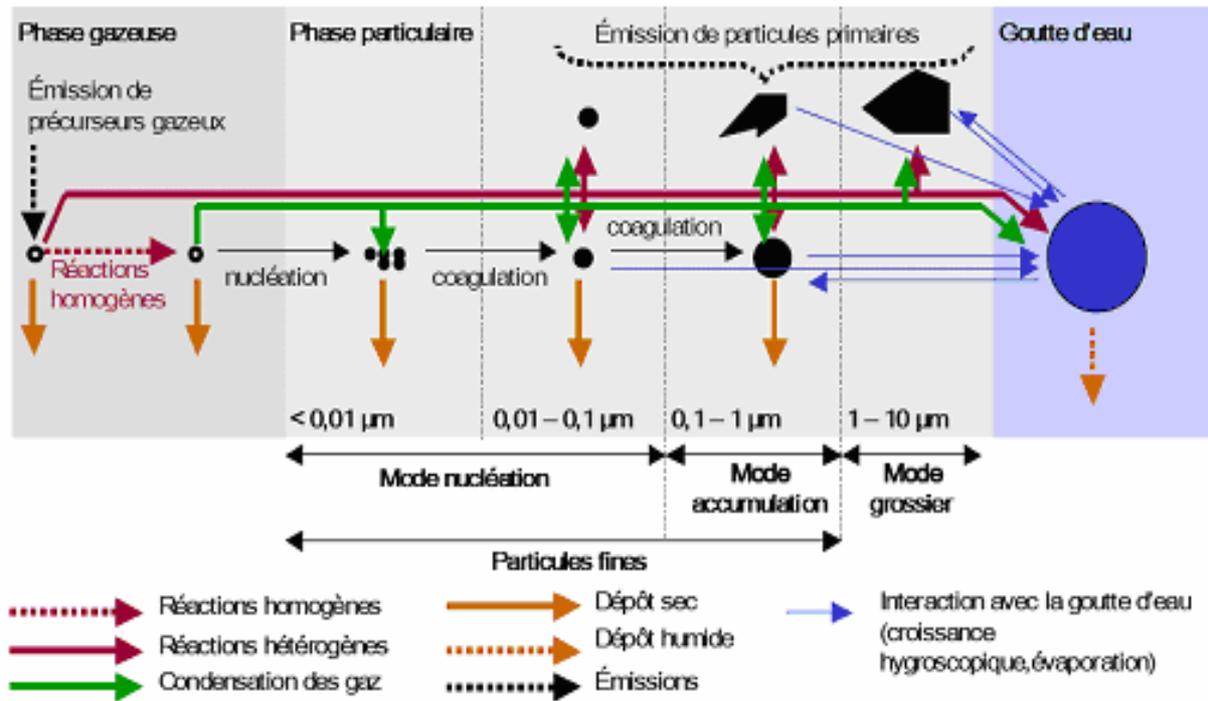


Figure 1 : Schéma simplifié des processus physico-chimiques de transformation des aérosols atmosphériques (adapté de Raes et al., 2000).

- Le mode “nucléation” est la fraction des “particules fines” de diamètre inférieur à $0,1 \mu\text{m}$. Les particules de ce mode grandissent par coagulation (des particules se combinent pour en former de plus grosses) ou par condensation (faible pression de vapeur à l’équilibre de molécules gazeuses condensées sur une particule).
- Le mode “accumulation” est constitué des particules dont le diamètre est compris entre $0,1 \mu\text{m}$ et $1-3 \mu\text{m}$; Elles proviennent soit du grossissement de noyaux par condensation, soit de la coagulation de particules du mode “nucléation”.
- Le mode des *particules fines* qui regroupent les modes “nucléation” et “accumulation” est également couramment utilisé. Il est caractérisé par des particules de diamètre aérodynamique inférieur à $1-3 \mu\text{m}$.
- Le mode des *grosses particules* correspond aux particules de diamètre supérieur à $1-3 \mu\text{m}$ qui sont souvent générées mécaniquement.

2.1.2. Le seuil de coupure

La fraction en taille des particules peut être associée à la méthode d’échantillonnage. Cette définition qui est liée à la capture de particules de diamètre inférieur ou dans une gamme de taille aérodynamique spécifique est définie en fonction du seuil de coupure pour un diamètre aérodynamique correspondant à 50% de l’efficacité de collecte. Elle est utilisée pour mesurer la fraction en taille des particules pour des applications spécifiques tels que : la santé,

la visibilité, la répartition des sources etc. Les échantillonneurs dichotomiques divisent les particules en fractions plus grosses et plus fines qui peuvent ensuite être collectées par différents substrats. Les impacteurs en cascade utilisent des seuils de coupure successifs afin d'obtenir une distribution des tailles aérodynamiques pour la mesure massique ou la composition chimique des particules.

2.2. Composition chimique des particules

2.2.1. En air extérieur

La composition des aérosols particuliers dans l'air ambiant est très hétérogène et varie en fonction du temps (jours, saisons, ...), des sources d'émission, de la météorologie et des transformations physico-chimiques qu'elles subissent (Lazaridis et al., 2002; Putaud et al., 2004). La composition des aérosols primaires est caractérisée par des sources naturelles (embruns marins, volcans, feux de forêts, envol des poussières par le vent...) ou anthropiques (transport, activités industrielles, incinération, agriculture, construction...). Les aérosols secondaires sont formés par des réactions chimiques ou par des processus d'adsorption entre composés organiques (COV) ou ioniques (NO_3^- , NH_4^+ , SO_4^{2-}) puis convertis en fines particules (Chow et Watson, 1998; WHO, 2000; WHO- Europe, 2006).

Les principaux constituants des particules sont des composés terrigènes ou crustaux (oxydes d'aluminium, silice, carbonates, etc.), des ions sulfates, nitrates, ammonium, chlorures, du carbone organique et/ou élémentaire, et de l'eau. (Perez et al., 2008; Querol et al., 2008).

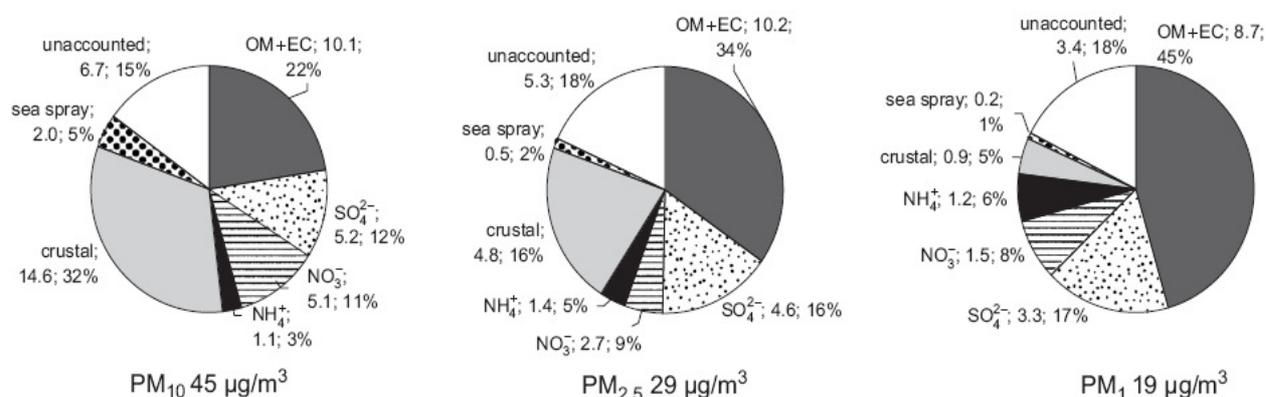


Figure 2 : La composition des particules atmosphériques PM₁₀ ; PM_{2.5} et PM₁ en site urbain (Perez et al., 2008).

“EC” pour carbone élémentaire ; “OM” pour matière organique ; “unaccounted” pour - non mesurée (bouclage à 100%). “crustal” pour poussières minérales correspond à la somme de Al_2O_3 , SiO_2 , CO_3^{2-} , Ca, Fe, K, Mg, Mn, Ti and P ; “sea spray” pour aérosol marins.

En général, les teneurs en éléments traces, sulfates, ammonium, carbones organique et élémentaire sont plus enrichis dans les fines particules que dans les grosses contrairement aux matériaux terrigènes et crustaux (Putaud et al., 2004; Perez et al., 2008).

Les résultats présentés dans la Figure 2 montrent que les poussières minérales présentent une plus forte contribution dans les PM₁₀ (32% de la masse) que dans les PM_{2,5} (16%) et dans les PM₁ (5%) tandis que les sulfates non marins, le NH₄⁺, le NO₃⁻, la matière organique et le carbone élémentaire sont principalement présents dans les PM₁ et PM_{2,5} : leur somme représente 76% dans PM₁, 64% dans les PM_{2,5} contre 48% dans les PM₁₀.

La fraction métallique représente un faible pourcentage de la masse totale de particules et se trouve majoritairement dans les fines particules (Cabada et al., 2004; WHO- Europe, 2005; Wang et al., 2006; Gemenetzi, 2006).

En général, la composition varie en fonction de la typologie du site de prélèvement. Pour les sites dits “naturels” et “ruraux”, la contribution des sources naturelles (sels marins et poussières minérales) est plus importante que pour les stations urbaines. A l’inverse, la fraction carbonée est plus élevée pour les stations de type trafic que pour les stations proches de centre-ville ou rurales (EPA-USA, 2004).

2.2.2. En air intérieur

La composition des particules dans l’air intérieur dépend fortement des sources internes ou extérieures, du régime de ventilation et de l’étanchéité du bâtiment qui gouvernent les échanges avec l’extérieur (Maroni et al., 1995; Kulmala et al., 1999; Koponen et al., 2001; Guo et al., 2008). Des processus de réaction entre les polluants tels que la réaction entre l’ozone et les NO_x ou les COV (Weschler et Shields, 1997; 1999) ou les réactions entre NH₃ et HNO₃ (Lunden et al., 2003) induisent également des variations en concentration de certains composés réactifs. De plus, des activités humaines telles que la cuisine, la fumée de cigarette, ou la combustion (bougie, bois, combustible fossile...) qui génèrent des composés organiques, du carbone élémentaire et des métaux (As, Cd, Cr, Co, K, Mn, Ni, Sr, Zn...) contribuent aux variations des teneurs et de la composition des particules, notamment les plus fines (Squinazi, 2002; Gemenetzi et al., 2006). Le dépôt des particules sur l’ensemble des surfaces des matériaux intérieurs, du sol et des murs (Thatcher et al., 2002) et les phénomènes de transfert des polluants entre les pièces dans les bâtiments (Feustel, 1999; Borchiellini et Furbringer, 1999) influencent également la composition des particules intérieures par l’élimination des particules en suspension dans l’air. La composition de particules intérieures est donc variable au cours du temps, et selon les environnements.

Bien que la problématique soit ancienne (Salthammer et al., 2011), il y a très peu d’études dans la littérature sur la composition des particules dans l’air intérieur. Selon celle menée par Fromme et al. (2008) dans une école en Allemagne, les principaux constituants trouvés dans les PM₁₀ en air ambiant extérieur (ions sulfates, nitrates, ammonium, chlorures, du carbone organique et élémentaire, ...) se trouvent également principalement dans les PM₁₀ en air intérieur (Figure 3). A titre d’exemple, OC et EC représentent respectivement environ 19% et 7% de la masse des PM₁₀ intérieures et environ 17% et 9,5% dans les PM₁₀ extérieures. Les sulfates et chlorures représentent cependant des portions plus importantes dans les PM₁₀ extérieures qu’intérieures : 2% et 1,8% contre 9% et 9% (Figure 3). Les

composés non identifiés sont également en proportion plus importante dans les PM₁₀ intérieures, soit plus de 54% contre environ 44% de la masse des PM₁₀ extérieures.

L'étude des teneurs en OC et EC dans l'air des résidences, écoles et bâtiments à Hong Kong menée par Ho et al., (2004) montre des teneurs respectivement de 22% et 9% des PM_{2,5} dans l'air intérieur tandis que ces valeurs à l'extérieur sont de 17% et 9%. Une autre étude menée dans des écoles en Californie (Sawant et al., 2004) indique que le OC représente une grande fraction des PM_{2,5} (40-60%) tandis que le EC reste en faible quantité (environ 6-7%). Notons que le carbone organique et élémentaire se retrouve essentiellement dans la fraction des particules de diamètre de 0,1 à 1 µm (Na et al.,2005).

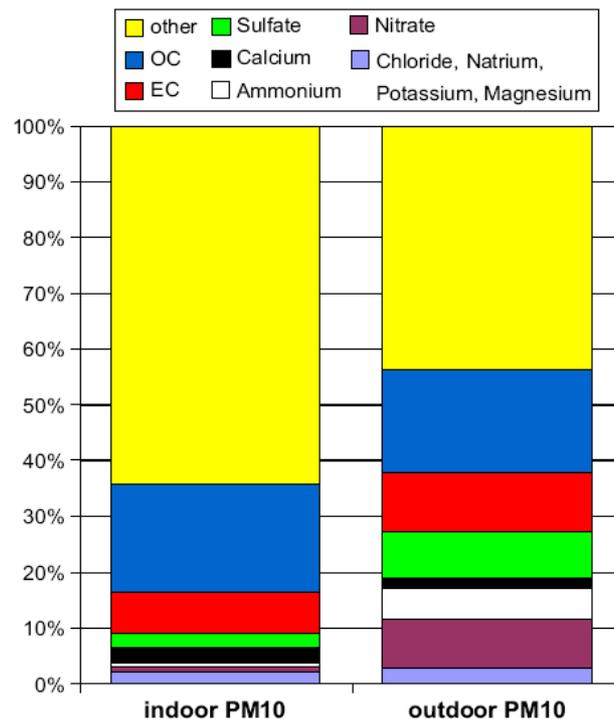


Figure 3 : La composition des particules PM₁₀ en air intérieur et extérieur d'une école (Fromme et al., 2008).

Selon des études récentes, les éléments terrigènes tels le silicium, calcium, potassium, aluminium et magnésium sont les éléments les plus abondants dans les fines et grosses particules intérieures tandis que les traces métalliques sont principalement présentes dans les fractions fines (Geller et al., 2002; Wang et al., 2006; Gemenetzi et al., 2006). Dans plusieurs salles de classe d'une université en Grèce, Gemenetzi et al. (2006) montrent que les éléments traces (Cd, Cu, Cr, Ni, Pb, Sb, Zn ...) dans les PM_{2,5} représentent environ 70 à 80% de leur teneur (exprimées en ng/m³) dans les PM₁₀ (Tableau 1). Les éléments majeurs tels que Mg, Al, Ca..., quand à eux, possèdent des teneurs similaires dans les PM_{2,5} et les PM₁₀.

Tableau 1 : Concentrations en particules ($\mu\text{g}/\text{m}^3$) et en différents éléments métalliques particulaires (ng/m^3) dans l'air intérieur (Gemenetzis et al., 2006).

	PM2,5					PM10					PM2,5/PM10	
	Moyen	SD	Médian	Min	Max	Moyen	SD	Médian	Min	Max	Moyen	SD
PM	91	56	77	11	250	118	68	103	25	370	0,8	0,2
Mg	134	157	60	38	624	340	354	212	43	1170	0,4	0,2
Al	289	333	179	26	1484	639	578	390	62	2200	0,5	0,2
Si	610	685	378	1,9	2645	1365	1295	815	90	4800	0,5	0,2
P	26	61	1	0,75	324	77	132	1,7	0,75	670	0,6	0,4
Si	1435	1310	1045	93	7870	1772	1532	1332	93	8635	0,8	0,2
Cl	990	1010	547	24	3920	1332	1087	1146	132	4420	0,7	0,3
K	1810	1619	1495	7,5	9700	2516	2010	2280	267	10030	0,7	0,3
Ca	3522	5126	1757	298	23600	9245	10500	5915	865	42900	0,4	0,2
Ti	45	41	30	13	155	87	78	60	15	355	0,6	0,2
V	12	11	6,5	5,5	70	14	14	7,8	5,7	90	0,9	0,2
Cr	23	9,6	21	3,8	55	32	15	28	15	96	0,8	0,2
Mn	35	20	28	14	105	49	33	37	18	170	0,8	0,2
Fe	426	276	310	157	1330	808	642	627	205	3350	0,6	0,2
Co	9,2	4,6	9,1	1,3	24	14	8	13	1,6	38	0,7	0,3
Ni	14	6,2	13	4,5	38	22	25	16	5,2	165	0,8	0,2
Cu	31	16	26	16	104	43	22	39	19	116	0,7	0,2
Zn	110	95	75	35	448	145	112	104	44	510	0,8	0,2
As	3,5	9,6	0,43	0,2	55	6,3	13	1,1	0,38	75	0,6	0,4
Se	5,1	3,1	4,6	0,43	14	7,2	3,5	7,1	0,43	18	0,7	0,3
Br	232	202	168	41	992	280	240	187	46	995	0,8	0,1
Sr	17	6,4	16	7,6	37	23	11	21	8,5	70	0,8	0,2
Cd	32	13	29	12	69	41	18	38	12	100	0,8	0,2
Sn	23	14	22	2	59	36	22	32	2,2	120	0,7	0,3
Sb	26	13	23	2,2	57	39	20	36	12	120	0,7	0,3
Te	28	11	28	6	50	43	29	41	8,6	176	0,8	0,2
Ba	125	39	122	41	252	164	76	146	77	458	0,8	0,2
Pb	60	38	49	30	232	74	46	53	32	233	0,8	0,2

PM : Particules, SD : écart-type

En résumé : La distribution des particules et la composition chimique de l'air intérieur se caractérisent à la fois par ses sources extérieures (anthropiques : trafic routier, industrie, travaux publics, construction, combustions diverses ; ou naturelles : resuspension des sols, embruns marins, volcanisme, ...), et intérieures (activités humaines et animales, fumée de cigarette, cuisine, certains matériaux du mobilier, ...). Les études précédentes indiquent que le renouvellement d'air ainsi que la qualité de la ventilation des bâtiments contribuent également à la variation de la composition des particules en modifiant la proportion et la teneur des concentrations en polluants extérieurs et intérieurs. Les réactions chimiques entre les polluants quand à elles modifient la composition, notamment des fines particules.

3. Les sources de particules

3.1. En air extérieur

3.1.1. Sources naturelles

Les principales sources naturelles de particules sont terrigènes (envol de poussières du sol, érosion des roches, ...), marines (embruns), biogéniques (pollens, spores, ...) ou liées à la combustion (feux de forêt, éruptions volcaniques, ...). Les plus grosses particules de sol arrachées par le vent retombent rapidement alors que les plus fines peuvent être transportées sur de longues distances (Renoux et Boulaud, 1998; WHO, 2000).

A l'échelle mondiale, les émissions naturelles sont très importantes bien qu'assez mal quantifiées car difficile à évaluer (Pacyna, 1998; Pacyna et Pacyna, 2001). Toutefois, à l'échelle locale, dans les grandes agglomérations et zones industrielles, ce sont les émissions anthropiques qui dominent (Matthijsen et Ten Brink, 2007).

3.1.2. Sources anthropiques

Bien que la tendance soit à une diminution des émissions depuis les dernières décades dans les pays développés, l'activité humaine est encore une source prépondérante de particules dans l'atmosphère. Les principales sources anthropiques émettrices de particules en Europe sont (Air quality guideline, WHO- Europe, 2005) :

- L'agriculture-sylviculture (pesticides, engrais, labours);
- L'industrie manufacturière (chimie, construction, agro-alimentaire, métallurgie; cimenteries, cokeries, traitement des déchets);
- Le résidentiel et tertiaire (combustion du bois, charbon et fioul, utilisation de peintures, équipement de réfrigération et d'air conditionné);
- Les transports (automobile, ferroviaire, fluvial, maritime et aérien);
- La transformation d'énergie (production d'électricité, raffinage du pétrole).

Selon l'inventaire d'émissions du CITEPA (2010) en France, les émissions de particules PM_{2,5} en 2008 ont été estimées à 282 kilotonnes, en baisse de 40,5% par rapport à l'année 1990. D'après la Figure 4, cette baisse concerne principalement les secteurs du résidentiel/tertiaire, la transformation d'énergie et le transport routier. Le résidentiel/tertiaire avec 34,1% des émissions totales en France métropolitaine suivi par l'industrie manufacturière (29,4%), le secteur de l'agriculture/sylviculture (20,5%), et le transport routier produisent la plus grande proportion de particules PM_{2,5} (Figure 4). Au sein de ces secteurs, les principaux émetteurs sont la combustion (bois, charbon et fioul,...), l'exploitation des carrières, les chantiers et travaux public ainsi que les labours.

Pour les PM₁₀ (452 kilotonnes en 2008), on constate également une baisse d'émission de 34% par rapport en 1990 (CITEPA, 2010). Le secteur qui contribue à la plus grande proportion d'émission est celui de l'agriculture/sylviculture suivi par l'industrie manufacturière et le résidentiel/tertiaire.

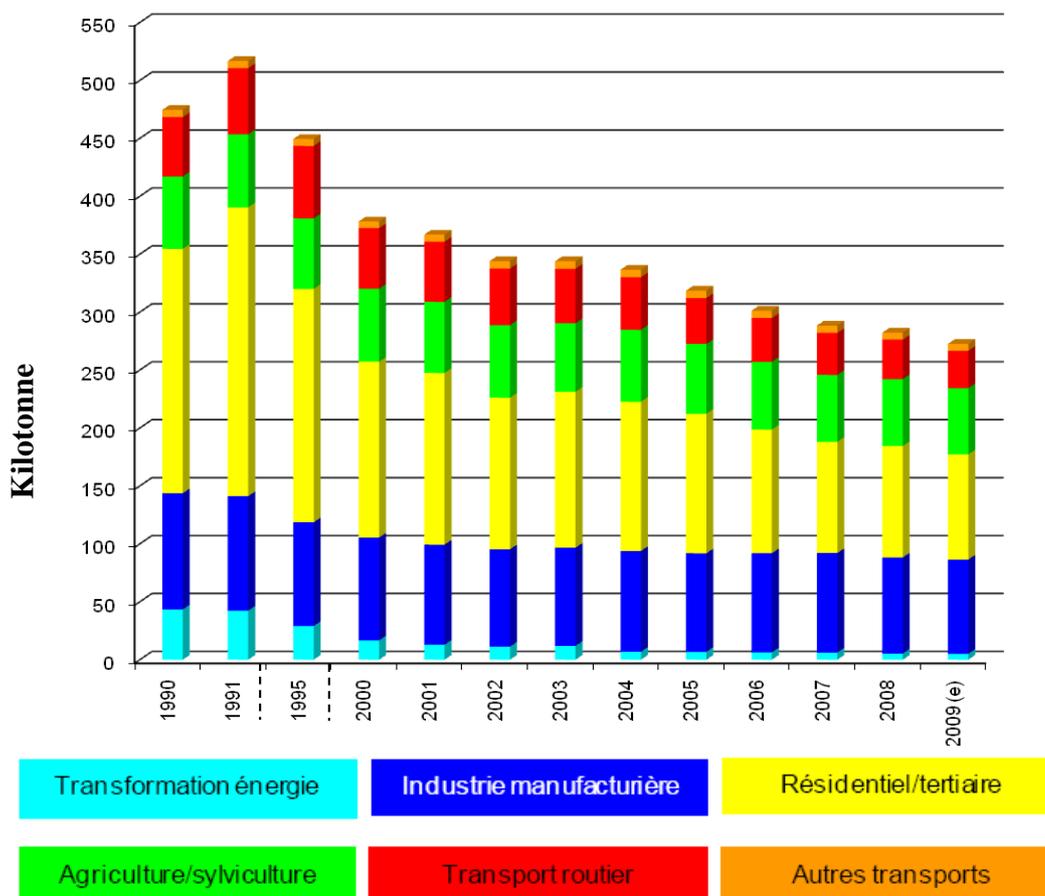


Figure 4 : La contribution des secteurs d'activité à l'émission des PM_{2,5} (CITEPA, 2010).

Certaines sources d'émission anthropique de particules se caractérisent par des éléments spécifiques utilisés dans des études de traçage et d'identification de sources. Ainsi, les particules émises par la combustion du carburant sont caractérisées par leur composition en hydrocarbures dont des COV et des hydrocarbures aromatiques polycycliques (HAP), et en carbone élémentaire (Morawska et al., 2002; Feng et al., 2009). Certains éléments traces sont également employés pour identifier des sources d'émission des particules (Tableau 2).

Tableau 2 : Eléments caractéristiques émis par diverses sources de combustion (Morawska et al., 2002).

Sources d'émission	Eléments caractéristiques émis
Centrale thermique au fuel	V, Ni
Emission des véhicules	Ba, Br, Pb
Incinération d'ordures ménagères	Cd, Cu, Hg, Sb, Zn
Combustion de charbon	Al, As, Co, Cr, Cu, Se
Raffineries	V
Pesticides	As

3.2. En air intérieur

La pollution intérieure se caractérise par un ensemble de polluants solides (amiante, particules, ...), gazeux (CO₂, CO, NO_x, SO₂, COV, ozone, radon) ou biologiques (bactéries, acariens,...) de diverses origines (Maroni et al., 1995; Butte et Heinzow, 2002; WHO-Europe, 2005). Deux familles de sources de polluants particulières en air intérieur sont envisagées : les sources extérieures et les sources intérieures proprement dites.

3.2.1. Particules provenant de sources extérieures

En absence de sources intérieures de polluants, leur présence en air intérieur est issue de l'extérieur (Maroni et al., 1995; Wolkoff et Kjaergaard, 2007). Par exemple, NO₂ (très souvent associés au trafic routier), SO₂, O₃, les pollens, certains composés organiques volatils (COV) et des hydrocarbures aromatiques polycycliques (HAP) représentent une fraction importante des polluants identifiés dans l'air intérieur (Camuffo et al., 1999; Wolkoff et Kjaergaard, 2007; Destailats et al., 2008). Par ailleurs, les rapports intérieur/extérieur des polluants varient en fonction des saisons, du régime de ventilation ainsi que de la fréquence d'ouverture des fenêtres (Geller et al., 2002; Poupard et al., 2005; Fromme et al., 2008).

Pour les particules, leur capacité de pénétration dans le bâtiment est en général moins importante que celle des gaz, mais elles sont toujours présentes dans l'air intérieur via le système de ventilation naturelle et/ou mécanique (Hussein et al., 2005; Guo et al., 2008). Ces particules peuvent rester longtemps en suspension dans l'air compte tenu de leur petite taille.

La pénétration des particules extérieures dans le bâtiment dépend fortement de leur taille. Elle est maximale pour des diamètres entre 100 et 400 nm, spécialement dans les zones résidentielles où la filtration préalable de l'air entrant n'est pas fréquente (Hussein et al., 2005).

Dans le cas d'utilisation de la ventilation naturelle, Chao et son équipe (2003) ont obtenu des coefficients de pénétration des grosses particules extérieures d'environ 48%. Par contre ce coefficient pour les fines particules (0,9-1,4 µm) est moins influencé par le régime de ventilation : 79% des concentrations en particules fines extérieures se retrouvent dans l'air intérieur.

La concentration en poussières intérieures peut comprendre environ 33% de poussières extérieures si la porte et la fenêtre sont fermées (Alzona et al., 1978).

Notons que la capacité de pénétration de particules extérieures dépend également de la géométrie et de la texture des matériaux des fissures présentes dans les parois. Elle dépend par ailleurs de la différence de pression entre l'intérieur et l'extérieur du bâtiment, et de la nature des particules (Thatcher et al., 1995; Lai, 2002; Narazoff, 2004).

Globalement, la pollution atmosphérique extérieure présente des cycles journaliers, hebdomadaires et saisonniers, soumis aux conditions météorologiques, qui avec le régime de ventilation des bâtiments, prennent une part plus ou moins importante dans la pollution de l'air intérieur (Squinazi, 2002).

3.2.2. Particules provenant de sources intérieures

Les sources d'émission des particules intérieures sont principalement en relation avec les activités des occupants. Elles contribuent pour une part très importante aux concentrations de particules intérieures et sont fortement variables en fonction des différentes activités. Les sources d'émission les plus importantes identifiées sont les suivantes : tabagisme, cuisson des aliments, appareils de chauffage et de combustion (cheminée d'agrément, chauffe-eau), ménage (remise en suspension de la poussière), bricolage, produits de nettoyage ou d'entretien des surfaces, cométiques (He et al., 2004; Hussein et al., 2005; 2006). Les imprimantes laser sont également des sources d'émission de particules fines et ultrafines (Ren et al., 2006; Lee et Hsu, 2007).

Kemens et al. (1991) ont mesuré que le volume total de particules est composé d'environ 30% de particules ultra fines durant la cuisson des aliments, et Morawska et al. (2003) ont également rapporté une concentration significative de particules (environ 100 fois plus élevés) durant l'activité de cuisson. Selon d'étude de Özkaynak (1999), la cuisine émet environ 246 ± 96 mg/h de PM_{10} dont 40% de $PM_{2,5}$. Une synthèse de la littérature a montré que la gamme de variation des concentrations en particules lors des activités de cuisine est très large en fonction des différents types de cuisine, du renouvellement d'air et du positionnement des analyseurs par rapport à la source (Hussein et al., 2006).

Le tabagisme, première source de pollution de l'air intérieur entraîne une augmentation des concentrations en particules fines (Bi et al., 2005; Ott et Siegmann, 2006) avec une taille moyenne de $0,22 \mu m$ (Miller et Nazaroff, 2001). La fumée de cigarette peut émettre 3,7 mg $PM_{2,5}$ /cigarette (Miller et Nazaroff, 2001) ou 22 ± 8 mg PM_{10} /cigarette (Özkaynak et al., 1996). Notons ici que ces deux études utilisent différentes types de cigarettes et différentes méthodes de mesure.

Différentes activités humaines et les sources d'émission de particules $PM_{2,5}$ correspondantes sont synthétisées dans le Tableau 3. Chaque source d'émission est également variable au cours du temps liée sans doute à la durée des activités et au taux de renouvellement d'air.

Le mouvement des occupants provoque une augmentation significative de particules dans l'air intérieur par la remise en suspension des particules déposées, notamment sur le sol (Thatcher et Layton, 1995; Ferro et al., 2004; Gomme et Bahnfleth, 2007). Selon Thatcher et Layton. (1995), marcher dans une salle peut augmenter de 100% la concentration des grosses particules. Ferro et al. (2004) montrent que des activités physiques humaines dans une maison telles que s'asseoir, marcher, utiliser l'aspirateur, danser, plier des vêtements ou des couvertures peuvent émettre de 1,8 à 30 mg/h de $PM_{2,5}$ et de 6 à 84 mg/h de PM_5 .

Tableau 3 : Concentrations moyennes et vitesse d'émission des PM_{2,5} lors de différentes activités humaines dans une maison (He et al., 2008).

Type d'activité	Médiane des concentrations max (mg/m ³)	Vitesse d'émission (mg/h)	Médiane des concentrations max (particules.10 ³ /cm ³)	Vitesse d'émission (particules.10 ¹¹ /h)
Préparation alimentaire				
Cuisine	37	6,6	126	340
Cuisson pizza	735	95,4	137,3	99
Friture	745	160,8	154	285
Grillade	718	166,8	161	440
Bouilloire	13	1,8	15,6	21
Micro-onde	16	1,8	16,3	33
Four	24	14,4	61,5	76
Fourneau	57	6,6	179	440
Autres activités				
Fumée de cigarette	79	59,5	26,6	115
Balayage du sol	35	3	34,9	7,2
Aspirateur	16	4,2	41,	58
Lavage	18	2,4	30,9	58
Bougie	132	54,6	74,6	331
Ventilateur	20	3	11	224
Sèche cheveux	45	2,4	9,5	6,6
Douche	20	2,4	10,7	47

Les concentrations en particules dans l'air intérieur dépendant de nombreux facteurs variables sont donc significativement différentes d'une étude à l'autre. Le Tableau 4 synthétise quelques études sur la masse de particules dans différents pays. Les valeurs maximales des concentrations en PM_{2,5} et PM₁₀ sont respectivement de 99,1 et 128,1 µg/m³ à Guangzhou (Chine), connu pour sa pollution atmosphérique (Wang et al., 2006) et les valeurs minimales sont respectivement de 17 et 37,7 µg/m³, observées dans des maisons aux Etats-Unis.

Tableau 4 : Concentrations moyennes en PM_{2,5} et PM₁₀ de l'air intérieur d'après la littérature.

Auteurs	Type de local	PM _{2,5} (µg.m ⁻³)	PM ₁₀ (µg.m ⁻³)
Neas et al., 1994	Maison, USA	17	
Chao et al., 2002	Maison, Hongkong	42,7	60
Breyse et al., 2005	Maison Baltimore	25,8	37,7
Fromme et al., 2007	Ecole, Allemagne	19,8	91,5
Branis et al., 2005	Ecole, Tchèque	21,9	42,3
Gemenetzi et al., 2006	Salle universitaire, Grèce	67	93
Wang et al., 2006	Hopitaux, Chine	99,1	128,1
OQAI, 2006	Logement, France	> 19,1(*)	> 31,3(*)

(*) 50% des logements présentent des valeurs supérieures à ces valeurs

3.2.3. Sources intérieures des autres polluants présents dans l'air intérieur

Certains polluants gazeux présents dans les environnements intérieurs peuvent être à l'origine de la formation d'aérosols secondaires, s'absorber sur les particules ou participer à leur transformation.

3.2.3.1. Composés organiques volatils (COV), carbone organique et carbone élémentaire

Les COV (alcane, alcools aliphatiques, aldéhydes, acides, esters, et des hydrocarbures aromatiques polycycliques (HAP)) sont issus des matériaux de construction du bâtiment et du polissage du sol, des produits d'étanchéité et des lubrifiants, de la décoration, des produits d'entretien, des cosmétiques, de la bureautique, du bricolage et du tabagisme (Phillips et al., 1993; Gemenetzi et al., 2006; Reff et al., 2007; Weschler et Shields, 1997; 1999). Les appareils à combustion (chauffage, chauffe-eau, cuisinière) sont également des sources d'émission importantes de COV (Levesque et al., 2001; Hussein et al., 2006; Marchand et al., 2008). Leur point commun est de s'évaporer plus ou moins rapidement à température ambiante et de se retrouver dans l'air. Les COV sont souvent plus nombreux et plus concentrés à l'intérieur qu'à l'extérieur compte tenu de la multiplicité et de la proximité des sources. Leurs sources d'émission selon la littérature sont présentées en Annexe 1.

Halios et al. (2005) ont trouvé que les concentrations en COV totaux, en présence de fumée de cigarette, sont 10 fois supérieures aux teneurs habituelles, les concentrations ne diminuant qu'1 à 2 heures après l'arrêt de la source d'émission.

Les aldéhydes qui appartiennent en partie à la famille des COV sont également issus de réactions photochimiques entre ozone et certains COV présents dans l'air (Weschler et Shields, 1997; Marchand et al., 2008) ou de produits de construction et de décoration

contenant des composés à base de formaldéhyde (reconnu cancérigène probable depuis 2005). Le formaldéhyde est présent dans de très nombreux produits d'usage courant : mousses isolantes, laques, liants ou colles urée-formol, vernis, encres, résines, papier, produits ménagers, pesticides, bois agglomérés et contreplaqués (Levesque et al., 2001; Atmo NPdC 2009). Il provient de sources de combustion (fumée de tabac, bougies, bâtonnets d'encens, cheminées à foyer ouvert, cuisinières à gaz, poêles à pétrole) (Squinazi, 2002).

La campagne nationale des logements (OQAI, 2006) a montré que tous les logements en France contiennent du formaldéhyde et qu'il était le COV le plus abondant en masse.

Dans les écoles maternelles et élémentaires en France, la concentration en aldéhydes totaux dans les classes (en journée) est de l'ordre $140 \pm 60 \mu\text{g}/\text{m}^3$ tandis que cette valeur à l'extérieur est environ de $60 \pm 50 \mu\text{g}/\text{m}^3$. La nuit, ces valeurs sont inférieures à celles de la journée et elles présentent un ratio Intérieur/Extérieur de l'ordre 5-6 (Mosqueron et Nedellec, 2001).

La concentration en OC de l'air intérieur, surtout dans des résidences, est très souvent supérieure à celle de l'air extérieur en lien avec des sources d'émissions intérieures (cuisine, fumée des cigarettes, combustion...) mais pas celle du EC (Ho et al., 2004; Sawant et al., 2004; Na et al., 2005). Les sources d'émission de l'EC intérieures sont principalement la combustion du charbon et du carburant ainsi que l'utilisation de cartouche d'encre pour les imprimants lasers (Wolkoff et al., 1993; Ren et al., 2006; Lee et Hsu, 2007).

Parallèlement aux sources d'émission des COV, les peintures induisent des poussières de plomb dans les immeubles anciens qui contiennent encore des peintures à la céruse (hydrocarbonate basique de plomb) (Squinazi, 2002).

3.2.3.2. Polluants gazeux inorganiques (CO, NO₂, O₃)

Ces gaz jouent un rôle importants en termes de qualité de l'air intérieur en lien avec leur toxicité (cas du CO) ou aux réactions photochimiques entre polluants à l'origine de la formation de particules secondaires (Weschler et shields, 1997; Uhde et Salthammer, 2007).

Le monoxyde de carbone (CO) est un gaz très toxique, mortel, incolore, inodore qui se forme lors de la combustion incomplète de matières carbonées : charbon, pétrole, essence, fioul, gaz, bois (Jones, 1999). Les sources intérieures émettant le CO sont :

- Les appareils de combustion (à gaz, fioul, pétrole, bois ou charbon) non ou mal raccordés à un conduit d'évacuation ou fonctionnant dans de mauvaises conditions d'aération : conduits bouchés ou obstrués, inversion de tirage provoquée par une extraction mécanique dans la même pièce (refoulement ou fuite lié à une mauvaise étanchéité),

- Les gaz d'échappement de moteurs de voitures en fonctionnement dans des pièces fermées (ex : garage attenant à l'habitation) ou peu ventilées,
- Le tabagisme.

En absence de sources, la concentration en CO de l'air intérieur est inférieure à celle de l'air extérieur et le rapport intérieur/extérieur est généralement plus élevé en hiver qu'en été, du fait de l'utilisation des appareils de chauffage. Ce rapport est d'environ 0.49- 0.79 et 0,53-0,89, respectivement en été et en hiver (Chaloulakou et Mavroidis, 2002).

Le monoxyde d'azote (NO) est issu des phénomènes de combustion à haute température par oxydation de l'azote de l'air. Le dioxyde d'azote (NO₂) est, quant à lui, un polluant dit secondaire car il provient majoritairement de l'oxydation du NO selon la réaction :

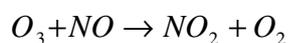


Leur présence dans les locaux est due à des sources externes (foyers pour l'industrie et le chauffage, trafic automobile) ou internes telles que les appareils fonctionnant au gaz (cuisinières, chaudières, chauffe-eau, poêles à pétrole). En absence de sources intérieures, la concentration en oxydes d'azote dans l'air intérieur est inférieure à l'air extérieur et le coefficient de pénétration est entre 33 et 60% portes fermées. La demi-vie du NO₂ à l'intérieur est de l'ordre de 30 minutes (Viala et Grimaldi, 1988).

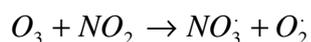
Jusqu'en 2000, il y a eu une douzaine de travaux français (principalement en Ile de France) sur la pollution dans les bâtiments (habitats, bureaux, établissements scolaires) par le NO₂ (Mosqueron et Nedellec., 2001). Les résultats obtenus restent difficiles à comparer en raison de l'hétérogénéité des mesures et des sites sélectionnés. Toutefois, de manière similaire à ce qui est décrit dans la littérature internationale, les teneurs en NO₂ à l'intérieur des bâtiments sont dues à utilisation d'appareils au gaz, au tabagisme, à la pollution extérieure de fond, la proximité du trafic automobile et au taux de renouvellement d'air.

L'ozone est un polluant dit secondaire résultant de la transformation, sous les effets du rayonnement solaire, de polluants (NO₂, CO, COV) essentiellement produits en zone urbaine par les véhicules. Il provient donc principalement de l'extérieur ou de sources locales spécifiques : imprimantes laser, anciennes photocopieuses (maintenant équipées de filtres à ozone), précipitateurs électrostatiques (Weschler et Shields, 1997). En absence de tels sources et pour des conditions d'aération normales, les teneurs intérieures représentent environ 20-30% des teneurs extérieures du fait de la forte réactivité de ce polluant avec les surfaces et d'autres composants dans l'air intérieur (Weschler et Shields, 1997; Chao, 2001).

Bien connues, les réactions d'ozone avec des hydrocarbures insaturés et NO_x dans l'air intérieur ont une influence sur la santé, le confort et le matériel. En présence d'ozone, le monoxyde d'azote réagit en formant le dioxyde d'azote par la réaction oxydo-réductrice :



L'ozone réagit également avec le dioxyde de l'azote par former des radicaux nitrates.



Ces radicaux vont ensuite former les radicaux $HO\cdot$; $HO_2\cdot$; $RO\cdot$... puis en formant de l'acide nitrique, une large gamme de composés organiques volatils (VOC), voire des aérosols secondaires potentiellement toxiques (Weschler et Shields, 1997; 2003; Uhde et Salthammer, 2007).

4. Impacts de la pollution atmosphérique particulaire

Les émissions de particules dans l'atmosphère entraînent une pollution de l'air qui a des effets aussi bien à l'échelle locale (impacts sur la santé, sur les écosystèmes) qu'à l'échelle régionale (transport de particules sur de longues distances, modification du régime des précipitations), voire à l'échelle mondiale (modification du climat) (Ramanathan et al., 2001).

4.1. Les impacts sur la santé de l'Homme

L'impact des polluants sur la santé humaine est généralement évalué par l'intermédiaire d'études épidémiologiques et toxicologiques.

4.1.1. Etudes épidémiologiques

Au cours des dernières décennies, l'évaluation des liens à court terme entre les niveaux de pollution atmosphérique couramment observés, notamment particulaire, et la mortalité a fait l'objet de nombreuses études épidémiologiques aux USA tout d'abord (Pope et al., 1999; Brunekreef et Holgate, 2002) puis en Europe (projets APHEA-2 et APHEIS).

D'une manière générale, les résultats sont en faveur d'une association positive entre la mortalité et les principaux traceurs de la pollution atmosphérique (dioxyde d'azote, particules, ozone, dioxyde de soufre, monoxyde de carbone). Ces associations sont souvent significatives pour les études menées sur plusieurs sites mais plus variables pour les études réalisées dans une seule agglomération (Prouvost et Declerco, 2004).

Les effets des particules PM_{10} et $PM_{2,5}$ ont largement été étudiés depuis une vingtaine d'années et ont mis en évidence un lien à court-terme et à long-terme entre les concentrations ambiantes en particules et la survenue ou l'aggravation de pathologies cardio-respiratoires, pouvant aller jusqu'au décès (Prouvost et Declerco, 2004). Des associations significatives entre la pollution atmosphérique et la mortalité pour causes cardio-vasculaires ont été retrouvées avec différents polluants gazeux tels que le dioxyde d'azote (NO_2), le dioxyde de soufre (SO_2), le monoxyde de carbone (CO) et les particules, notamment les fines (INVS, 2008). Plusieurs travaux ont également montré une association positive entre la pollution atmosphérique et la mortalité pour causes respiratoires. L'exposition à la pollution de l'air semble en outre avoir plus d'effet à long terme sur la mortalité respiratoire que sur la mortalité totale ou cardiovasculaire (INVS, 2008).

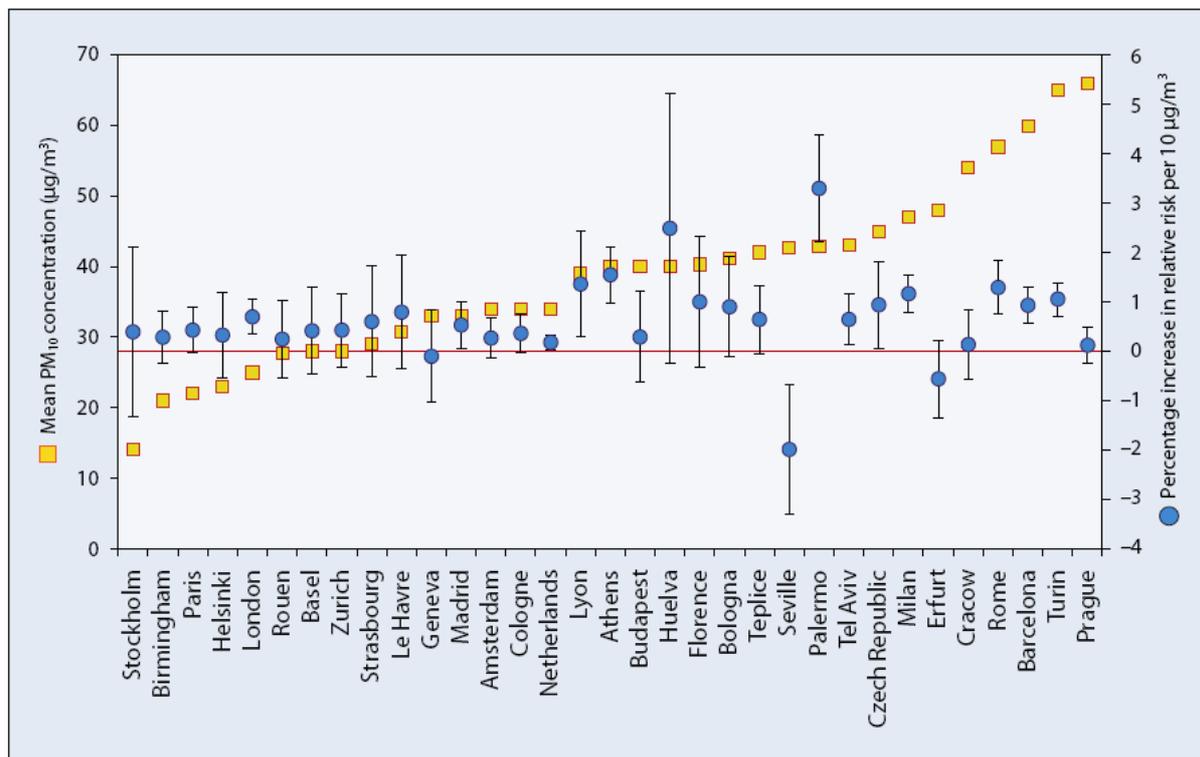


Figure 5 : Classement des effets des PM₁₀ estimés pour toutes les causes de mortalité moyenne annuelle selon les niveaux de PM₁₀ (WHO- Europe, 2005).

L'étude de l'effet sur la santé de particules PM₁₀ de 33 villes européennes (Figure 5) montre que l'augmentation de la mortalité, toutes causes confondues, est de l'ordre de 0,6% pour une augmentation en concentration de 10 µg/m³ des PM₁₀ (WHO- Europe, 2005) mais cette valeur est variable pour chaque ville et n'est pas toujours cohérente pour certaines villes en Europe (Seville, Palermo...).

Pour les particules ultrafines, les études épidémiologiques sont moins nombreuses mais se développent depuis une dizaine d'années. A Lille, l'exposition aux particules fines (0,01 à 1 µm) d'un groupe d'enfants de 7 à 12 ans et l'autre de 8 à 13 ans présente dans deux études, des résultats contradictoires (Prouvost et Declerco, 2004). Pour l'une cependant, les performances respiratoires des enfants sont associées négativement aux concentrations en PM₁.

4.1.2. Etudes toxicologiques

4.1.2.1. La pénétration des particules en fonction de leur taille

On peut globalement déterminer trois régions de dépôt pour les plus petites particules : les régions nasopharyngées et trachéobronchiales où le mécanisme de clairance est mucociliaire et l'élimination des particules rapide (en 24 h environ), la région alvéolaire où la clairance macrophagique est plus lente, la demi-vie des particules pouvant atteindre des mois.

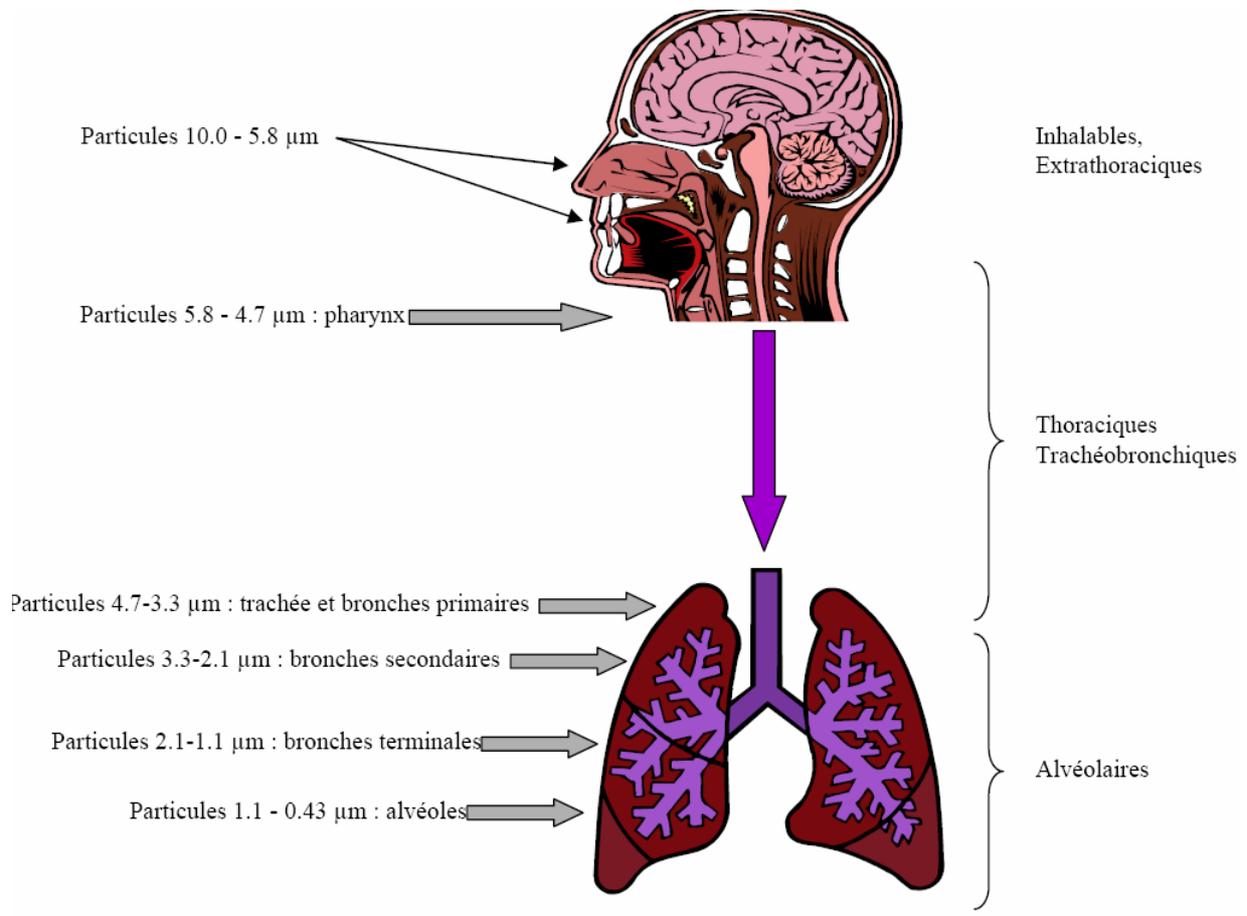


Figure 6 : Niveau d'accumulation des particules en fonction de leur taille (CITEPA, 2000).

On considère que les grosses particules ($d > 5 \mu\text{m}$) s'arrêtent dans la région nasopharyngée, (Figure 6). Les particules de 1 à 5 μm sont stoppées dans la région trachéobronchiale, alors que les particules fines, inférieures à 1 μm , peuvent atteindre les régions bronchiolaire et alvéolaire et y persister (INVS, 2007).

4.1.2.2. Effets toxicologiques

La connaissance de la composition chimique des particules et de leur répartition en taille est tout aussi importante que la mesure des quantités présentes dans l'air car les effets sanitaires (problèmes respiratoires et cardio-vasculaires) dépendent de ces trois paramètres. Plus les particules sont fines, plus elles pénètrent profondément dans les poumons, avec une double action liée aux particules proprement dites mais également aux polluants qu'elles transportent. Elles peuvent en effet véhiculer à leur surface des substances toxiques capables de passer la barrière air/sang au niveau des alvéoles pulmonaires. Ainsi, les particules ultrafines présentent une surface réactive totale beaucoup plus importante qu'un nombre équivalent de grosses particules (Prouvost et Declerco, 2004).

Les métaux toxiques pour la santé et l'environnement (As, Cd, Cr, Hg, Ni, Pb, Zn ...) se retrouvent généralement associés aux particules (sauf le mercure en partie gazeux) et s'accumulent dans l'organisme, provoquant des effets toxiques à court et/ou long-terme

(Prouvost et Declerco, 2004). Le mécanisme de toxicité de ces métaux se base sur leur potentiel d'oxydation, résultant de la formation d'espèces réactives. La forme soluble de ces métaux peut être impliquée dans des réactions de transfert d'électrons et de cycle d'oxydoréduction qui produisent des radicaux libres (WHO-Europe, 2005). Les effets toxicologiques des particules, en particulier les ultrafines, sur l'appareil cardio-vasculaire, les mécanismes de stress oxydant et la réponse inflammatoire ainsi que sur les barrières biologiques ont été mis en évidence par plusieurs études biologiques (INVS, 2007).

Il est donc de plus en plus évident, à travers les données épidémiologiques et toxicologiques (Englert, 2004; Lewtas, 2007; Bernstein et al., 2008; Salonen et al., 2008), que les particules fines et ultrafines posent des problèmes sanitaires particuliers et que la réglementation doit évoluer. Par ailleurs, il reste encore beaucoup d'inconnues sur le comportement de ces particules dans l'organisme.

4.2. Les impacts sur l'environnement

Les particules peuvent avoir un impact sur le changement climatique (phénomène de forçage radiatif) (Ramanathan et al., 2001; Matthijsen et Ten Brink, 2007), la modification des régimes de précipitations, l'acidité des pluies, la pollution des sols, des eaux de surface ou aquifères et de la végétation (Cellier et al., 2005), la réduction de la visibilité et la dégradation des bâtiments (Lefèvre et al., 2005).

En effet, en influençant le bilan radiatif de l'atmosphère (différence entre rayonnement solaire incident et réfléchi), les particules jouent un rôle dans le changement climatique global (Colbeck, 1995; Matthijsen et Ten Brink, 2007). Elles agissent de deux manières :

- Par un effet direct des aérosols qui dépend de leur quantité et de leurs propriétés optiques. Les particules d'aérosols diffusent la lumière solaire et renvoient vers l'espace une partie du rayonnement avant qu'il n'induisse un réchauffement de la terre,
- Par un effet indirect par le biais des nuages. Les aérosols servent de "noyaux de condensation" pour former des nuages. Dans une atmosphère fortement chargée en aérosols, une même quantité d'eau peut se répartir sur un plus grand nombre de gouttes plus petites qui réfléchissent mieux le rayonnement solaire vers l'espace,
- Les aérosols sont également la cause de la réduction de la visibilité dans les zones urbaines et industrielles à cause de la discontinuité de l'indice de réfraction à la surface de la particule comme à travers un gaz (Cahill, 1995).

5. Valeurs réglementaires dans le domaine de la qualité de l'air

5.1. Valeurs réglementaires pour l'air extérieur

En 1987, le terme PM₁₀ apparaît comme un indicateur pour la norme sur l'air aux Etats-Unis suivi par les PM_{2,5} en 1997 (Wilson et al., 2002). En Europe on utilise les deux normes caractérisant les particules PM₁₀ (EN 12341, 1999) et PM_{2,5} (EN 14907, 2005) permettant de répondre aux exigences de la directive européenne 2008/50/CE. Selon ces normes, les valeurs limites de PM₁₀ pour 24h et annuelles sont respectivement de 40 µg.m⁻³ et 50 µg.m⁻³. La valeur limite annuelle pour les PM_{2,5} de 25 µg.m⁻³ fixée par cette directive doit être appliquée à partir de 2015.

Dans le cadre réglementaire de la pollution atmosphérique, l'OMS (Organisation Mondiale de la Santé ou WHO - World Health Organization) et le CEN (Comité Européen de Normalisation ou ECS - European Committee for Standardisation) distinguent donc deux granulométries de particules (les PM₁₀ et les PM_{2,5}) qui jouent un rôle essentiel au niveau sanitaire. Ces deux fractions particulières, les PM_{2,5} (principalement les particules fines) et les PM₁₀ (particules fines et grosses) sont considérées comme des indicateurs de l'effet sur la santé tel que l'augmentation de la mortalité (WHO-Europe, 2003).

Au niveau des métaux, deux directives européennes (Directive n° 1999/30/CE et Directive n°2004/107/CE) sont appliquées pour réglementer les teneurs en As, Ni, Cd et Pb et HAP sous forme particulière dans l'air ambiant en raison de leur toxicité avérée pour l'homme. Les valeurs limites de ces métaux sont présentées dans le Tableau 5.

Tableau 5 : Réglementation européenne pour As, Cd, Ni et Pb dans les particules PM₁₀ dans l'air ambiant.

Directives européennes	Eléments concernés	Valeurs limites (ng/m ³)
Directive n° 1999/30/CE du 22 avril 1999	Pb	500
Directive n° 2004/107/CE du 15 décembre 2004	AS	6
	Cd	5
	Ni	20
	Benzo(a) pyrène	1

* Moyenne calculée sur l'année civile du contenu total de la fraction PM₁₀

5.2. Valeurs réglementaires pour l'air intérieur

Selon l'ANSES, malgré l'évidence croissante des effets sanitaires liés à l'exposition par inhalation aux particules ultrafines (diamètre aérodynamique < 100 nm), les connaissances scientifiques sont actuellement insuffisantes pour établir une relation dose-réponse et de fait, une valeur guide de qualité de l'air (AFSSET, 2009).

Les valeurs guides de qualité de l'air à court terme (24 h) sont donc prises égales à 25 $\mu\text{g}\cdot\text{m}^{-3}$ pour les $\text{PM}_{2,5}$ et 50 $\mu\text{g}\cdot\text{m}^{-3}$ pour les PM_{10} . Ces valeurs provenant de l'OMS restent des valeurs de gestion. Certaines valeurs guides dans différents pays sont également synthétisées dans le Tableau 6. Par contre, il n'existe pas encore de valeurs guides en ce qui concerne la composition chimique des particules dans l'air intérieur.

Tableau 6 : Valeurs Guides de l'OMS et de différents pays pour les PM_{10} et $\text{PM}_{2,5}$ pour des expositions par inhalation (adapté du AFSSET, 2009).

Organisme	Milieu concerné	Valeur guide et durée d'exposition associée
EXPOSITION COURT TERME (AIGUÉ)		
24 H		
OMS	Air intérieur	
$\text{PM}_{2,5}$		25 $\mu\text{g}/\text{m}^3$
PM_{10}		50 $\mu\text{g}/\text{m}^3$
Santé Canada	Logements	
$\text{PM}_{2,5}$		100 $\mu\text{g}/\text{m}^3$ (1h)
Norvège	Air intérieur	
$\text{PM}_{2,5}$		20 $\mu\text{g}/\text{m}^3$
Texas	Bâtiments publics	
$\text{PM}_{2,5}$		65 $\mu\text{g}/\text{m}^3$
PM_{10}		150 $\mu\text{g}/\text{m}^3$
EXPOSITION CHRONIQUE		
ANNUELLE		
OMS	Air intérieur	
$\text{PM}_{2,5}$		10 $\mu\text{g}/\text{m}^3$
PM_{10}		20 $\mu\text{g}/\text{m}^3$
Santé Canada	Logements	
$\text{PM}_{2,5}$		20 $\mu\text{g}/\text{m}^3$
FISIAQ, Filande	Air intérieur et Bâtiments	
PM_{10}	publics	Niveau 1 : 20 $\mu\text{g}/\text{m}^3$ Niveau 2 : 40 $\mu\text{g}/\text{m}^3$ Niveau 3 : 50 $\mu\text{g}/\text{m}^3$
Texas	Bâtiments publics	
$\text{PM}_{2,5}$		15 $\mu\text{g}/\text{m}^3$

6. Etudes publiées sur la qualité de l'air intérieur

La recherche sur la qualité de l'air intérieur ne s'est vraiment développée que depuis quelques dizaines d'années. La recherche fondamentale ainsi que l'étude des facteurs influents, tels que l'effet des particules ou des polluants spécifiques sur la santé est encore limitée (WHO- Europe, 2003). En Europe, l'étude EXPOLIS (Exposure Distribution of Adult Urban Populations) - une des premières études à grande échelle a permis d'évaluer

l'exposition de la population à divers polluants atmosphériques dans plusieurs villes européennes entre 1996 et 1997 (OQAI, 2004). Une approche commune de mesurages (prélèvements et analyses) suivant des procédures d'assurance qualité clairement définies a été appliquée dans 7 villes retenues pour l'hétérogénéité de leurs caractéristiques en termes de taille, de localisation géographique, de conditions climatiques, de comportements des individus. La stratégie mise en œuvre avait également pour objectifs d'une part de rechercher les déterminants de l'exposition individuelle, notamment l'influence des milieux intérieurs (domicile, travail) et des comportements individuels, et d'autre part de comparer les expositions individuelles et les expositions ambiantes.

Les études françaises sur la pollution intérieure par les particules réalisées jusqu'à 2001 (Mosqueron et Nedellec, 2001) sont synthétisées dans l'Annexe 2. Ce domaine est relativement peu documenté en comparaison des nombreux travaux sur l'air ambiant extérieur (Jones, 1999; Stranger et al., 2007; Fromme et al., 2008).

Au début des années 1990, on recense quelques travaux centrés sur l'habitat et les établissements scolaires mais la majorité des travaux français avait généralement une portée régionale ou locale, ce qui limite leur représentativité (OQAI, 2004). Jusqu'en 1999, les travaux relatifs aux particules inertes sont quasi absents de la recherche française. La qualité de l'air intérieur dépend de facteurs tels que les sources d'émission intérieures, les activités des occupants, la ventilation, la structure du bâtiment, qui sont variables au cours du temps, et d'un endroit à l'autre (Blondeau et al., 2005; He et al., 2006; Crist et al., 2008). La comparaison de la qualité de l'air de différents espaces clos très hétérogènes présente donc des limites. Par ailleurs, les études en milieux clos rencontrent également certaines difficultés telles que le désagrément sonore des appareils de mesure, la perturbation des activités, ou la sécurité... Finalement, l'absence de valeurs réglementaires et de normes pour la qualité de l'air intérieur peut en partie expliquer ce faible engagement.

Récemment, diverses équipes se sont à nouveau intéressées à la pollution particulaire dans les locaux en France (OQAI, 2004). Des améliorations techniques notoires permettent de mesurer des particules de faible diamètre (particules fines et ultrafines) avec de faibles débits de prélèvement. Ces travaux s'inscrivent presque tous dans le cadre du programme de recherche PRIMEQUAL (PRIMEQUAL, 2007).

Durant la période 2003-2005, une première campagne nationale sur la qualité de l'air intérieur dans les logements français a été effectuée sur un total de 567 logements tirés au sort (1 612 individus enquêtés), représentatifs de la situation des 24 millions de résidences principales en France continentale métropolitaine (Kirchner et al., 2007). Cette étude (OQAI, 2006) est ciblée sur une trentaine de polluants chimiques, physiques et microbiologiques.

Si les travaux français ont confirmé l'existence de sources intérieures de particules comme le tabagisme par exemple, l'influence d'autres facteurs internes (activités de cuisine ou nettoyage, remise en suspension particulaire...) reste difficile à quantifier ou même tout simplement à mettre en évidence.

7. La modélisation du comportement dynamique des particules dans l'air intérieur

7.1. Mécanismes de formation et d'élimination des aérosols particulaires

7.1.1. Formation des aérosols particulaires

L'aérosol dans l'air intérieur est formé essentiellement par les mécanismes suivant : condensation, combustion, resuspension et pulvérisation.

- La condensation conduit à une formation par nucléation homogène (conversion gaz-particule) où des molécules gazeuses en s'associant peuvent grossir progressivement par condensation jusqu'à devenir des phases condensées (nanoparticules). Des particules de diamètre plus important (100 nm à 1 μm), correspondant à des mécanismes de formation hétérogène peuvent se produire également lorsque des phases vaporisées se condensent à la surface de phases condensées préexistantes (Maroni et al., 1995).

- La combustion à haute température conduit également à la formation de petites particules liquides ou solides (Jones, 1996; He et al., 2005) telles que la suie (carbone élémentaire issu d'une combustion incomplète).

- La resuspension liée aux activités humaines (balayage, mouvements) ou aux mouvements d'air (vent) met préférentiellement en œuvre de grosses particules solides (Thatcher et Layton, 1995; Ferro et al., 2004; Nazaroff, 2004).

- Les processus de pulvérisation entraînent la formation de particules moyennes liquides ou de petites particules. Rappelons ici que les fractions grossières, fines et ultrafines sont définies respectivement par un diamètre aérodynamique supérieur à 2,5 μm , entre 2,5 et 0,1 μm , et inférieur à 0,1 μm .

7.1.2. Elimination des aérosols particulaires

Le mouvement des particules est déterminé par la cinétique caractéristique des gaz et des forces externes qui agissent sur la particule. Les phénomènes physiques suivants peuvent produire des forces qui entraînent le mouvement, le transport ou le dépôt des particules : la gravité et les champs électriques, les forces de friction, les flux centrifuges, les forces internes, les gradients de cisaillement et forces de Coriolis, etc. (Owen et Ensor, 1992; Maroni et al., 1995).

La sédimentation résultant de la gravité conduit au dépôt d'un flux sur les surfaces horizontale. La vitesse de dépôt d'une petite particule sphérique peut être étroitement liée à la loi de Stock et est directement proportionnelle au carré du diamètre. Lorsque la vitesse de sédimentation ou la taille des particules augmentent, les effets internes dans le fluide deviennent importants et ils doivent être incorporés dans le calcul de la vitesse.

Les phénomènes aux interfaces comprennent l'évaporation, la condensation, la nucléation, l'adhésion et les effets liés à la charge électrique des particules. L'évaporation et la condensation de gouttelettes modifient la distribution en taille des particules. L'évaporation peut réduire la taille des particules jusqu'à leur élimination tandis que la condensation peut les faire croître. Le diamètre critique est utilisé pour déterminer quelles particules grossiront par condensation, il dépend de la pression de vapeur (Owen et Ensor, 1992). Les particules plus

petites que le diamètre critique s'évaporeront du fait de leur faible masse et deviendront disponibles pour se joindre aux particules plus grosses par différence de charge, condensation, diffusion, coagulation...

La force d'adhérence est fonction des propriétés de surface, de la géométrie de l'interface et des constituants gazeux condensés sur les particules. Lorsque de petites particules d'aérosol se déposent sur une surface solide, elles adhèrent généralement au contact dû à ces forces. La force adhésive peut être augmentée par des charges électrostatiques opposées, potentiellement contrecarrées par une humidité élevée. La charge s'obtient à partir du transfert d'électrons pendant le contact, la séparation ou par la diffusion d'ions libres. La collision et l'adhésion de particules de charges opposées influencent la vitesse de sédimentation des particules, la charge maximum des particules augmentant avec leur diamètre (Owen et Ensor, 1992).

Le dépôt et la décomposition des particules dans l'air intérieur sont liés à des processus complexes dépendant généralement de plusieurs facteurs tels que la vitesse d'échange de l'air interne/externe, le régime de ventilation (turbulence), les sources internes qui influencent la nature des particules, les matériaux constituant les murs et le sol, la distribution des concentrations et la taille des particules. L'efficacité minimale de déposition apparaît surtout dans le cas de particules de 0,1 à 0,3 μm en diamètre (Morawska et Jamriska, 1996; He et al., 2005) pour des conditions de ventilation normale et minimale. Howard-Reed et al. (2003) ont observé que la vitesse de dépôt est doublée (pour les particules $< 5 \mu\text{m}$) dans le cas de l'utilisation de la ventilation (ventilateur central) par rapport à celle sans ventilation. Cette observation est expliquée par les effets d'échange de chaleur, d'augmentation de la vitesse de l'air et de l'énergie cinétique turbulente. Il est très difficile de quantifier certains des paramètres concernés, par exemple, la rugosité de surface et le degré de turbulence. De plus, caractériser d'autres paramètres tels que la distribution en taille des particules reste problématique. Par conséquent, les vitesses de dépôt, calculées à partir de données expérimentales sur la base d'hypothèses sont entachées d'erreurs dont il faudra tenir compte lorsque l'on compare des résultats obtenus dans des conditions expérimentales différentes (Morawska et Jamriska., 1996; Tung et al., 1999).

Les particules, après être entrées dans la pièce, pourront en général être déposées par trois mécanismes principaux tels que la diffusion Brownienne, la thermophorèse et la sédimentation par gravité. La diffusion Brownienne et la sédimentation par gravité dépendent fortement de la taille des particules. Les particules fines se déposent essentiellement par diffusion Brownienne tandis que les plus grosses suivent le mécanisme de sédimentation (Chao et al., 2003; Narazoff, 2004; He et al., 2005). Ce dernier phénomène entraîne la diminution rapide des teneurs en particules grossières dans l'air intérieur. Bien que la dépendance du mécanisme de thermophorèse à la taille des particules ne soit pas très significatif, celle-ci domine dans le cas des particules fines si le gradient de température entre l'air et la surface froide est important (Tung et al., 1999).

7.2. Présentation des modèles monozones et multizones

Généralement, deux types de modèle peuvent être appliqués pour la modélisation de la qualité de l'air intérieur. Il s'agit des modèles déterministes multizone et monozone, basés sur la définition et l'assemblage de lois physiques et chimiques décrivant les mécanismes affectant le transport et la transformation des polluants à l'intérieur des bâtiments, et des modèles stochastiques, basés sur l'établissement de lois empiriques obtenues à partir d'une base de données expérimentales (Blondeau et al., 2002).

Différents modèles ont été développés afin de déterminer des paramètres tels que l'échange entre l'air intérieur et extérieur, la vitesse de déposition des particules, les sources d'émission intérieures, le facteur de pénétration,....

Les modèles considérant que le mélange intérieur est uniforme sont dits mono-zone (Man et Yeung, 1999; Thatcher et al., 1995; 2002; Guo et al., 2008). Néanmoins quand le bâtiment est constitué de plusieurs pièces et/ou que le mélange d'air n'est pas uniforme, la concentration en polluants présente une variation spatiale significative dans l'espace intérieur. Dans ce cas, les modèles dits multi-zone (CONTAM, COMIS...) sont appliqués afin de prendre en compte le débit de l'air, le transport des contaminants entre les pièces du bâtiment et de prévoir la concentration en polluants de l'air intérieur (Feustel, 1999; Borchiellini et Furbringer, 1999; Haasa et al., 2002; Ren et Stewart, 2003). Les modèles statistiques peuvent également être indépendamment ou simultanément utilisés pour étudier la qualité de l'air intérieur (Blondeau et al., 2002).

7.2.1. Les modèles monozones

Comme cela sera présentée au Chapitre II, l'équation du bilan de la conservation de la masse peut être utilisée pour plusieurs applications dans le cas de modèles monozones telles que l'estimation : du facteur de pénétration, des sources d'émission intérieures, de la vitesse de dépôt des polluants, du taux de renouvellement d'air, de l'efficacité de ventilation mécanique... Elle est également centrale dans l'études de la modélisation de la variation de concentrations en polluants dans l'air intérieur (Chaloulakou et Mavroidis, 2002; Abadie et al., 2004).

Les modèles monozones sont habituellement appliqués pour une pièce, une maison, ou pour une salle dans un bâtiment contenant plusieurs salles. Ces volumes ainsi déterminés sont considérés comme des zones où la distribution spatiale des polluants dans l'air est uniforme (Thatcher et Layton, 1995; Chao et al., 2003; Nazaroff, 2004; Hussein et Kulmala, 2008).

7.2.2. Les modèles multizones

Le principe des modèles monozones basé sur l'hypothèse que le mélange est uniforme et que l'air introduit provient exclusivement de l'extérieur ne peut pas être appliqué, théoriquement, à des bâtiments où il y a plusieurs pièces appelées "zones" en liaison

aéraulique entre elles. Pour résoudre ce problème, des modèles multizones ont été développés (Feustel, 1999; CONTAMW 1.0, 2000; Haas et al., 2002).

Les modèles multizones, surtout les plus connus tels que COMIS (pour Conjunction of Multizone Infiltration Specialists) et CONTAM (multizone indoor air quality and ventilation analysis computer program), considèrent que le bâtiment contient plusieurs pièces et que chaque pièce est une zone. D'autre part, ces modèles multizones prennent en compte des liaisons aérauliques et le transport de polluants par écoulement d'air entre les zones par la différence de pression entre elles, et par différence de température entre le bâtiment et l'extérieur (Feustel, 1999; CONTAM 2.4b, 2006). Les modèles multizones, plus complexes, permettent de déterminer la vitesse d'infiltration, d'exfiltration du bâtiment, le transport des polluants entre les pièces intérieures, la transformation des polluants par des processus variables y compris les transformations physico-chimiques, la désorption et l'adsorption à la surface des matériaux de construction ou le dépôt sur la surface des matériaux intérieurs. (Feustel, 1999; CONTAMW 1.0, 2000; Haas et al., 2002).

7.3. Présentation du modèle de régression stochastique

Les modèles stochastiques peuvent être vus comme des boîtes noires établissant le lien entre des variables d'entrée qui influent sur le phénomène étudié, et une (des) variable(s) de sortie que l'on étudie. La boîte noire, qui peut être gérée par des langages de programmations comme MatLab, contient un lot de fonctions mathématiques, dont les paramètres sont déterminés par une technique d'apprentissage à partir des données expérimentales faisant à la fois apparaître les valeurs des variables d'entrée et les valeurs correspondantes de la (des) variable(s) de sortie du modèle (Figure 7).

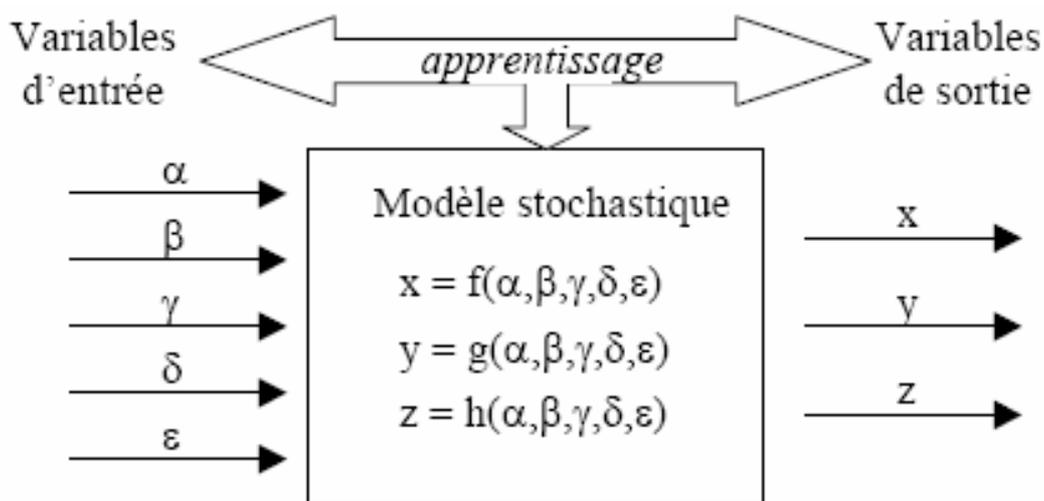


Figure 7 : Principe d'un modèle stochastique (Blondeau et al., 2002).

L'avantage de ce type de modèle est qu'il n'est pas nécessaire d'établir de lois physico-chimiques affectant la concentration en polluants dans l'air intérieur comme dans le cas des modèles déterministes. Des informations moins détaillées et éventuellement

uniquement qualitatives sur les caractéristiques du bâtiment telles que le type de matériaux de revêtement, le nombre de fenêtres, ou sur le nombre d'occupants peuvent suffire à alimenter le modèle stochastique (Blondeau et al., 2002).

En revanche, ce type de modèle ne permet pas de comprendre ou de modéliser les phénomènes physico-chimiques élémentaires affectant la concentration en polluants dans l'air intérieur. Les fonctions mathématiques dans ces modèles intègrent les effets combinés de tous les paramètres physico-chimiques qui composent le phénomène étudié et délivrent un résultat impossible à relier à l'un ou l'autre des phénomènes physiques impliqués. Cela peut être limitant si l'on veut étudier quel paramètre ou phénomène physique présente le plus de poids sur la justesse du modèle quant à la prédiction des concentrations en polluants intérieurs.

C'est pourquoi nous allons focaliser notre travail sur le développement d'un modèle monozone simple basé sur l'équation du bilan de masse des particules dans l'air intérieur que nous allons présenter en détail en Chapitre II.

8. Conclusion

La distribution des particules et la composition chimique de l'air intérieur se caractérisent à la fois par ses sources extérieures (anthropiques : trafic routier, industrie, travaux publics, construction, combustions diverses ; ou naturelles : resuspension des sols, embruns marins, feu de forêt...), et intérieures (activités humaines et animales, fumée de cigarette, cuisine, certains matériaux et mobilier). La vitesse d'échange entre l'air extérieur et intérieur ainsi que la qualité de la ventilation des bâtiments contribuent également à la variation de concentration et de composition des particules en modifiant la proportion en polluants émis par les sources intérieures et extérieures. D'autre part, des phénomènes de dépôts secs dépendant de la taille des particules et de la nature des surfaces de dépôt, ou de transformations physico-chimiques peuvent également faire varier les concentrations et la composition des particules.

La littérature indique que la présence dans l'air intérieur de polluants provenant de l'extérieur dépend fortement de leur coefficient de pénétration qui est plus élevée pour les gaz (NO_x , CO, COV) que pour les particules. Concernant les particules, la fraction fine pénètre plus facilement dans l'air intérieur tandis que les particules grosses et ultrafines sont soumises à une infiltration moindre, nécessitant de s'intéresser à ces différentes fractions, que ce soit pour leurs concentrations en nombre ou en masse.

D'autre part, la détermination de la composition chimique des particules (éléments majeurs et traces, composés organiques, carbone élémentaire, ...) permet à la fois d'étudier l'origine des particules et leur impact potentiellement nocif pour la santé humaine.

La plupart des études qui concernent la modélisation du transfert des polluants extérieur/intérieur se basent sur des modèles de type déterministe monozone plus faciles à mettre en œuvre. A notre connaissance il n'y a pas encore eu d'étude de modélisation de la variation des concentrations en particules par des modèles de type déterministe dans des écoles, notamment lorsque les enfants sont présents dans les classes et introduisent des perturbations importantes par leurs activités.

CHAPITRE II : MATERIEL ET METHODES

Ce chapitre présente dans un premier temps les méthodes de prélèvement et d'analyse des particules mises en œuvre dans ce travail. La deuxième partie est consacrée à la validation des protocoles de mesure de la masse des particules, des métaux et de l'analyse EC et OC. Nous présentons ensuite les différentes méthodes employées pour l'identification et le traçage des sources de particules en air intérieur et extérieur. Enfin, la dernière partie est dédiée à la présentation de la modélisation du transfert des particules dans l'air intérieur.

1. Prélèvement et analyse

Les conditions de prélèvement en air intérieur sont plus contraignantes qu'en air extérieur puisque l'échantillonnage peut avoir lieu sur des zones de faibles dimensions, potentiellement occupées par des personnes (lieu de travail, habitations, écoles, hôpitaux, ...). Le matériel à mettre en œuvre doit donc tenir compte de ces contraintes en termes de :

- Volume d'air filtré limité par le volume de la pièce étudiée pouvant perturber la composition de l'air initial,
- Bruit engendré par les systèmes de prélèvement (pompes notamment),
- Encombrement du matériel d'échantillonnage,
- Choix de l'emplacement des préleveurs tenant compte de la grande variabilité spatiale à ces échelles,
- Variabilité temporelle importante de la qualité de l'air intérieur en fonction des activités et du renouvellement de l'air,
- Sécurité des matériels et des personnes évoluant dans les pièces étudiées.

Cette partie va donc décrire les différents matériels de prélèvement et d'analyse des particules dans l'air intérieur et extérieur généralement utilisés et plus particulièrement ceux qui ont été mis en œuvre dans le cadre de cette thèse afin de répondre à ces contraintes et permettant de caractériser les polluants atmosphériques particuliers présents dans l'air intérieur des écoles.

1.1. Différentes méthodes de prélèvement de la pollution particulaire

L'étape de prélèvement est une étape déterminante pour la qualité des données et pour la détermination de l'exposition des populations. Les stratégies de prélèvement (lieu, périodicité, méthode de prélèvement...), les techniques de préparation des échantillons et le matériel employé doivent être choisis selon les objectifs à atteindre.

Un préleveur de particules en suspension dans l'air comprend généralement une tête d'impaction, un support de filtre, un filtre, un système d'aspiration et un contrôleur de débit d'air. Il doit être constitué de matériaux non hygroscopiques et inertes chimiquement, et posséder une bonne efficacité de prélèvement des particules, une stabilité thermique et mécanique, un débit stable pour une large gamme de flux d'air (Chow et Watson, 1998;

Jantunen et al., 2002). Par ailleurs, les préleveurs doivent parfois collecter plusieurs échantillons en même temps (en fonction de la taille des particules ou avec plusieurs têtes de prélèvement). Les préleveurs habituellement utilisés possèdent des têtes de prélèvement $PM_{2,5}$ et PM_{10} mais il existe également des diamètres de coupure à PM_1 , voire inférieur.

Plusieurs méthodes et instruments ont été développés tels que des échantillonneurs gravimétriques en continu à “lecture directe” : méthode TEOM (Tapered Element Oscillating Microbalance) et atténuation du rayonnement β (jauge β) ; ou des systèmes dont l'étape de prélèvement est effectuée séparément de l'étape de mesure de la masse (prélèvement par collecte sur filtre suivi d'une pesée).

Pour les méthodes en continu, le prélèvement et la détection sont effectués directement par l'instrument, la mesure de la concentration massique étant obtenue quasiment en temps réel. Par contre, ces techniques (TEOM et jauge β) ne peuvent pas distinguer la masse d'eau de celle des particules pouvant fortement varier en fonction des conditions de température et d'humidité.

Dans le cadre de notre étude dans des classes d'écoles, les matériels employés devaient répondre à des contraintes de bruit et de compacité incompatibles avec les 2 appareillages précités. Nous avons donc utilisé d'autres méthodes et instruments que nous présentons ci-après.

1.1.1. Prélèvement par collecte sur filtre

La méthode de collecte sur filtre a été particulièrement développée pour la mesure de la concentration massique et de la composition chimique de l'aérosol. C'est également la méthode de référence recommandée par la norme européenne EN 12341 : 1999. L'échantillonneur est généralement composé d'une tête de prélèvement (par exemple un cyclone) qui permet de sélectionner une ou plusieurs fractions granulométriques (Chow et Watson, 1998), d'un porte-filtre renfermant le média filtrant (filtre ou membrane), d'un dispositif de mesure du débit et d'un système de pompage (Figure 8). La tête de prélèvement est un dispositif destiné à éliminer du flux d'air échantillonné les particules d'un diamètre aérodynamique supérieur au seuil de coupure du dispositif (fraction granulométrique désirée). Elle peut également être utile pour éliminer les insectes ou les gouttes de pluie ou de brouillard indésirables (Eleftheriadis et Colbeck, 2000; Hitzemberger et al., 2004). Les systèmes couramment utilisés sont les élutriateurs, les impacteurs et les cyclones.

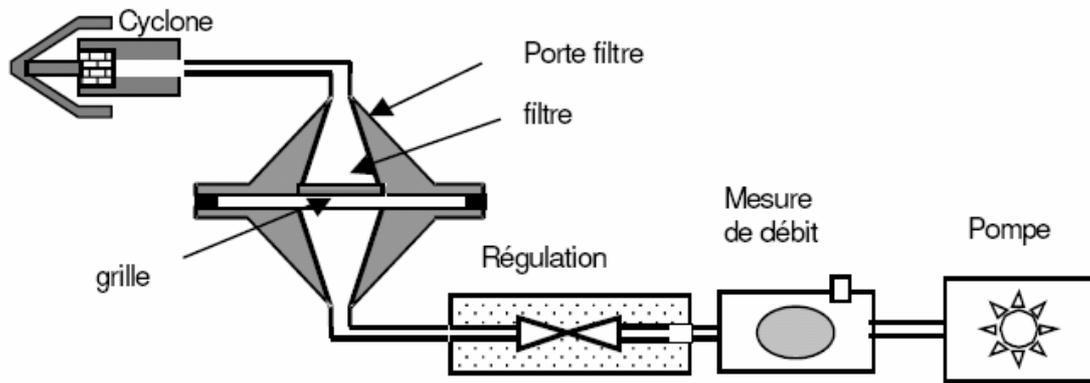


Figure 8 : Schéma des différents éléments d'un dispositif de collecte par filtration (Renoux et Boulaud, 1998).

Il existe plusieurs types de filtres répondant à différents objectifs. Les analyses possibles après collecte sur filtres sont par exemple gravimétriques (détermination de la masse de particules par pesée avant et après collecte), ou permettent la caractérisation de la taille et de la morphologie des particules. Cependant, des analyses plus fines peuvent être effectuées pour les éléments majeurs et traces, afin de connaître la composition élémentaire des particules recueillies.

Les filtres en fibre de verre sont peu coûteux mais fragiles, hygroscopiques et nécessitent le prélèvement d'une grande quantité d'échantillon pour déterminer la masse des particules avec précision (Chow et al., 1996; Chow et Watson, 1998). Ils sont également contaminés par des composés inorganiques présents dans les filtres et organiques dans la résine servant de liant, donc utilisés pour des applications spécifiques. Les filtres en fibre de quartz possèdent une résistance thermique élevée, sont sans composés organiques et d'un nettoyage facile par simple grillage au four à 500°C. Ils sont utilisés pour analyser le carbone organique (CO) et élémentaire (CE) ou certaines familles de composés organiques (HAP, acides carboxyliques, pesticides,...), voire des métaux si les masses de particules collectées sont importantes. Néanmoins, ils sont plus chers que ceux en verre fragiles et hygroscopiques. D'autre part, ce type de filtre a une grande surface spécifique qui favorise l'adsorption des composés organiques volatiles pouvant conduire à des artefacts de mesure (Mader et Parkow, 2001). Les filtres membranaires tels que les esters de cellulose (mélange de nitrates et acétates) sont résistants à débit élevé et ils montrent un grand avantage pour l'analyse chimique par voie humide dû à leur hygroscopie, et à leur faible contamination. Par contre, ils sont sujets à colmatage. Les filtres en PVC (polychlorure de vinyle) ou en polycarbonates présentent également de bonnes caractéristiques physico-chimiques.

Les filtres en téflon sont très employés pour leurs propriétés de non hygroscopie, d'inertie et de pureté chimique. Ils sont cependant plus chers et inutilisables pour analyser la matière organique.

Dans le cadre de cette étude nous avons utilisé l'échantillonneur à bas débit (3 L/mn) Microvol (Mic1100 user manual, 2003), pour prélever des particules dans l'air intérieur et

extérieur sans déranger les activités des occupants (silencieux). Cet appareil dont le débit régulé par un débitmètre volumique avec une précision inférieure à 2%, prélève des PM₁₀ ou PM_{2.5} afin de déterminer, en fonction du type de support choisi, leur masse (méthode gravimétrique) ou leur composition chimique (métaux sur filtres Téflon 47 mm Pall Zefluor, carbone organique et élémentaire sur filtres en quartz 47 mm Pall QAT-UP).

1.1.2. Prélèvement par impaction en cascade

Les méthodes fondées sur les propriétés aérodynamiques des particules ont été développées principalement pour collecter les particules en vue d'une analyse physico-chimique ultérieure ou pour une classification en dimension.

Les dispositifs les plus largement étudiés et utilisés sont les impacteurs dont le principe est fondé sur les propriétés d'inertie des aérosols, faisant intervenir la théorie de l'impaction et prenant en compte le nombre dimensionnel de Stock. Ces systèmes se basent sur le fait que les particules ayant une inertie supérieure à une certaine valeur limite ne suivent pas les lignes de courant de l'air échantillonné. Tout dispositif d'impaction est caractérisé par sa courbe d'efficacité. Elle représente l'efficacité de l'impacteur à répondre à un nombre de Stokes donné. Un étage d'impaction est constitué d'un ajustage dirigeant un jet d'air à haute vitesse contre une surface solide. On aura alors une impaction des particules supérieures à un certain diamètre dit "de coupure". Chaque étage comportera donc une buse d'entrée et une surface d'impact.

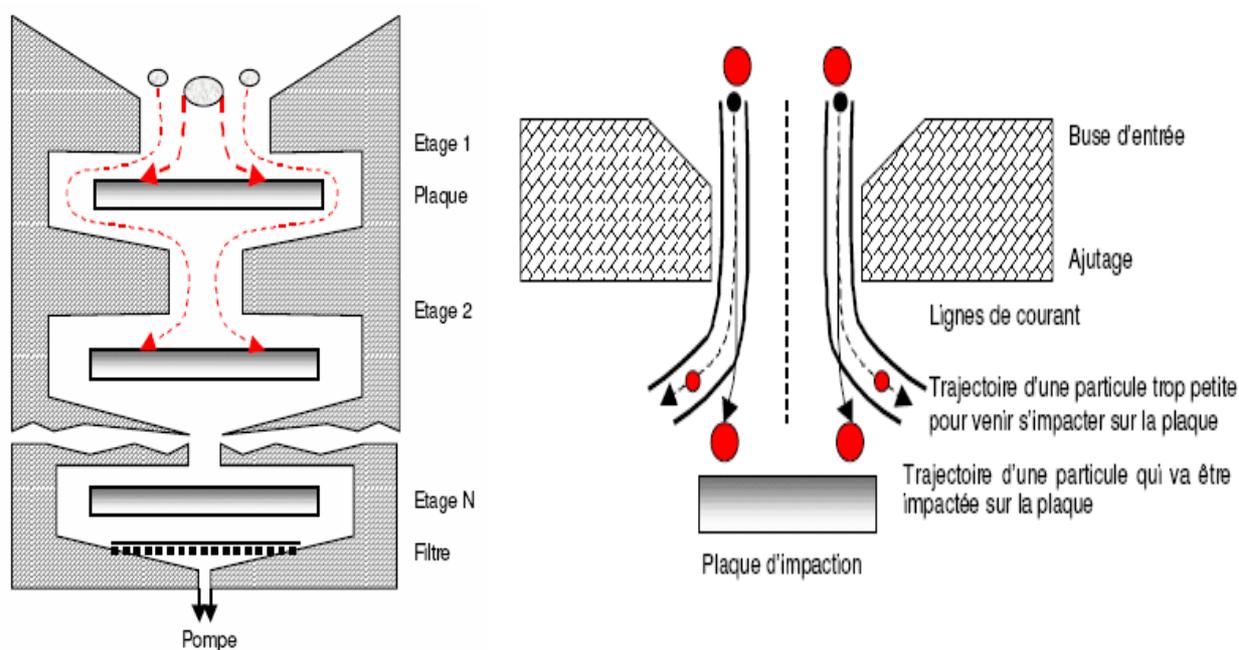


Figure 9 : Schéma de principe de l'impaction en cascade (Renoux et Boulaud, 1998).

Les aérosols sont aspirés au travers de la buse (Figure 9). Les particules ayant une taille supérieure au diamètre de coupure vont entrer en collision avec la plaque ; les autres, de diamètre plus petit et de vitesse plus élevée, vont continuer leur trajectoire jusqu'aux étages suivants (Wilson et al., 2002).

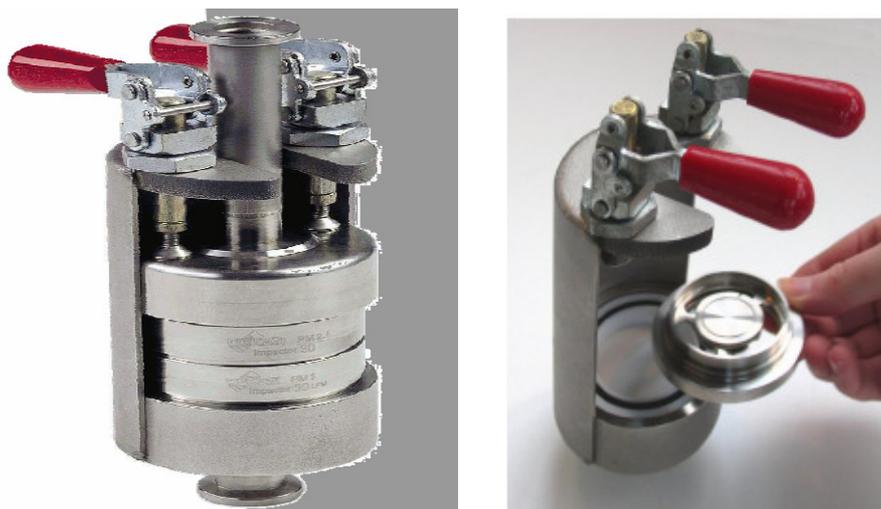


Figure 10 : Impacteur en cascade Dekati à 4 étages (10 μ m, 5 μ m, 1 μ m et filtre back-up).

Les impacteurs permettent un échantillonnage spécifique en prélevant une large gamme de taille de particules (Tableau 7) avec des seuils de coupure différents à chaque étage, afin d'obtenir des informations sur la distribution en taille et en concentration de ces particules.

Classiquement, les gammes dimensionnelles prélevées vont de quelques nm à 50 μ m et permettent une séparation pouvant aller, pour les impacteurs commerciaux, jusqu'à 12 gammes de diamètre aérodynamique (Gulijk et al., 2003).

Tableau 7 : Caractéristiques de certains préleveurs à impaction (Hitzenberger et al., 2004).

Type d'impacteur	Impacteur de Berne en basse pression -LPI 30	Impacteur de Berne en basse pression-LPI 70	Impacteur de Berne en basse pression avec l'entrée chauffée	MOUDI (microorifice uniform deposit impactor)	ELPI (electrical low-pressure impactor)
Débit (L/min)	30	70	75	30	28
Seuils de coupure (μ m)	0,06	0,1	0,05	0,053	0,033
	0,12	0,212	0,14	0,094	0,055
	0,25	0,464	0,42	0,164	0,101
	0,5	1,0	1,2	0,301	0,159
	1,0	2,12	3,5	0,603	0,265
	2,0	4,46	10	1,0	0,390
	4,0	10		1,8	0,655
	8,0			3,1	1,04
	16,0			6,2	1,63
				9,9	2,49
				18,0	5,6
Support	Feuille d'aluminium	Feuille d'aluminium	Feuille d'aluminium	Feuille d'aluminium	Feuille d'aluminium
Conditions opératoires	20-22 $^{\circ}$ C, 30-40% H	20-22 $^{\circ}$ C, 30-40% H	20 $^{\circ}$ C, 50% H	20 $^{\circ}$ C, 50% H	NC*

NC* : non communiqué

La plupart de ces impacteurs peuvent être sujets au phénomène de rebond des particules sur les substrats d'impaction qui deviennent très critiques dans des conditions de faible humidité relative pour des particules peu "collantes" (particules minérales et sèches). Une fraction importante de ces particules peut aussi être perdue sur les parois de l'impacteur ou passe vers les étages suivants. En revanche, les particules mouillées ont un rebond négligeable (Vasiliou et al., 1999; Hitzenberger et al., 2004). Ces techniques par impaction présentent donc une limitation en termes d'efficacité de collecte des particules sur chaque étage (Lee et al., 2006).

Les méthodes pour réduire les phénomènes de rebond font intervenir des adhésifs tels que la graisse, la glycérine, l'huile minérale (silicone) (Miller et al., 1998). Demokritou et al. (2004) ont développé une technique qui permet de diminuer significativement ce phénomène en maintenant l'efficacité de collection des particules. Ils utilisent la mousse de polyuréthane (PUF) comme substrat d'impaction avec une efficacité de collection de plus de 90% (particules $< 7\mu\text{m}$) et de plus de 80% (particules $> 7\mu\text{m}$). La combinaison entre des matériaux formant les substrats d'impaction tels que le téflon, l'aluminium, la fibre de verre peuvent réduire significativement le rebond (Chang et al., 1999), mais des phénomènes de vaporisation et d'adsorption sur la surface des fibres de verre peuvent apparaître. L'impacteur virtuel, où les fines PM suivent un courant d'air majoritaire forcé de prendre un angle à 90° tandis que les grosses PM suivent l'écoulement d'air minoritaire direct, est aussi développé pour diminuer le rebond (Chow et Watson, 1998). Mais la pénétration des fines particules depuis le débit majoritaire (environ 90% de débit total) vers le débit minoritaire entraîne une surestimation des grosses particules collectées sur le filtre. Dans certains cas, il y a une perte de particules sur les parois de l'impacteur (Wilson et al., 2002; Chang et al., 1999). Enfin, la pression réduite dans les étages des impacteurs collectant les plus petites particules peut aussi induire un risque de perte des espèces particulaires les plus volatiles (Singh et al., 2003).

Dans cette étude, nous avons utilisé des impacteurs en cascade Dekati 4 étages (Figure 10) permettant de prélever des particules ayant un diamètre aérodynamique supérieur à $10\mu\text{m}$; entre 10 et $2,5\mu\text{m}$; entre $2,5$ et $1\mu\text{m}$; et inférieur à $1\mu\text{m}$.

2. Mesure et analyse des particules

Il existe une large gamme de méthodes et de dispositifs adaptés à la caractérisation des particules dans l'air intérieur et extérieur. Selon le but et les conditions spécifiques de chaque étude, les méthodes de prélèvement et d'analyse sont choisies de manière à obtenir les résultats les plus concluants.

2.1. Concentration en masse (CM)

La concentration massique des particules est à la base une mesure gravimétrique : un filtre est pesé avant et après échantillonnage des particules à température et humidité relative

contrôlées. La CM est le rapport de la masse de particules sur le volume de l'air échantillonné. Le protocole de la norme **EN 14907 : 2005** a été employé dans cette étude.

2.2. Techniques de mesure de la concentration en nombre - Comptage

De nombreuses techniques permettant de mesurer la concentration en nombre des particules ainsi que la distribution dimensionnelle des aérosols ont été développées. Elles font appel aux différentes propriétés des aérosols (optique, électrique et aérodynamique ...). Chaque technique possède des avantages et des inconvénients (Rosell- Llompart et al., 1996; Watson et al., 1998; Renoux et Boulaud, 1998; Wilson et al., 2002; Sem, 2002; Hameri et al., 2002), nous nous focalisons dans notre travail sur les techniques optiques mises en œuvre durant nos campagnes de prélèvement.

Méthodes optiques

Les aérosols sont, d'une manière générale, difficiles à quantifier de manière précise par des techniques optiques car les interactions particules/lumière dépendent de beaucoup de paramètres. Les méthodes optiques font appel aux lois de diffusion de la lumière par les particules. Lorsqu'un faisceau lumineux traverse un volume de gaz contenant des particules en suspension, il subit une absorption et une diffusion. La quantité de lumière absorbée ou diffusée est fonction de la concentration en particules dans le volume donné (INERIS, 2004).

Différentes techniques ont été développées sur des méthodes dans l'axe (la microphotographie, l'ombroscopie, l'holographie, mais surtout l'extinction, la diffraction et la rétrodiffusion) et des méthodes hors axes (compteurs optiques et vélocimètres Doppler). Une des méthodes les plus couramment utilisées est celle du compteur optique. Une nouvelle technique de mesure à long trajet optique de type LIDAR s'est développée plus récemment mais est utilisée principalement pour l'étude de l'air extérieur et des basses couches de l'atmosphère.

Le compteur optique de particules

Le comptage optique de particules est basé sur la mesure de l'intensité diffusée par une particule. Un faisceau laser est focalisé sur un volume de mesure à travers lequel les particules en suspension passent une par une. La quantité de lumière diffusée à un angle θ , est alors mesurée par un détecteur (Figure 11). Des algorithmes sont ensuite utilisés afin d'obtenir la taille de la particule connaissant son spectre de diffusion angulaire.

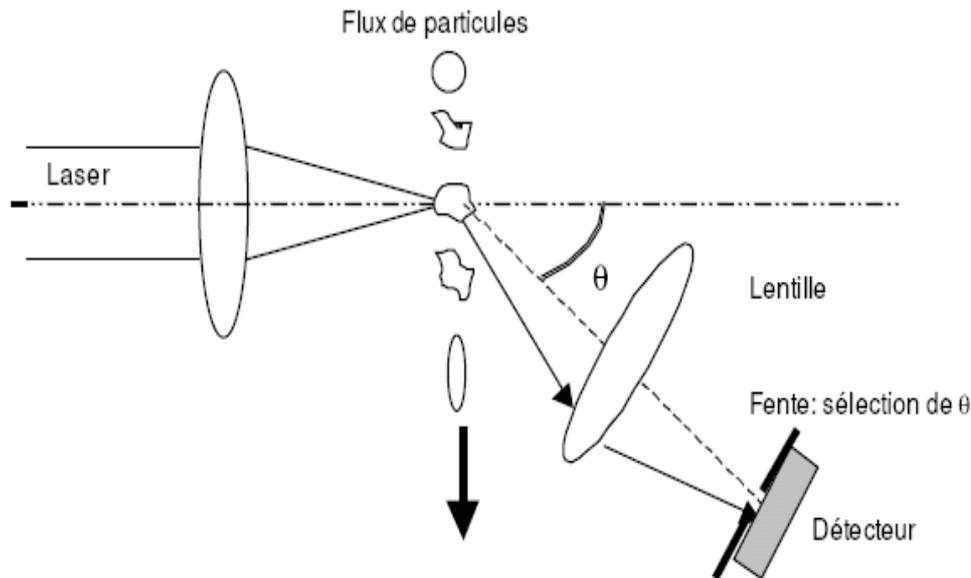


Figure 11 : Schéma du principe de mesure d'un compteur optique.

Calibrées sur la base de particules sphériques d'indice de réfraction similaire à celui de l'eau pure, les mesures effectuées par les compteurs de particules peuvent se révéler problématiques dans le cas de particules non-sphériques, pour des particules absorbant la lumière ou pour une population d'aérosols dont l'indice de réfraction n'est pas homogène. Des corrections à certains de ces problèmes sont possibles mais sont très rarement appliquées. Les diamètres mesurés sont donc des diamètres "optiques" qui ne sont pas linéairement proportionnels aux diamètres géométriques ou aérodynamiques (INERIS, 2004). Des travaux récents (Binnig et al., 2007) ont eu pour but de convertir la taille optique des particules en taille aérodynamique et volumique, par acquisition avec un compteur optique, de flux de particules de diamètre aérodynamique ($PM_{2,5}$) connus. Le domaine de dimension couvert par ces dispositifs est compris entre 0,1 à plusieurs dizaines de μm pour une concentration en nombre très élevée, 10^7 particules/cm³.

Dans cette étude nous avons utilisé des compteurs GRIMM pour mesurer en continu la concentration en masse des particules de différentes tranches granulométriques (0,3-0,75 ; 0,75-1 ; 1-2 ; 2-5 ; 5-7,5 ; 7,5-10 μm) avec un débit de $1,2 \pm 5\%$ L/mn. Cet appareil nécessite une période de prélèvement importante pour collecter une quantité suffisante de particules pour la mesure en masse. On utilise en effet un filtre en Téflon (47 mm, Zefluor) pour récolter l'ensemble des particules $PM \leq 15\mu m$ aspirées. Ce filtre permet (1) de corriger la masse calculée par l'appareil en fonction de la masse obtenue par méthode gravimétrique et (2) des analyses de composition chimique à posteriori. Ce compteur fournit des valeurs moins précises de la masse de particules par rapport à la méthode de référence gravimétrique mais il permet de déterminer la concentration relative en masse sur des pas de temps très courts (de l'ordre de la minute), indispensables pour étudier des variations à court terme.

Nous avons également utilisé des compteurs optiques de particules Aerotrak TSI 8220 permettant de mesurer en continu la concentration en nombre des particules en air intérieur et extérieur pour 5 tranches granulométriques : 0,3-0,75 ; 0,75-1 ; 1-2 ; 2-5 ; 5-10 μm .

2.3. L'analyse physico-chimique des particules

Après l'étape de collecte, les particules peuvent être analysées par diverses techniques afin de déterminer la composition élémentaire, la morphologie ou la teneur en éléments dans les particules. Selon les éléments recherchés, certaines techniques analytiques seront destructives pour l'échantillon (minéralisation totale du filtre, bombardement de particules, combustion à haute température, ...). D'autre part, certaines analyses permettront une quantification globale de la teneur en un élément donné dans l'échantillon alors que d'autres permettront d'étudier la composition de particules individuelles :

- Les teneurs en métaux sont déterminées, directement ou après extraction à l'aide d'acides, par différentes techniques spectrométriques.

- Les composés organiques volatils ou semi-volatils sont généralement caractérisés par HPLC-UV/Fluo ou GC-MS après extraction dans un solvant ou par thermo-désorption (Maroni et al., 1995; Chow et al., 1996; Wilson et al., 2002). Le carbone organique et le carbone élémentaire sont déterminés par des techniques thermo-optiques. La chromatographie ionique permet de quantifier les anions solubles (nitrates, sulfates, chlorures et ammonium) ainsi que certains cations majeurs (Ca^+ , Na^+ , K^+ , Mg^{2+} , ...).

- La distribution en taille et la morphologie des particules sont caractérisées par SEM (microscopie électronique) éventuellement couplée à une DRX (Dispersive X-Ray) (Chow et al., 1996; Wilson et al., 2002) en vue d'une caractérisation chimique.

2.3.1. La mesure des métaux

On dénombre environ une quarantaine d'éléments métalliques dans les particules atmosphériques (Wilson et al., 2002). Ces métaux ou métalloïdes permettent d'identifier des sources de pollution et plusieurs d'entre eux sont considérés toxiques (As, Cd, Cr, Hg, Pb ...). Ce sont les métaux de transition, métaux solubles dans l'eau, et éléments présentant certains états de valence, par exemple : Fe(II), Fe(III), As(III), As(V), Cr(VI). Les principales méthodes permettant de mesurer ces éléments sont séparés en deux grandes familles :

- Les analyses physiques non destructives comme les techniques d'Energie Dispersive à Fluorescence X (EDXRF), de Synchrotron à Fluorescence X Induite (S-XRF), d'Emission de rayons X induite par Particules chargées PIXE (Proton-Induced X-ray emission), de spectrométrie de fluorescence X en réflexion totale, ou TR-XRF (Total Reflection X-ray Fluorescence Spectrometry), et d'Analyse par Activation Neutronique (INAA). Leur rapidité d'analyse multi-élémentaire est parfois contrebalancée par des limites de détection un peu élevées pour certains éléments,

- Les analyses chimiques par voie humide nécessitent une mise en solution des échantillons : Spectrométrie d'Absorption Atomique Flamme ou Four graphite (F-AAS, GF-AAS), Spectrométrie d'émission atomique à source plasma à couplage inductif (ICP-AES) et Spectrométrie de Masse à source plasma à couplage inductif (ICP-MS).

L'ICP-AES et l'ICP-MS sont les deux techniques multi-élémentaires très sensibles utilisées lors de notre étude, leurs paramètres de fonctionnement sont détaillés dans la partie 3.2 de ce chapitre. L'ICP-MS est dédiée à l'analyse d'éléments à l'état de traces (Cd, La, Ni, Pb, Se, V...) en raison de ses très faibles limites de détection (quelques ng/L) et l'ICP-AES est employée pour l'analyse d'éléments majeurs et légers présentant moins d'interférences par cette technique (Al, Ba, Ca, Fe, Mg, Mn, Na et Si).

2.3.2. Méthode d'analyse du Carbone (EC/OC)

Les composés carbonés collectés sur des filtres en fibres de quartz peuvent se scinder en deux : (1) le carbone organique (OC), (2) le carbone élémentaire (EC), la somme des deux représentant le carbone total (CT). Le carbone sous forme de carbonates tels que Na_2CO_3 , K_2CO_3 , BaCO_3 , CaCO_3 , souvent présent dans l'air ambiant, peut être déterminé sur une portion séparée de filtre à l'aide de la mesure du CO_2 émis par l'acidification de cette portion (Chow et Watson, 1998). Plusieurs techniques sont disponibles pour analyser ces types de carbone dont les trois principales méthodes suivantes : (1) réflexion thermo/optique (TOR), (2) transmission thermo/optique (TOT) et (3) oxydation thermique au manganèse (TOM).

- La méthode TOM (Fung, 1990) utilise le dioxyde de manganèse comme agent oxydant en contact avec l'échantillon. Différentes plages de température de combustion sont utilisées pour distinguer l'OC de l'EC. Ainsi, la combustion du carbone jusqu'à 525°C est considéré comme de l'OC, et à une température supérieure allant jusqu'à 850°C , comme de l'EC. Cette méthode est néanmoins peu à peu remplacée par les méthodes TOR et TOT,
- La méthode TOT, analyse thermo-optique de l'OC/EC met en œuvre une correction des concentrations en EC grâce à la transmission d'un faisceau laser tenant compte de l'absorbance de la lumière par l'EC. La méthode TOR présente le même principe que la TOT mais en mesurant la réflexion du faisceau laser. Ces méthodes sont largement utilisées pour quantifier l'OC et l'EC dans les particules (Chow et Watson, 1998).

Dans notre étude, nous avons utilisé la méthode TOT en suivant le protocole décrit par la méthode NIOSH 5040 (National Institute for Occupational Safety and Health) à l'aide de l'instrument Sunset Laboratory Inc (Figure 12) dont le principe est le suivant :

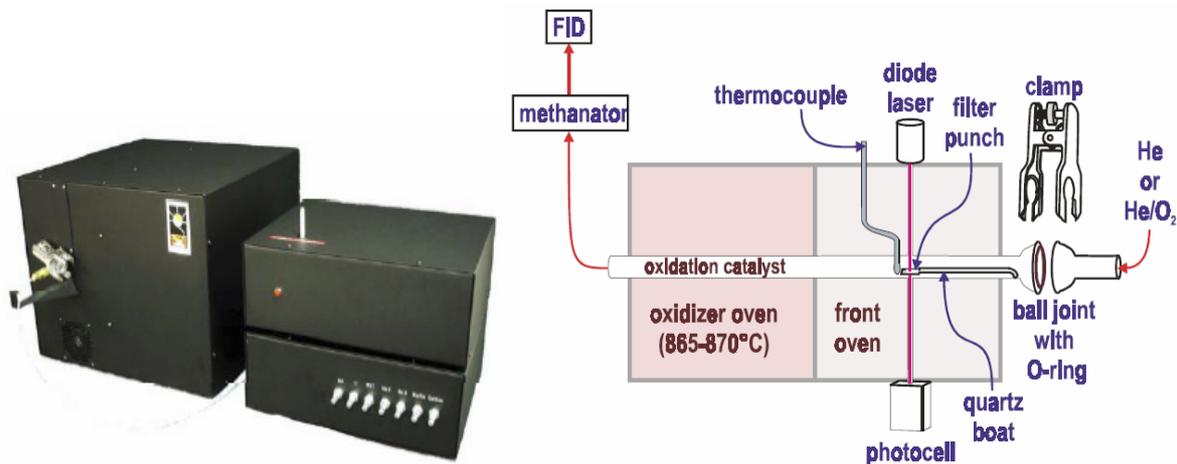


Figure 12: Schéma de principe du Sunset Laboratory Thermal-Optical Carbon Analyzer.

Dans un premier temps, l'échantillon sur filtre en fibres de Quartz est chauffé par paliers selon une rampe de température allant jusqu'à 870°C dans une atmosphère non-oxydante d'hélium (mesure de l'OC). L'échantillon est ensuite refroidi à 550°C et purgé par un flux d'un mélange gazeux oxydant (2/98%, O_2/He). Une seconde rampe de température en milieu oxydant permet de convertir l'EC en CO_2 (Figure 12 et 13). Toutes les fractions carbonées désorbées thermiquement sont transférées vers un four contenant un oxydant (MnO_2) pour être convertis en CO_2 (Sunset Laboratory Instrument Manual ; Ho et al., 2004). Le CO_2 dans le flux d'He est ensuite mélangé avec du H_2 puis envoyé dans un four contenant un catalyseur à base de Ni où le CO_2 est totalement converti en méthane (CH_4). Le CH_4 est ensuite quantifié à l'aide d'un détecteur à ionisation de flamme (FID)

La prise en compte de la pyrolyse d'une partie de l'OC en EC lors de la première rampe de température est effectuée par une correction basée sur la transmission ou la réflexion du faisceau laser He-Ne à travers le filtre contenant l'échantillon (Figure 13).

Suivant l'objectif et les cas spécifiques rencontrés, on choisit l'une et/ou l'autre de ces techniques de mesure du OC et EC (TOT préférés pour les fortes teneurs en EC) pour analyser l'OC, l'EC ou le CT dans les particules. Cependant, aucune des méthodes ne peut être considérée comme une procédure idéale pour séparer l'OC de l'EC (Chow et al., 2002).

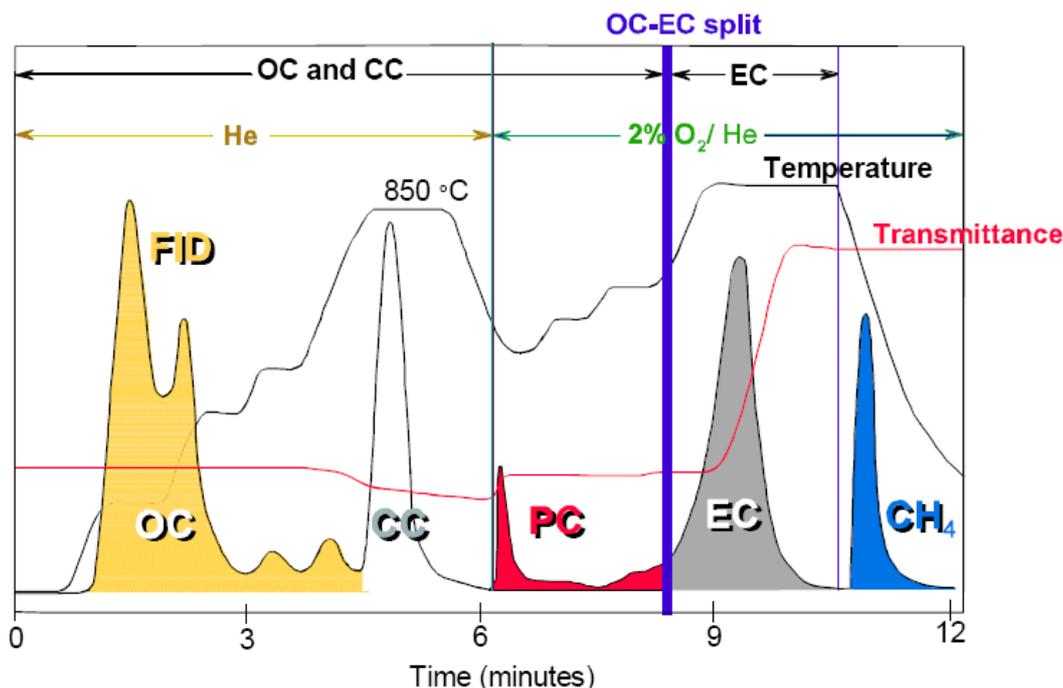


Figure 13 : Thermo-gramme de séparation de EC, OC (NIOSH 5040, 1999).

OC : Carbon organique, CC : carbonate; EC : carbone élémentaire. PC : carbone formé par pyrolyse

2.3.3. Analyse du Black Carbon (BC) et des composés organiques aromatiques absorbants dans l'UV à 370 nm par la méthode d'absorption optique semi-continue

Notons ici que la différence entre les termes Black Carbon (BC) et Carbone élémentaire EC est liée à la méthode de détection : Le terme BC ou soot "suie" défini comme la noirceur, se rapporte à une mesure basée sur la technique de transmission lumineuse tandis que l'EC est lié, notamment dans notre étude, à une mesure thermo-optique. Les aérosols de BC sont des particules primaires ultrafines émises lors de la combustion incomplète de n'importe quel combustible. Le BC absorbe fortement dans le spectre visible, il est insoluble dans des solvants polaires et non polaires, réfractaire thermique à l'oxygène pur jusqu'à 350°C et possède la structure du graphite (Hansen, 2005).

Dans le cadre de notre étude, le BC et certains composés organiques aromatiques, définis ici par le terme UVPM ont été mesurés en continu à l'intérieur des classes à l'aide d'un Aethalomètre portable AE 42 (Magee Scientific) qui prélève sur un filtre ruban des particules PM_{2,5} pour un intervalle de mesure de 5 minutes, et mesure l'atténuation de la lumière à la longueur d'onde donnée (880 nm) pour le BC et à 370 nm pour les UVPM (particule absorbant dans l'UV).

Nous avons observé, comme plusieurs études dans la littérature, que la courbe de variation de BC en fonction du temps fait apparaître des phénomènes d'atténuation non désirés lorsque le filtre se charge en particules. Ce phénomène, lié à l'effet de «loading» (chargement) sur une tâche (spot) du filtre déroulant de l'Aethalomètre jusqu'à une certaine saturation, provoque le déplacement automatique du filtre pour créer un nouveau spot de

mesure vierge. Ce déplacement induit un décalage dans l'atténuation mesurée qui doit être compensé mathématiquement (Figure 14, le trait bleu).

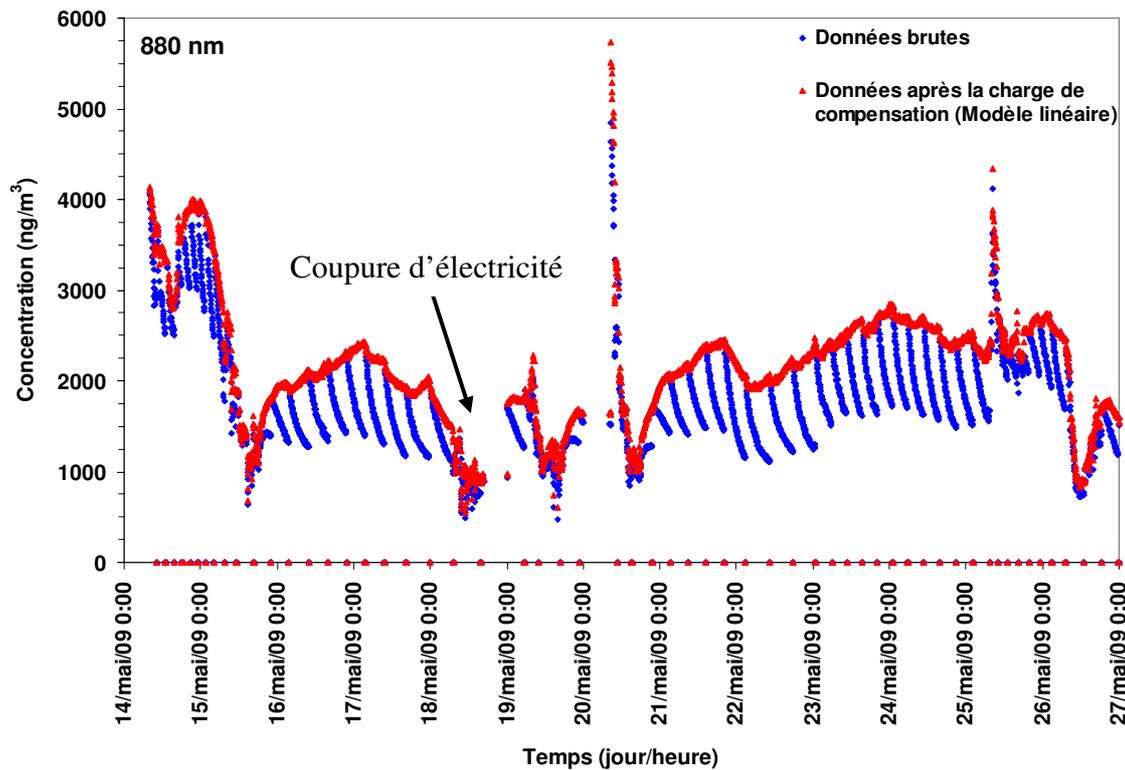


Figure 14 : Variation du BC à 880 nm au cours de 2 semaines consécutives à l'école d'Arras.

Nous avons utilisé une méthode rapportée par Virkkula et al. (2007) qui permet de corriger ces erreurs. L'algorithme de cette méthode se base sur l'atténuation ATN qui augmente quand la transmission lumineuse décroît :

Équation 1 :
$$ATN = -\ln(I/I_0)$$

Où I_0 et I sont respectivement l'intensité de la lumière émise et transmise. Le spot du filtre est changé lorsque l'ATN est environ de 75%. L'appareil continue à mesurer l'atténuation sur le spot suivant. Dans ce cas là, le BC corrigé est calculé selon l'équation suivante :

Équation 2 :
$$BC_{\text{corrigé}}(t_{i,\text{last}}) = BC_{\text{corrigé}}(t_{i+1,\text{first}})$$

Où $t_{i,\text{last}}$ est le temps de la dernière donnée de mesure pour le spot i et $t_{i+1,\text{first}}$ est le temps de la première donnée de mesure pour le spot suivant. Chaque spot de filtre présente un seul coefficient k obtenu par la formule suivante :

Équation 3 :
$$k_i = \frac{BC_0(t_{i+1,\text{first}}) - BC_0(t_{i,\text{last}})}{ATN(t_{i,\text{last}}) \cdot BC_0(t_{i,\text{last}}) - ATN(t_{i+1,\text{first}}) \cdot BC_0(t_{i+1,\text{first}})}$$

Où BC_0 est la concentration bruitée. La valeur de ATN est calculée par l'Aethenomètre à chaque intervalle de temps pour chaque valeur de BC_0 .

Si on considère que l'ATN de la première donnée du nouveau spot est égale à zéro, on peut estimer k_i selon l'équation simplifiée de l'Équation 3.

Équation 4 :

$$k_i \approx \frac{1}{ATN.(t_{i,last})} \cdot \left(\frac{BC_0.(t_{i+1,first})}{BC_0.(t_{i,last})} - 1 \right)$$

Comme l'ATN n'est pas exactement égale à zéro, il est courant d'utiliser les trois dernières données de BC_0 pour le spot (i) et les trois premières valeurs de BC_0 du spot (i+1).

Le BC corrigé durant chaque intervalle de temps (5 minutes) pour le spot (i) est déterminé comme suit :

Équation 5 :

$$BC_{\text{corrigé}} = (1+k.ATN).BC_0$$

Les résultats du BC corrigé selon cette méthode sont présentés en Figure 14 (trait rouge). L'algorithme de la correction pour des composés organiques aromatiques (mesurés dans la zone UV, à la longueur d'onde 370 nm et définis par la suite par UVP) est appliqué de la même façon que pour le "Black Carbon" mesuré à la longueur d'onde 880 nm.

Les résultats avant et après correction des composés organiques aromatiques mesurés dans l'UV (à 370 nm) sont présentés en Annexe 3.

2.3.4. Comparaison entre EC et BC

Nous avons comparé la concentration en EC obtenue par la méthode thermo-optique et celle en BC obtenue par transmission optique uniquement à l'intérieur des classes de la campagne 2009 (voir chapitre III). Etant donné le faible nombre d'échantillons EC à notre disposition, toutes les valeurs des écoles de St Pol sur Mer et Liettes ont été utilisées pour la comparaison (Figure 15) à l'exception des échantillons d'Arras qui présentent potentiellement une contamination en EC.

Les deux méthodes d'analyse du EC et du BC sont bien corrélées avec un $R^2 = 0,76$ et la concentration en EC mesurée par la méthode thermo-optique est de manière générale très proche de celle mesurée par la méthode par transmission optique ($EC=1,21.BC$). Cette bonne corrélation est à rapprocher de l'étude d'inter-comparaison des deux méthodes de Ahmed et al. (2009) menée pour l'air extérieur qui montre une relation entre EC et BC décrite par l'équation : $EC=1,02.BC$. Notons cependant que dans leur étude, ils ont comparé les deux méthodes pour chaque site pris individuellement tandis que nous avons englobé l'ensemble des échantillons des 2 écoles pouvant présenter des compositions en BC différentes d'un site à l'autre (Ahmed et al., 2009; Park et al., 2010). Cette différence peut induire une variation de concentration en BC mesurée par la méthode par transmission optique (Hassen, 2005).

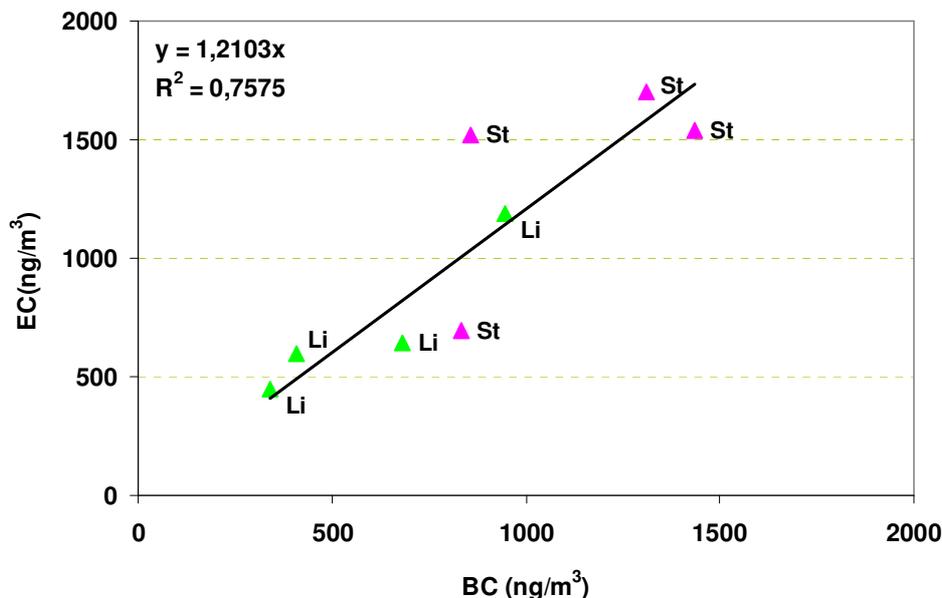


Figure 15 : La corrélation entre l'EC et BC dans les classes d'écoles de Saint Pol sur Mer (St) et Liettes (Li).

2.3.5. La mesure des polluants inorganiques gazeux (CO_2 , CO) et des paramètres de confort

La mesure de la concentration en CO_2 est habituellement effectuée à l'aide d'une sonde permettant de mesurer d'autres paramètres tels que la température, l'humidité relative et la pression atmosphérique. Il existe plusieurs types d'analyseurs mais ceux à base de techniques infrarouges sont les plus utilisées tels que le Testo 455 IR CO_2 , Telaire 1050 IR CO_2 , Q-Trak TSI, ... (Chao, 2001; Bertoni et al., 2004; Fromme et al., 2007).

Dans le cadre de cette thèse nous avons utilisé des analyseurs Q-trak 7565 TSI pour la mesure des paramètres de confort dans la classe et à l'extérieur tels que la température ($^{\circ}C$), l'humidité relative (HR%), la teneur en CO_2 (ppm), la teneur en CO (ppm), la pression (P). Leurs caractéristiques sont présentées en Annexe 4.

3. Validation des protocoles de mesure et d'analyse des polluants particuliers

3.1. La mise en œuvre de la mesure des métaux dans les particules

3.1.1. La mise en solution des particules

La mise en solution des échantillons est la conversion de l'échantillon sous une forme compatible avec la technique de mesure choisie et la destruction de la matrice de l'échantillon afin d'en extraire les éléments recherchés (De la Guardia et al., 1998).

3.1.2. Les différentes techniques de mise en solution

La minéralisation permet de transformer la matière organique en CO_2 , NO_x et H_2O donnant lieu à la libération des éléments métalliques piégés dans cette matrice (Yang et al.,

2002). L'échantillon alors purement inorganique doit ensuite subir une dissolution. La minéralisation et la dissolution se déroulent simultanément en présence de réactifs aux actions complémentaires.

Il y a plusieurs techniques utilisées telles que l'extraction Soxhlet pour les composés organiques. Cependant, cette méthode nécessite une grande quantité de solvant, un long temps d'extraction et un travail à la température du point d'ébullition du solvant utilisé. La sonication permet l'extraction à température ambiante et de diminuer la quantité de solvant mais le recouvrement des composés est moins élevé (De la Guardia et al, 1998). La méthode conventionnelle de digestion humide par un reflux condenseur en utilisant l'eau régale (HNO₃/HCl) permet de dissoudre des métaux à fort degré d'oxydation (Pt, Au). Par contre, cette méthode induit une durée de digestion longue et incomplète pour des échantillons de sédiment, de sol et des particules atmosphériques contenant des fractions insolubles dans l'eau régale (Daskalova et Boevski, 1999).

La méthode utilisant un minéralisateur micro-onde haute pression (en milieu fermé) offre un recouvrement excellent avec une durée très courte d'extraction (De la Guardia et al, 1998). Elle permet d'obtenir une digestion totale des particules en utilisant des solutions d'acides appropriées et une courte période de dissolution (Yang et al, 2002). Elle nécessite une petite quantité d'acides (Wang et al, 1996) permettant l'analyse des échantillons de masse faible (moins de 0,1 mg) (Sandroni et al, 2003).

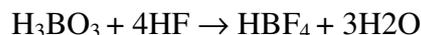
3.1.3. La digestion micro-onde en milieu acide

L'efficacité de la digestion est gouvernée par plusieurs facteurs tels que la nature, la concentration et le volume des acides et de l'agent d'oxydation utilisés (ex : HNO₃, HCl, H₂SO₄, H₃BO₃, HF, H₂O₂), et le programme du minéralisateur micro-onde comme le temps de digestion, la température et la pression (Lamaison, 2006; Kulkarni et al., 2007).

Le choix des acides dépend de la matrice des échantillons et des éléments que l'on veut analyser (Tableau 8). Les réactifs doivent permettre une mise en solution complète de l'échantillon particulière et le mélange d'acides doit également être choisi en tenant compte de la technique et du matériel analytique utilisés. Chaque acide possède un potentiel de digestion (d'oxydation) différent pour les particules induisant des recouvrements variables, voire des interférences lors de la mesure par des méthodes ICP-AES et ICP-MS, associées à la matrice des échantillons (Yang et al, 2002). Les acides HCl, H₂SO₄ et HClO₃ sont souvent déconseillés car ils introduisent des interférences en ICP-MS en ajoutant les éléments Cl, S dans la matrice (Yang et al., 2002; Karthikeyan et al., 2006).

L'acide nitrique présente un caractère oxydant fort (couple NO₃⁻/HNO₂, E°= 0,94V), permettant de minéraliser les composés organiques donc de libérer les ions métalliques (Yang et al, 2002) sauf Au et Pt. L'eau régale, mélange d'HCl et d'HNO₃ (3:1 v/v) permet de mettre en solution une partie de la matière inorganique et des métaux nobles tels que Pt, Au, etc. inattaquable par l'acide nitrique seul ou un autre acide. L'acide fluorhydrique permet de mettre en solution les matrices alumino-silicatées présentes et augmente le taux de recouvrement du Cr et du Si malgré la formation du SiF₄ volatil. Il forme des composés

insolubles avec des alcalino-terreux, lanthanide, et actinide et introduit des interférences via la présence de F⁻ (Yang et al, 2002). Pour éliminer l'HF dans la solution, on peut l'évaporer ou utiliser l'acide borique (H₃BO₃) pour transformer l'HF selon la réaction :



L'introduction du H₃BO₃ entraînant une autre interférence de la matrice, on ne l'utilise que dans des cas bien spécifiques (Karthikeyan et al., 2006).

Le peroxyde d'hydrogène est souvent utilisé en complément de l'acide nitrique (HNO₃ + H₂O₂) car il en améliore le pouvoir oxydant. Ce mélange, préconisé par la norme européenne NE 14902, introduit peu d'interférence pour les mesures ICP-MS.

Tableau 8 : Exemples de mises en solution et de techniques d'analyses des particules atmosphériques dans la littérature.

Eléments	Solution d'attaque	Technique analytique	Auteurs
Cd, Ni, Pb et As	8 mL HNO ₃ - 2 mL H ₂ O ₂	GFAAS, ICP-MS	CEN 14902
Na, Mg, Al, K, Ti, V, Mn, Fe, Co, Ni, Cu, Zn, As, Se, Rb, Sb, Cd, Cs, Ba, Pb, Th, U et plusieurs REEs (La, Ce, Pr...)	HNO ₃ -HF-H ₃ BO ₃	ICP-MS	Kulkarni et al., 2007
V, Cr, Mn, Fe, Co, Ni, Cu, Zn, As, Se, Cd, Sb, et Pb	HF-HNO ₃ -H ₂ O ₂ -H ₃ BO ₃	ICP-MS	Yang et al.2002
As, Co, Cu, Ni, Cd, Cr, Mn, V, Zn, Fe, Pb	HNO ₃ -HF-H ₂ O ₂	ICP-MS	Karthikeyan et al., 2006
(Fe, Mn, Zn, Ni, Cr, Pb, Cd, Cu) ^a , (Fe, Mg, K, S) ^b , (Cu, Ni, Mn, Cr, Cd, Ba, As, V, Sb, Pb, Zn) ^c	HNO ₃ -HF-HClO ₃	AAS, ICP-AES, ICP-MS	Wang et al., 1996
36 métaux	HCl-HNO ₃ -HF	ICP- AES, ICP-MS- DRC	Lamaison, 2006
38 métaux	H ₂ O ₂ -HNO ₃ -HF	ICP- AES, ICP-MS	Rimetz, 2007

^a) méthode AAS ; ^b) méthode ICP-AES ; ^c) méthode ICP-MS

3.1.4. Matériel et réactifs utilisés

Dans cette étude, nous avons opté pour une digestion par chauffage micro-ondes en milieu fermé à l'aide d'un minéraliseur Milestone, ETOS TC. Un thermocouple placé dans un des réacteurs permet un contrôle de la température de chauffage. Les récipients utilisés sont des bombes en Téflon maintenues fermées par un ressort réglé pour résister jusqu'à une pression de 100 bars. L'intérieur du minéraliseur est ventilé et est relié à une hotte aspirante

pour parer au dégazage éventuel. Le programme de température pour la mise en solution des particules par minéraliseur Milestone, ETOS TC sont présenté en Annexe 5.

Le mélange $\text{HNO}_3/\text{H}_2\text{O}_2$ (4:1 v/v) a été utilisé pour la mise en solution des échantillons de particules atmosphériques afin de limiter les problèmes d'interférences et de contamination (Lamaison, 2006). L'acide nitrique Suprapur de Merck (65%), et l'eau oxygénée Fluka TraceSelectUltra ($\geq 30\%$) ont été utilisés. L'eau déminéralisée, est obtenue au laboratoire par un système de purification MilliQ Gradient (conductivité $< 0,05 \mu\text{S}\cdot\text{cm}^{-1}$).

3.2. La mesure par ICP-AES et ICP-MS

Les méthodes ICP-MS et ICP-AES se sont largement développées pour analyser les métaux avec des avantages évidents tels que l'analyse quantitative rapide et multi-élémentaire simultanée, des limites de détection très basses par rapport à celle de la Spectrométrie d'Absorption Atomique (SAA), une richesse spectrale, la capacité d'analyse isotopique, etc. L'ICP-MS est notamment une des méthodes recommandées (avec la SAA) par la norme EN14902 (2005) pour l'analyse des métaux lourds dans la fraction PM_{10} de l'air ambiant.

3.2.1. Principe de l'ICP-AES

La Spectrométrie d'Emission Atomique par Couplage à Plasma Inductif (ICP-AES) est une technique permettant la quantification simultanée d'un grand nombre d'éléments. L'échantillon liquide est, dans un premier temps, nébulisé en fines gouttelettes. L'aérosol produit est ensuite transporté sous flux d'argon vers un plasma d'argon à près de 6000 K. Les éléments y sont atomisés et ionisés, se retrouvant dans un état excité. Chaque élément, en revenant à son état fondamental, émet alors des photons de longueurs d'onde caractéristiques dont le flux est proportionnel à la concentration en élément de l'échantillon. L'intensité lumineuse est détectée dans notre cas par un capteur CID (Détecteur à injection de charge) pour une très large bande spectrale.

3.2.2. Matériel ICP-AES utilisé dans le cadre de notre étude

L'appareil utilisé au laboratoire est un spectromètre Iris Intrepid (Thermo Elemental) associé à un passeur automatique, tous deux contrôlés par informatique.

3.2.3. Optimisation des performances ICP-AES

Choix des éléments mesurés en ICP-AES

Nous avons analysé les éléments Al, Ba, Ca, Fe, K, Mg, Mn, Na, Sr et Ti par cette technique en nous basant sur les limites de détection que l'on peut obtenir avec l'appareillage disponible au laboratoire.

Choix des raies mesurées et des paramètres d'analyses

Pour chaque élément, différentes raies d'émission (longueur d'onde) sont disponibles. Les raies d'émission ont été choisies par rapport à leur sensibilité et en se basant sur la littérature. Excepté pour les éléments Ca, K et Na, plusieurs raies sont utilisées par élément. Pour chaque élément, nous ne gardons l'information que sur la raie la plus sensible, ayant les limites de détection les plus basses et le recouvrement par rapport à un MCR (Matériaux Certifiés de Référence) le plus proche de 100%. Les longueurs d'onde utilisées sont données en Annexe 6.

D'autres paramètres ont fait l'objet d'une optimisation : puissance du plasma, débit de nébulisation, temps d'intégration, détermination du temps de rinçage optimal. Les paramètres d'analyse choisis sont donnés dans l'Annexe 6.

3.2.4. Principe de l'ICP-MS

Le système d'introduction de l'ICP-MS est semblable à celui de l'ICP-AES (résistant à l'acide fluorhydrique) mais le système de détection change (Figure 16). Les ions formés dans le plasma sont capturés par un champ électrostatique dans la région de l'interface du système (cônes) et canalisés vers le spectromètre de masse (quadripôle) (Bouchoux et Sablier, 2005).

Le spectromètre de masse est utilisé comme filtre de masse et transmet sélectivement les ions selon leur rapport masse sur charge (m/z). Les ions sont capturés et amplifiés par un multiplicateur d'électrons puis quantifiés.

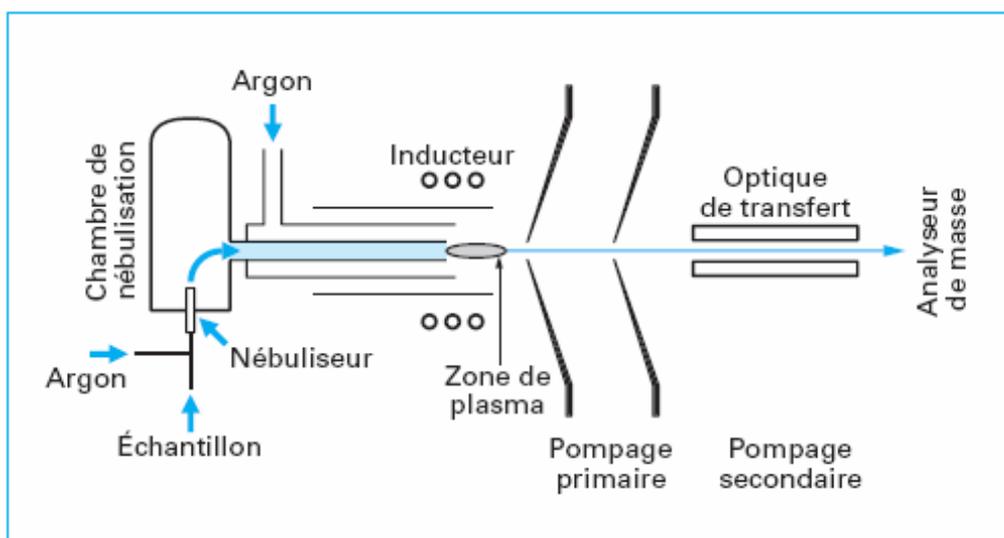


Figure 16 : Schéma de principe d'une source ICP-MS.

3.2.5. Matériel ICP-MS utilisé dans le cadre de notre étude

L'ICP-MS utilisé est un spectromètre Elan 6100 DRC (Perkin Elmer). Il est équipé d'une chambre dynamique réactionnelle (Dynamic Reaction Cell) utilisée pour éliminer les interférences polyatomiques (Figure 17).

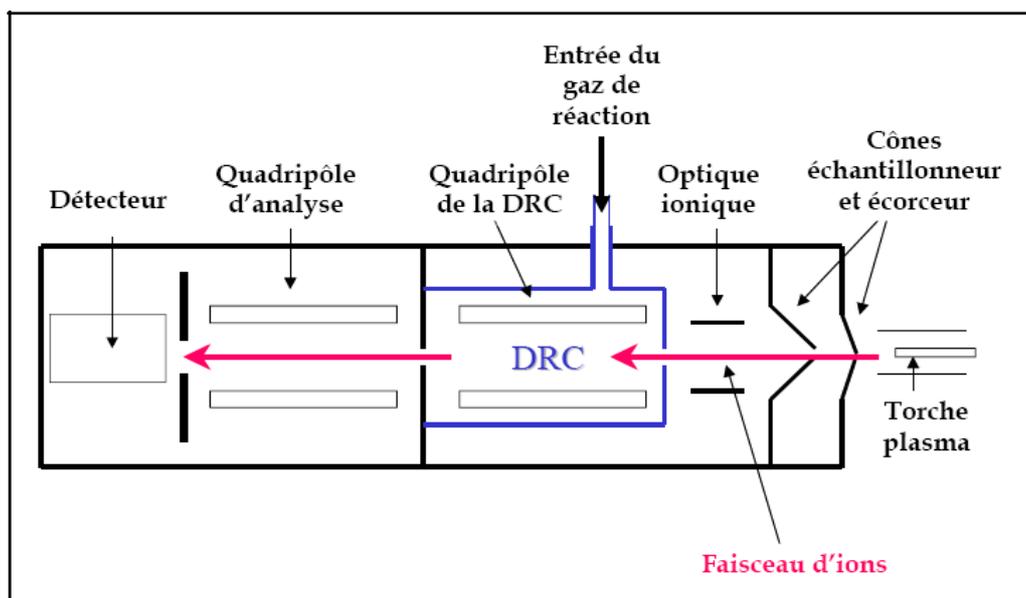


Figure 17 : Schéma d'une chambre dynamique réactionnelle – DRC.

L'Elan 6100 DRC permet de travailler avec ou sans la DRC. Il est équipé de deux quadripôles : celui utilisé pour la sélection des ions avant leur comptage et un deuxième quadripôle en amont intégré dans la DRC positionnée derrière les cônes d'extraction. En mode standard, lorsqu'elle n'est pas utilisée, elle est placée sous vide et son quadripôle est alimenté par des tensions continues (il sert de lentille de transmission). Lorsque la DRC est utilisée, la chambre est pressurisée avec un gaz agissant sur les interférences ; le quadripôle est alors utilisé pour créer un filtre sur la masse des ions transmis, permettant de limiter certaines interférences.

3.2.6. Les interférences en ICP-MS

Il y a deux types principaux d'interférences : physiques et isobariques.

Les interférences physiques sont dues à la matrice de l'échantillon, qui peut fortement influencer sur l'énergie d'ionisation des éléments à doser. Les interférences isobariques (Tableau 9) peuvent être élémentaires ou polyatomiques. Les premières sont dues au spectre de masse de l'isotope d'un élément se superposant avec celui d'un autre élément. C'est le cas par exemple du ^{110}Cd qui se superpose avec celui de ^{110}Pd . Les interférences isobariques polyatomiques sont dues à la recombinaison d'atomes présents dans l'échantillon, dans le plasma ou dans l'air : azote, oxygène, argon, fluor, hydrogène et chlore (Yang et al., 2002).

Tableau 9 : Quelques interférences isobariques (Rupprecht et Bropst, 1998).

Isotopes analytiques	Principales Interférences isobariques	Isotopes analytiques	Principales Interférences isobariques
⁵⁰ Cr	Ti ⁺	⁶¹ Ni	CaOH ⁺
⁵² Cr	ArC ⁺	⁶² Ni	TiO ⁺
⁵³ Cr	ClO ⁺	⁶⁴ Ni	TiO ⁺ ; Zn ⁺
⁵⁴ Cr	Fe ⁺ ; ArN ⁺	⁶³ Cu	TiO ⁺
⁵⁴ Fe	Cr ⁺ ; ArN ⁺	⁶⁵ Cu	TiO ⁺ ; Ba ²⁺
⁵⁶ Fe	CaO ⁺ ; ArO ⁺	⁶⁴ Zn	Ni ⁺ ; TiO ⁺
⁵⁷ Fe	CaOH ⁻	⁶⁶ Zn	TiO ⁺ ; Ba ²⁺
⁵⁸ Fe	Ni ⁻ ; CaO ⁺	⁶⁷ Zn	Ba ²⁺
⁵⁸ Ni	Fe ⁺ ; CaO ⁺	⁶⁸ Zr	Ba ²⁺
⁶⁰ Ni	CaO ⁺	⁷⁰ Zr	Ge ⁺

3.2.7. L'optimisation des performances ICP-MS

Les conditions opératoires de la mesure des métaux par ICP-MS sont présentées en Annexe 7. Les performances de l'ICP-MS sont vérifiées quotidiennement avec une solution de contrôle calibrée (Daily Performance). Cette solution à 10 µg/L contient du Mg, de l'In, du Pb (éléments de masse légère, moyenne et lourde), du Ba (élément facilement doublement ionisable) et du Ce (élément facilement oxydable en sortie de plasma). On vérifie que les éléments ont une réponse acceptable. Les rapports CeO/Ce et Ba²⁺/Ba ne doivent pas excéder 3%. Les bruits de fond aux masses 220 et 8 (absence de tout signal) sont aussi vérifiés. Si les conditions ne sont pas remplies, on ajuste notamment le débit de gaz de nébulisation ou la puissance du plasma.

3.2.8. Le contrôle de la qualité des analyses

L'étalonnage externe

L'étalonnage des appareils est effectué avant toute analyse. Les solutions étalons multi-élémentaires sont préparées à partir de solutions étalons mono-élémentaires à 1g/L raccordées aux NIST. Cinq solutions étalons sont préparées pour l'étalonnage dont un blanc acide. La gamme d'étalonnage pour chaque élément dépend de la concentration attendue (de 100 à 1000 ppb pour les analyses par ICP-AES, et de 100 à 1000 ppt pour les analyses par ICP-MS). Les solutions étalons sont préparées dans la même matrice acide que les échantillons.

L'étalonnage interne (pour ICP-MS uniquement)

Un étalon interne (1 µg/L) est ajouté à chaque échantillon, blanc ou étalon pour les analyses par ICP-MS. L'étalon choisi est l'In, qui possède une bonne réponse en ICP-MS et qui est présent dans l'atmosphère en quantité négligeable. Le logiciel prend en compte la valeur de l'étalon interne pour corriger les réponses de chaque élément dans les échantillons. Ceci permet de limiter d'éventuelles variations au cours du temps au niveau de l'introduction de l'échantillon et du plasma.

Les contrôles qualités - QC

Tous les cinq échantillons, une solution certifiée contenant tous les analytes recherchés en concentrations connues (100 ppb pour les analyses par ICP-AES, et 400 ppt pour les analyses par ICP-MS) est analysée. L'écart entre la concentration détectée et celle attendue ne doit pas dépasser plus ou moins 5%. Au-delà, l'appareil est de nouveau étalonné. Ceci permet de contrôler la déviation éventuelle de l'étalonnage en cours d'analyse.

3.3. Validation des méthodes d'analyse

3.3.1. Limites de détection et blancs

La limite de détection instrumentale (LDI) permet d'établir la limite de détection liée aux caractéristiques de la technique analytique et se calcule à partir de blancs d'acide (2% HNO₃ dans l'eau ultrapure) analysés 10 fois au cours d'une même séance d'analyse. La limite de détection instrumentale représentée par convention 3 fois (t Student arrondi à l'unité supérieure) l'écart type (σ) de la moyenne des 10 blancs analysés (Équation 6).

Équation 6 :
$$LD I = 3 \times \sigma_{\text{blanc}}$$

La limite de détection de la méthode LDM (Équation 7) est calculée à partir de l'analyse de blancs méthodologiques (10 filtres vierges similaires à ceux utilisés lors des prélèvements) préparés suivant la même procédure que les échantillons. Elle prend en compte à la fois la limite de détection de la technique instrumentale mais aussi les variations du contenu chimique des filtres et l'étape de préparation (minéralisation et dilution).

Équation 7 :
$$LDM = 3 \times \sigma_{fv}$$

Ces limites de détection ont été déterminées lors de la mise au point de la méthode et sont vérifiées régulièrement pour contrôler les éventuelles dérives. Les limites de détection analytiques et méthodologiques obtenues sont présentées en Annexe 8.

3.3.2. La contamination

La contamination de l'échantillon par des particules métalliques peut avoir lieu au cours des manipulations durant le prélèvement, le transport, la préparation, la digestion acide au four micro-onde (réactifs et réacteurs utilisés), la récupération des minéralisats, l'analyse par ICP-MS et ICP-AES (Rasmussen et al., 2007). Selon Rasmussen et al. (2007), les sources et l'intensité de la contamination varient significativement d'un élément à l'autre. Leur travail a montré que la contamination en métaux vient de plusieurs sources telles que la déposition de poussières, le contact avec les instruments, le matériel dans chaque étape qui contribuent à la contamination majoritaire en Zn, Al, Mn, Ni et Cr.

Le principal problème pour l'analyse élémentaire est la contamination en métaux et éléments traces liée au substrat de prélèvement, fonction du type et du fabricant de filtres. Seul un choix judicieux des média, un nettoyage préalable des filtres et des manipulations précautionneuses permettent de réduire ces risques (Crist et al., 2008). Les éléments les plus volatils, Hg, As, Sb, Sn sont assez peu impactés par ces phénomènes sauf dans certaines conditions de température et pression ou pour des espèces organométalliques.

Des travaux précédents (Lamaison, 2006) ont montré que les blancs d'acides analysés avaient des teneurs relativement élevées en certains éléments. Pour le Zn, Th, Rb, Cd, Zr et Ni, le phénomène observé est probablement dû à un "effet de mémoire" ou à des contaminations de l'ICP-MS qui ne sont éliminées qu'après une longue étape de rinçage. Pour remédier à ce problème, Lamaison (2006) a proposé au début de chaque série d'analyses, une étape de nettoyage : une solution de blanc acide (HNO_3) est introduite en continu dans l'ICP-MS pendant 50 minutes, les teneurs en différents éléments sont mesurées au cours du temps jusqu'à obtenir des valeurs suffisamment faibles pour effectuer une analyse de qualité. En cours d'analyse, des blancs d'acides sont introduits régulièrement pour contrôler la valeur du bruit de fond. En outre, les temps de rinçage entre chaque échantillon sont également augmentés (de 60s à 120s).

Enfin, pour minimiser la contamination, différentes mesures sont prises :

- Les réactifs acides et l'eau utilisées sont de qualité supérieure (Gamme Suprapur de Merck pour les acides, eau ultrapure MilliQ Gradient).
- Les réacteurs en Téflon utilisés pour la digestion acide sont rincés après chaque utilisation plusieurs fois à l'eau ultrapure et immergées dans un bain d'eau acidifiée à 5% (v/v) pendant au minimum 24h.
- La préparation et la récupération des échantillons après digestion s'effectuent en salle blanche et sous une hôte à flux laminaire de classe 10 (US).

D'autres expériences ont également été effectuées telles que : sélection des filtres les plus purs, nettoyage à l'acide des filtres et des tubes d'analyse et études sur les effets mémoire de l'ICP-MS.

Les caractéristiques des filtres utilisés habituellement pour la mesure de la qualité de l'air ont été présentées précédemment. Nous avons choisi les filtres en téflon (PTFE) Zefluor™ (Pall Corporation, 47mm) pour les prélèvements du MicroVol et Mitex™ (Millipore, 25mm) pour l'impacteur en cascade car ils répondent bien au critère de faible niveau de contamination élémentaire et de résistance en milieu acide à haute pression (étape de digestion). Ils ont par ailleurs déjà été validés lors d'études précédentes (Lamaison, 2006).

La procédure de nettoyage des filtres en Téflon consiste à les immerger dans une solution d'acide nitrique Suprapur à 5% pendant une heure dans un bain à ultrasons puis à les rincer à l'eau ultrapure. Pour valider cette procédure, dix filtres vierges nettoyés et dix filtres vierges non nettoyés ont subis une digestion acide (8 mL HNO₃ + 2 mL H₂O₂) et ont été analysés. Les résultats (Annexe 8) obtenus montrent que le nettoyage améliore nettement les blancs et les limites de détection pour le Zn, Ti, Sr, Sb, Pb, Mg, Ba et le K.

3.3.3. Blanc

La différence entre les moyennes de concentrations de blancs de filtres vierges et la moyenne de concentration de blancs de filtres de terrain permet de déterminer la contamination éventuelle des filtres sur le terrain. Les résultats obtenus sur les blancs filtres vierges et blancs filtres de terrain sont présentés en Annexe 8.

Des contaminations des filtres de terrain sont observées pour les éléments Ca, Fe, Mn alors que pour Cr, K, Ni, Sr, Ti, V, la contamination dans les filtres de terrain est moindre, voire négligeable. Aucune contamination n'a été mise en évidence pour les autres éléments.

3.3.4. La justesse

La justesse des méthodes est déterminée par l'analyse de deux Matériaux Certifiés de Référence (MCR) : le NIST SRM 1648 et le NIST SRM 2584 pour les particules de l'air extérieur et l'air intérieur, respectivement. Pour quantifier la justesse de la méthode, des taux de recouvrement pour chaque élément sont calculés. Pour cela, selon la procédure proposée par Lamaison (2006), 20 échantillons de chaque MCR sont pesés (entre 3 et 5 mg), mis en solution au cours d'une même étape de minéralisation et analysés selon les mêmes procédures que les échantillons. Les résultats obtenus sont présentés en Annexe 9.

En général on peut identifier 3 groupes d'éléments :

- Eléments avec de bons taux de recouvrements (entre 85 et 115 %) obtenus pour une très grande majorité des éléments : Ag, Al, As, Ba, Cd, Co, Cr, Cu, Fe, K, Mg, Mn, Na, Ni, Pb, Sb, Ti, V, et Zn.

- Eléments sous-évalués : Si (34,1 % ; 26,4% dans SRM 2584 et SRM 1648).
- Eléments surévalués : Ca (122,7%) et Se (269,5%) dans SRM 2584.

Le taux de recouvrement du Si est particulièrement bas. Cet élément ne pourra pas être retenu dans la base de données.

En conclusion :

La procédure de minéralisation par micro-ondes choisie dans cette étude fait appel au mélange de (H₂O₂, HNO₃) proposée par la Norme Européenne NF EN14902 : 2005. Les échantillons sont ensuite analysés par ICP-MS en mode standard pour les éléments traces (Ag, As, Ba, Cd, Co, Cr, Cu, La, Mn, Ni, Pb, Pd, Pt, Sb, Sc, Sr, Th, Ti, V, W, Zn et Zr) et par ICP-AES pour les éléments majeurs (Al, Ba, Ca, Fe, K, Mg, Na, Sr, Ti). Une attention particulière est portée à la qualité de l'analyse afin de limiter la contamination et de garantir la justesse des résultats, étant donné les très faibles teneurs attendues sur nos échantillons dans l'air intérieur.

3.4. La mise en œuvre de la mesure EC et OC

Comme présenté au paragraphe (1.2.3.2), l'EC et OC particulières ont été déterminés à l'aide d'un analyseur Sunset Laboratory Inc qui suit la méthode NIOSH 5040.

Dans le cadre de ce travail nous avons mesuré EC, OC dans les PM_{2,5} prélevées en air intérieur et extérieur par des Microvol sur filtres en quartz 47 mm préalablement grillés pendant 4h à 550°C. Les filtres, grillés pour éliminer toute trace de matière organique, ont été conservés dans du papier d'aluminium au réfrigérateur à 4°C avant chaque prélèvement et transportés sur le terrain dans des sacs plastiques hermétiques afin d'éviter le dépôt de particules et l'adsorption des COV atmosphériques. Les échantillons stockés au réfrigérateur ont généralement été analysés dans les jours qui ont suivi la fin de chaque prélèvement.

Chaque filtre d'échantillon a été poinçonné en plusieurs carrés de 1,5 cm². Une mesure est effectuée sur chaque poinçon. Toutes les 5 analyses d'échantillon, un contrôle qualité (QC) est effectué à l'aide d'un poinçon de filtre de quartz vierge sur lequel est déposé 10 µL de saccharose (C₁₂H₂₂O₁₁) à 4,207 µg C/µL de solution. Les paramètres d'optimisation, les blancs ainsi que les QC sont présentés en Annexe 10. Les concentrations en EC, OC d'un échantillon sont les concentrations moyennes de trois poinçons.

La mise en œuvre de l'appareil est résumée ci-dessous :

L'échantillon à analyser est introduit dans un four en quartz, puis soumis à 4 paliers de température croissante entre la température ambiante et 870 °C sous atmosphère d'hélium pur. Cette séquence permet la vaporisation de la fraction de carbone organique. La matière carbonée vaporisée est oxydée en CO₂ en passant à travers du dioxyde de manganèse (MnO₂) dans un four secondaire, puis réduite dans un troisième four sous forme de méthane (CH₄), à travers une brique dopée au nickel. La quantité de méthane produite est mesurée de façon continue avec un détecteur à ionisation de flamme (FID). La température décroît à 600°C puis le flux d'hélium pur est ensuite remplacé par un flux d'hélium à 2% d'oxygène, permettant la combustion du carbone élémentaire en 3 fractions successives, de 600°C jusqu'à 900°C. De même que pour OC, le CO₂ produit par la combustion en milieu oxygéné est réduit sous

forme de méthane. Une calibration automatique par injection d'une quantité de méthane connue dans le four est réalisée en fin de séquence d'analyse.

4. Le calcul d'incertitude

L'incertitude de mesure se définit comme "un paramètre associé au résultat d'une mesure, qui caractérise la dispersion des valeurs et pourrait être raisonnablement attribué au mesurande" (EURACHEM/CITAC, 2000). En pratique, l'incertitude affectant un résultat peut provenir de plusieurs sources d'incertitude dont l'échantillonnage, les conditions d'environnement (température, pression), les imprécisions des appareils de mesure, de prélèvement ou de pesée, les pertes issues de la mise en solution, les effets de matrice et interférences lors de l'analyse. En général, il y a cinq étapes pour le calcul d'estimation de l'incertitude du mesurande :

- La spécification du mesurande;
- L'identification des sources d'incertitude;
- La quantification des composantes de l'incertitude;
- Le calcul de l'incertitude composée et de l'incertitude élargie;
- L'expression du résultat final.

Nous présentons ci-après les méthodes de calcul d'incertitude mises en œuvre pour la concentration en masse des particules, la concentration en OC, EC et en métaux.

4.1. Incertitude sur la concentration en masse de particules

4.1.1. Spécifier le mesurande

Dans ce cas, il s'agit de la concentration en masse des particules en suspension dans l'air intérieur et extérieur (exprimée en $\mu\text{g}/\text{m}^3$) ; elle est calculée à partir du volume d'échantillonnage V (m^3) et de la masse de particules collectées sur filtre (en μg) selon l'équation suivante :

Équation 8 :
$$C = \frac{m}{V} = \frac{\overline{m_f} - \overline{m_0}}{V}$$

où C : concentration en masse de particules ($\mu\text{g}/\text{m}^3$)

m : la masse des particules prélevées (μg)

$\overline{m_f}$: la masse du filtre empoussiéré (μg)

$\overline{m_0}$: la masse du filtre avant le prélèvement (μg)

V : le volume d'air prélevé (m^3).

4.1.2. Identification des sources de l'incertitude

Pour lister les sources d'incertitude, le guide EURACHEM/CITAC recommande d'exploiter l'équation de calcul du mesurande (Équation 8). Dans cette expression, tous les paramètres peuvent avoir une incertitude associée à leur valeur et sont donc des sources potentielles d'incertitude. Il peut également exister d'autres paramètres qui n'apparaissent pas explicitement dans l'expression de calcul du mesurande, mais qui affectent les résultats de la mesure et sont également des sources potentielles d'incertitude.

On construit maintenant un diagramme des causes et des effets (FFF), également appelé diagramme "en arêtes de poisson" qui représente tous les termes intervenant dans l'Équation 8 du mesurande par les flèches principales du diagramme (en gras) pour dresser la liste des sources d'incertitude (EURACHEM/CITAC).

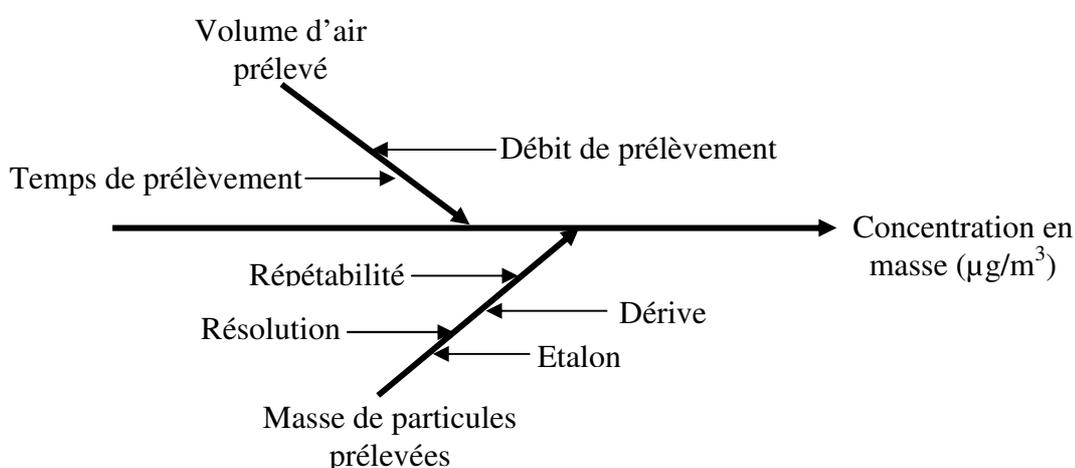


Figure 18 : Diagramme des causes et des effets des différentes sources d'incertitude.

4.1.3. Quantification des composantes de l'incertitude

Une fois les sources d'incertitude identifiées, on quantifie l'incertitude générée par chaque source individuelle et les combine. Les incertitudes individuelles associées au pesage des particules (l'étalonnage, la résolution, la répétabilité et la dérive de la balance) sont évaluées comme suit :

Équation 9 :
$$u_{résolution}^2 = \left(\frac{0,001}{\sqrt{3}}\right)^2$$

Équation 10 :
$$u_{répétabilité}^2(m_f) = \frac{[équart_type(m_f)]^2}{n}$$

Équation 11 :
$$u_{répétabilité}^2(m_0) = \frac{[équart_type(m_0)]^2}{n}$$

Équation 12 :
$$u_{étalon}^2 = \left(\frac{0,012}{2}\right)^2 \text{ pour les filtres de 25 mm en diamètre}$$

Équation 13 : $u_{\text{étalon}}^2 = \left(\frac{0,025}{2}\right)^2$ pour les filtres de 47 mm en diamètre

Équation 14 : $u_{\text{dérive}}^2 \approx 0$ (la courbe de reproductibilité est corrélée,
 $u_{\text{dérive}}^2 = \left(\frac{\text{pente}}{\sqrt{3}} \cdot t\right)^2$; ou on peut utiliser l'écart maximum des valeurs mesurées avec la valeur certifiée des étalons : $u_{\text{dérive}}^2 = \left(\frac{\text{Ecart} - \text{Max}}{\sqrt{3}}\right)^2$).

Les incertitudes individuelles liées au volume de prélèvement sont l'incertitude de débit (u_d^2), et l'incertitude du temps de prélèvement (u_t^2) estimées selon les équations suivantes :

Équation 15 : $u_d^2 = \left(\frac{4/100}{\sqrt{3}}\right)^2$

Équation 16 : $u_t^2 = n \cdot \left(\frac{2}{60 \cdot \sqrt{3}}\right)^2$ pour les filtres utilisés dans la période en présence des élèves ; n est le nombre de périodes de prélèvement.

$u_t^2 = m \cdot \left(\frac{2}{60 \cdot \sqrt{3}}\right)^2$ pour les filtres utilisés dans la période en absence des élèves ; m est le nombre de période de prélèvement.

4.1.4. Calcul de l'incertitude composée et de l'incertitude élargie

La relation générale qui permet de calculer l'incertitude type composée $u(y)$ d'une valeur y est la suivante :

Équation 17 : $u_{(y)}^2 = \sum_{i=1}^n \left(\frac{\partial u}{\partial x_i}\right)^2 \cdot u^2(x_i)^2$

où $y = f(x_1, x_2, \dots, x_i, \dots, x_n)$ est une fonction de plusieurs paramètres considérés indépendants. L'application de l'estimation de l'incertitude composée pour l'Équation 17 on obtient :

Équation 18 : $u_{(C)}^2 = \left(\frac{\partial C}{\partial m_f}\right)^2 \cdot u^2(\overline{m_f}) + \left(\frac{\partial C}{\partial m_0}\right)^2 \cdot u^2(\overline{m_0}) + \left(\frac{\partial C}{\partial V}\right) \cdot u^2(V)$

$u_{(C)}^2 = \left(\frac{1}{V}\right)^2 \cdot u^2(\overline{m_f}) + \left(\frac{-1}{V}\right)^2 \cdot u^2(\overline{m_0}) + \left[\frac{-1}{V^2} (\overline{m_f} - \overline{m_0})\right]^2 \cdot u^2(V)$

$$u_{(C)}^2 = \frac{1}{V^2} \cdot [u^2(\overline{m_f}) + u^2(\overline{m_0})] + \left(\frac{1}{V^2}\right)^2 (\overline{m_f} - \overline{m_0})^2 \cdot u^2(V)$$

$$u_{(C)} = \sqrt{\frac{1}{V^2} \cdot [u^2(\overline{m_f}) + u^2(\overline{m_0})] + \frac{1}{V^4} (\overline{m_f} - \overline{m_0})^2 \cdot u^2(V)}$$

$$u_{(C)} = \frac{1}{V} \cdot \sqrt{u^2(\overline{m_f}) + u^2(\overline{m_0}) + \frac{1}{V^2} (\overline{m_f} - \overline{m_0})^2 \cdot u^2(V)}$$

a) Détermination de $u^2(\overline{m_f})$ et $u^2(\overline{m_0})$

Équation 19 : $u^2(\overline{m_f}) = u_{\text{pétabilité}}^2(m_f) + u_{\text{étalon}}^2 + u_{\text{dérive}}^2 + u_{\text{résolution}}^2$

Équation 20 : $u^2(\overline{m_0}) = u_{\text{pétabilité}}^2(m_0) + u_{\text{étalon}}^2 + u_{\text{dérive}}^2 + u_{\text{résolution}}^2$

b) Détermination de $u^2(V)$

Équation 21 : $V = d \cdot t$

où d : débit (L/min),

t : temps (min).

(Si on calcule l'incertitude directement à partir des volumes, la valeur est égale à

$(u_V^2 = \left(\frac{2}{100 \cdot \sqrt{3}} \cdot V\right)^2$ pour le compteur volumétrique Gallus 2000). L'application du calcul

d'incertitude composée pour l'Équation 21 donne :

Équation 22 : $u^2(V) = \left(\frac{\partial(V)}{\partial d}\right)^2 \cdot u^2(d) + \left(\frac{\partial(V)}{\partial t}\right)^2 \cdot u^2(t) = t^2 \cdot u^2(d) + d^2 \cdot u^2(t)$

$$u(V) = \sqrt{t^2 \cdot u^2(d) + d^2 \cdot u^2(t)}$$

4.1.5. Présentation du résultat final

L'incertitude élargie $U(f) = 2 \cdot u(c)$ correspond à un intervalle de confiance de 95%. La concentration finale en masse des particules ($\mu\text{g}/\text{m}^3$) est exprimée selon : $C \pm U(f)$.

Les résultats d'incertitude élargie dans cette étude varient de 1,8% à environ 14% de la concentration en particules de différentes fractions pour une gamme de concentration respectivement d'environ 80 $\mu\text{g}/\text{m}^3$ à quelques $\mu\text{g}/\text{m}^3$.

4.2. Incertitude sur la concentration en OC et EC

De façon similaire au calcul d'incertitude sur la concentration en masse des particules présenté précédemment, l'estimation de l'incertitude sur la concentration en OC et EC peut s'effectuer (Équation 23).

Équation 23 :
$$C = \frac{m}{V}$$

où m : masse de OC, ou EC sur le filtre en fibre de quartz (μg), V : volume d'air prélevé (m^3).
L'incertitude composée est déterminée selon l'équation suivante :

Équation 24 :

$$u_{(C)}^2 = \left(\frac{\partial C}{\partial m}\right)^2 \cdot u^2(m) + \left(\frac{\partial C}{\partial V}\right)^2 \cdot u^2(V)$$
$$u_{(C)}^2 = \left(\frac{1}{V}\right)^2 \cdot u^2(m) + \left[\frac{-1}{V^2}(m)\right]^2 \cdot u^2(V)$$
$$u_{(C)}^2 = \left(\frac{1}{V}\right)^2 \cdot \left[u^2(m) + \frac{m^2}{V^2} \cdot u^2(V)\right]$$
$$u_{(C)} = \frac{1}{V} \cdot \sqrt{u^2(m) + \left(\frac{m}{V}\right)^2 \cdot u^2(V)}$$

Les incertitudes élargies correspondant à un intervalle de confiance de 95% sur la concentration en OC varient de $0,4 \mu\text{g}/\text{m}^3$ à $1,64 \mu\text{g}/\text{m}^3$ pour une gamme de volumes de l'air prélevé de $4,5 \text{ m}^3$ à 22 m^3 : Plus le volume de prélèvement augmente moins l'incertitude est importante. Ces incertitudes représentent moins de 10% de la concentration en OC mesurée dans ce travail. De la manière similaire, les incertitudes élargies sur les concentrations en EC varient de $0,02 \mu\text{g}/\text{m}^3$ à $0,13 \mu\text{g}/\text{m}^3$ pour une gamme des volumes d'air identiques. Elles sont globalement inférieures ou égales à 7 % de la concentration en EC.

4.3. Incertitude de la concentration en métaux

Dans cette étude, nous avons utilisé les mêmes protocoles opératoires et matériels de quantification des concentrations en métaux (ICP-AES, et ICP-MS) et les mêmes matériaux de référence certifiés (NIST 1648 et NIST 2584) que dans l'étude de Lamaison (2006). Les incertitudes pour les concentrations en métaux dans notre étude sont donc considérées très similaires à celles de cette précédente étude.

Ainsi, selon Lamaison (2006), un volume de prélèvement de 15 m^3 induit une incertitude liée à la contamination limitée ($\approx 8\%$) par rapport à l'incertitude globale des concentrations en métaux (incluant le prélèvement et la mesure). En revanche, pour un plus faible volume prélevé ($\approx 0,33 \text{ m}^3$), la contamination devient très importante ($\approx 70\%$ de l'incertitude globale). Les volumes de prélèvement durant notre étude ont varié de $5,7$ à 220

m³, ce qui nous a amené, en tenant compte de la justesse (taux de recouvrement), de l'incertitude liée à la masse des particules et de la contamination, à considérer une incertitude globalement inférieure à 15% dans notre cas.

5. Les méthodes d'identification et traçage des sources d'émission des polluants

5.1. Introduction

L'identification des principales sources de polluants est une étape importante pour le contrôle et la réduction des émissions de ces polluants. Plusieurs approches sont possibles :

- Des **inventaires d'émission** couplés à des **modèles de dispersion**. Les modèles de dispersion des polluants prennent en compte les émissions et les processus de transport des polluants en fonction de paramètres météorologiques en intégrant parfois les réactions chimiques entre polluants.
- Des études de **caractérisation chimique à l'échelle de la particule**. Elles peuvent directement montrer les associations entre éléments au sein d'une particule individuelle et par comparaison avec des prélèvements à la source, identifier les sources correspondantes.
- Des **modèles sources-récepteur** : Ils reposent sur le prélèvement de particules dans l'air ambiant sur un site dit "récepteur", sur la détermination de la composition chimique de ces particules et sur l'application de méthodes statistiques multivariées. Les techniques d'analyse élémentaire globales utilisées sont faciles à mettre en œuvre. De plus, ils permettent de déterminer des profils de sources et, pour certains, de connaître la contribution relative de chaque source impactant le site récepteur.

Dans cette thèse, nous utilisons principalement les méthodes statistiques multivariées telles que la CH (Classification Hiérarchique). Elles sont épaulées par les facteurs d'enrichissement et les ratios élémentaires, nous permettant d'identifier des sources spécifiques de pollution intérieures et extérieures.

5.2. Les facteurs d'enrichissement

Une méthode fréquemment employée pour déterminer l'origine anthropique ou naturelle des éléments associés aux particules est le calcul du facteur d'enrichissement (Koutrakis et al., 1987; Smichowski et al., 2005; Wang et al., 2006; Gemenetzis et al., 2006). Ce facteur est défini de la façon suivante :

Équation 25 :

$$EF_{El} = \frac{[El]_{éch} / [X]_{éch}}{[El]_{crust} / [X]_{crust}}$$

Avec EF_{EI} le facteur d'enrichissement de l'élément étudié (EI), $[EI]_{éch}$ la concentration ($\mu\text{g}/\text{m}^3$) en élément (EI) de l'échantillon (dans notre étude, ce sont des particules atmosphériques) et $[EI]_{crust}$ la concentration ($\mu\text{g}/\text{m}^3$) de cet élément dans la croûte continentale moyenne. X est l'élément de référence choisi, c'est-à-dire un élément exclusivement issu de la source naturelle terrigène. Si le facteur d'enrichissement EF est égal ou peu différent de 1, l'élément est donc principalement d'origine terrigène. Si EF est nettement supérieur à 1, alors il existe d'autres sources de cet élément que la source naturelle ayant contribué à la teneur de l'élément dans l'échantillon considéré. En raison de la variation naturelle de la croûte terrestre et des sources anthropiques potentielles pour l'élément de référence choisi (bien qu'à priori minoritaire), on estime généralement que les facteurs d'enrichissement doivent être supérieurs à 10 pour être significatifs et robustes (Bilos et al., 2001).

5.3. Les ratios élémentaires

Les rapports entre les éléments sont également utilisés pour estimer le profil de sources potentielles (Weckwerth, 2001; Arditoglou et Samara, 2005). Pour caractériser la source des aérosols marins, en milieu côtier, on applique normalement les ratios Na/Mg et Sr/Mg qui doivent refléter les rapports de ces éléments mesurés dans l'eau de mer.

Tableau 10 : Exemple des ratios élémentaires utilisé et les sources correspondantes dans la littérature (Lamaison, 2006).

Ratio	Sources	Rapport	Références
élémentaire			
Sr/Mg	Aérosol marin	0,0062	(Millero, 1974)
Na/Mg		8,4	(Millero, 1974)
V/Ni	Raffineries, ind. pétrochimiques	0,52-1,85	adapté de (Foltescu et al., 1996)
	Craquage catalytique ($PM_{2,5}$)	0,54	(Chow et al., 2004)
	Combustion de pétrole	1,49-1,9	(Swietlicki et al., 1996)
Zn/Pb		3,5	adapté de (Oravisjärvi et al., 2003)
Pb/Cd		33,6	adapté de (Oravisjärvi et al., 2003)
Ca/Fe	Usine sidérurgique	0,25	(Prati et al., 2000)
Mn/Fe		0,008	(Prati et al., 2000)
Cu/Sb	Usures des freins	4,6±1,2	(Sternbeck et al., 2002)
		4,86	(Weckwerth, 2001)

Le ratio V/Ni est caractéristique de la combustion du pétrole. Ces ratios varient cependant d'une étude à l'autre en lien avec différents types de combustion telles que le raffinage et la pétrochimie (Swietlicki et al., 1996; Lamaison, 2006; Querol et al., 2007).

Parmi plusieurs éléments émis par l'usure des freins, Cu et Sb sont considérés comme de bons traceurs de la source automobile et le ratio Cu/Sb est largement employé pour les études du traçage de la source trafic en milieu urbain (Weckwerth, 2001; Sternbeck et al., 2002). Les rapports Cu/Sb observés dans la littérature sont de l'ordre de 4 à 5. Quelques ratios utilisés dans la littérature sont présentés ici (Tableau 10).

5.4. La classification hiérarchique (CH)

Principe :

Les méthodes de classification automatique consistent à répartir les éléments d'un ensemble en groupes, c'est-à-dire d'établir une partition de cet ensemble en un certain nombre d'éléments. Le principe de l'algorithme consiste à créer, à chaque étape, une partition obtenue en agrégeant deux à deux les éléments les plus proches. On désignera par élément à la fois les individus à classer eux-mêmes et les groupements d'individus générés par l'algorithme (Lebart et al., 2004). Différentes contraintes sont alors imposées, chaque groupe devant être le plus homogène possible, et les groupes devant être les plus différents possibles entre eux. On cherche une hiérarchie de ces groupes qui constituent un arbre binaire appelé dendrogramme.

La recherche de cette hiérarchie s'appelle une classification hiérarchique. Elle s'appuie sur la mesure de l'hétérogénéité basée sur les distances entre individus d'un groupe et la mesure de dissimilarité basée sur la distance entre individus de groupes différents.

Distance entre éléments et entre groupes:

La distance euclidienne est souvent utilisée pour calculer la distance entre deux éléments (individus). Il existe un grand nombre de méthodes pour calculer la distance d'agrégation entre deux groupes ou entre un élément et un groupe telles que la méthode de Ward, la distance moyenne, la distance du saut minimum, la distance du diamètre, etc....

La méthode de Ward est souvent utilisée dans des études d'analyse multi-variée en environnement (Gallego et al., 2002; Arditoglou et Samara, 2005) et consiste à regrouper les groupes pour lesquels la perte d'inertie est la plus faible. Ici, la distance entre 2 groupes se mesure par la perte d'inertie subie en les regroupant.

L'agrégation selon le saut minimum a l'inconvénient d'induire des effets de chaîne (les objets s'agrègent un par un au groupe déjà constitué), mais déforme peu si on reconstitue les dissimilarités à partir de l'arbre. L'agrégation selon le saut maximum a, par contre, l'inconvénient de déformer beaucoup le groupe déjà constitué.

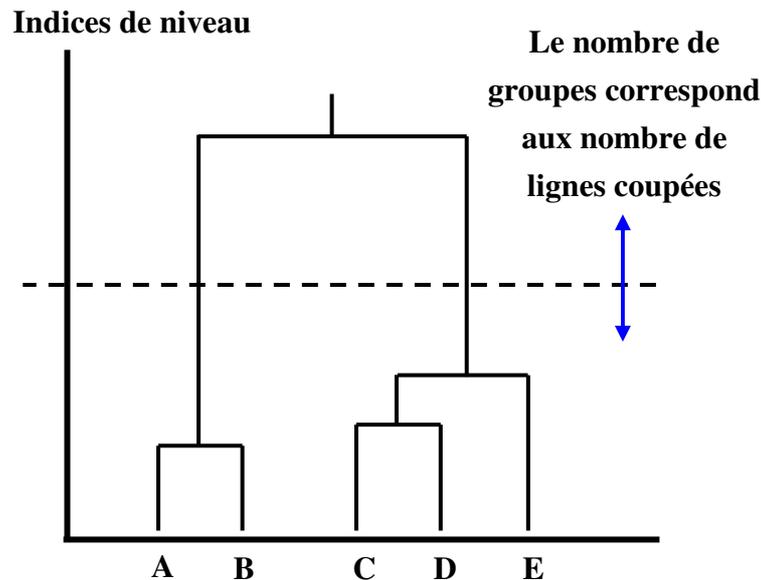


Figure 19 : Coupure visuelle de l'arbre.

La méthode de Ward, aisée à mettre en œuvre lorsque la classification est effectuée après une analyse factorielle (les objets à classer étant repérés par leurs coordonnées sur les premiers axes factoriels), constitue une très bonne méthode de classification ascendante hiérarchique sur données euclidiennes (Gettler-Summa et Pardoux, 2005).

Interprétation d'une classification hiérarchique:

La lecture d'une classification hiérarchique est normalement faite de haut en bas, dans le sens inverse de sa construction (Figure 19). En général, plus on agrège les éléments (plus on se rapproche du sommet de l'arbre), plus la distance entre les deux groupes les plus proches est grande et plus l'indice de niveau est élevé. Pour obtenir une bonne partition des groupes, on coupe normalement les branches de l'arbre les plus longues. Après la coupure, on va interpréter le contenu des groupes formés, de deux façons différentes, selon les effectifs dans chacune des classes : Si les effectifs dans les groupes sont inférieurs à 10 individus, on peut comparer les valeurs de variables pour les différents individus (éléments). Si les effectifs dans les groupes sont supérieurs à 10 individus, on compare les individus moyens des différents groupes c'est-à-dire les centres de gravité des groupes (Lebart et al., 2004).

6. Modélisation du comportement dynamique des particules dans l'air intérieur

Le modèle déterministe monozone développé dans le cadre de ce travail est basé sur des équations mathématiques faisant intervenir des paramètres que nous présentons ci-après.

6.1. L'équation de conservation de la masse

L'équation du bilan de la masse peut être mathématiquement décrite sur la base de la loi de conservation de la masse, elle est illustrée par la Figure 20. Elle est utilisée pour les modèles monozones ou pour chaque zone dans des modèles multizones où le mélange d'air est homogène. On peut l'écrire ainsi :

Équation 26 :
$$\frac{V \cdot dC_{int}}{dt} = \text{vitesse de changement de masse des PM}$$

$$= v_{\text{infiltration de l'air extérieur}} + v_{\text{émission intérieure}} + v_{\text{remise en suspension}} \\ - v_{\text{exfiltration de l'air intérieur}} - v_{\text{dépôt de polluants dans la pièce étudiée}} \\ - v_{\text{traitement éventuel de l'air.}}$$

où V : volume de la pièce (m^3); v : vitesse; C_{int} : concentration en PM de l'air intérieur ($\mu g/m^3$).

Les paramètres de l'Équation 26 doivent être déterminés indépendamment. En supposant un "état d'équilibre" pour un air intérieur homogène, on peut calculer les facteurs influençant les concentrations en PM du volume considéré.

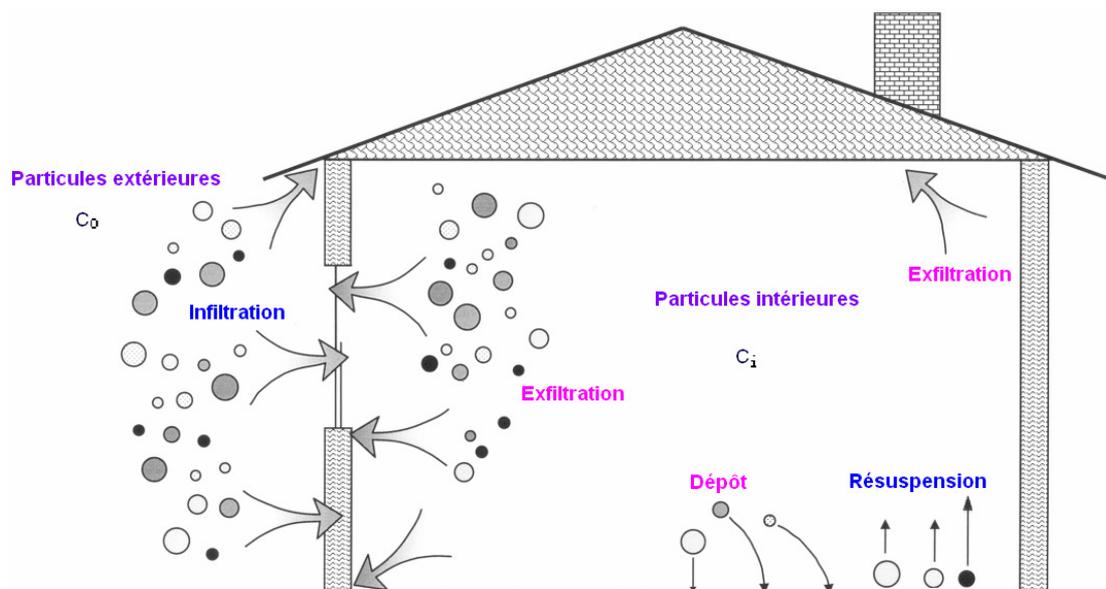


Figure 20 : Schéma du transport, de l'élimination des particules dans un des compartiments (Thatcher et al., 2003).

6.1.1. La généralisation de l'équation du bilan de masse

L'Équation 26 peut être généralisée, en supposant que le mélange est uniforme et le volume effectif (kV) est inférieur au volume total (V), afin de prévoir la concentration en PM de l'air intérieur. L'Équation 26 devient donc (Maroni et al., 1995) :

Équation 27 :

$$k.V \cdot \frac{dC_{\text{int}}(t)}{dt} = p.k.V.\alpha.C_{\text{ext}} + E + R.m_d.S - k.V\alpha.C_{\text{int}} - \lambda_d.A.C_{\text{int}} - \varepsilon.q.C_{\text{int}}$$

ou

$$\frac{dC_{\text{int}}(t)}{dt} = p.\alpha.C_{\text{ext}} + \frac{E}{k.V} + \frac{R.m_d.S}{k.V} - \alpha.C_{\text{int}} - \frac{\lambda_d.A.C_{\text{int}}}{k.V} - \frac{\varepsilon.q.C_{\text{int}}}{k.V}$$

- où C_{int} : Concentration en PM intérieures ($\mu\text{g}/\text{m}^3$, ou nombre/ m^3),
 p : Facteur de pénétration = la fraction de concentration extérieure des PM qui pénètre dans le bâtiment (sans dimension),
 α : Taux de renouvellement d'air (h^{-1}),
 C_{ext} : Concentration en PM extérieures ($\mu\text{g}/\text{m}^3$, ou nombre/ m^3),
 E : Vitesse d'émission des PM par les sources intérieures ($\mu\text{g}/\text{h}$, ou nombre/h),
 R : Taux de remise en suspension des PM (h^{-1}),
 m_d : Masse déposée des PM sur la surface où il y a la remise en suspension ($\mu\text{g}/\text{m}^2$),
 S : Surface où il y a la remise en suspension (le sol normalement), (m^2)
 $k.V$: Volume effectif (m^3), avec k varie de 0 à 1,
 λ_d : Vitesse de dépôt (m/h) définie comme le rapport entre la densité de flux, J_d ($\text{g}/\text{m}^2.\text{h}$ ou nombre/ $\text{m}^2.\text{h}$ de PM) d'une espèce vers une surface, et la concentration, C_{int} (g/m^3 ou nombre/ m^3 de PM) de l'espèce dans l'air :

$$\lambda_d = \frac{J_d}{C_d}$$

- A : L'ensemble de la surface où se déposent les PM (m^2), avec $A > S$
 q : Débit de l'air traité par la filtration (m^3/h).
 ε : L'efficacité de filtration, sans dimension

6.1.2. Le volume effectif

Les concentrations en polluants intérieurs dépendent également du volume intérieur. Le volume effectif ($k.V$) est considéré comme le volume disponible pour les polluants dispersés, où k est un facteur dimensionnel ; V , le volume du bâtiment/pièce étudié. k est égal à 1 lorsque le volume entier de l'air intérieur est disponible pour les contaminants. On trouve souvent la valeur de k inférieure à 1 pour une faible agitation du mélange, le degré de circulation de l'air étant dépendant des gradients thermiques intérieurs.

6.1.3. Le facteur de mélange m

La variation du mélange de l'air intérieur peut produire une modification d'échange d'air et donc, de la vitesse effective d'échange d'exfiltration d'un polluant. Le facteur de mélange, m , est le ratio de concentration en PM de l'air sortant sur celle de l'air intérieur. Si les deux concentrations sont identiques, on dit que l'air est complètement mélangé et m est égal à 1. S'il existe des sources intérieures importantes, m sera supérieur à 1. Cependant, m est très souvent inférieur à 1 car le mélange n'est pas total.

La vitesse effective d'exfiltration des PM tient compte du facteur de mélange m et du taux de renouvellement d'air α , et elle est égale à $m.\alpha$. L'Équation 27 deviendra donc :

$$\text{Équation 28 : } \frac{dC_{\text{int}}(t)}{dt} = p.\alpha.C_{\text{ext}} + \frac{E}{k.V} + \frac{R.m_d.S}{k.V} - m.\alpha.C_{\text{int}} - \frac{\lambda_d.A.C_{\text{int}}}{k.V} - \frac{\varepsilon.q.C_{\text{int}}}{k.V}$$

On remplace dans l'Équation 28, la vitesse de dépôt (λ_d , m/h) par le taux de dépôt (λ , h⁻¹)

avec :
$$\lambda = \frac{\lambda_d.A}{V}$$

$$\text{Équation 29 : } \frac{dC_{\text{int}}(t)}{dt} = p.\alpha.C_{\text{ext}} + \frac{E}{k.V} + \frac{R.m_d.S}{k.V} - m.\alpha.C_{\text{int}} - \frac{\lambda.C_{\text{int}}}{k} - \frac{\varepsilon.q.C_{\text{int}}}{k.V}$$

Dans le cadre de notre étude nous considérons que :

Le facteur de mélange m est égal à 1;

Le volume effectif est égal au volume de la salle étudiée ($k=1$);

Il n'y a pas le système de traitement d'air ($q=0$);

Il n'y a pas de réactions chimiques entre les polluants.

Les phénomènes de coagulation/coalescence pour la fraction fine sont négligeables.

L'Équation 29 devient donc :

$$\text{Équation 30 : } \frac{dC_{\text{int}}(t)}{dt} = p.\alpha.C_{\text{ext}} + \frac{E}{V} + \frac{R.m_d.S}{V} - \alpha.C_{\text{int}} - \lambda.C_{\text{int}}$$

A présent, nous utiliserons l'Équation 30 pour tous les calculs ultérieurs ainsi que pour la modélisation.

6.2. Détermination des paramètres du modèle

L'équation de conservation de la masse est l'équation centrale de tous les modèles déterministes dont les coefficients sont les paramètres du modèle. Nous présentons ci-après différentes méthodes pour les déterminer.

6.2.1. Mesure du taux de renouvellement d'air

L'échange d'air entre l'extérieur et l'intérieur d'un bâtiment joue un rôle important pour les concentrations en polluants en air intérieur ainsi que pour la consommation d'énergie. En effet, l'échange d'air avec l'extérieur conduit à la dilution des polluants intérieurs mais simultanément à un ajout de polluants extérieurs dans le bâtiment. Il influence également les paramètres de confort intérieur (température, humidité, pression, concentration en CO₂...). La connaissance du taux de renouvellement d'air nous permet aussi d'estimer les sources d'émission des polluants intérieurs (He et al., 2004) ainsi qu'en première approche, la qualité de l'air intérieur (Charlesworth, 1988; Limb, 1997; Nazaroff, 2004). Le taux de renouvellement d'air est défini comme le volume d'air échangé chaque heure par rapport au volume total de la pièce étudiée, ou le temps pour lequel le volume d'un espace clos est remplacé par le même volume d'air neuf.

Il y a deux approches pour déterminer le taux d'échange d'air avec l'extérieur : la méthode des traceurs gazeux tels que le CO₂ et le SF₆, et celle par mesure de la pression différentielle.

6.2.1.1. Méthode du traceur gazeux CO₂ en absence des élèves

Trois procédures peuvent être appliquées afin de déterminer le taux de renouvellement d'air à l'aide d'un traceur. Il s'agit de la méthode de décroissance, de la méthode de vitesse à émission constante, et celle à concentration constante (Charlesworth, 1988).

La première méthode consiste à mesurer la décroissance de concentration en CO₂, ou en SF₆ en fonction du temps après une injection dans la pièce étudiée. La deuxième mesure la concentration du gaz traceur en fonction du temps comme la première mais avec une vitesse d'injection constante et en continu pendant la période de mesure. La dernière méthode consiste à maintenir constante la concentration en un gaz traceur dans la pièce étudiée par une injection en continu de ce gaz.

Les trois méthodes utilisent le bilan de masse du gaz traceur pour déterminer le taux de renouvellement d'air. Dans cette étude nous allons utiliser la première méthode que nous présentons ci-après.

Cette méthode est largement utilisée dans la littérature. Le principe consiste à injecter une quantité d'un gaz traceur afin d'atteindre une concentration au moins deux fois supérieure à l'extérieur puis à le mélanger pour qu'il soit homogène dans l'espace clos à l'aide des ventilateurs. On mesure alors sa concentration C_{in} en fonction du temps. Pour déterminer le taux de renouvellement d'air on suppose que :

L'air dans la pièce est parfaitement homogène ($m=1$, $k=1$),

Il n'y a pas de réactions entre les polluants, pas de sources intérieures de gaz traceurs ($E=0$),

L'infiltration est négligeable ($p=0$) car la concentration en traceur (CO_2) est beaucoup plus élevée à l'intérieur qu'à l'extérieur,

Le taux de dépôt du gaz traceur est négligeable ($\lambda=0$),

La vitesse d'exfiltration est constante (Thatcher et al., 1995; Man et. Yeung, 1999; He et al., 2004, 2005; Guo et al., 2008).

Dans notre étude, au lieu d'injecter un gaz traceur, le CO_2 émis par les occupants de la pièce a été utilisé pour calculer le taux de renouvellement d'air. L'équation du bilan de la masse devient donc :

Équation 31 :
$$\frac{dC_{in}(t)}{dt} = -\alpha \cdot C_{in}$$

On obtient, à partir de l'Équation 31, le taux de renouvellement d'air selon la formule suivante :

Équation 32 :
$$\alpha = \frac{1}{t} \cdot \ln \frac{C_{in}(0)}{C_{in}(t)} \quad \text{Ou} \quad \ln C_{in}(t) = -\alpha \cdot t + \ln C_{in}(0)$$

Dans le cas où la concentration en gaz traceur n'est pas égale à zéro, le CO_2 par exemple, on résout l'équation différentielle (Équation 31) en tenant compte de la concentration extérieure. On obtient l'Équation 33 où C_{out} est la concentration du CO_2 à l'extérieur.

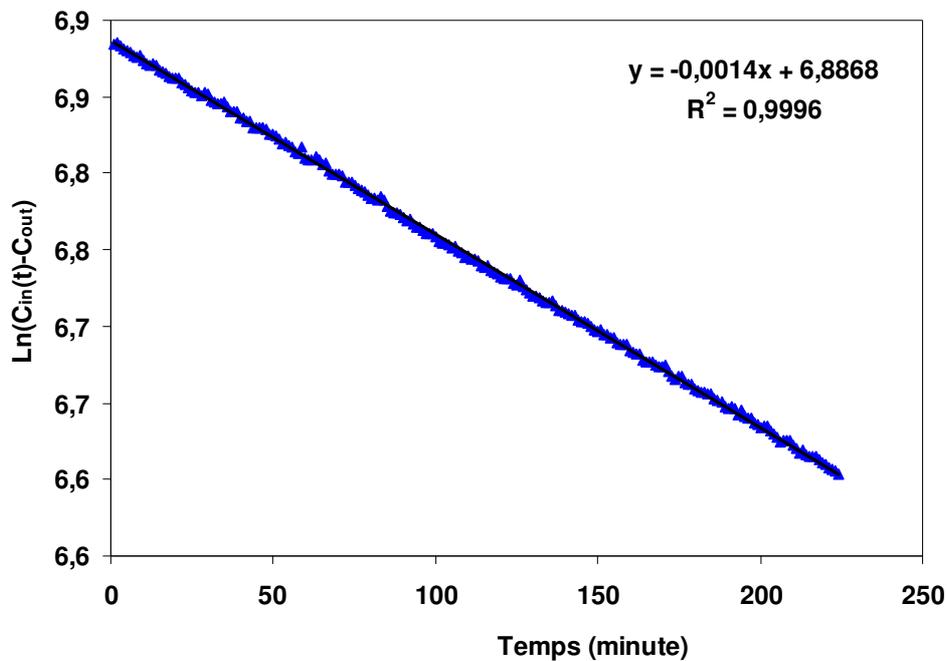
Équation 33 :
$$\ln(C_{in}(t) - C_{out}) = -\alpha \cdot t + \ln(C_{in}(0) - C_{out})$$

La relation de $(\ln C_{in}(t) - C_{out})$ en fonction du temps (t) est une droite (Figure 21) dont la pente est la valeur absolue du taux de renouvellement d'air α (mn^{-1}) que l'on peut convertir en h^{-1} en multipliant par 60.

Notons que la méthode utilisée peut induire des erreurs dans le calcul du taux de renouvellement d'air du fait que la concentration en CO_2 dans la salle étudiée reflète également les échanges avec les salles adjacentes. Cela dépend, bien évidemment, fortement de la capacité d'échange avec la salle adjacente, le couloir, et des concentrations en CO_2 dans ces endroits que nous n'avons pas considérés dans notre étude.

De plus, cette méthode ne permet de calculer le taux de renouvellement d'air moyen que pour une période de temps relativement longue (quelques dizaines de minutes à quelques heures), ne faisant pas apparaître d'éventuelles variabilités à court terme (Thatcher et Layton, 1995).

Cette méthode est par contre facile à mettre en œuvre et relativement moins onéreuse que d'autres. Elle apparaît suffisamment fiable pour estimer le taux de renouvellement d'air afin de modéliser la variation de concentration en PM dans les classes d'écoles.



**Figure 21 : Exemple du calcul de taux de renouvellement d'air α à Arras après la classe.
($C_{in}(0)=1370$ ppm, $C_{out}=390$ ppm).**

6.2.1.2. Méthode du traceur gazeux CO_2 en présence des élèves

Le taux de renouvellement d'air peut être estimé pendant la classe en utilisant le traceur CO_2 émis par les occupants selon la méthode décrite par ASHRAE 1993 (American Society of Heating, Refrigerating and Air-Conditioning Engineers) et dans l'étude de Persily (1997). Le débit d'air neuf par élève est calculé selon l'Équation 34.

Équation 34 :

$$Q_p = \frac{10^{-6} \cdot G_p}{[CO_2]_{Int}(éq) - [CO_2]_{Ext}}$$

où Q_p , débit d'air neuf introduit dans la salle par élève (m^3/h),

G_p , la vitesse de génération de CO_2 par élève,

$[CO_2]_{Int}(éq)$ et $[CO_2]_{Ext}$, respectivement la concentration en CO_2 (en ppm) dans la salle à l'équilibre (période où la concentration en CO_2 est stable) et celle correspondant à l'extérieur. G_p est calculé selon l'équation suivante :

Équation 35 :

$$G_p = V_{O_2} \cdot RQ$$

où V_{O_2} est la vitesse de consommation de l'oxygène (m^3/h), et RQ est le quotient respiratoire (la vitesse relative de CO_2 produit par rapport à l'oxygène consommée). La valeur du RQ dépend du régime, du niveau d'activité physique, et de la condition physique de la personne. Elle a été établie à une valeur moyenne de 0,83 pour les enfants (ASHRAE, 1989).

La vitesse de consommation d'oxygène V_{O_2} est estimée selon l'équation suivante :

Équation 36 :
$$V_{O_2} = \frac{0,00276.A_D.M}{0,23.RQ + 0,77}$$

où M est le niveau d'activité physique, ou de la vitesse métabolique par unité de surface (unit of surface area, in mets : 1 met = 58,2 W/m²) (production de chaleur du corps humain : human body heat production). Dans une classe, la valeur de M est conseillée à 1,2.

A_D est la surface de DuBois (m²), et qui est calculé selon l'équation empirique ci-dessous :

Équation 37 :
$$A_D = 0,203.H^{0,725}.W^{0,425}$$

où H, la taille de la personne (m) ; W, le poids de la personne (Kg).

Si on considère que le poids moyen des élèves dans la classe égale à 30 Kg et leur taille moyenne de 1,3 m nous obtenons une valeur de l' A_D égale à 1,04 m².

En introduisant les valeurs A_D (1,04), M (1,2), RQ (0,83) dans l'Équation 36, on obtient la vitesse de génération du CO₂ moyenne par un élève Gp (Équation 35) égale à 0,003 L/s (10,8 L/h).

En utilisant les concentrations moyennes en CO₂ pendant la période d'équilibre dans la classe et pendant la même période mais à l'extérieur du bâtiment, on peut calculer le débit d'air neuf Q_p selon l'Équation 34. Cette valeur, multipliée par le nombre d'élèves dans la salle nous donnera le débit d'air total neuf Q.

Finalement le taux de renouvellement d'air α (h⁻¹) est la valeur de débit d'air total divisé par le volume de la salle V (m³).

6.2.1.3. Méthode de pression différentielle

Cette méthode permet de déterminer le taux de renouvellement d'air α à partir de la mesure du débit d'air qui traverse une façade ou l'ensemble de l'enveloppe du bâtiment ou de la salle étudiée (Charlesworth, 1988). Elle nous renseigne sur le sens et l'intensité des flux d'air qui la traversent à chaque instant. Elle est préférablement appliquée en absence d'occupants dans un lieu clos correspondant à l'état de fermeture des portes et des fenêtres. Dans le cas inverse, les occupants ouvrent souvent les portes et fenêtres (grandes ouvertures), et la méthode n'est alors plus fiable (Feustel, 1999).

Nous allons présenter ici la méthode de pression différentielle selon la norme ISO 9972 :2006 (Performance thermique des bâtiments - Détermination de la perméabilité à l'air des bâtiments - Méthode de pressurisation par ventilateur) pour déterminer le taux de renouvellement d'air d'un bâtiment, d'une pièce, ou dans notre cas d'une salle de classe dû à la perméabilité de la façade. Cette méthode est utilisée dans l'étude de Blondeau et al. (2002).

La conversion du débit d'air Q (m^3/h) traversant la façade d'une salle de classe en taux de renouvellement d'air α s'effectue selon la relation suivante :

Équation 38 :
$$Q = \alpha \cdot V$$

avec V : volume de la salle (m^3).

Notons ici que le taux de renouvellement d'air calculé à partir des valeurs de Q selon l'Équation 38 est uniquement basé sur l'air qui traverse la façade de la salle étudiée.

Le Principe :

On obture hermétiquement tous les passages d'air spécifiques du système de ventilation (entrées d'air et bouches d'extraction) et on place artificiellement la salle en dépression ou en surpression, à l'aide d'un ventilateur, de façon à mesurer le débit de fuite. Ce débit Q (m^3/h) est lié à la valeur absolue de la différence de pression ΔP (Pa) entre l'intérieur et l'extérieur de la salle par la relation suivante :

Équation 39 :
$$Q = C \cdot |\Delta P|^n \Rightarrow \ln Q = \ln C + n \cdot \ln |\Delta P|$$

où C ($\ln C$: origine de la droite d'Équation 39), le coefficient d'écoulement et n (la pente de la droite d'Équation 39) dépend de la géométrie des défauts d'étanchéité, n définit donc la typologie de fuites : fissures fines, trous, fentes linéaires...

Si n est proche de 1 : passage étroit et fin \Rightarrow l'écoulement d'air est de type linéaire

Si n est proche de 0,5 : les orifices sont de grandes dimensions, l'écoulement n'est plus visqueux mais inertiel, les flux sont turbulents.

Le protocole à mettre en œuvre :

Le dispositif expérimental utilisé pour réaliser ces essais est représenté Figure 22. La mise en surpression ou en dépression de la salle étudiée est effectuée à l'aide d'un ventilateur ABB Vim dont le débit maximal est de $900 \text{ m}^3/\text{h}$; un variateur de tension permet de moduler le débit et donc la différence de pression entre l'intérieur et l'extérieur. Ce ventilateur est relié à une gaine montée sur une fausse porte qui vient en remplacement de la porte habituelle (Figure 23).

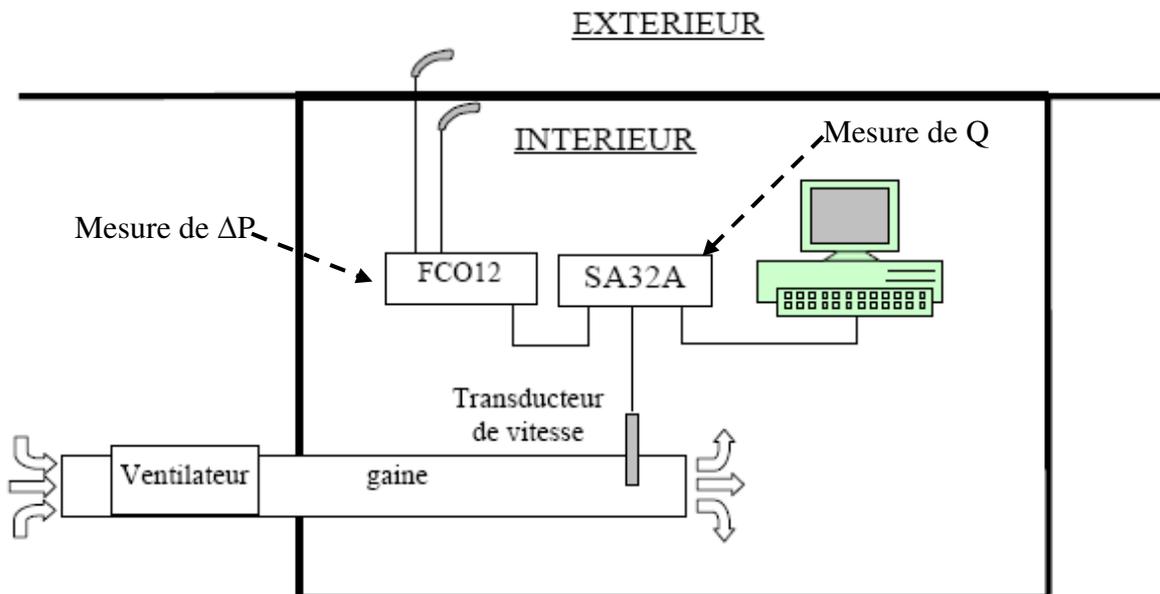


Figure 22 : Dispositif expérimental pour la détermination du taux de renouvellement d'air par la méthode de pression différentielle (Blondeau et al., 2002).

Le débit d'air soufflé, autrement dit le débit de fuite Q à travers la façade, est déterminé en mesurant la vitesse d'air au niveau de l'axe du tronçon de gaine reliée au ventilateur. La différence de pression entre l'extérieur et l'intérieur est mesurée à l'aide d'un micro manomètre Furness de type FCO12 dont les caractéristiques sont présentées dans l'Annexe 4. Le micro manomètre comme le transducteur de vitesse (pour la mesure de débit Q) sont reliés à la centrale d'acquisition SA32 de marque AOIP (voir caractéristiques techniques en Annexe 4), elle même reliée à l'ordinateur pour la visualisation des résultats (Figure 22 et 23).

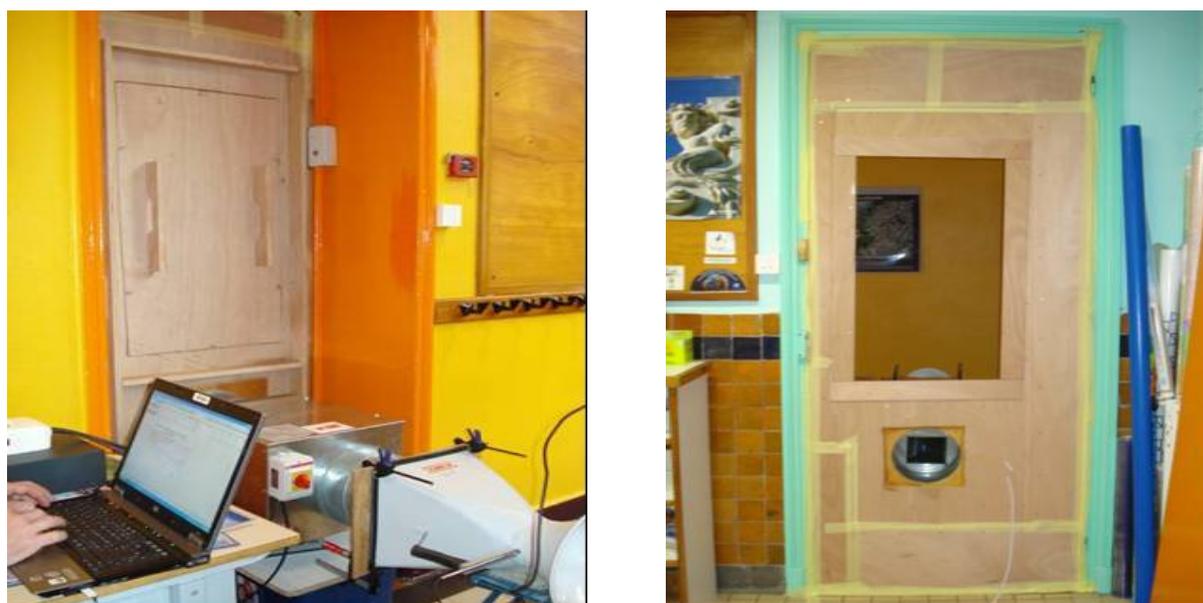


Figure 23 : Ventilateur, fausse porte, micro-manomètre et système d'acquisition des données à l'extérieur (à gauche) et à l'intérieur de la classe (à droite) de l'école d'Arras lors de la campagne 2009.

On effectue les quatre séries de mesures suivantes :

1. Mesure en surpression intérieure avec façade non étanchéifiée (débit de fuite Q_{snet})
2. Mesure en surpression intérieure avec façade étanchéifiée (débit de fuite Q_{set})
3. Mesure en dépression intérieure avec façade non étanchéifiée (débit de fuite Q_{dnet})
4. Mesure en dépression intérieure avec façade étanchéifiée (débit de fuite Q_{det}).

Le passage de la configuration “pièce en surpression” à la configuration “pièce en dépression” s’effectue par une simple inversion du dispositif de soufflage.

Lors de chaque série de mesures, les débits de fuite sont mesurés pendant 3 minutes pour chaque ΔP compris entre 3 et 60 Pa (6 à 9 valeurs de ΔP différentes au total). La valeur du débit de fuite retenue correspond à la moyenne des débits enregistrés au cours des 3 minutes (intervalle de 5 secondes entre chaque mesure). Les mesures sont valables si la vitesse du vent extérieur est inférieure à 2 m/s au cours de la période de mesure et si l’écart type de la variation de la différence de pression entre l’extérieur et l’intérieur est inférieur à 2 Pa.

Q_{snet} : débit d’air lorsque la salle est en surpression avec façade non étanchéifiée calculé selon la formule suivante :

Équation 40 :
$$Q_{snet} = C_1 \cdot \Delta P^{n_1}$$

Q_{set} : débit d’air lorsque la salle est en surpression avec façade étanchéifiée calculé selon la formule suivante :

Équation 41 :
$$Q_{set} = C_2 \cdot \Delta P^{n_2}$$

Q_{dnet} : débit d’air lorsque la salle est en dépression avec façade non étanchéifiée calculé selon la formule suivante :

Équation 42 :
$$Q_{dnet} = C_3 \cdot \Delta P^{n_3}$$

Q_{det} : débit d’air lorsque la salle est en dépression avec façade étanchéifiée calculé selon la formule suivante :

Équation 43 :
$$Q_{det} = C_4 \cdot \Delta P^{n_4}$$

C_1 , C_2 , C_3 , C_4 et n_1 , n_2 , n_3 , n_4 correspondent respectivement aux coefficients d’écoulement et à la géométrie des défauts d’étanchéité pour chacune des quatre configurations testées.

Les différents couples de points (débits de fuite/ ΔP) permettent de construire les quatre courbes figurant en Annexe 11).

La soustraction des équations de ces courbes amène aux Equations 44 et 45 correspondant aux courbes de l’Annexe 12.

Équation 44 :
$$Q_s = Q_{snet} - Q_{set} = C_s \cdot \Delta P^{n_s}$$

Équation 45 :
$$Q_d = Q_{dnet} - Q_{det} = C_d \cdot \Delta P^{n_d}$$

C_s , C_d et n_s , n_d sont déduits de ces courbes.

Les valeurs de ΔP mesurées au cours du temps, lors d'une campagne de mesure dans une école, sont reportées dans l'Équation 44 ou Équation 45 selon que ΔP est positif ou négatif. On en déduit les débits d'air Q (Q_s , salle en surpression ou Q_d , salle en dépression) en fonction du temps, puis le taux de renouvellement d'air α .

Cette méthode permet de mesurer le taux de renouvellement d'air avec une plus grande résolution temporelle que la méthode des gaz traceurs. Par contre, elle ne permet pas d'estimer le taux de renouvellement d'air en présence des occupants car les portes et fenêtres restent souvent ouvertes et les lois d'écoulement d'air utilisées ici ne sont plus applicables dans ce cas.

6.2.2. Détermination du taux de dépôt λ , et du facteur de pénétration p

Il existe deux méthodes pour déterminer le taux de dépôt et le facteur de pénétration. La première méthode très répandue dans la littérature se base sur des études de terrain (Thatcher et Layton, 1995; Chao et al., 2003; Thatcher et al., 2003). La seconde méthode a été utilisée par le LEPTIAB (Laboratoire d'Étude des Phénomènes de Transfert et de l'Instantanéité : Agro-industrie et Bâtiment), à l'Université de la Rochelle ; Elle est basée sur des essais en enceintes et permet d'obtenir des informations précises sur le dépôt et la pénétration de différence taille de particules pour différents types de matériaux, et à chaque valeur de pression différentielle entre l'air intérieur et l'air extérieur (Abadie, 2000; Popescu, 2009).

Les valeurs du taux de dépôt et du facteur de pénétration ne varient pas de façon significative dans les bâtiments ou maisons en conditions réelles, et d'autres paramètres du modèle déterministe présentant des incertitudes beaucoup plus importantes telles que la vitesse d'émission, et la remise en suspension des polluants, nous présentons ci-après l'approche selon la première méthode que nous avons utilisé dans cette étude.

Détermination du taux de dépôt λ et du facteur de pénétration p en étude in situ

Le dépôt peut être déterminée soit directement, soit indirectement. Bien que la mesure directe (mesure de la masse de PM déposée sur une surface en un temps donné) permette d'obtenir des informations précises sur la vitesse de dépôt des particules sur une surface donnée, elle présente quelques difficultés et inconvénients. Ainsi, elle nécessite une longue période de prélèvement pour obtenir une quantité suffisante de particules et il est difficile

d'estimer la vitesse de dépôt sur différents matériaux ainsi que sur toutes les surfaces d'un bâtiment, y compris verticales (Thatcher et Layton, 1995; Thatcher et al, 2002).

La méthode indirecte, appliquée dans cette étude, permet de mesurer le taux de dépôt global des particules. Le principe de cette méthode est de mesurer simultanément les concentrations en particules en suspension dans l'air intérieur et extérieur en fonction du temps, après un événement générateur de particules tel que :

- La remise en suspension des particules par un balayage vigoureux,
- Des activités de cuisine, la combustion de bougies, ...
- La génération de particules de tailles différentes à l'aide d'un générateur (Byrne et al., 1997; Thatcher et al., 2002),
- Les activités des enfants dans la classe comme dans notre étude.

La mesure de la vitesse de décroissance du traceur CO₂ émis par les élèves est employée pour calculer le taux de renouvellement d'air. La fermeture des fenêtres durant ces essais permet d'augmenter la concentration en PM d'un facteur 10 par rapport à l'extérieur.

Pour déterminer le taux de dépôt des PM, on suppose les conditions suivantes : en absence d'élèves, il n'y a pas de sources intérieures (E=0) et pas de remise en suspension (R=0) ; le taux de dépôt et le taux de renouvellement d'air sont constantes au cours de la période étudiée (Thatcher et Layton, 1995; Thatcher et al., 2002; Chao et al., 2003; He et al., 2005; Howard-Reed et al., 2003). Dans ces conditions, l'équation du bilan de conservation en masse (Équation 30) devient donc :

Équation 46 :
$$\frac{dC_{int}(t)}{dt} = p \cdot \alpha \cdot C_{ext} - \alpha \cdot C_{int} - \lambda \cdot C_{int}$$

A l'état d'équilibre, la concentration en particules est constante, l'Équation 46 nous permet d'estimer le facteur de pénétration p :

Équation 47 :
$$p = \frac{C_{eq}}{C_{ext}} \cdot \frac{\alpha + \lambda}{\alpha} = \frac{C_{eq}}{C_{ext}} \cdot \left(1 + \frac{\lambda}{\alpha}\right)$$

Où : C_{eq} (µg/m³ ou nombre/m³) est la concentration en particules de l'air intérieur à l'état d'équilibre, et est déterminée environ 6h après le départ des élèves (Figure 24).

Si l'on considère à présent que la concentration en particules de l'air extérieur est également constante durant la courte période d'étude considérée, l'équation différentielle (Équation 46) peut être résolue pour calculer le taux de dépôt des particules selon l'équation suivante :

Équation 48 :
$$Ln\left(\frac{C_{int(0)} - C_{eq}}{C_{int(t)} - C_{eq}}\right) = (\alpha + \lambda) \cdot t$$

Où : $C_{int(0)}$ et $C_{int(t)}$ sont respectivement les concentrations en particules à $t=0$ et à un temps t . La droite correspondant à l'Équation 48 nous permet de calculer le taux de dépôt de particules λ (h^{-1}) par soustraction du taux de renouvellement d'air α (h^{-1}) de sa pente. Le calcul de la vitesse de dépôt des particules λ_d , (m/h) est obtenu à partir du taux de dépôt, connaissant l'ensemble des surfaces de dépôt des particules et le volume de la salle étudiée en utilisant la relation suivante : $\lambda = \frac{\lambda_d \cdot A}{V}$

Dans cette étude, nous avons effectué la mesure du taux de dépôt (λ) et du facteur de pénétration (p) après la classe à l'aide des compteurs à particules GRIMM. Le protocole de mesure et le calcul de ces paramètres sont présentés ci-après en s'appuyant sur l'exemple de la Figure 24.

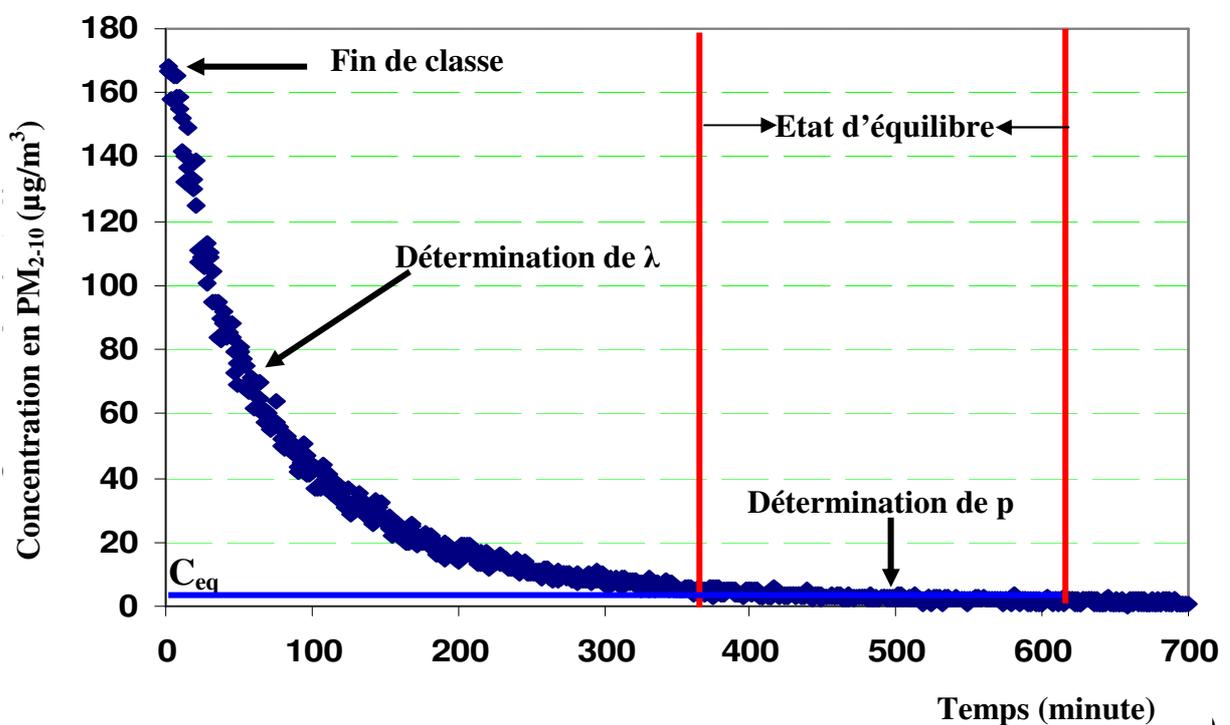


Figure 24 : Exemple de calcul de taux de dépôt et le facteur de pénétration des particules dans une classe d'école d'Arras 2009, effectué après la classe.

Concrètement λ et p sont déterminés selon les étapes suivantes :

1. Calculer le taux de renouvellement d'air α à partir de la décroissance du CO₂ selon l'Équation 33.
2. Tracer la courbe de l'Équation 48 correspondant à la décroissance de concentration en PM (voir Figure 24) pour calculer la pente. Le taux de dépôt λ est égal à la valeur absolue de la pente moins le taux de renouvellement d'air α .
3. Le facteur de pénétration p est calculé pendant la période d'équilibre (Figure 24) selon l'Équation 47.

L'Équation 47 montre que le facteur de pénétration p est le rapport des concentrations en particules intérieures/extérieures si le taux de dépôt est beaucoup plus faible que le taux de renouvellement d'air.

6.2.3. La vitesse d'émission des particules et le taux de remise en suspension de particules

Les phénomènes d'émission et de remise en suspension des particules jouent un rôle prépondérant sur la concentration en particules dans l'air intérieur. Ces deux phénomènes entraînent une augmentation importante et rapide des concentrations en particules en suspension et les connaissances sur les mécanismes affectant ces phénomènes sont indispensables pour le contrôle des teneurs dans l'air intérieur.

Il est cependant impossible de les estimer indépendamment l'un de l'autre dans des conditions réelles où le nombre d'occupants et leurs activités sont variables en fonction du temps (exemple des enfants dans une salle de classe). Il est habituel d'estimer la vitesse d'émission et le taux de remise en suspension de particules en air intérieur par des études spécifiques, c'est-à-dire en attribuant une valeur constante ou nulle à l'un d'entre eux pour le calcul de l'autre (Thatcher et Layton, 1995; Ferro et al., 2004; El Hijri, 2008).

Dans notre étude réalisée dans les classes d'école, les enfants émettent des particules via leurs activités scolaires, leurs chaussures/vêtements mais également remettent en suspension des particules simultanément par leurs activités (déplacements et mouvements dans la classe). La remise en suspension des particules quant à elle, dépend fortement de la masse de particules déposées au sol ou sur les tables. D'autre part, leurs activités dans la classe sont variables tout au long de la journée.

Il est donc impossible de déterminer la vitesse d'émission des particules et le taux de remise en suspension pendant la classe dans les écoles de manière indépendante.

Pour répondre à cette question et dans le but de modéliser la variation des concentrations en particules dans les classes en absence des élèves mais aussi en leur présence et pendant leurs activités scolaires, nous utilisons un terme appelé "**vitesse de génération des particules**" en présence des élèves G (mg/h). G est la somme de deux paramètres : la vitesse d'émission de particules et le terme remise en suspension dans l'Équation 49. G est donc calculé selon l'équation suivante :

Équation 49 :
$$G = E + R.m_d.S$$

Bien que l'utilisation du terme de vitesse de génération G dans l'Équation 49 ne nous donne aucune information sur les éléments individuels, elle nous permet de modéliser la concentration en particules en fonction du temps en présence des élèves.

Pour estimer G , nous cherchons des périodes pendant une journée d'école où la concentration en particules est relativement stable. Nous observons qu'il s'agit de périodes pendant la classe où les enfants restent assis et le mouvement relativement faible (Figure 25).

En considérant que les concentrations en particules pendant ces périodes sont constantes (Figure 25), l'équation du bilan de conservation en masse (Équation 30) devient :

Équation 50 :
$$\frac{dC_{int}(t)}{dt} = p.\alpha.C_{ext} + \frac{G}{V} - \alpha.C_{int} - \lambda.C_{int} = 0$$

ou
$$G = \alpha.V.(C_{int} - p.C_{ext}) + \lambda.V.C_{int}$$

Les valeurs de p , α , λ étant déterminées selon les procédures précédemment décrites. G est facilement calculé selon l'Équation 50 en utilisant des valeurs mesurées de C_{int} et C_{ext} moyennes pendant chaque période à l'équilibre (Figure 25).

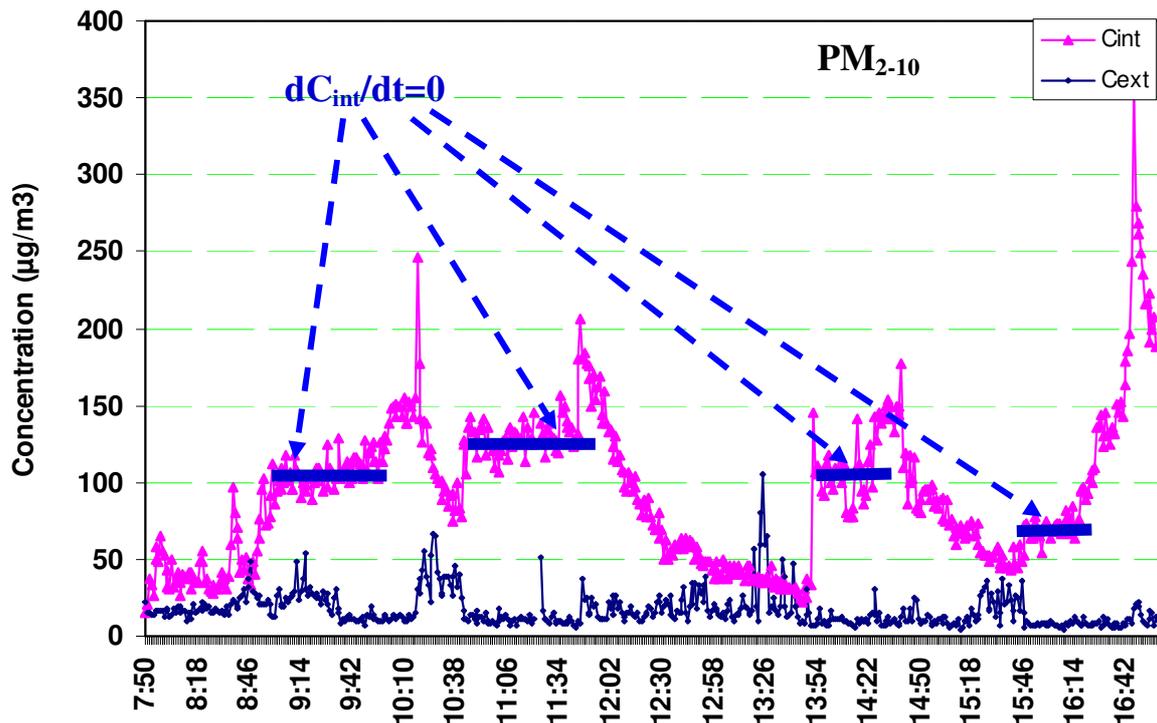


Figure 25 : Exemple de la détermination du G pendant la classe pour les PM_{2-10} à l'école d'Arras lors de la campagne 2009.

On remarquera que les valeurs de G ainsi obtenues, englobant à la fois les émissions de nouvelles particules et la remise en suspension de particules déposées au sol, peuvent varier selon les périodes de la journée et selon les jours de la semaine.

7. Conclusion

Nous avons présenté les différentes techniques de prélèvement et de mesure des particules dans l'air intérieur et extérieur utilisées dans le cadre de cette thèse ainsi que les développements analytiques mises en œuvre pour déterminer la composition chimique des particules. Le choix et le développement du modèle du transfert extérieur-intérieur des particules ont également été décrits.

Les techniques de prélèvement et de mesure sélectionnées ici pour l'étude de la qualité de l'air dans les écoles sont des méthodes de filtration, d'impaction en cascade qui permettent de mesurer la concentration en masse des particules par méthode gravimétrique en vue de déterminer leurs compositions chimiques. Des mesures par comptage optique ont également eu lieu afin, notamment, d'alimenter le modèle déterministe.

La mesure des éléments métalliques, basée sur une mise en solution par digestion micro-ondes suivie d'une analyse soit par ICP-AES (majeurs) soit par ICP-MS (traces), a permis de quantifier 26 éléments. L'optimisation de la mise en solution a porté sur le choix du mélange acide selon la Norme européenne NF EN14902: 2005. L'optimisation des protocoles opératoires et des paramètres analytiques ont permis de limiter les contaminations et de réduire les artefacts de mesure.

La méthode d'analyse du carbone organique (OC) et élémentaire (EC) mettant en œuvre la technique de transmission thermo/optique (TOT) a été décrite et validée. L'EC apparaît significativement corrélé ($EC = 1,2 \cdot BC$) avec le black carbon (BC) mesuré par la méthode d'atténuation de la lumière (Aéthalomètre).

Nous avons sélectionné des méthodes de traitement statistique applicables pour des jeux de données limités en nombre telles que l'analyse en composantes principales et la classification hiérarchique. Elles ont été mises en œuvre uniquement pour les échantillons à l'extérieur des écoles et à l'intérieur en absence des élèves pour contourner le phénomène de remise en suspension des particules.

L'étude des différentes techniques de modélisation des polluants dans l'air intérieur nous a conduit à sélectionner un modèle déterministe monozone qui permet de prévoir l'évolution des concentrations en particules dans les classes à partir d'un nombre réduit de mesures simples sur terrain. Le taux de renouvellement d'air, le taux de dépôt et le facteur de pénétration des particules peuvent être évalués pour chaque site d'étude. La vitesse d'émission et le taux de remise en suspension de particules étant intrinsèquement liés, nous avons proposé d'utiliser le paramètre "vitesse de génération des particules" afin de modéliser l'évolution des teneurs en PM en présence des enfants.

**CHAPITRE III : CHOIX DES SITES
D'ETUDE ET DESCRIPTION DE LA
CAMPAGNE DE MESURE 2009**

Ce chapitre a pour objectif de choisir les écoles cibles pour la campagne de mesure 2009 à l'aide des résultats préliminaires obtenus lors de la campagne 2008 et de tester certains matériels de prélèvement et de mesure. La première partie consiste en la description des huit écoles maternelles et élémentaires de la région Nord Pas de Calais (NPdC) retenues lors de la campagne 2008. Puis sont présentées la description et la validation des données de cette campagne. Les principaux résultats et le choix des écoles cibles pour la campagne 2009 sont ensuite discutés. La dernière partie présente la campagne 2009 et la validation de ses données.

1. Description de la campagne test de prélèvement et de mesure dans l'air intérieur de 8 écoles de la région NPdC en 2008

1.1. Présentation des sites d'étude

Nous nous sommes appuyés sur une campagne de prélèvement organisée par Atmo Nord Pas de Calais pour la mesure de polluants tels que les composés organiques volatils (COVs), le NO₂, les particules, et la surveillance des paramètres de confort dans les classes des différentes écoles de la région.

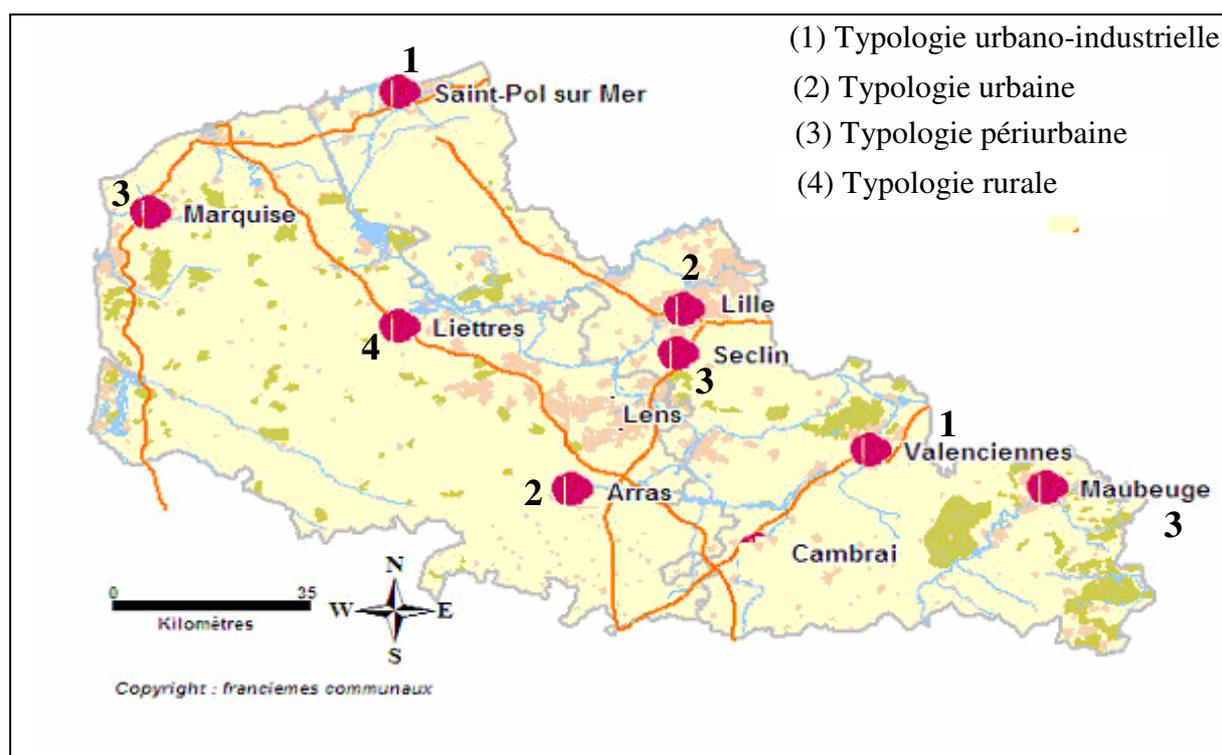


Figure 26 : Localisation géographique des écoles dans la région Nord Pas de Calais.

Les établissements ont été sélectionnés selon un premier critère, la typologie des sites : Industriel, trafic, urbain, périurbain, ou rural, afin d'appréhender l'impact de la qualité de l'air extérieur sur l'air intérieur. Le choix s'est ensuite porté sur les caractéristiques des bâtiments : Haute Qualité Environnementale (HQE), construction ancienne ou neuve, avec ou sans ventilation mécanique.

Au final, huit écoles élémentaires et maternelles se situant dans la région NPdC ont été sélectionnées. Certaines sont influencées fortement par la circulation automobile et sous l'influence légère (à Lille, Seclin, Arras et Valenciennes) ou forte (à Saint Pol sur Mer), d'émissions industrielles. Une école en site rural (à Liettes) est clairement peu soumise aux émissions urbano-industrielles. Les écoles à Maubeuge et Marquise sont, quant à elles, respectivement en zone périurbaine et périurbaine - littorale (Figure 26).

1.2. Présentation des écoles

Les caractéristiques principales (typologie, ventilation, type de fenêtres, de revêtements et de sol, murs, plafond intérieurs, nombre d'élèves...) des salles de classe choisies dans les huit écoles sont présentées sous forme synthétique dans le Tableau 11. On notera en particulier que les écoles situées à Valenciennes et Lille disposent d'une ventilation mécanique contrôlée tandis que les locaux des autres écoles sont ventilés naturellement par ouverture des fenêtres. Excepté l'école de Valenciennes qui est une nouvelle construction HQE (Haute Qualité Environnementale), les bâtiments datent des années 1950-60. Visuellement, la plupart des écoles semblent étanches sauf l'école de Liettes qui présente de larges fissures apparentes sur les murs et les encadrements de fenêtres.

Tableau 11 : Caractéristiques des écoles.

Ecoles	Valenciennes	Maubeuge	Seclin	Lille
Usage de la pièce	Salle de classe CM2	Salle de classe CM2	Salle de classe CM2	Salle de classe CM1
étage	1 ^{er} étage	RDC	1 ^{er} étage	RDC
Occupation	22 enfants, horaires types	24 enfants, horaires types	23 enfants, horaires types	20 enfants, horaires types
Superficie (m ²)	56	59,7	55,9	59,2
Volume (m ³)	174,7	177	162	177,6
Revêtement intérieur	Sol : linoléum, revêtement plastique ; Mur : peinture; Plafond : faux-plafond suspendu.	Sol : carrelage, dalle ; Mur : peinture ; Plafond : papier peint, papier vinyle.	Sol : carrelage, dalle, peinture ; Mur : peinture ; Plafond : faux-plafond, plafond suspendu.	Sol : linoléum, revêtement plastique ; Mur : papier peint, vinyle, peinture ; Plafond: faux-plafond suspendu.
Tableau à craies	Oui	Oui	Oui	Oui
Type de ventilation	VMC et ouverture des fenêtres, débit de VMC (non disponible)	Ouverture des fenêtres	Ouverture des fenêtres	VMC et ouverture des fenêtres, débit de VMC (non disponible)
Type de fenêtre	En bois et double vitrage	En aluminium ; double vitrage	En bois et acier ; double vitrage	En bois ; double vitrage
Connexions internes	Couloir, porte avec classe adjacente	Couloir, porte avec classe adjacente	Couloir, portes avec 2 classes adjacentes	Couloir
Nombre de fenêtres et orientation d'ouverture	2 ; Nord	2 ; Entre SE et SO (Sud)	5 ; Entre NE et SE (Est)	4 ; Entre SE et SO (Sud)
Etat du Bâtiment	Neuf (HQE)	Ancien non rénové	Ancien non rénové	Ancien non rénové
Typologie	Urbaine, industrielle, trafic à proximité	Périurbaine	Périurbaine	urbaine, trafic et chantier à proximité

Ecole	St Pol/Mer	Marquise	Liettres	Arras
Usage de la pièce	Salle de classe CM2	Salle de classe CM1	Salle de classe CM1+2	Salle de classe CM2
étage	RDC	1er étage	RDC	RDC
Occupation	25 enfants, horaires types	20 enfants, horaires types	24 enfants, horaires types	27 enfants, horaires types
Superficie (m ²)	59,4	53	60,4	58,5
Volume (m ³)	201,5	184,6	181,3	234
Revêtement intérieur	Sol : Carrelage, dalle ; Mur : peinture ; Plafond : peinture	Sol : parquet en bois massif ; Mur : peinture ; Plafond : peinture	Sol : revêtement plastique ; Mur : peinture ; Plafond : faux-plafond suspendu.	Sol : Carrelage, dalle ; Mur : peinture ; Plafond : peinture.
Tableau à craies	Oui	Oui	Oui	Oui
Type de ventilation	ouverture des fenêtres	ouverture des fenêtres	ouverture des fenêtres	Ouverture des fenêtres
Type de fenêtre	En bois, simple vitrage	En bois, simple vitrage	En bois, simple vitrage	En bois, double vitrage
Connexions internes	Couloir, porte avec classe adjacente	Couloir, porte avec classe adjacente	Extérieur, porte avec classe adjacente	Couloir, porte avec classe adjacente
Nombre de fenêtres et orientation d'ouverture	2 ; Entre SE et SO (Sud)	3 ; Entre SO et NO (Ouest)	3 ; Entre NE et SE (Est)	2 ; Entre SO et NO (Ouest)
Etat de bâtiment	Ancien non rénové	Ancien rénové en partie	Ancien	Ancien
Typologie	Littorale, industrielle	Périurbaine, près d'une station service, littorale	Rurale	Urbaine

✓ ***Ecole Jean Mineur à Valenciennes***

C'est une nouvelle école HQE (Haute Qualité Environnementale) sur deux étages située à proximité de sources d'émission de polluants atmosphériques (station service, aciérie, atelier de soudage) et d'une zone de trafic routier dense (A23 à l'Ouest, D13 au Sud, D935 à l'Est et D169 au Nord). Cela laisse augurer des concentrations en composés organiques volatils (COV), NO₂, SO₂, et en poussières potentiellement élevées. Le bâtiment en brique et les fenêtres en bois et aluminium sont neufs, et l'école est équipée d'un système de ventilation type mécanique. Le débit de ventilation n'était malheureusement pas mesurable du fait de l'impossibilité d'accéder aux bouches d'extraction (hauteurs de plafond) ou de la taille des bouches (supérieur au cône du débitmètre qui doit pouvoir englober complètement l'orifice).



**Figure 27 : A gauche, vue extérieure de l'école HQE Jean Mineur,
A droite, vue intérieure de la pièce étudiée de l'école HQE Jean Mineur.**

✓ ***Ecole du Pont-Allant à Maubeuge***

L'école du Pont-Allant à Maubeuge se compose de trois bâtiments anciens en brique sur deux niveaux avec des fenêtres rénovées en 2003. Elle se trouve dans un quartier périurbain du centre ville, où l'influence du trafic routier est relativement faible : D649 au Sud et à l'Est, N2 au Sud-Ouest et à l'Ouest, à plus d'un kilomètre de l'école.

L'école n'a pas de système de ventilation mécanique ou naturel (pas d'aération au niveau des fenêtres). On peut donc présager un mauvais taux de renouvellement d'air.



Figure 28 : A gauche, vue extérieure de l'école du Pont-Allant, A droite, vue intérieure de la pièce étudiée à l'école du Pont-Allant.

✓ *Ecole Durot à Seclin*

L'école Durot est un ancien bâtiment (des années 1960) en brique sur deux niveaux sans système de ventilation mécanique. Elle se trouve dans un quartier périphérique à proximité immédiate de rues où le trafic automobile peut être dense à certaines heures de la journée telles que la D549 à l'Est et au Nord, A1 à l'Est, D925 à l'Est et au Sud. Les fenêtres en bois présentent un début de dégradation à certains endroits. La salle étudiée est au premier étage où les fenêtres de la façade donnant sur la cour sont fréquemment ouvertes pendant la classe, ce qui laisse augurer d'un taux de renouvellement d'air efficace.



Figure 29 : A gauche, vue extérieure de la pièce étudiée à l'école Durot (Seclin), A droite, vue intérieure de la pièce étudiée à l'école Durot (Seclin).

✓ *Ecole Turgot à Lille*



Figure 30 : A gauche, vue extérieure de la pièce étudiée (fléchée) à l'école Turgot, A droite, vue intérieure de la pièce étudiée à l'école Turgot.

L'école Turgot est composé de deux corps de bâtiment, l'un comprenant deux niveaux et l'autre trois (Figure 30) C'est un ancien bâtiment en brique, rénové à l'intérieur et équipé d'un système de VMC (le débit de ventilation n'est pas mesurable) comme pour l'école de Valenciennes). Elle est bordée par plusieurs axes routiers notamment la D147 à l'Est et à environ 500 m de l'A25 au Nord. La salle étudiée est au rez-de-chaussée, elle donne sur la cour à proximité de travaux de rénovation d'autres bâtiments scolaires. On peut donc envisager des teneurs en particules, COV et NO_x élevées sur ce site.

✓ *Ecole Vancauwenberghe, Saint Pol sur Mer*

C'est un ancien bâtiment (des années 1950) en brique sur deux niveaux avec des fenêtres en bois visiblement hermétiques. L'école n'a pas de système de VMC et se situe dans la cité des Cheminots à Saint-Pol-sur-Mer, à environ 700 - 900 m de la N353 au Nord, la D625 à l'Ouest, la D1 au Sud et l'A16 au Sud. Elle est dans une zone fortement industrielle comprenant plusieurs activités telles que la sidérurgie, deux raffineries, une cimenterie, un port commercial, parmi les plus importants émetteurs de polluants de la région.



Figure 31 : A gauche, vue extérieure de l'école Vancauwenberghe, A droite, vue intérieure de la pièce étudiée de l'école Vancauwenberghe.

✓ ***Complexe Scolaire Pierre Mendès France, Marquise***

Le complexe scolaire Pierre Mendès France est composé de plusieurs corps de bâtiments (ancien, rénové et neuf) sur deux niveaux équipés de VMC (débit de la ventilation : $110 \text{ m}^3/\text{h}$). Les fenêtres sont en bois et visiblement étanches (Figure 32). L'école se situe dans un quartier où le trafic automobile est relativement faible dans une petite ville proche du littoral et entourée par l'A16 à l'Ouest (à environ 1 km distance) et la D191 (à 500 m distance) à l'Ouest et au Sud.



Figure 32 : Vue intérieure de la classe au Complexe Scolaire Pierre Mendès France.

✓ *Ecole Louis Ledoux, Liettes*

L'école primaire Louis Ledoux est un bâtiment sur un seul niveau, composé de deux salles dont une en préfabriqué (Figure 33). Elle est éloignée de toute source de pollution atmosphérique : aucune industrie n'est implantée à proximité immédiate et elle se trouve à distance respectable des principales voies de circulation. La salle étudiée présente plusieurs fissures aux murs et au plafond favorisant probablement la pénétration des polluants dans la classe.



Figure 33 : A gauche, vue extérieure de la classe étudiée (fléchée) à l'école Ledoux, A droite, vue intérieure de la classe étudiée à l'école Ledoux.

✓ *Ecole Paul Bert à Arras*



Figure 34 : A gauche, vue extérieure de la pièce étudiée à école Paul Bert, A droite, vue intérieure de la pièce étudiée à école Paul Bert.

C'est un ancien bâtiment en centre-ville d'Arras sur trois niveaux sans VCM avec des fenêtres en bois. Il est entouré par plusieurs grands boulevards : Schuman au Nord, Faidherbe

et Michonneau à l'Est, Strasbourg au Sud-Est, par des rues étroites et le rond-point de Baudimont où le trafic automobile est à la fois dense et peu fluide. Il s'agit donc d'une configuration où les concentrations extérieures en OC, EC, NO_x et en particules fines sont probablement élevées.

En résumé :

Au niveau de la typologie des écoles : 4 d'entre-elles (Arras, Lille, Seclin et Valenciennes) se situent dans des zones fortement urbanisées, à proximité d'un trafic routier dense. La qualité de l'air intérieur de ces écoles est susceptible d'être influencée par les émissions urbaines ou liées au trafic automobile. Les écoles de Maubeuge et de Marquise se caractérisent par un environnement moins influencé par les émissions de polluants que les écoles précédentes. L'école de Marquise est par ailleurs soumise à une influence océanique. L'école de Saint Pol sur Mer subit un environnement complexe : à la fois influencée par les émissions des zones fortement industrielles, par les transports routiers ou marins, par les sources d'émissions urbaines, et par des apports maritimes. Inversement, l'école de Liettes est éloignée de toutes sources de pollution et l'air extérieur de cette école est donc supposé beaucoup moins pollué.

Les écoles ont été construites dans les années 60 sauf l'école de Valenciennes qui est une nouvelle construction HQE (Haute Qualité Environnementale). Les surfaces des classes étudiées sont comparables et varient de 53 m² (Marquise) à 60,4 m² (Liettes) tandis que leurs volumes présentent des valeurs également peu différentes (entre 162 m³ à Seclin et 234 m³ à Arras). Les trois écoles possédant un système de ventilation mécanique centralisée (VMC) sont celles de Lille, de Marquise et de Valenciennes ; les autres étant naturellement ventilées.

Au niveau des matériaux utilisés pour le revêtement intérieur dans les classes, seule la peinture est utilisée pour le revêtement des murs. Les sols sont en linoléum et revêtement plastique (Valenciennes, Lille et Liettes), en carrelage et dalle (Maubeuge, Seclin, Saint Pol sur Mer et Arras) et en parquet de bois massif (Marquise).

Deux principaux types de plafonds ont été identifiés : des faux-plafonds ou plafonds suspendus. (à Valenciennes, Lille et Liettes) et de la peinture (à Maubeuge, Seclin, Saint Pol sur Mer et Arras). Ces écoles possèdent généralement deux ou trois fenêtres sauf à Seclin (cinq fenêtres).

Le nombre d'élèves dans les classes varie de 20 (Marquise et Lille) à 27 (Arras) pour un rythme scolaire identique quelle que soit l'école.

1.3. Stratégie de mesure et de prélèvement

Ne disposant pas de suffisamment de matériels de mesure, lors de cette campagne test, nous avons effectué des mesures uniquement dans l'air intérieur des classes d'écoles.

Dans une salle de classe du niveau CM1-CM2 de chaque école, nous avons réalisé les prélèvements d'aérosols et la mesure des paramètres de confort (Température, humidité relative, pression, CO₂ et CO) et de la concentration en masse et en nombre des particules

pendant une semaine. Le choix de l'emplacement des matériels a été guidé par des aspects pratiques liés à la sécurité des enfants, à l'encombrement occasionné par la mise en place des instruments, à la protection des matériels sensibles installés et au bruit généré par les préleveurs et analyseurs. Afin de minimiser les risques d'accident ou de perturbation des activités scolaires, nous avons installé les instruments au fond de la classe. Les instruments étaient généralement regroupés sur une table à une hauteur comprise entre 1 et 1,50 m et à au moins 50 cm d'un mur.

1.4. Les séries de prélèvements et de mesures

Le protocole de prélèvement de chaque école a été réparti en deux séries, une en présence des élèves et une en leur absence. Les enfants ne travaillent pas le mercredi et le week-end sauf le samedi matin (jusqu'en 2008). La série en présence des élèves a été effectuée les journées du lundi, mardi, jeudi et vendredi de 8h30 à 16h30 et le samedi matin de 8h30 à 11h30. La série de prélèvements en absence des élèves a été réalisée toutes les nuits de la semaine de 18h30 jusqu'à 7h30 le lendemain matin. La journée complète du mercredi, du dimanche et l'après midi du samedi étaient aussi incluses dans cette série.

Le processus de préparation, y compris le montage, le changement des filtres et la récupération des données enregistrées sont effectués avant le début des cours et après la sortie des élèves. Le mardi servait de journée de transfert du matériel d'une école à l'autre.

Nous n'avons pas pu isoler une série spécifique de prélèvements durant le week-end par risque d'obtenir une quantité insuffisante de particules à analyser avec les appareils de prélèvement actuels et pour des problèmes de distance entre les écoles et notre laboratoire.

Finalement la durée de prélèvement en **présence des élèves** est d'environ **32 h** et celle en **absence des élèves** d'environ **125h**.

2. Description et validation des données de la campagne test pour 8 écoles en 2008

2.1. Description des données

La description des données obtenues lors de la campagne de mesures 2008 est synthétisée dans le Tableau 12.

Les résultats obtenus lors de cette campagne préliminaire sont constitués de 5 jeux de données principaux :

- Le jeu de données relatif à la masse des PM_{10} prélevées par le Microvol en présence et en absence des élèves contenant 16 échantillons (2 échantillons pour chaque école),
- Les données en métaux sont constituées de 16 échantillons prélevés par Microvol pour l'analyse de 34 éléments incluant des éléments majeurs et traces,

- Les données de concentrations en masse de six fractions granulométriques mesurées toutes les minutes pendant 1 semaine pour chacune des 8 écoles à l'aide du compteur Grimm,
- Le jeu de données de concentrations en nombre de six fractions granulométriques mesurées toutes les minutes pendant 1 semaine pour chacune des 8 écoles à l'aide du compteur Aerotrak,
- Enfin, le jeu de données des 4 paramètres de confort (CO₂, température, humidité relative, pression) et du CO mesurés toutes les minutes pendant 1 semaine pour chacune des 8 écoles à l'aide de l'analyseur Q-trak.

Tableau 12 : Tableau récapitulatif des prélèvements de la campagne 2008.

Matériel	Mesures	Nombre d'échantillons	Nombre de données	Nombre de pesées
Préleveur				
Microvol	Conc. en masse et en métaux des PM ₁₀	16	544 (éléments)	96
Compteur				
Grimm*	Conc. en masse de différentes fractions granulométriques	Mesure en continu		
Aerotrak	Conc. en nombre de différentes fractions granulométriques	Mesure en continu		
Analyseur				
Q-trak	CO ₂ , CO, °C, %H	Mesure en continu		

* mis en œuvre par Atmo Nord Pas de Calais

2.2. Validation des données

Parmi les données d'analyse élémentaires, 10 éléments ont été éliminés en raison de concentrations inférieures ou proches des limites de détection méthodologiques (LDm) ou d'une trop grande incertitude de mesure (problèmes de justesse ou de fidélité mis en évidence par des mesures de MRC discutés au Chapitre II).

En définitive, pour la mesure des éléments majeurs et traces, la base de données est donc constituée de 24 éléments (Al, Ag, As, Ba, Bi, Ca, Cd, Co, Cr, Cu, Fe, K, Mg, Mn, Mo, Na, Ni, Pb, Sb, Sr, Ti, V, Zn) mesurés dans 16 échantillons.

3. Résultats de la campagne test 2008

3.1. Les paramètres de confort (CO_2 ; Température; Humidité relative; CO)

Les paramètres de confort jouent un rôle très important sur l'aptitude des enfants au travail (Heudorf et al., 2009). A titre d'exemple, le dioxyde de carbone (CO_2) dans les classes des écoles est habituellement utilisé comme un indicateur de l'efficacité de ventilation ainsi que des concentrations intérieures en bio-effluents tels que les odeurs corporelles (Santamouris et al. 2008).

Sans source d'émission dans les classes vides, la concentration en CO_2 de l'air intérieur, exprimée en ppm, est en général égale à celle de l'air extérieur (~ 390 ppm). Par contre, en présence des élèves (de 20 à 27 élèves dans les classes étudiées), la concentration en CO_2 augmente assez fortement, parfois jusqu'à des valeurs supérieures à la valeur recommandée de 1000 ppm par l'ASHRAE (Santamouris et al., 2010), comme c'est le cas à Valenciennes, Maubeuge, Marquise, Arras et Saint Pol sur Mer (Annexe 13, Tableau 13). Ces fortes valeurs issues de la respiration humaine, sont attribuées à un manque de renouvellement d'air (portes et fenêtres fermées, et étanchéité de l'enveloppe du bâtiment). La valeur maximale, observée à Maubeuge, est de 5251 ppm. Pour les autres écoles, ces valeurs sont moins fortes mais restent de 8 à 10 fois plus élevées que pour la période en absence d'élèves.

Tableau 13 : Tableau récapitulatif des concentrations en CO_2 mesurés pendant une semaine dans 8 écoles de la région Nord Pas de Calais.

Ecoles	Groupe	CO_2 (ppm)		
		Moyenne \pm écart-type	Max	Min
Seclin	1	495 \pm 75	1402	438
Liettres	1	514 \pm 197	2201	417
Lille	2	605 \pm 290	1800	453
Saint Pol/Mer	2	625 \pm 333	3206	442
Valenciennes	3	716 \pm 468	3421	411
Maubeuge	3	748 \pm 666	5251	438
Arras	3	848 \pm 467	3993	462
Marquise	4	1108 \pm 870	4587	436

Nos résultats sont en accord avec l'étude menée par Heudorf et al. (2009) sur le CO_2 et la concentration en masse des PM_{10} dans 2 écoles primaires en Allemagne où les valeurs

moyennes en CO₂ sont plus élevées (de 1051 à 4840 ppm) que la valeur recommandée par l'ASHRAE durant la classe. Une observation similaire sur l'évolution du CO₂ en fonction du temps dans les écoles ainsi que l'influence de la présence des élèves sur la teneur en CO₂ a été rapportée par Santamouris et al (2010) lors d'une étude dans les classes de 27 écoles à Athènes (Grèce).

Les résultats observés dans les écoles de Seclin et Liettes (Tableau 13) montrent au contraire que la concentration moyenne et les valeurs maximales en CO₂ sont relativement faibles et cohérentes avec l'ouverture très fréquente des fenêtres dans ces sites.

Comme indiqué dans le Tableau 13, les écoles présentant des valeurs moyennes hebdomadaires de CO₂ proches ont été rassemblées dans 4 groupes indicateurs des taux de renouvellement d'air et de perméabilité du bâtiment. L'école de Marquise (groupe 4) présente la valeur moyenne de CO₂ la plus élevée par rapport aux autres écoles avec une forte variation d'un jour à l'autre.

Ce paramètre simple d'estimation du taux d'échange avec l'extérieur associé avec l'analyse de sources des particules dans les écoles nous permettra de sélectionner des écoles cibles pour la campagne de prélèvement et de mesure en 2009.

3.2. Concentrations en masse des particules

La quantité de particules (PM₁₀; PM_{2,5}, PM₁, et inférieur à PM₁) récoltée en fonction de leur taille par l'impacteur en cascade Dekati (quatre étages correspondent aux quatre tailles de particules) n'étant pas toujours suffisante et du fait de plusieurs pannes du système de pompage, seule la concentration en masse des particules PM₁₀ prélevés par le Microvol est présentée dans le Tableau 14.

Tableau 14 : Concentrations moyennes (µg/m³) en particules PM₁₀ obtenues par pesée dans l'air intérieur des différentes classes.

Ecole	Concentrations en PM ₁₀ (µg/m ³)		
	En présence des élèves (*)	En absence des élèves (**)	Moyenne hebdomadaire
Valenciennes	57,9	13,6	20,2
Maubeuge	89,1	11,2	19,0
Seclin	35,5	17,8	18,9
Lille	116,2	26,9	42,7
Saint Pol/Mer	113,3	22,7	37,1
Marquise	53,7	15,0	21,2
Liettes	95,4	17,3	29,6
Arras	78,2	25,7	35,0

*) Environ 32 heures par semaine

**) Environ 125 heures par semaine

Les résultats obtenus montrent qu'en présence d'élèves, les concentrations en PM₁₀ sont beaucoup plus élevées qu'en absence d'élèves (Tableau 14). Ceci est notamment observé dans les classes de Lille et Saint Pol sur Mer où les concentrations en PM₁₀, pendant la classe, atteignent des valeurs de l'ordre de 120 µg/m³, ces valeurs sont plus de deux fois supérieures à la valeur de gestion pour l'air intérieur: 50 µg/m³ en moyenne journalière et 20 µg/m³ en moyenne annuelle (OMS et ANSES).

Nos résultats, obtenus avec le Microvol par pesée, sont du même ordre de grandeur que les valeurs obtenues par Atmo NPdC qui a utilisé un compteur Grimm basé sur une méthode optique (voir Chapitre II) pour déterminer la concentration en masse des particules (Tableau 15). Dans cette étude, le compteur Grimm peut donc être utilisé pour suivre en continu la teneur en masse des particules.

Tableau 15 : Comparaison des concentrations moyennes en PM₁₀ obtenues à l'aide du Microvol et du compteur optique Grimm (données de Atmo NPdC).

Ecole	Concentrations moyennes hebdomadaires (µg/m ³)	
	Grimm	Microvol
Valenciennes	29,7	20,2
Maubeuge	25,3	19,0
Seclin	18,1	18,9
Lille	52,5	42,7
Saint Pol/Mer	41,4	37,1
Marquise	31,4	21,2
Liettres	28,8	29,6
Arras	35,9	35,0

L'OQAI (2004) a déterminé une valeur moyenne de PM₁₀ de 31,3 µg/m³ dans les logements en France lors de la campagne nationale pour 7 jours de prélèvement de 18h à 8h en semaine et 24h/24 pendant le week-end. Il s'agit donc de périodes en présence d'activités humaines telles que des activités culinaires (four et plaque de cuisson), des activités de nettoyage et d'entretien des surfaces, pendant la journée du week-end et le soir en semaine.

Si on compare cette étude avec nos valeurs moyennes durant la période en présence des élèves dans les classes, on constate des teneurs en PM₁₀ toujours plus élevées dans les écoles que dans les habitats français, notamment à Saint Pol sur Mer, Lille et Liettres qui présentent des valeurs 3 fois plus fortes que la valeur moyenne observée par l'OQAI.

La concentration en PM₁₀ est mesurée dans l'air extérieur par Atmo Nord Pas de Calais, par Jauge Béta ou TEOM, sur leurs sites de surveillance à proximité ou dans le même type d'environnement que les écoles étudiées. Ces données ont été utilisées, avec nos mesures dans les classes d'écoles, pour calculer les rapports intérieur/extérieur (Tableau 16).

Tableau 16 : Rapport PM₁₀ intérieur/extérieur pour les périodes correspondantes

Sites	Valenciennes	Maubeuge	Seclin	Lille	St Pol	Marquise	Liettres	Arras
R _{Int/Ext} A	0,26	0,6	0,6	0,9	0,5	0,3	0,8	1,2
R _{Int/Ext} P	1,86	4,7	1,2	3,9	2,7	1,1	4,2	3,7

R_{Int/Ext} A et R_{Int/Ext} P sont respectivement les rapports intérieur/extérieur des particules durant périodes en absence et en présence des élèves

Le rapport des concentrations moyennes en PM₁₀ Int/Ext sur une semaine en absence des élèves est toujours inférieur à 1 : de 0,3 (Marquise) à 0,9 (St Pol sur Mer) sauf dans l'école d'Arras qui présente un rapport de 1,2.

L'absence de source de particules dans les classes lorsqu'il n'y a pas cours suggère que la teneur en PM₁₀ inférieure à celle à l'extérieur est due à un phénomène de filtration par la structure du bâtiment lors du transfert de l'air extérieur dans la classe. Toutefois, les sites de surveillance des PM₁₀ d'Atmo NPdC ne sont pas à proximité immédiate des écoles (représentativité approximative par rapport aux écoles). D'autre part, les concentrations en PM₁₀ extérieures sont des valeurs moyennes quart-horaires contrairement aux valeurs en air intérieur obtenues par nos préleveurs (valeur moyenne sur plusieurs heures : 32 heures en présence des élèves et 125 heures en absence des élèves).

En présence des élèves, on observe que les concentrations en PM₁₀ sont toujours supérieures à celles observées à l'extérieur, surtout à Lille, Liettres et Maubeuge où les rapports de concentration Int/Ext des PM₁₀ sont respectivement de 3,9; 4,2 et 4,7. Le faible rapport (1,2) obtenu à Seclin est à rapprocher avec l'ouverture fréquente des fenêtres. Le rapport Int/Ext des concentrations en PM₁₀ présenté ci-avant est peu précis mais il permet de se faire une première idée sur la tendance des concentrations en particules rencontrées dans les huit écoles étudiées.

3.3. Composition en éléments majeurs et traces dans les particules

Les éléments majeurs suivants ont été analysés par ICP-AES : Al, Ba, Ca, Fe, K, Mg, Na, et Ti. Les éléments traces ont été analysés par ICP-MS : Ag, As, Bi, Cd, Co, Cr, Cu, La, Mo, Ni, Pb, Sb, Se, Sr, V, et Zn. Nous présentons ici les résultats des PM₁₀ durant la période en présence des élèves (Figure 35), les résultats en absence des élèves étant reportés en Annexe 14.

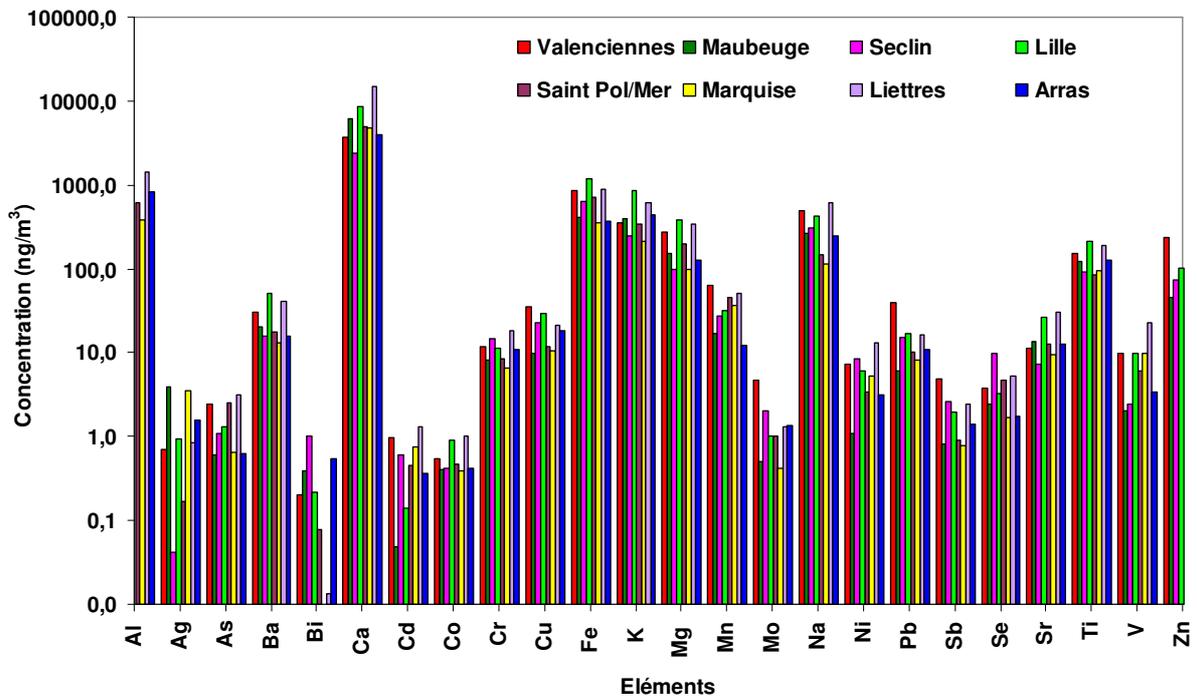


Figure 35 : La concentration moyenne (ng/m³) sur une semaine en éléments majeurs et traces des PM₁₀ durant la période en présence des élèves (obtenue par Microvol).

Les résultats montrent que les teneurs en métaux dans les PM₁₀ varient d'une école à l'autre et d'une période à l'autre (en période et hors période scolaire). En général, les teneurs en ces éléments sont plus élevées durant la période en présence des élèves dans les classes d'écoles. Les teneurs varient de l'ordre de 1 ng/m³ (éléments traces) à quelques centaines de ng/m³ (éléments majeurs), notamment pour le Ca dont les concentrations durant la période de classe atteignent plusieurs milliers de ng/m³.

3.4. Caractérisation du profil des écoles par l'analyse en Classification Hiérarchique

Afin de classer les écoles qui sont sous l'influence de sources de métaux comparables, nous avons utilisé les données de concentration en éléments métalliques dans les PM₁₀ en absence et présence des élèves dans l'air intérieur. Pour caractériser le profil de chaque classe, nous avons utilisé l'analyse en Classification Hiérarchique (HC) inverse c'est-à-dire que l'on applique l'analyse avec les individus représentés par les écoles étudiées (échantillons) et non pas avec les variables (teneurs en éléments métalliques).

Cette analyse en HC (appliquée pour une matrice des données standardisée) utilise la méthode de Ward pour estimer la ressemblance entre les groupes d'individus. Il s'agit d'une analyse basée sur la perte d'information qui se produit si on confond chaque observation appartenant à un groupe avec le point moyen de ce groupe (Fernández et al., 2000).

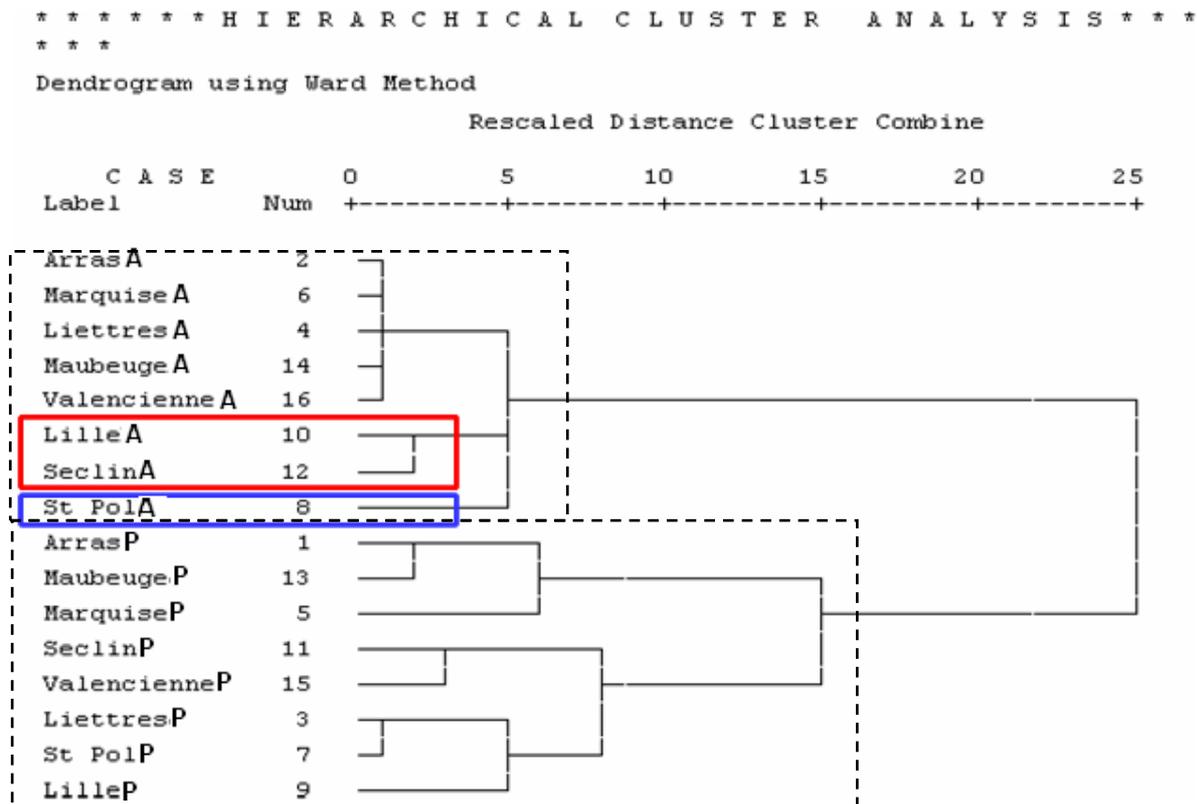


Figure 36 : L'Arbre de Classification Hiérarchique des écoles en utilisant les données en présence (P) et en Absence (A) des élèves.

Dans un premier temps, 16 échantillons de PM_{10} collectés dans les classes de 8 écoles durant les périodes en présence et en absence des élèves (huit échantillons pour chaque période) contenant 24 éléments ont été soumis à la HC afin de classer globalement les écoles en fonction de leurs différences (les individus ou les échantillons). On observe assez logiquement que les échantillons prélevés dans les 8 écoles en présence des élèves sont classés dans un groupe unique et ceux prélevés en absence des élèves se trouvent dans un autre groupe (Figure 36). Ces observations proviennent probablement du fait que les échantillons prélevés en présence des élèves sont fortement liés à la contribution d'une source prépondérante : la remise en suspension de particules déposées sur le sol.

Nous avons ensuite effectué une deuxième HC sans tenir compte des échantillons prélevés en présence d'élèves. Cette fois, l'analyse en HC avec un nombre réduit d'individus (8) mais avec les mêmes variables (24 éléments) nous a permis de regrouper plus en détails les individus (les échantillons). Les résultats obtenus sont reportés Figure 37.

Les échantillons prélevés durant la période en absence des élèves reflètent un comportement principalement associé aux variations des teneurs dans l'air extérieur et aux sources permanentes intérieures.

Dendrogram using Ward Method

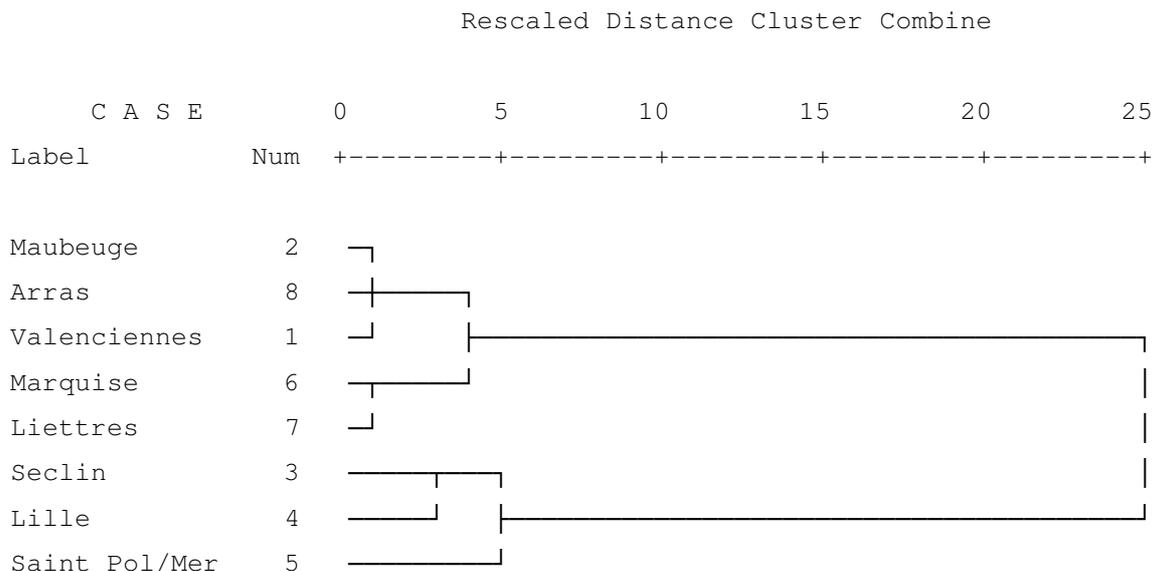


Figure 37 : L’arbre de classification hiérarchique des écoles, uniquement en absence d’élèves.

Cette deuxième étape d’analyse met en évidence quatre groupes d’école (Figure 37) : conformément à l’étape précédente, les écoles de Seclin et de Lille se retrouvent dans un même profil de source (groupe 1). Le groupe 2 comporte l’école de Saint Pol sur Mer possédant un profil caractéristique unique. Le groupe 3 comprend les écoles de Valenciennes, Maubeuge et Arras alors que les écoles de Liettres et de Marquise se trouvent dans le quatrième groupe, apparaissant assez différent du groupe précédent.

L’école de Saint Pol sur Mer est localisée sur un site urbano-industriel et littoral où l’on peut penser que la qualité de l’air ambiant extérieur est affectée par plusieurs sources d’émission telles que le trafic automobile, les nombreuses sources industrielles et l’aérosol marin.

Les écoles de Valenciennes, Maubeuge, Seclin, Lille, Arras se situent en sites urbains et périurbains où la pollution de l’air est liée principalement au trafic automobile et aux autres combustions urbaines telles que le chauffage, l’incinération... Outre leur proximité géographique, les écoles de Lille et Seclin sont probablement soumises à un profil de pollution comparable lié au trafic automobile autoroutier très dense sur cette zone. Les écoles urbaines de Valenciennes et de Maubeuge qui sont géographiquement les plus proches parmi les 8 écoles, ont un profil de pollution comparable avec l’école d’Arras.

Les écoles de Liettres (281 habitants) et de Marquise (4580 habitants) se situent respectivement en site rural et proche du littoral dans la campagne du Boulonnais.

Cette première analyse de classification des profils de sources en éléments métalliques présents dans les particules PM₁₀ des 8 écoles nécessiterait, pour aller plus loin, une étude plus fine liée aux sources intérieures de chaque école. Il faudrait notamment prendre en compte des paramètres tels que le taux de renouvellement d’air, le temps de résidence des

particules dans la classe (lié à la vitesse de dépôt des particules), le facteur de pénétration des particules extérieures, ainsi que la quantité de particules générées par les élèves (remise en suspension). Nous discuterons plus en détail de ces paramètres dans le chapitre V.

4. Description de la campagne de mesure 2009 dans trois écoles cibles du NPdC

Les résultats lors de la campagne test effectuée en 2008 nous ont permis de confirmer l'environnement des écoles et de prévoir l'origine potentielle des sources de particules en utilisant notamment la Classification Hiérarchique (CH). A l'issue de ce travail préliminaire, nous avons donc décidé de focaliser notre étude sur 3 écoles qui présentent des sources potentielles de particules distinctes ainsi que différentes caractéristiques de bâtiment. Les trois écoles choisies pour la campagne de prélèvements et de mesures effectuée en 2009 sont : Ecole de Saint Pol sur Mer (Industrielle + Urbaine + Littorale); Ecole d'Arras (Urbaine); Ecole de Liettes (Rurale). Les écoles de Seclin et Lille n'ont pas été retenues car elles sont principalement influencées par le trafic automobile qui est déjà représenté surtout par Arras et en partie par Saint Pol sur Mer.

La campagne de prélèvement et de mesure a été effectuée pendant une période de deux semaines consécutives à l'intérieur et à l'extérieur d'une classe de chacune des trois écoles entre mai et juillet 2009.

4.1. Présentation de la campagne

Les caractéristiques des écoles et des classes, le nombre d'élèves ainsi que le rythme scolaire ont été détaillés au point 1.2 de ce chapitre. Nous présentons ci-après l'environnement et l'urbanisme à l'extérieur de chaque école.

L'école d'Arras (41000 habitants) se trouve dans une zone dense du centre ville et est entourée par plusieurs rues où la circulation automobile est relativement importante surtout pendant les périodes de pointe. Il y a un parking à proximité de l'école et plusieurs stations services se trouvent à environ 400-500 m de l'école. Ces conditions spécifiques pourraient être à l'origine de sources importantes de polluants tels que NO_x, SO₂ et de particules fines. D'autre part, elle est entourée par de grands bâtiments qui peuvent influencer la direction des vents autour de l'école (Figure 38).



Figure 38 : Ecole à Arras, vue spatiale (Google map).

L'école de Saint Pol sur Mer (23000 habitants) se situe dans la cité des cheminots avec une faible densité de maisons et des bâtiments relativement peu élevés, la trajectoire des vents autour de l'école est donc normalement peu modifiée (Figure 39).

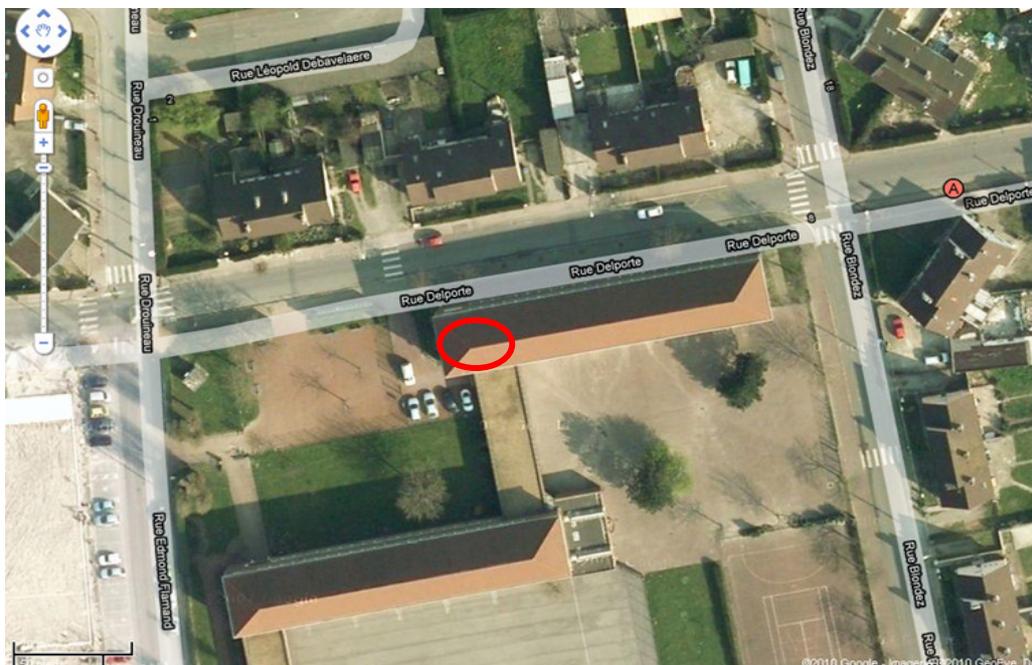


Figure 39 : Ecole à Saint Pol sur Mer, vue spatiale (Google map).

L'école de Liettes se situe dans une commune rurale (environ 3 km de superficie) composée de quelques dizaines de maisons pour une population de 280 habitants en 2006. Le village est entouré par de grands champs de blé, de maïs et de betteraves. L'autoroute A26 qui

se situe à environ 700 m de l'école peut être une source de particules liée au trafic automobile selon la direction des vents (Figure 40).

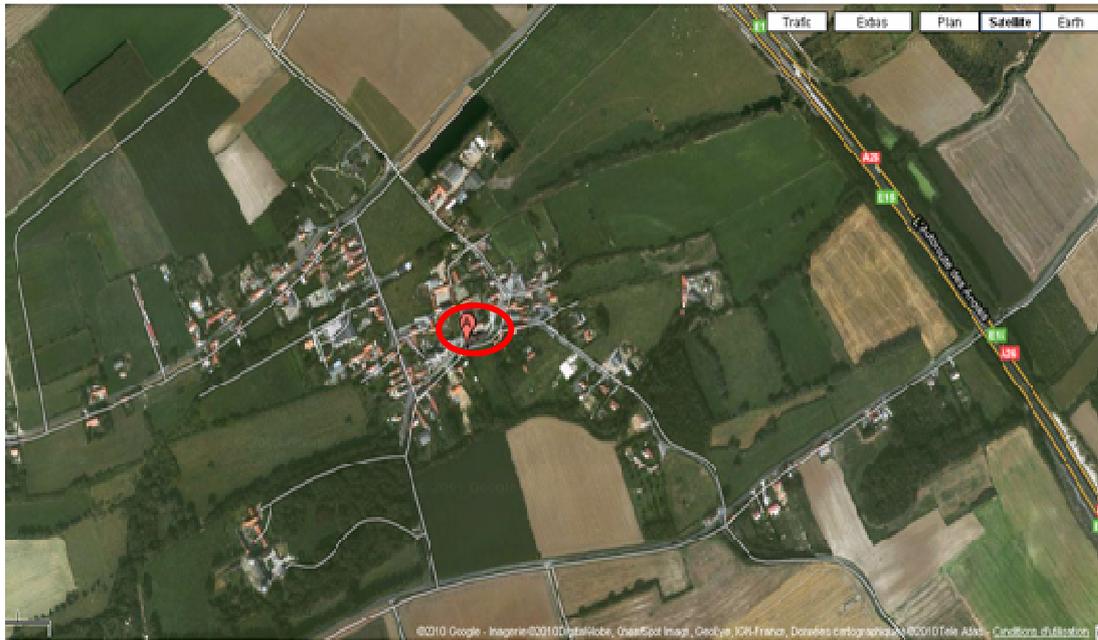


Figure 40 : Ecole à Liettes, vue spatiale (Google map).

Pour chaque école, nous avons effectué dans une salle de classe du niveau CM1-CM2, des prélèvements de particules afin de quantifier leur masse par gravimétrie par tranche granulométrique, leur composition en métaux, en carbone organique (OC) et carbone élémentaire (EC) en présence et en absence d'élèves. Les mesures en continu des paramètres de confort (température, humidité relative, pression, teneur en CO₂ et CO), de la concentration en masse et en nombre des particules de différentes fractions granulométriques, du "Black Carbon" et de l'estimation de certains composés organiques aromatiques à l'aide d'un Aethalomètre (voir chapitre II) ont également été effectuées pendant deux semaines consécutives. Un micro-manomètre, permettant de mesurer les transferts aérauliques à travers la façade du bâtiment via la mesure de pression différentielle et le calcul de perméabilité, a été installé à proximité d'une fenêtre au fond de la salle.

En parallèle des mesures et des prélèvements effectués dans l'air intérieur des écoles, un suivi identique a été réalisé à l'extérieur du bâtiment, à proximité immédiate de la façade des classes étudiées. Tous les matériels servant à la mesure et au prélèvement à l'extérieur ont été regroupés dans un abri grillagé à armature en bois avec un toit en plastique afin de les protéger des intempéries et des jeux des enfants tout en maintenant un environnement bien aéré (Figure 41).



Figure 41 : L'ensemble des matériels utilisés pour la mesure et le prélèvement à l'intérieur et l'extérieur de l'école de St Pol sur Mer (03-17/06/2009).

4.2. Les séries de prélèvements et de mesures

Les enfants du primaire ne travaillant pas le mercredi et le week-end (en 2009), les prélèvements dans chaque école ont donc été répartis en deux séries hebdomadaires, une en présence des élèves et une autre en absence d'élèves. Ils ont été réalisés pendant deux semaines consécutives allant du mercredi au mercredi suivant. La série de prélèvements en présence des élèves a été effectuée dans la journée, le lundi, mardi, jeudi et vendredi de 8h30 à 16h30 tandis que la série en absence des élèves a été réalisée toutes les nuits de la semaine de 18h30 jusqu'à 7h00 le lendemain matin, le weekend complet et le mercredi à partir de 16h30 (la journée du mercredi de 7h à 16h30 servant au montage et à la préparation des matériels et des filtres pour la nouvelle série de mesures).

Le processus de préparation, y compris le montage, le changement des porte-filtres et la récupération des données (30 mn environ) sont effectués avant le début et après la fin des cours. Afin de minimiser les manipulations et les risques de contamination, des porte-filtres pré-chargés de filtres étaient simplement échangés au moment désiré lors de chaque période. Les porte-filtres non utilisés étaient alors préservés de la poussière dans des sacs hermétiques et dans une boîte en plastique et placés au réfrigérateur (4°C) dans le cas des échantillons EC/OC.

Le changement des filtres entre la première semaine et la seconde a été effectué soit au laboratoire en salle blanche (pour l'école d'Arras), soit sur le terrain en utilisant une hotte à flux laminaire portable (Figure 41).

4.3. Description et validation des données de la campagne de mesures 2009

La description des données obtenues lors de la campagne de mesures 2009 est synthétisée dans le Tableau 17.

Les résultats présentés lors de cette campagne dans l'air intérieur et extérieur des écoles sont constitués de 8 jeux de données principaux :

- Le jeu de données de la concentration en masse des PM_{10} (prélevées par des Microvol), et de différentes fractions particulières (prélevées à l'aide des impacteurs en cascade Dekati) comporte 126 échantillons,
- Le jeu de données de la concentration en métaux est constitué de 126 échantillons pour une analyse de 25 éléments métalliques comprenant des éléments majeurs et traces,
- Le jeu de la composition en OC, EC des particules $PM_{2,5}$ a été déterminée sur 24 échantillons,
- Le jeu de données de concentrations en masse de différentes fractions granulométriques est constitué de 6 mesures en continu toutes les minutes (2 semaines pour chacune des 3 écoles),
- Le jeu de données de concentrations en nombre de différentes fractions granulométriques est constitué de 6 mesures en continu toutes les minutes (2 semaines pour chacune des 3 écoles),
- Le jeu de données des 4 paramètres de confort (CO_2 , température, humidité relative, pression) et du CO correspond à 6 mesures en continu toutes les minutes (2 semaines pour chacune des 3 écoles),
- Le jeu de données de la mesure en BC et en composés organiques absorbant dans l'UV (par exemple les composés aromatiques polycycliques) des particules $PM_{2,5}$ comporte 3 mesures uniquement dans l'air intérieur en continu toutes les 5 mn (2 semaines pour 3 écoles),
- Enfin, la mesure de pression différentielle représente 3 suivis en continu toutes les minutes (3 écoles) pour une période de 2 semaines chacune.

Pour la campagne 2009 nous avons analysé 24 éléments métalliques comme pour la campagne 2008 auxquels a été ajouté le lanthane, signature des sources pétrochimiques. Les éléments analysés pour la campagne 2009 sont les suivants : Al, Ag, As, Ba, Bi, Ca, Cd, Co, Cr, Cu, Fe, K, La, Mg, Mn, Mo, Na, Ni, Pb, Sb, Se, Sr, Ti, V, Zn.

Tableau 17 : Synthèse des prélèvements et des mesures dans l'air intérieur et extérieur des écoles de la campagne 2009.

Matériel	Mesures	Nombre d'échantillons	Nombre de données	Nombre de pesées
<u>Préleveurs</u>				
Microvol	Conc. en masse et en métaux des PM ₁₀	30	750 (élémentaires)	480
Microvol	Concentration en OC, EC des PM _{2,5}	24	48	
Dekati en Cascade	Conc. en masse et en métaux de différentes fractions particulaires	96	2400 (élémentaires)	1504
Compteurs Grimm	Conc. en masse de différentes fractions particulaires, et en métaux des PM ₁₀ .	Mesure en continu	75 (élémentaires)	48
Aerotrak	Conc. en nombre de différentes fractions particulaires	Mesure en continu		
<u>Analyseurs</u>				
Q-trak	CO ₂ , CO, °C, %H	Mesure en continu		
Aethalomètre AE-42	Black carbon et composés aromatiques	Mesure en continu (air intérieur uniquement)		
Micro-manomètre	ΔP (Pa)	Mesure en continu		

5. Conclusion

Ce chapitre fournit dans un premier temps, des informations sur les caractéristiques générales des 8 écoles primaires de la région Nord Pas de Calais où nous avons effectué une campagne test de mesure et de prélèvement au printemps 2008.

Les teneurs en CO₂ donnent des indications quant à l'étanchéité des classes et au taux de renouvellement d'air, ces teneurs sont parfois non satisfaisantes au regard des recommandations en terme de qualité de l'air intérieur.

Les concentrations en masse des PM₁₀ dans les classes des écoles dépassent largement la valeur de gestion journalière (50µg/m³) pour l'air intérieur (recommandations OMS et ANSES) dans les écoles d'Arras, Saint Pol sur Mer, Lille, Maubeuge et Liettes. L'école de Seclin, où les fenêtres sont fréquemment ouvertes, présente des teneurs en PM₁₀ plus faible qui respectent donc cette valeur de gestion.

Les teneurs en PM₁₀ dans les classes durant les périodes en présence des élèves sont significativement supérieures à celles en leur absence.

L'analyse par Classification Hiérarchique nous a permis de distinguer 4 groupes d'écoles selon leur environnement : urbain, urbain fortement soumis au trafic automobile, rural, et mixte industriel-urbain-marin.

Les difficultés de prélèvement rencontrées lors de cette campagne test notamment afin de pouvoir mesurer des teneurs en éléments traces pour différentes fractions granulométriques nous ont conduits à augmenter le débit de prélèvement (de 10 L/min à 30 L/min) de l'impacteur Dekati pour la campagne 2009.

Nous avons ainsi pu sélectionner les écoles pour la campagne 2009, en prenant en compte plusieurs critères, notamment la typologie et l'environnement des écoles, l'origine probable des particules à l'extérieur et les caractéristiques des bâtiments incluant la perméabilité des façades et les revêtements intérieurs.

Trois écoles cibles ont été choisies pour la campagne 2009 avec pour objectif l'étude des sources de particules dans l'air intérieur, la dynamique et le transfert extérieur-intérieur de ces particules. Il s'agit des écoles de Saint Pol sur Mer, d'Arras et de Liettes.

Comme détaillé précédemment, l'école de Saint Pol sur Mer se situe dans une zone caractérisée par plusieurs sources de polluants (zone fortement industrialisée, source trafic (autoroute; port maritime), sources urbaines (Dunkerque) et source marine.

L'école d'Arras, située en centre ville, est environnée par plusieurs axes de circulation automobiles y compris des ronds-points et par de grands bâtiments.

Enfin, l'école de Liettes est en milieu rural, peu soumise aux émissions urbaines ou de trafic automobile nous permettant d'accéder à la valeur du bruit de fond de la région.

D'autre part, afin d'étudier l'origine des particules présentes dans les classes et le transfert intérieur-extérieur des particules, une série de mesures et de prélèvements à l'extérieur de chaque école (dans la cour de récréation) a été effectué en parallèle des mesures dans les classes lors de la campagne 2009.

Huit jeux de données physico-chimiques ont été constitués lors de la campagne 2009, ils sont présentés et exploités dans le chapitre suivant.

**CHAPITRE IV : RESULTATS DE LA
CAMPAGNE DE MESURE 2009**

Ce chapitre présente des données d'environnement (météorologie et paramètres de confort), des données relatives à la qualité de l'air, à la teneur en nombre, masse et composition chimique des particules en suspension dans l'air intérieur et extérieur. Ce type d'étude, peu décrite dans la littérature scientifique, s'appuie sur une bonne connaissance de l'analyse des particules dans l'air ambiant extérieur de la région Nord-Pas-de-Calais et notamment dans le Dunkerquois (Lamaison et al., 2009; Alleman et al., 2010).

Les résultats issus de ces mesures sont exploités afin de mieux comprendre les paramètres à l'origine de l'évolution de la concentration en nombre et en masse de particules ainsi que leur caractéristiques chimiques en fonction de leur distribution granulométrique.

L'utilisation de traceurs spécifiques d'émissions naturelles ou anthropiques couplée à une méthodologie d'échantillonnage appropriée permet une identification des sources de particules en air intérieur et extérieur.

1. Données météorologiques

Les données météorologiques sont importantes pour interpréter les résultats sur le traçage et la contribution des sources de polluants pour un site donné (Ragosta et al., 2002). Parmi ces données météorologiques, il faut notamment prendre en compte celles incluant la direction et la vitesse du vent. Les roses des vents présentées ici sont des données relatives aux stations de Météo France situées à proximité des 3 écoles pendant la période de prélèvement (Figure 42, 43, et 44).

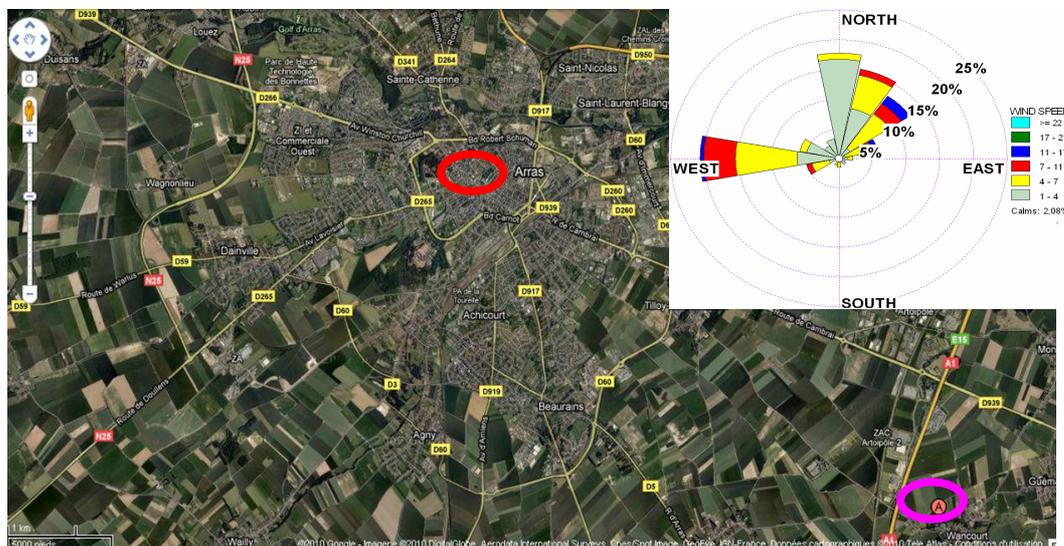


Figure 42 : La rose des vents à l'extérieur de l'école d'Arras (vue aérienne) pendant la période du 13 au 27/05/2009.

La rose des vents à proximité de l'école d'Arras indique que durant la campagne, les vents proviennent principalement de la direction Nord-Est (le secteur 350-50°) avec une vitesse de 1-7 m/s (Figure 42) et de la direction Ouest (secteur 260-280°) caractérisée par une

vitesse des vents de 4-11 m/s. Ces deux directions de vent entraînent des polluants urbains (trafic, combustion, stations services ...) vers l'école située au centre-ville d'Arras.

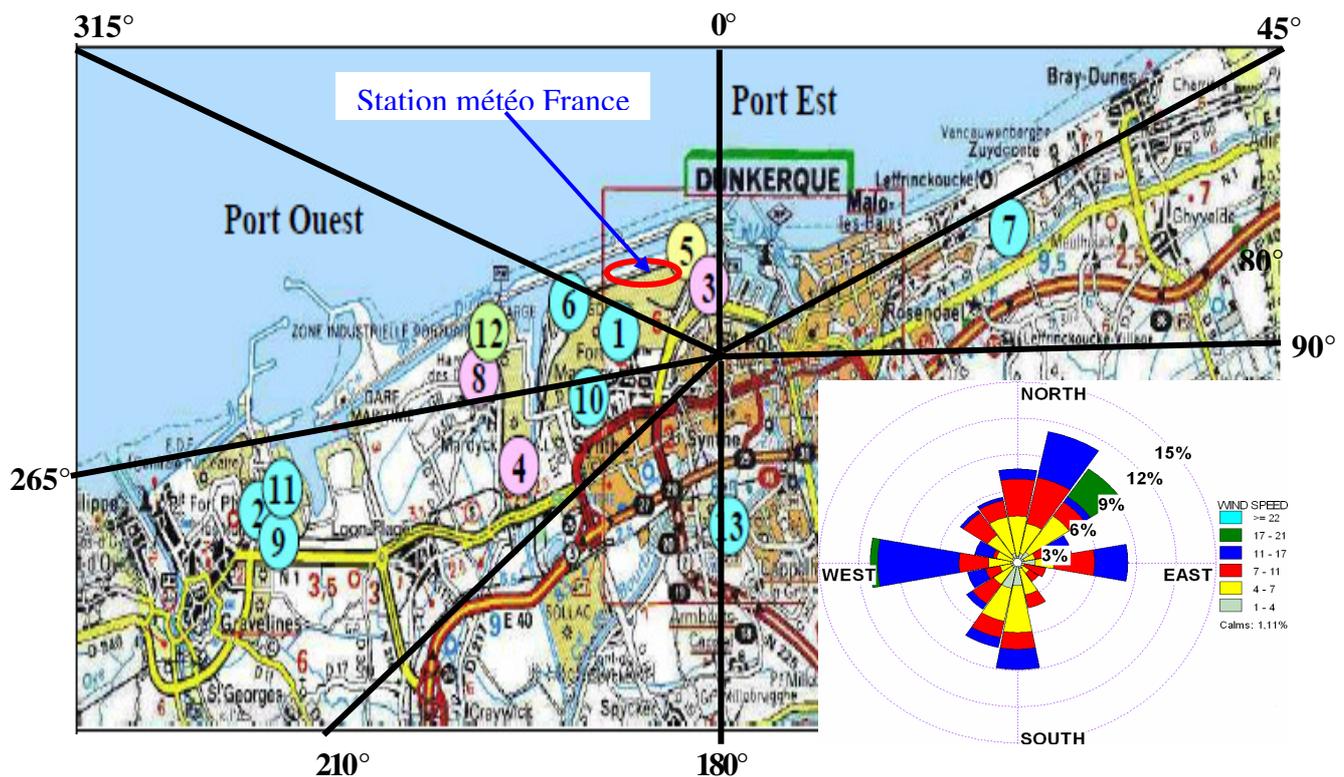


Figure 43 : La rose des vents et l'emplacement des principales activités industrielles proches de l'école de Saint Pol sur Mer pendant la période du 03 au 17/06/2009.

1 : Sidérurgie, 2 : Aluminium par électrolyse, 3 : Raffinage de lubrifiants, 4 : Raffinage de pétrole, 5 : Centrale thermique, 6 : Ferro-manganèse, 7 : Aciers spéciaux de construction mécanique, 8 : Craquage d'hydrocarbures, fabrication de polyéthylène, 9 : Produits enrichis en Ni et Cr, 10 : Laminage de tôles fortes, 11 : Silico-manganèse, 12 : Cimenterie, 13 : Fonderie de bronze.

Les données de rose des vents près de l'école de Saint Pol sur Mer montrent des directions de vent répartis dans un axe Nord-Est – Sud-Ouest avec également des vents d'Ouest et d'Est. De nombreux secteurs de vent sont donc couverts, l'école se trouve ainsi sous l'influence de plusieurs sources de polluants provenant des émetteurs de proximité. A titre d'exemple, le secteur de vent 350-60° (direction Nord-Est) le plus fréquent, favorise le transfert vers l'école de polluants provenant de l'usine de raffinage de lubrifiants, la centrale thermique et des aérosols marins (Figure 43).

Le secteur de vent 265-310° pour la direction Nord-Ouest favorise le transport des particules provenant des sources industrielles telles que la sidérurgie, l'usine de ferro-manganèse, le laminage de tôles fortes, le craquage d'hydrocarbures, la fabrication de polyéthylène et la cimenterie. Le vent provenant du secteur 165-210° transportent vers l'école les polluants de l'usine de fonderie de bronze, et de l'autoroute A16. Enfin, le vent de secteur 80-100° favorise le transport de polluants provenant des sources urbaines de la ville Dunkerque vers l'école de St Pol.

L'école de Liettes se situant en zone rurale, la pollution de l'air extérieur est normalement représentée par le "bruit fond" de la région. Les données de la rose des vents pour cette école indiquent la direction Sud-Ouest (secteur de vent 170-280°) comme vent dominant (Figure 44). La seule source notable de pollution dans la zone étant l'autoroute A26 passant au Nord-Est, l'école n'a donc pas été soumise à ce type d'émission durant la campagne.

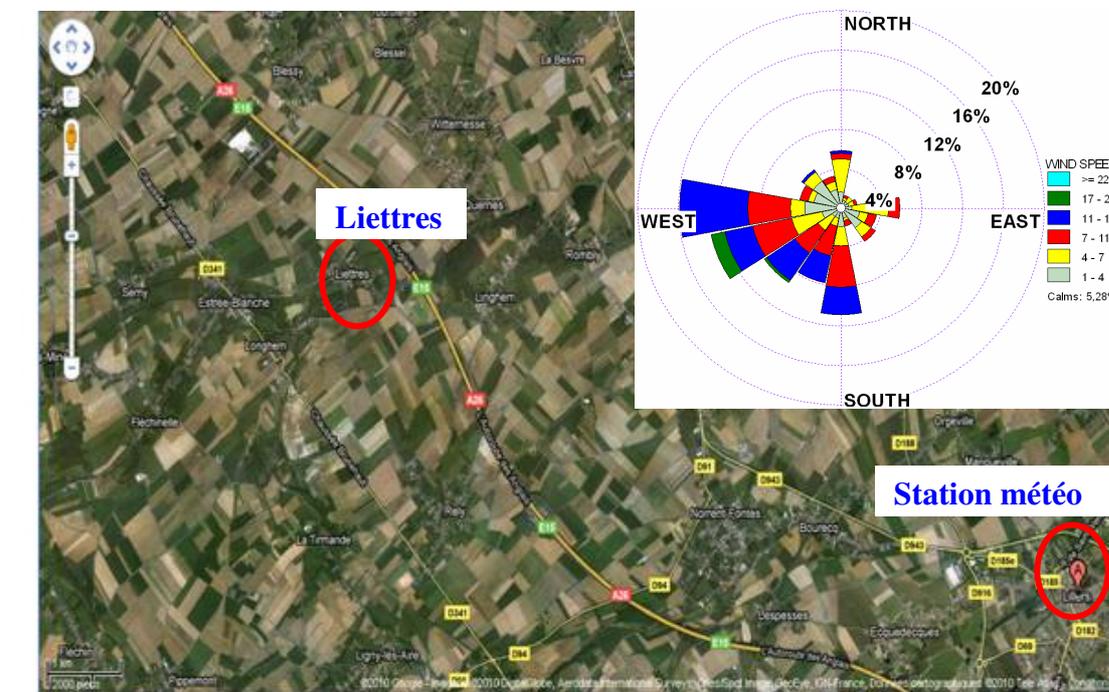


Figure 44 : La rose des vents à l'extérieur de l'école à Liettes pendant la période du 17/06 au 01/07/2009.

2. Paramètres de confort à l'extérieur et l'intérieur des écoles

Comme discuté au chapitre III, la valeur du CO₂ dans les classes ne doit pas, selon les recommandations de l'ASHRAE (American Society of Heating, Refrigerating and Air-Conditioning Engineers), dépassée 1000 ppm. Notre suivi dans les classes et à l'extérieur des écoles est présenté dans le Tableau 18. Notons ici que les valeurs de paramètres de confort mesurées à l'extérieur des écoles ont été obtenues par des appareils situés juste à côté des classes étudiées.

Les teneurs en CO₂ à l'extérieur des écoles sont comparables d'une école à l'autre, que ce soit en présence ou en absence des élèves. La gamme de variation des concentrations moyennes sur deux semaines en CO₂ à l'extérieur des écoles va de 304 ppm (à Arras) à 357 ppm (à Saint Pol sur Mer et Liettes). En revanche, la teneur en CO₂ dans les classes de ces trois écoles est variable au cours du temps, caractérisée par un écart-type relativement important pour chaque école (Tableau 18). La concentration en CO₂ dans les classes est toujours plus élevée en présence des élèves, avec des valeurs moyennes en CO₂ sur deux

semaines pendant la classe à Arras comparables à celles de Saint Pol sur Mer (de l'ordre de 1480 ppm, dépassant la valeur recommandée de 1000 ppm pour l'air intérieur) et plus élevées qu'à Liettes (690 ppm). Ceci est logique car l'école de Liettes présente une perméabilité plus élevée que les deux autres écoles, la porte et les fenêtres étant fréquemment ouvertes en cette saison. En absence d'élèves ou de sources intérieures de CO₂, les teneurs dans ces classes sont relativement faibles et comparables avec celles obtenues lors de la campagne du printemps 2008.

Concernant la température (Tableau 18), on constate qu'à l'extérieur des écoles, elle varie logiquement plus fortement d'une période à l'autre (en présence ou absence des élèves). Les écarts entre ces deux périodes observés à Arras, Saint Pol sur Mer et à Liettes sont respectivement de 4,3 ; 13,3 et 6,8 °C contrairement aux écarts observés à l'intérieur des classes (les écarts à Arras, Saint Pol sur Mer et à Liettes sont respectivement de 0,8; 1,7 et 1 °C). Cela est associé à la capacité de l'enveloppe du bâtiment à conserver la température dans les classes alors que la température extérieure varie en lien notamment avec l'ensoleillement.

En ce qui concerne la différence de température entre l'intérieur et l'extérieur des bâtiments, qui joue un rôle important sur l'échange d'air avec l'extérieur, on observe que l'écart de température est plus élevé à l'école de Saint Pol sur Mer et Liettes (environ 3°C) qu'à Arras (environ 2°C). Cela pourrait favoriser un échange d'air avec l'extérieur plus élevé aux écoles de Liettes et de Saint Pol sur Mer.

Les teneurs en CO dans les classes sont négligeables (Tableau 18) confirmant l'absence de sources importantes de combustion dans ces écoles (pas de chauffage au combustible ni de fumeurs). Par contre, les teneurs en CO à l'extérieur de l'école de Saint Pol sur Mer présentent des maxima plus élevées par rapport aux deux autres écoles, liées probablement à des sources de combustion locales (autoroute, zones industrielles), voire très locale (fumée de cigarette).

Tableau 18 : Tableau récapitulatif des paramètres de confort en air extérieur et intérieur des écoles (2 semaines de mesure consécutives). Les unités sont CO₂ (ppm), T (°C), HR(%), CO (ppm) et P (Pa).

Ecole	Extérieur										Intérieur										
	Présence					Absence					Présence					Absence					
	CO ₂	T	HR	CO	P	CO ₂	T	HR	CO	P	CO ₂	T	HR	CO	P	CO ₂	T	HR	CO	P	
Arras	Min	253	14,9	18,4	0,0	998	260	11,1	57,3	0,0	997	406	16,7	56,6	0,0	1000	394	16,4	58,5	0,0	1003
	Max	404	41,7	83,4	0,7	1015	1076	27,6	97,4	0,9	1019	3488	22,3	83,5	0,2	1018	1534	20,1	75,5	0,2	1021
	Médian	300	16,7	65,6	0,1	1009	298	14,2	75,9	0,1	1009	1308	18,7	67,6	0,0	1010	458	17,8	63,1	0,0	1010
	Moyenne	304	20,3	64,4	0,1	1008	304	16,0	75,8	0,2	1008	1484	18,7	69,6	0,0	1010	573	17,9	64,0	0,0	1011
	Ecart-type	15	6,3	15,9	0,1	6	27	4,5	9,0	0,1	5	659	1,4	7,4	0,0	9	231	0,9	3,3	0,0	4
St Pol/Mer	Min	286	31,0	6,8	0,0	1004	278	10,7	8,8	0,0	999	712	19,3	32,1	0,0	1006	377	18,3	37,8	0,0	1002
	Max	593	31,7	83,3	6,9	1025	498	47,3	93,5	11,2	1025	2900	25,6	64,3	0,9	1027	1054	24,3	66,4	1,6	1027
	Médian	350	31,4	44,6	0,1	1016	333	16,6	61,4	0,4	1015	1429	22,2	49,7	0,0	1010	456	20,7	50,0	0,0	1020
	Moyenne	357	31,4	47,0	0,3	1015	336	18,1	60,2	0,4	1012	1475	22,6	50,0	0,1	1015	504	20,9	49,8	0,1	1014
	Ecart-type	30	0,2	20,1	0,5	6	17	5,6	17,6	0,4	8	324	1,5	6,8	0,1	7	130	1,4	5,2	0,2	8
Liettres	Min	294	12,7	10,9	0,0	1005	288	8,0	6,2	0,0	1004	372	21,5	35,8	0,0	1009	357	18,3	25,3	0,0	1007
	Max	391	48,2	84,0	2,1	1023	624	51,0	92,4	1,4	1023	2780	31,3	77,3	0,2	1026	867	34,7	69,5	0,1	1026
	Médian	331	26,2	36,0	0,1	1015	331	18,1	69,9	0,4	1014	582	24,9	44,6	0,0	1020	387	24,0	48,7	0,0	1020
	Moyenne	331	28,2	40,3	0,1	1015	357	21,0	60,8	0,4	1014	690	25,3	46,8	0,0	1019	404	24,3	48,1	0,0	1016
	Ecart-type	14	8,5	18,7	0,2	5	65	8,3	22,2	0,3	4	375	2,2	7,9	0,0	4	51	3,0	6,2	0,0	5

T, HR et P sont respectivement la température, l'humidité relative et la pression.

3. Concentrations en masse et nombre des particules à l'extérieur et à l'intérieur des écoles

3.1. Concentrations moyennes hebdomadaires en masse des particules PM_{10} extérieures

La concentration en masse des PM_{10} à l'extérieur des classes (dans la cour de récréation) des 3 écoles est présentée Figure 45. En absence d'élèves, les trois écoles ont des valeurs inférieures à $50 \mu\text{g}/\text{m}^3$ (valeur limite européenne pour les PM_{10} dans l'air ambiant sur 24 h). Pendant cette période, la masse des PM_{10} à l'extérieur évolue faiblement d'une semaine à l'autre. On ne distingue pas clairement de relation entre les typologies urbano-industrielles de Saint Pol sur Mer et urbaine d'Arras (Figure 45). L'école de Liettes (site rural) présente par contre une valeur inférieure à celles des deux écoles précédentes.

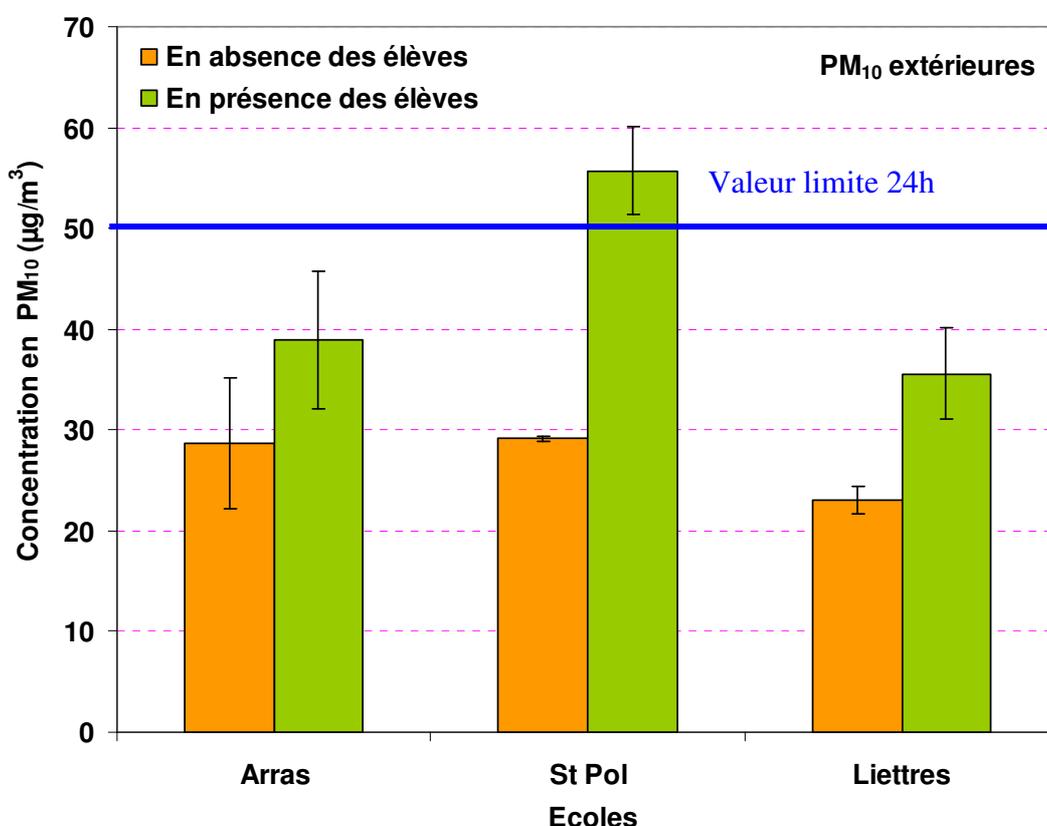


Figure 45 : Comparaison des concentrations moyennes hebdomadaires en masse des PM_{10} extérieures en présence et absence des élèves dans les classes des 3 écoles. Les barres représentent l'écart entre les 2 mesures consécutives.

En présence des élèves, la concentration en PM_{10} extérieures se situe autour de $35\text{-}40 \mu\text{g}/\text{m}^3$ sauf pour l'école de Saint Pol sur Mer qui affiche une valeur proche de $55 \mu\text{g}/\text{m}^3$. La concentration moyenne hebdomadaire extérieure des écoles est donc toujours plus élevée en journée (de 8h45 à 16h45) où les activités humaines sont plus intenses. De plus, les mesures extérieures ont été réalisées dans la cour de récréation, les enfants jouant à proximité des appareils de mesure faisant augmenter les concentrations en PM_{10} durant la journée.

3.2. Concentrations moyennes hebdomadaires en masse de particules PM_{10} intérieures

Le protocole de prélèvement des PM_{10} en présence et en absence d'élèves a mis en évidence l'influence des activités scolaires sur la variation de concentration en masse des particules. En effet, pour la période en présence des élèves (Figure 46), la concentration hebdomadaire des PM_{10} dans les classes est environ 4 fois plus élevée que celle en leur absence. Ces valeurs dépassent alors, dans ces 3 écoles, la valeur de gestion (OMS et ANSES) pour l'air intérieur sur 24 h pour les PM_{10} ($50 \mu\text{g}/\text{m}^3$) contrairement aux périodes en absence d'élèves ($20\text{-}30 \mu\text{g}/\text{m}^3$).

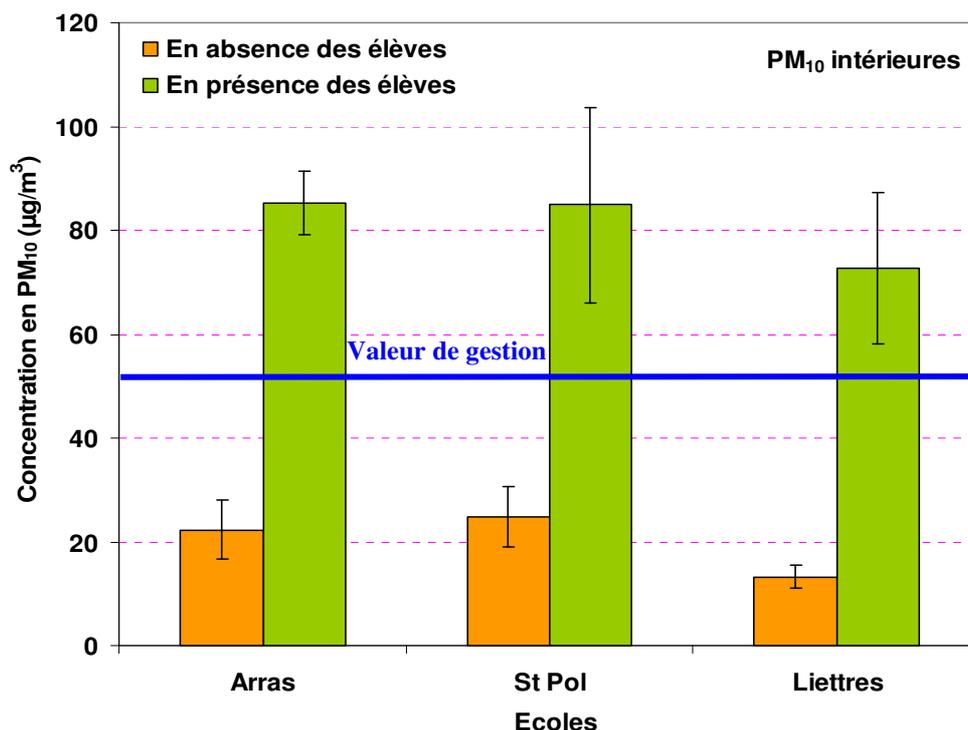


Figure 46 : Comparaison des concentrations moyennes hebdomadaires en masse des PM_{10} intérieures dans les 3 écoles en présence et en absence des élèves. Les barres représentent l'écart entre les 2 mesures consécutives.

L'écart entre les mesures hebdomadaires consécutives (Figure 46) dépend du type et de l'intensité des activités des enfants et de l'état d'ouverture et de fermeture de la porte et des fenêtres, donc de l'échange d'air avec l'extérieur. Ainsi, le questionnaire d'activités journalières (Annexe 15) à l'école d'Arras montre que l'institutrice ferme toujours les fenêtres et la porte pendant la classe et lors de la récréation. Il en résulte une variation moins importante d'une semaine à l'autre (Figure 46). En revanche, à Saint Pol sur Mer et à Liettes, les enseignants laissent fréquemment la porte ouverte pendant la classe et la récréation au cours de la première semaine et les ferment la seconde semaine sur notre demande, induisant une plus grande variabilité d'une semaine à l'autre pour ces deux écoles.

La comparaison des résultats des campagnes de 2008 et 2009 montre assez peu de différences entre ces deux périodes à un an d'intervalle. Les valeurs moyennes hebdomadaires

obtenues en 2008 (voir chapitre 3), se trouvent, dans la plupart des cas, dans la gamme de variation des concentrations en masse des PM₁₀ prélevées pendant deux semaines en 2009.

Tableau 19 : Comparaison de la concentration en masse des PM₁₀ (µg/m³) dans des écoles avec des études dans la littérature.

Auteurs	Médian	Min-Max	Période	Type d'école et pays
Cette étude	84,1	63,3-100	En présence	Elémentaire,
	20,5	11,7-28,9	En absence	France
Janssen et al. (1997)	124	57,1-234,1	En occupation,	Elémentaire,
	61,1	30,7-108,2	24 h en semaine	Pays-Bas
Roorda-Knape et al. (1998)		50,4-165,6	Hebdomadaire	Elémentaire, Pays-Bas
Keerler et al. (2002)		8,7-33,3	Journalière	Elémentaires, USA Ventilation naturelle
Diapouli et al. (2008)	229*		En occupation	Primaire, Grèce
Fromme et al. (2007)	92 (H)	16-313 (H)	En occupation	Primaire, élémentaire ventilation naturelle
	65 (E)	18-178 (E)		Allemagne.
Fromme et al. (2008)	118	57,8-210	En occupation	Primaire, Allemagne ventilation naturelle
Ekmekcioglu et Keskin (2007)	221,5	132,1-289,6	En occupation	Elémentaire, Turquie

*) moyen ; H et E sont respectivement l'hiver et l'été.

Les données de concentrations en masse de PM₁₀ mesurées dans les écoles sont peu nombreuses dans la littérature. Un résumé de ces travaux est fourni au Tableau 19. Ces résultats variables d'une étude à l'autre, montrent que les concentrations en masse des PM₁₀ prélevées en présence d'enfants sont plus élevées que les valeurs moyennes journalières et hebdomadaires, du fait des activités scolaires. A titre d'exemple, l'étude de Fromme et al. (2008) relève une gamme de concentrations en masse des PM₁₀ en présence des élèves de 57,8 à 209,9 µg/m³ (valeur médiane de 118 µg/m³). De même, Janssen et al. (1997) observe une variation de 57,1 à 234,1 µg/m³ avec une médiane de 124 µg/m³. Cette dernière étude montre également que les valeurs journalières des PM₁₀ dans la semaine, incluant les périodes en présence et en absence d'enfants varient moins remarquablement que durant la période de présence seule : 30,7-108,2 µg/m³ avec une valeur médiane de 61,1 µg/m³.

Ces résultats sont comparables avec les nôtres. Il faut cependant garder à l'esprit que nos mesures ont été effectuées sur deux semaines consécutives uniquement et en séparant les périodes en présence (environ 32 heures de prélèvement) et en absence d'élèves (environ 125 heures de prélèvement). Cette méthodologie présente des avantages importants par rapport

aux études précédentes dans les écoles. Ainsi, elle permet d'estimer la concentration en particules pour la période d'exposition des enfants, un des facteurs cruciaux pour l'exposition des enfants et l'étude des effets sur la santé des particules. En absence d'élèves, cela permet également d'évaluer la contribution des particules extérieures à la concentration en particules intérieures des écoles ainsi que l'efficacité de filtration de particules extérieures par l'enveloppe du bâtiment comme détaillé ci-après.

3.3. Pourcentage en masse des différentes fractions granulométriques de particules

Après avoir étudié l'impact global de l'ensemble des sources de particules sur la concentration moyenne en PM_{10} en présence et en absence des élèves dans les classes, nous avons étudié cet impact sur les différentes fractions granulométriques telles que $PM_{0,5-1}$; PM_{1-2} ; PM_{2-5} et PM_{5-10} μm recueillies à l'aide du compteur optique.

A l'extérieur des écoles

La répartition des différentes fractions granulométriques des particules extérieures est présentée en Figure 47.

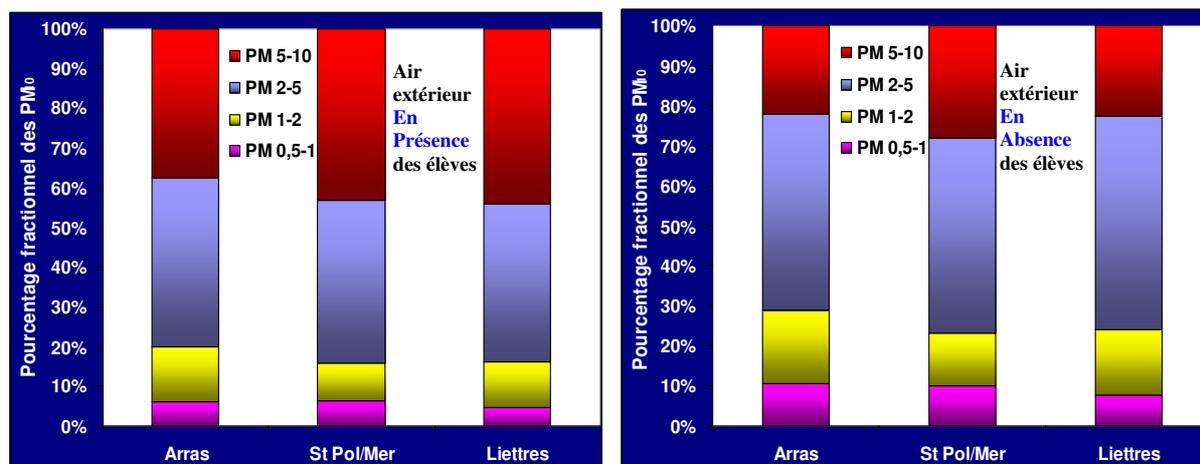


Figure 47 : Pourcentage en masse des différentes fractions granulométriques par rapport aux PM_{10} , à l'extérieur des écoles en présence (gauche) et en absence (droite) des élèves.

A l'extérieur des écoles, les pourcentages des différentes fractions granulométriques en période de classe sont comparables et ne varient que légèrement d'une école à l'autre. Ces variations sont notamment associées aux processus d'émission et à la proximité des sources qui peuvent modifier la distribution en taille des particules (Ehrlich et al., 2007). Notons ici que les activités physiques des enfants dans la cour influencent également la répartition en taille des particules extérieures par une contribution plus ou moins significative en grosses particules. Ce processus est cependant partiellement masqué à l'extérieur des écoles, par un phénomène de dilution dans l'air ambiant.

Pour la période en absence des élèves, la tendance reste similaire, avec une augmentation légère des fines fractions $PM_{0,5-1}$, PM_{1-2} et PM_{2-5} , et une diminution pour la fraction PM_{5-10} (Figure 47).

Les valeurs moyennes hebdomadaires des $PM_{0,5-1}$, PM_{1-2} et PM_{2-5} et PM_{5-10} représentent respectivement environ 9%, 13%, 45% et 33% de la masse totale des PM_{10} . Ces observations sont globalement en accord avec des études menées par Spindler et al. (2004) et Yin et Harrison (2008) bien qu'une certaine variabilité puisse apparaître selon les sites d'étude. Ainsi, les pourcentages des différentes fractions particulières dans les PM_{10} selon l'étude de Yin et Harrison (2008), effectuée en Grande Bretagne, varient de 37 à 50% (PM_1), de 13,4 à 15,1% ($PM_{1-2,5}$) et de 24,6 à 44,9% ($PM_{2,5-10}$). Ces valeurs dans l'étude de Spindler et al. (2004), effectuée en Allemagne, varient respectivement de 41 à 61,4% (PM_1); de 12,9 à 19,8% ($PM_{1-2,5}$) et de 18,8 à 45,2% ($PM_{2,5-10}$).

A l'intérieur des écoles

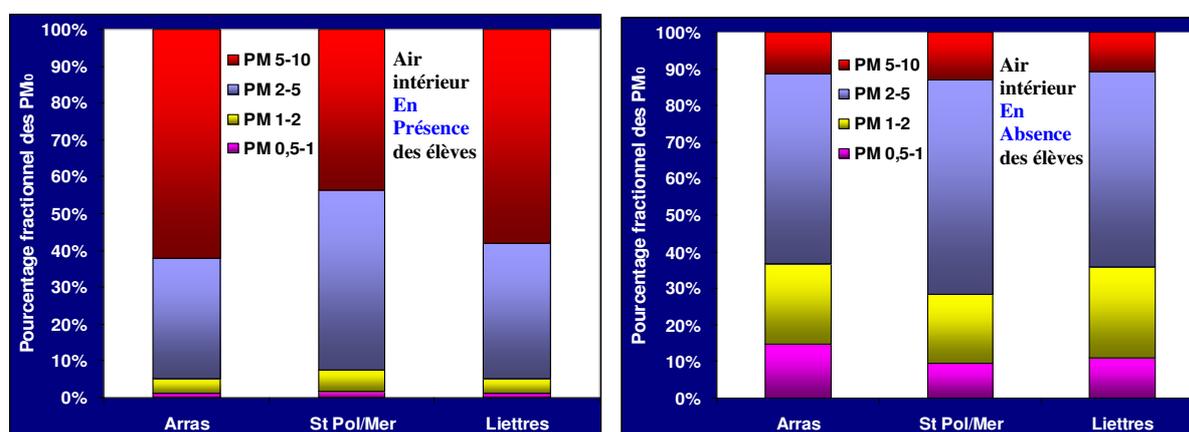


Figure 48 : Pourcentage en masse des différentes fractions granulométriques par rapport aux PM_{10} , à l'intérieur des écoles en présence (gauche) et en absence des élèves (droite) d'élèves.

La Figure 48 met en évidence la contribution des activités des enfants sur les différentes fractions granulométriques. En effet, en présence d'élèves, la fraction grossière PM_{5-10} est significativement plus élevée (62% à Arras; 44% à Saint Pol sur Mer, et 58 % à Liettes) qu'en absence d'élèves (environ 10%). Il semble qu'à Arras où la salle est fréquemment fermée pendant la journée et la perméabilité du bâtiment est plus faible par rapport aux autres écoles (voir chapitre V), la fraction grossière PM_{5-10} reste plus longtemps en suspension dans l'air. En revanche, à Liettes et Saint Pol sur Mer, la fraction grossière PM_{5-10} est clairement inférieure à celle d'Arras en lien avec l'ouverture fréquente de la porte et des fenêtres. Cela favorise la dilution des grosses particules de l'air intérieur présentant des fortes concentrations par l'air extérieur contenant généralement des teneurs beaucoup plus faibles. Les fractions les plus petites $PM_{0,5-1}$ et PM_{1-2} présentent des teneurs très faibles (< 10%) dans les PM_{10} . Cela s'explique par les activités physiques des élèves qui émettent principalement des grosses particules (Kingham et al., 2008; Branis et al., 2005).

En absence des élèves, et sans autres sources importantes, les fines particules deviennent prépondérantes dans l'air intérieur de la classe. Ceci est probablement dû à deux mécanismes principaux: (1) les particules fines restent plus longtemps en suspension dans l'air lors du départ des élèves car leur vitesse de dépôt est faible (Thacher et al., 1995; Zhao et Wu, 2007; He et al., 2005; Lai, 2002), (2) la fermeture de la porte et des fenêtres après la classe empêche principalement la pénétration des grosses particules extérieures mais pas celle des plus fines (Thacher et al., 1995; Liu et Nazaroff, 2001; Thacher et al., 2003).

Ainsi, les plus fines fraction $PM_{0,5-1}$ et PM_{1-2} représentent environ 30 à 37% des PM_{10} dans les classes en absence des élèves. En revanche, la fraction la plus grossière PM_{5-10} représente moins de 10% de ces PM_{10} (Figure 48). On pourra également observer ces phénomènes grâce à la mesure en continu à l'aide du compteur Grimm (cf. paragraphe 3.5).

L'étude de Braniš et al. (2005) menée dans des écoles montre également qu'en présence des élèves, la fraction $PM_{2,5}$ représente $51 \pm 12\%$ de la masse des PM_{10} alors que la fraction PM_1 représente $32 \pm 12\%$. Comme dans notre étude, ces valeurs augmentent fortement en absence d'élèves.

3.4. Rapport intérieur/extérieur en masse des différentes fractions granulométriques de particules.

Ce paragraphe met en évidence les effets intégrant les activités des enfants dans la classe, la concentration en masse des particules à l'extérieur ainsi que de l'étanchéité du bâtiment, sur le rapport intérieur/extérieur des différentes fractions granulométriques particulaires. Les résultats obtenus à l'aide du compteur Grimm sont présentés en Figure 49.

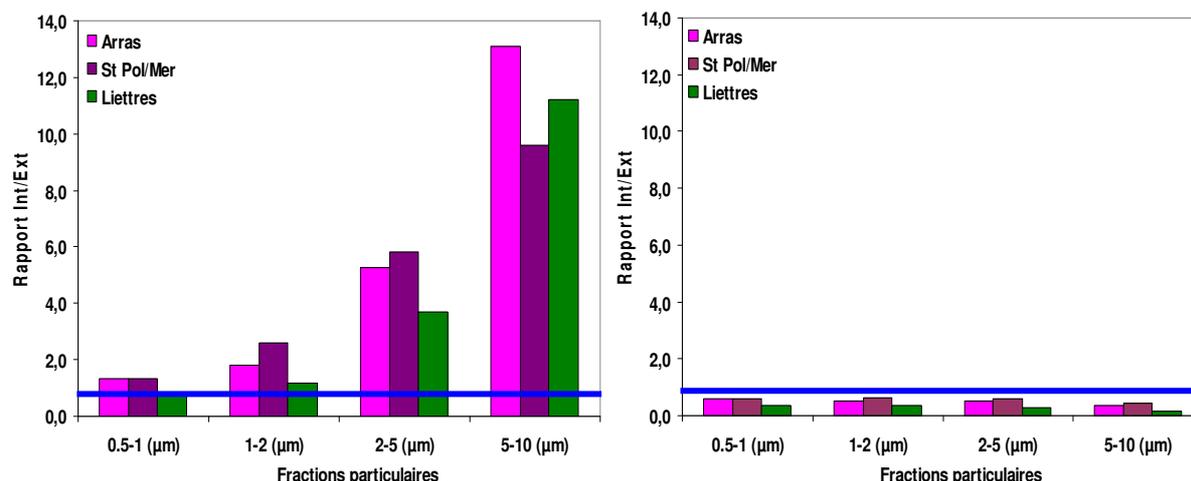


Figure 49 : Rapports Int/Ext en masse des différentes fractions granulométriques (en présence d'élèves à gauche et en absence d'élèves à droite). Le trait horizontal bleu correspond à un rapport égal à 1.

En présence des élèves, le rapport Int/Ext hebdomadaire des grosses fractions particulaires est généralement significativement supérieur à 1. La fraction la plus grossière

PM₅₋₁₀ présente un rapport compris entre 9,61 et 13,11, alors que les plus fines fractions PM_{0,5-1} présentent des valeurs entre 1 et 1,35 (Figure 49), suggérant l'existence de sources intérieures importantes de grosses particules. Ces dernières peuvent être liées aux activités des élèves telles que les déplacements dans la classe qui remettent en suspension des particules déjà déposées sur le sol ou introduites par leurs chaussures et leurs vêtements... (Thatcher et al., 1995; Luoma et Batterman, 2001). L'utilisation de craie pendant les cours peut également induire une source importante de particules inorganiques. Selon une étude de Majumdar et al. (2009) menée dans une école, l'utilisation des craies anti-poussières ou de craies normales génère une large gamme de taille de particules (jusqu'à 100 µm). Les craies anti-poussières produisent une plus grande quantité de particules fines (<2,5 µm) que les craies normales.

Pendant cette période, plus la taille des particules augmente, plus le rapport Int/Ext est élevé. Cela confirme l'impact des activités des élèves principalement au niveau de la fraction grossière des particules en suspension dans l'air intérieur.

Une question importante et complexe se pose ici afin d'évaluer quantitativement la contribution de chaque source à la concentration en PM₁₀ mesurées dans la classe. A notre connaissance, il n'y a pas encore eu d'étude détaillée sur ce sujet qui nécessiterait d'évaluer individuellement chaque source indépendamment des autres. Dans ce travail, nous nous focaliserons sur l'impact global des activités scolaires comprenant notamment les activités de peinture, de manipulation des cahiers, des livres et l'estimation de la contribution du mouvement des élèves sur la concentration en PM₁₀ intérieures (cf. Chapitre V-modélisation).

Au contraire, en absence d'élèves (le soir, la nuit et le week-end), les rapports Int/Ext de différentes fractions particulières sont inférieurs à 1 (Figure 50), lié probablement à l'absence de sources intérieures (ou sources négligeables), à l'efficacité de filtration des PM extérieures par l'enveloppe du bâtiment (Thatcher et al., 1995; Chao et al., 2003; Nazaroff, 2004; Poupard et al., 2005; Lazaridis et al., 2006), et à la contribution des dépôts du fait de ratios surface/volume beaucoup plus importants à l'intérieur qu'à l'extérieur. Il n'y a pas de différence significative entre les ratios Int/Ext des fractions 0,5-1 et 1-2 µm alors que les fractions 2-5 µm et 5-10 µm présentent des valeurs nettement plus basses (Figure 50 droite).

Le rapport Int/Ext à Liettes en absence des élèves, inférieur aux 2 autres écoles peut sembler contradictoire avec les nombreuses fissures observées dans cette école qui devraient donc permettre d'augmenter le taux de pénétration des particules (Figure 50 gauche). En fait, il s'agit probablement d'un artefact lié à la stratégie de prélèvement. En effet, la période de mesure en absence d'élève démarre alors que les teneurs en particules peuvent encore être assez élevées après le départ d'élèves (2 à 3 heures après leur sortie). A Liettes, l'ouverture directe de la porte sur l'extérieur permet une diminution très rapide des teneurs en particules qui limite ce biais. En revanche, les rapports Int/Ext à Arras et Saint Pol sur Mer sont plus élevés car les échanges avec l'extérieur sont plus faibles après la classe (ouverture de la porte des classes sur les couloirs).

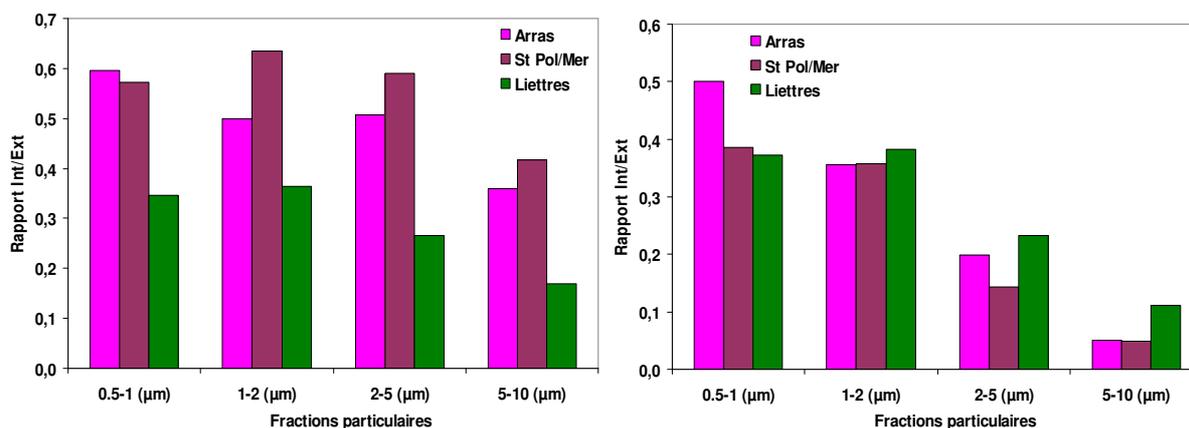


Figure 50 : Zoom sur les rapports Int/Ext en masse des différentes fractions granulométriques en absence des élèves (après fermeture de la porte à gauche et après 23h à droite).

Afin d'éliminer cet artefact, nous avons calculé les rapports Int/Ext des différentes fractions à partir de 23h jusqu'à l'arrivée d'enfants le lendemain (Figure 50 droite). Comme on peut s'y attendre, les rapports Int/Ext après 23h sont plus homogènes entre les écoles pour chacune des fractions. De plus, ces rapports sont de plus en plus faibles lorsque l'on va vers les fractions les plus grossières.

3.5. Variation des concentrations en masse de particules au cours du temps

Nous allons présenter ici les résultats obtenus à l'école de Saint Pol sur Mer pour la mesure en continu à l'aide du compteur Grimm des concentrations en masse des particules intérieures et extérieures (scindés en 2 fractions fines et grosses) pendant 2 semaines consécutives (Figure 51). Certaines données des écoles d'Arras et de Liettes sont manquantes (à Arras la mesure de masse des particules à l'extérieur a démarré trois jours après le début de la mesure à l'intérieur et à Liettes, nous avons perdu une semaine de données à cause d'une panne de l'appareil). Les résultats partiels de ces deux écoles, présentant des tendances similaires, sont cependant présentés en Annexe 16.

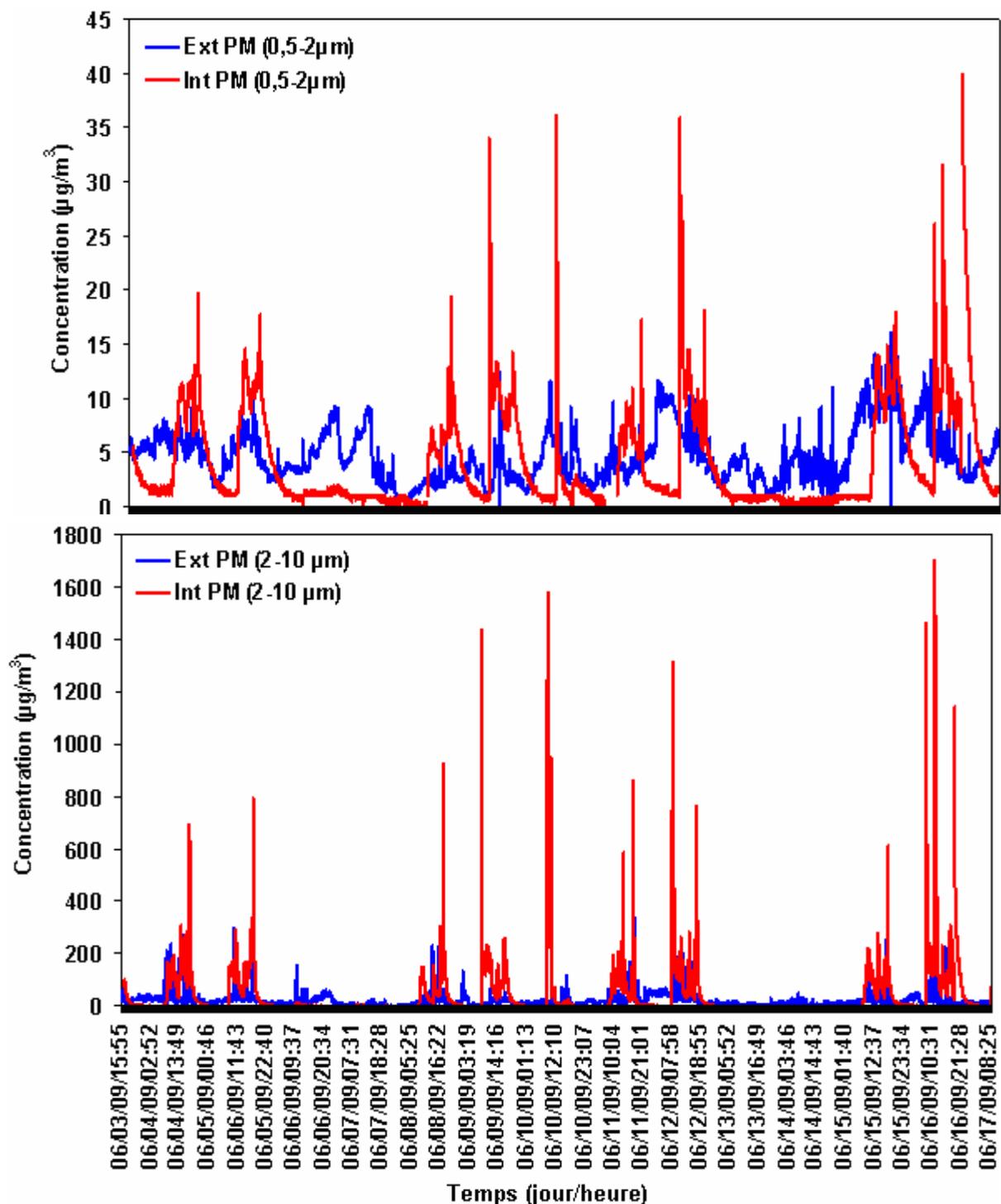


Figure 51 : Variation des concentrations en masse des particules fines (0,5-2 µm) et grosses particules (2-10 µm) pendant 2 semaines à école de Saint Pol sur Mer.

Les courbes de la Figure 51 confirment que la concentration en masse des fines particules (0,5- 2 µm) dans la salle est légèrement supérieure à la valeur mesurée à l’extérieur pendant la classe et nettement inférieure à cette valeur pendant la période en absence des élèves. L’évolution de la concentration des fines particules dans l’air intérieur ne semble pas être corrélée avec celle de l’air extérieur.

On observe également des pics relativement faibles de concentration en masse pour cette fraction lors des activités scolaires puis des petites chutes pendant la pause du déjeuner à

midi et pendant la récréation. Les pics les plus grands et fins sont associés à la rentrée des élèves et à nos propres manipulations en début de classe ou lors des balayages du sol à la fin des cours.

En revanche, les concentrations en grosses particules (2-10 μm) (Figure 51) varient plus fortement en lien avec les activités des élèves (période d'occupation) pour l'air intérieur. Cette fraction augmente fortement et rapidement dès la rentrée des élèves et diminue aussi vite lors de leur départ, que ce soit pendant la récréation (vers 10h30 et 15h) ou pendant le repas de midi, les jours d'école (Figure 51). Cette variation à l'extérieur de l'école est beaucoup moins remarquable et semble être anti corrélé (mouvements autour du compteur de particule placé dans la cour) avec celle à l'intérieur de la classe (Figure 52).

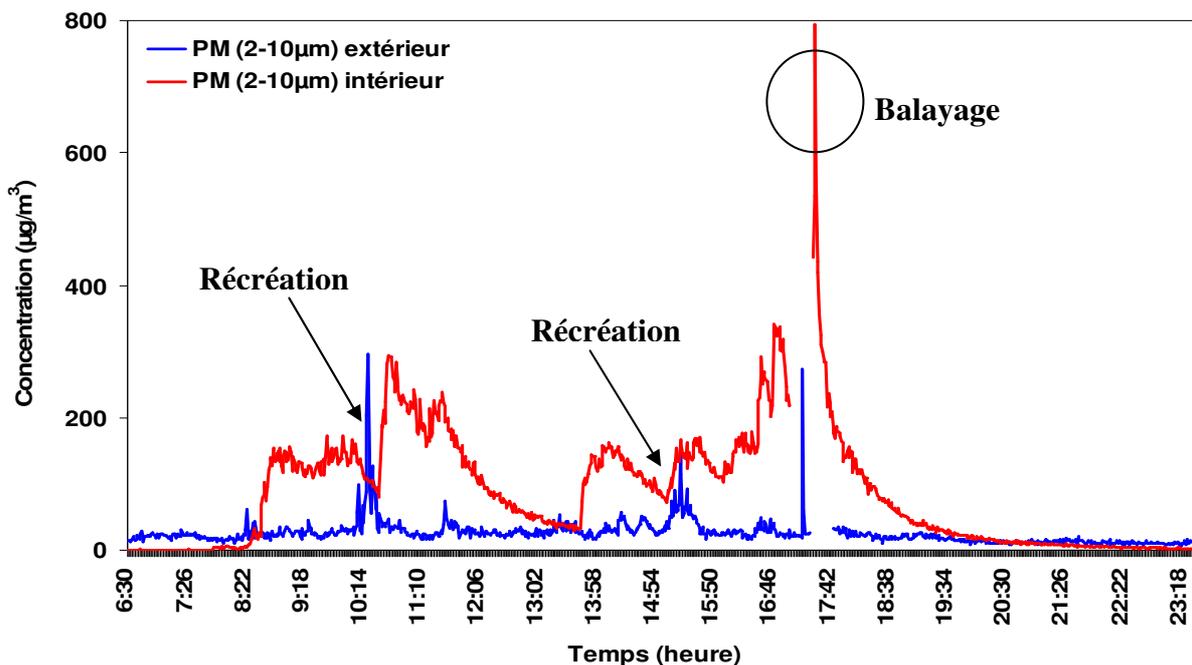


Figure 52 : Zoom sur la variation de concentration en masse des particules (2-10 μm) pendant une journée de classe (08/06/2009) à l'école de Saint Pol sur Mer.

Comme expliqué au paragraphe précédent, ces phénomènes transitoires sont liés (1) aux activités des enfants qui émettent ou remettent en suspension dans l'air principalement des grosses particules et beaucoup moins les particules fines; (2) à la pénétration plus facile des fines particules dans la classe par les fissures ou les fentes que pour les grosses particules; et (3) la plus faible vitesse de dépôt des fines particules par rapport à la fraction grossière (Thatcher et al., 1995; Morawska et Jamriska., 1996; Lai, 2002; He et al., 2005).

L'évolution des rapports Int/Ext des particules au cours du temps montrent des valeurs se situant autour de 1 pour les fines particules (voir Annexe 17). Par contre, pour la fraction grossière, ces valeurs varient de 0 durant la période en absence des élèves à plusieurs dizaines (de 20 à 150) en présence des élèves.

3.6. Concentration en nombre de particules dans l'air intérieur et extérieur

Les concentrations en nombre des particules dans les classes et à l'extérieur ont été mesurées simultanément à l'aide du compteur de particules AeroTrak pour une gamme de diamètre optique allant de 0,3 μm à 10 μm séparés en six canaux. Afin de comparer le comportement en nombre de particules avec celui en masse (fines et grosses fractions) nous présentons ci-après les concentrations en nombre de particules fines (définies comme la fraction allant de 0,3 à 1 μm) et de grosses particules (2-10 μm) en présence et en absence des élèves, et leur variation obtenues à l'école d'Arras. Les résultats des deux autres écoles, qui montrent un comportement en nombre de particules globalement similaire à l'école d'Arras sont fournis en Annexe 18.

Tableau 20 : Description statistique des données en nombre de particules à l'école d'Arras.

Fractions particulaires	Min (particules/m ³)	Max (particules/m ³)	Médiane (particules/m ³)	Moyenne (particules/m ³)	Ecart type (particules/m ³)
PM 0,3-1 (μm) Int_P	17,5.10 ⁶	121.10 ⁶	39,6.10 ⁶	46,7.10 ⁶	24.10 ⁶
PM 2-10 (μm) Int_P	0,2.10 ⁶	2,1.10 ⁶	0,96.10 ⁶	0,96.10 ⁶	0,34.10 ⁶
PM 0,3-1 (μm) Ext_P	5,6.10 ⁶	150.10 ⁶	23,3.10 ⁶	44,9.10 ⁶	42.10 ⁶
PM 2-10 (μm) Ext_P	0,06.10 ⁶	0,89.10 ⁶	0,27.10 ⁶	0,28.10 ⁶	0,12.10 ⁶
PM 0,3-1 (μm) Int_A	18.10 ⁶	113.10 ⁶	40,5.10 ⁶	45,7.10 ⁶	15,6.10 ⁶
PM 2-10 (μm) Int_A	0,12.10 ⁶	1,62.10 ⁶	0,18.10 ⁶	0,23.10 ⁶	0,17.10 ⁶
PM 0,3-1 (μm) Ext_A	5.10 ⁶	369.10 ⁶	24.10 ⁶	36.10 ⁶	30.10 ⁶
PM 2-10 (μm) Ext_A	0,05.10 ⁶	1.10 ⁶	0,17.10 ⁶	0,22.10 ⁶	0,15.10 ⁶

Int-P : Intérieur présence, Int- A : Intérieur absence, Ext- P : Extérieur présence, Ext- A : Extérieur absence

Les concentrations moyennes en nombre des fines (0,3-1 μm) et grosses (2-10 μm) particules sont respectivement égales à 46,7.10⁶ et 0,96.10⁶ particules/m³ en présence des élèves tandis qu'en leur absence, la valeur reste constante (45,7.10⁶ particules/m³) pour les fines et est environ 5 fois plus basse pour les grosses (0,23.10⁶ particules/m³) (Tableau 20). Les concentrations moyennes en nombre de fines particules sont comparables d'une période à l'autre, en air intérieur ou extérieur, contrairement aux grosses particules dans l'air intérieur.

Fromme et al. (2007) ont rapporté une concentration moyenne journalière des particules (0,1- 2,5 μm) dans des écoles maternelles de l'ordre de 6,5.10⁶ particules/m³. Une campagne de mesure dans des écoles à La Rochelle menées sur 2 semaines par Blondeau et al. (2005) a montré que la concentration en nombre pour la fraction 0,3-0,4 μm y était de l'ordre de 59.10⁶ particules/m³. Tippayawong et al (2009) ont mesuré une variation de concentration moyenne sur 12 heures en nombre de particules 0,3-2,5 μm dans une classe, respectivement de 200.10⁶ et 240.10⁶ particules/m³ pour la journée et la nuit en semaine. Bien que les gammes de tailles granulométriques soient variables d'une étude à l'autre, les comptages que

nous avons obtenus ne sont donc pas atypiques, notamment au regard de la grande variabilité attendue selon la proximité et l'intensité des sources.

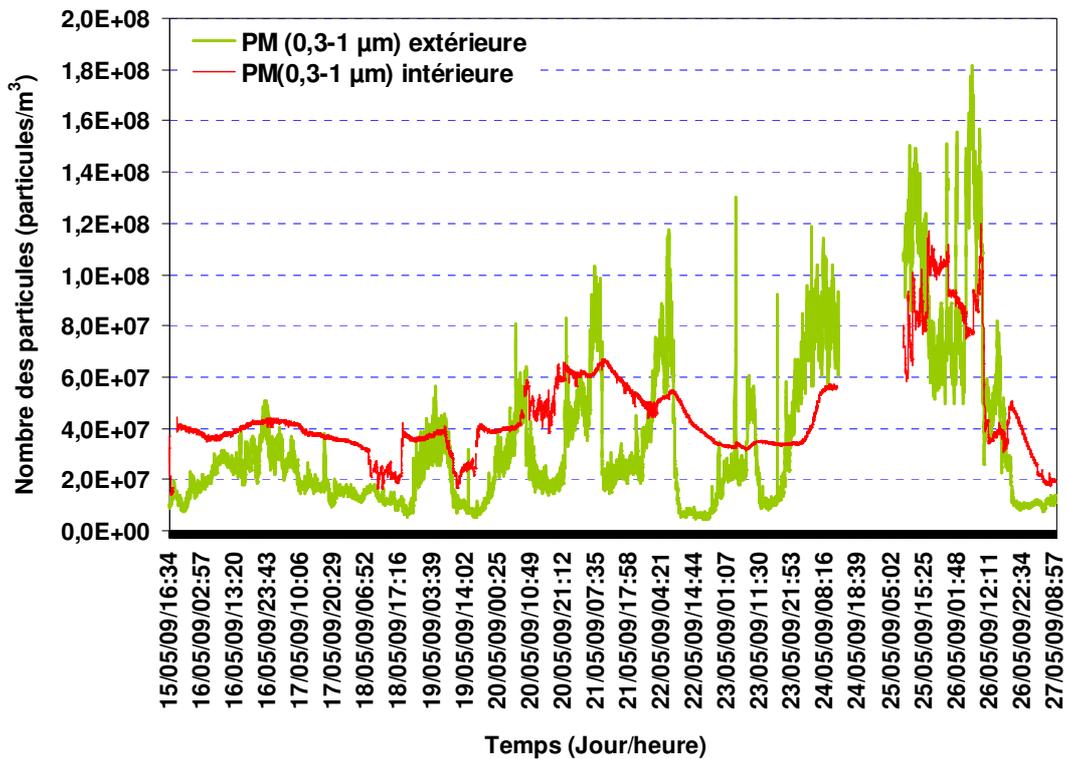


Figure 53 : Variation du nombre de fines particules (0,3-1 µm) pendant deux semaines à l'école d'Arras.

Nous observons une évolution très comparable des concentrations en nombre et en masse pour les grosses et fines particules. Ainsi, la concentration en nombre des fines particules est moins impactée par les activités des enfants dans la classe que celle des grosses particules (Figure 53).

La concentration en nombre de grosses particules est très affectée par les activités des enfants. On constate de forts pics dans la salle pendant les cours. La grande vitesse de dépôt de cette fraction ainsi que leur faible facteur de pénétration induit une diminution rapide du nombre de ces grosses particules dès le départ des élèves (voir point 2.2.2 du chapitre V). La concentration reste ensuite très faible, quasi constante et inférieure aux valeurs à l'extérieur pendant la période où les enfants ne travaillent pas (Figure 54).

Une variation des teneurs de la fraction grossière est également observée à l'extérieur de l'école mais avec une intensité moins forte qu'à l'intérieur. Les principaux pics sont enregistrés pendant les récréations et avant la classe lorsque les élèves jouent dans la cour près des appareils de mesure (Figure 54).

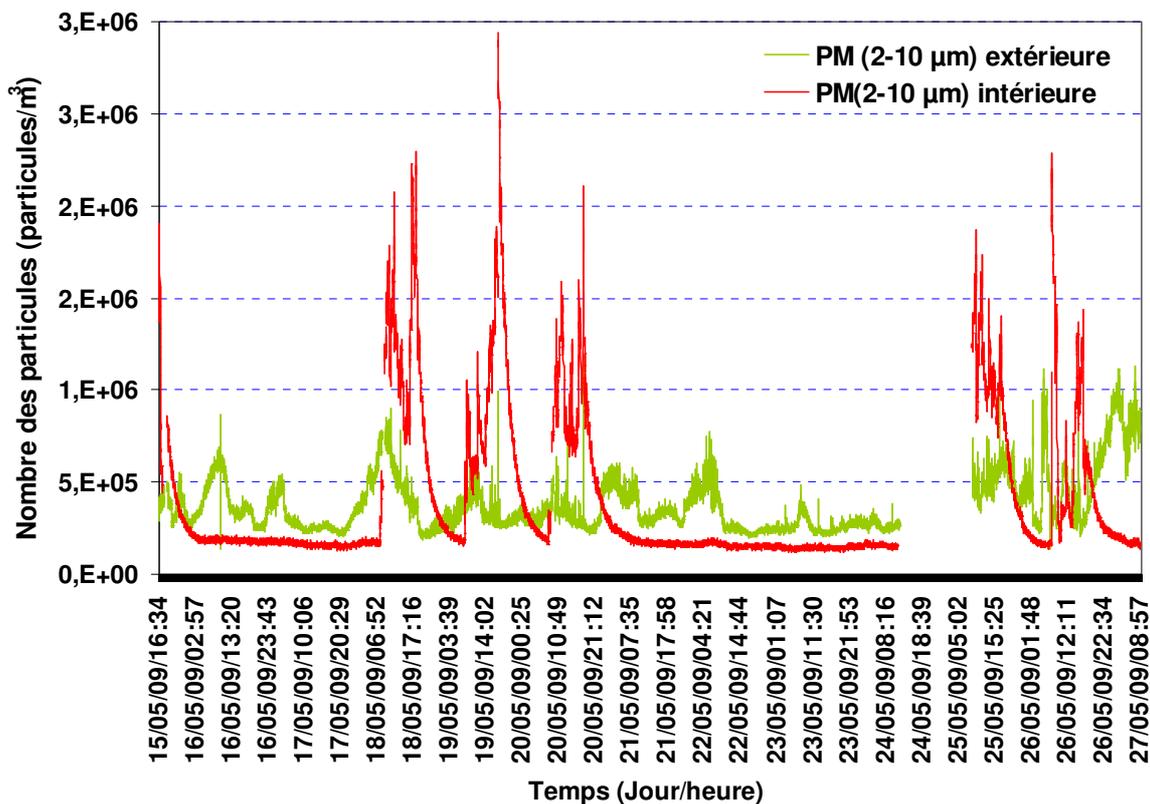


Figure 54 : Variation du nombre de grosses particules (2-10 μm) pendant deux semaines à l'école d'Arras.

4. Concentrations en carbone organique et élémentaire

Le carbone organique (OC) et le carbone élémentaire (EC) se trouvent principalement associés aux particules fines (Funasaka et al., 2000; Sánchez de la Campa et al., 2009). Les concentrations en OC et EC ont été mesurées sur des particules $\text{PM}_{2,5}$ prélevées par Microvol (débit de 3L/mn) en présence et en absence des élèves, dans la classe et à l'extérieur, comme pour les autres prélèvements.

4.1. Concentrations moyennes en carbone organique

Les teneurs en OC sont toujours plus fortes à l'intérieur qu'à l'extérieur et notamment en présence d'élèves, suggérant l'existence de sources d'OC dans les classes liées aux activités scolaires (Figure 55). En effet, puisque dans la classe il n'y a pas de sources classiques de matière organique telles que la fumée de cigarette, la combustion de fuel, etc... (Informations confirmées par des questionnaires remplis lors de chaque campagne en Annexe 15), les valeurs d'OC supérieures à l'intérieur s'expliquent principalement par les activités des élèves (Na et al., 2005; Martuzevicius et al., 2008).

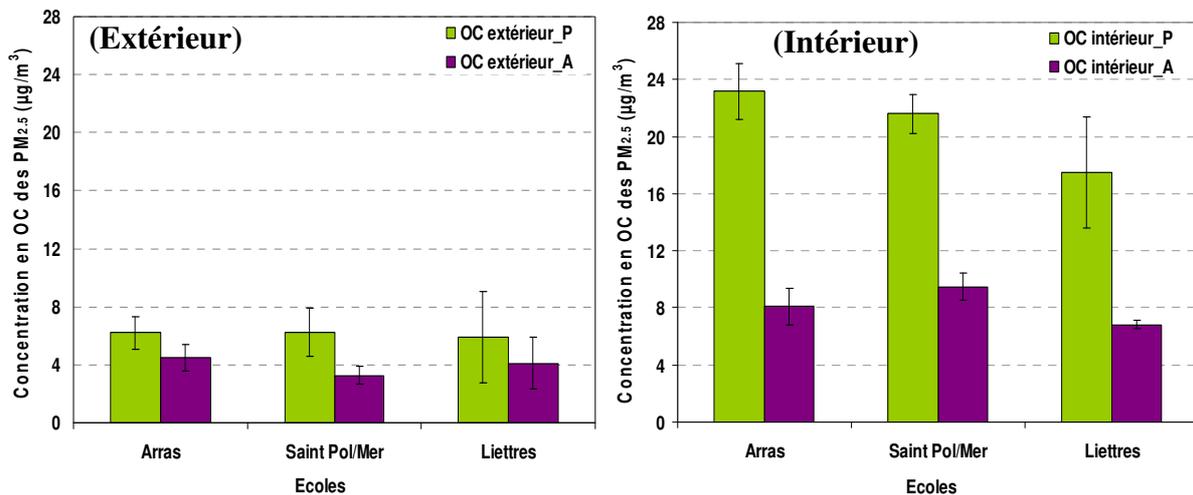


Figure 55 : Concentrations moyennes hebdomadaires en OC dans les PM_{2.5} des 3 écoles. P et A respectivement en présence et absence des élèves. Les barres représentent l'écart sur 2 mesures consécutives.

Toutefois, en absence d'élèves, les valeurs d'OC dans les classes légèrement supérieures à celles à l'extérieur suggèrent des sources de carbone organique qui ne sont pas liées directement à la présence des enfants. Cela peut être expliqué par l'existence de nombreuses émissions de composés organiques volatils (COV) issues d'autres sources intérieures telles que les peintures, les matériaux de construction et d'isolation (mastics, laines en fibres minérales artificielles,...), les produits de préservation du bois (charpentes, etc.), d'aménagements intérieurs (revêtements de sols, murs et plafonds et mobilier) (Yu et Crump., 1998; Wolkoff et al., 2006) et les solvants, produits de nettoyage employés en fin de journée (chaque jour à Saint Pol sur Mer, tous les deux jours à Arras et Liettes). Ces COV peuvent se condenser ou s'adsorber sur les fines particules (Venkataraman et al., 1994; Lunden et al., 2008; Zhu et al., 2009) qui restent encore en suspension après le départ des enfants et le personnel d'entretien.

L'hypothèse de sources internes est soutenue par la forte concentration en OC dans la classe d'Arras où la porte et les fenêtres sont fréquemment fermées pendant les cours par rapport à Liettes où la porte et les fenêtres sont plus souvent ouvertes avec une perméabilité du bâtiment, plus élevée que pour les autres écoles.

Nos résultats sont comparables à ceux de l'étude menée par Na et al. (2005) dans des écoles aux Etats-Unis indiquant une variation en OC comprise entre 4,4 et 18,7 µg/m³ et sont très proches des valeurs obtenues dans des écoles en Allemagne par Fromme et al. (2008) (teneurs en OC comprises entre 11,7 et 36,3 µg/m³). Enfin, Ho et al. (2004) obtiennent des valeurs de l'ordre de 15 à 35 µg/m³ dans des bâtiments à Hongkong, connu comme un site très pollué par l'urbanisation et le trafic automobile.

A contrario, à l'extérieur de ces 3 écoles, la teneur en OC présente une relative stabilité d'une période à l'autre (3 à 6 µg/m³) et d'une école à l'autre (Figure 55 à droite). On remarque par ailleurs que la teneur en OC à l'extérieur des écoles est plus élevée durant la

période de classe. Cela peut être dû à des sources d'émission de composés organiques plus importantes en journée, naturelles (biogéniques) ou en lien avec des activités humaines, en particulier le trafic automobile (Jeong et al., 2004; Zhang et al., 2009).

Ces résultats sont nettement inférieurs à ceux observés à Shanghai, la plus grande ville industrielle et commerciale de Chine lors de l'étude de Feng et al. (2009), avec des teneurs en OC dans les PM_{2,5} allant de 14,7 à 17,4 µg/m³. Nos résultats sont par contre comparables avec ceux obtenus par Sánchez de la Campa et al. (2009) en Espagne, qui a relevé des teneurs de fond en OC en sites urbains et ruraux respectivement de 3,5 et 2,8 µg/m³.

4.2. Concentrations moyennes en carbone élémentaire

Concernant le carbone élémentaire (EC), une valeur très forte a été observée dans l'école d'Arras en absence des élèves. Une source intérieure de EC, telle qu'une source de combustion (de carburant et/ou de bois, de fumée de cigarettes) (Butte et Heinzow, 2002) ou une retombée de cartouche d'encre d'imprimante...etc (Wolkoff et al., 1993; He et al., 2007) pourrait en être à l'origine. Nous avons donc vérifié la variation des teneurs en CO, et en "Black Carbon" dans la pièce ainsi que la concentration en masse et en nombre des différentes fractions particulaires mais aucune de ces mesures ne confirme la présence de sources d'EC dans la classe. Nous pensons donc à une contamination du préleveur (le filtre, le support du filtre ou la tête de prélèvement). Les très bons résultats d'analyse des filtres blancs de terrain et de laboratoire (Annexe 8) nous permettent d'éliminer à priori l'hypothèse d'une contamination systématique par le filtre. Le support et la tête des préleveurs sont donc considérés à priori comme les probables sources de contamination en EC pour cette école.

En présence des élèves, l'école d'Arras présente également une teneur en EC plus élevée que dans les autres écoles (Figure 56). Les résultats de cette école seront donc analysés attentivement au niveau des analyses en "Black Carbon", en certains composés organiques aromatiques absorbant dans l'UV (370 nm) et en monoxyde de carbone (CO).

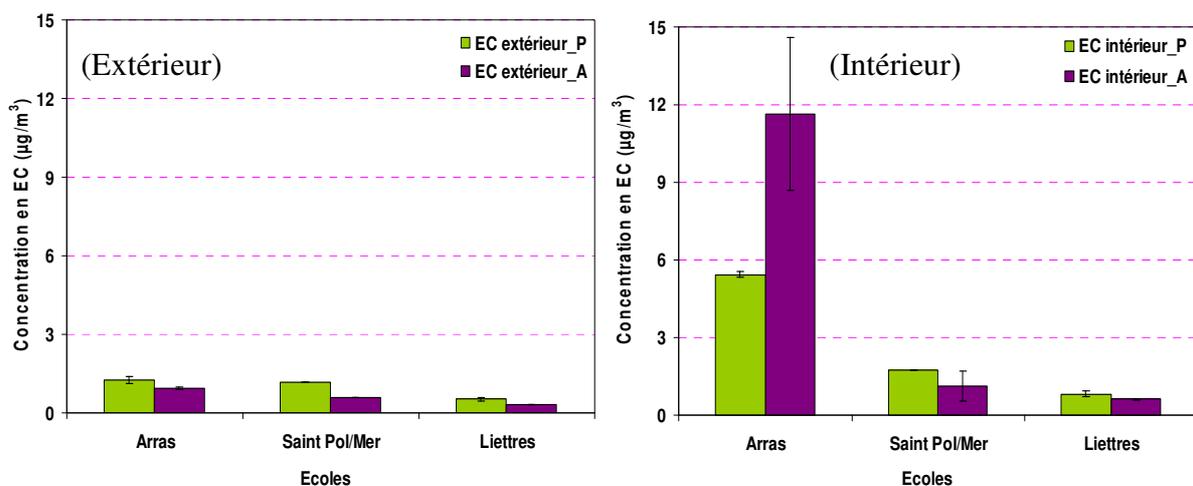


Figure 56 : Concentrations moyennes hebdomadaires en EC dans les PM_{2,5} de 3 écoles. Les barres d'erreurs représentent l'écart de 2 mesures consécutives.

On a pu observer un effet de typologie géographique de la teneur en EC, avec des valeurs plus fortes à l'école de Saint Pol sur Mer (Site urbain industriel) qu'à l'école de Liettes (Site rural) (Figure 56). Dans tous les cas, la présence des enfants induit des teneurs en EC légèrement plus élevées que celles en leur absence. L'absence de sources classiques de EC dans les classes (combustion) nous permet d'expliquer ce phénomène par la masse plus importante de PM_{2,5} prélevées durant les cours. Les PM_{2,5} remis en suspension dans la classe contiennent probablement de l'EC accumulé précédemment sur le sol.

Si l'on ne tient pas compte du cas de l'école d'Arras (contamination possible du prélèvement dans l'air intérieur), ces résultats en EC dans les classes des écoles sont en accord avec la littérature. A titre d'exemple, Na et al. (2005) ont rapporté pour des mesures dans un collège équipé d'un système de ventilation et de climatisation, une variation de l'EC de 0,9 à 1,4 µg/m³. Cependant, Fromme et al. (2008) ont aussi mesuré des concentrations en EC dans les classes comprises entre 6,4 et 13,6 µg/m³.

A l'extérieur des écoles, on observe un accord entre la typologie géographique et la teneur en EC : les valeurs en EC sont plus élevées aux écoles de Saint Pol sur Mer et d'Arras qu'à Liettes. Les teneurs en EC de ces écoles sont proches ou inférieures à 1 µg/m³. Martuzevicius et al. (2008) ont rapporté, à l'extérieur de 6 maisons, des valeurs en EC variant de 0,5 à 1 µg/m³ lors d'une campagne de mesure aux Etats-Unis. Ho et al. (2004) ont souligné une influence du transport sur la teneur en EC pour des échantillons prélevés à proximité de la route lors d'une étude menée à Hongkong (variant de 1,1 à 12,4 µg/m³).

4.3. Rapport Int/Ext en carbone élémentaire

Le Tableau 21 présente les résultats sur le rapport Int/Ext en EC obtenus lors de la campagne 2009 en comparaison avec des études dans la littérature. Pour Saint Pol sur Mer et Liettes, les rapports obtenus sont proches de valeurs publiées (de 0,3 à 2,2 selon Martuzevicius et al. (2008) sur les PM_{2,5} et 0,7 pour Fromme et al. (2008) sur les PM₁₀). Rappelons ici que les incertitudes de mesure des concentrations en EC sont de 0,3 à 0,4 µg/m³ pour des teneurs de 0,5 à 1 µg/m³ ce qui peut avoir un impact sur les rapports Int/Ext en EC.

Les rapports Int/Ext en EC sont toujours supérieurs à 1 et légèrement plus élevés en présence des élèves (Tableau 21). Ce résultat est lié à plusieurs phénomènes indépendants :

En présence d'élèves (en journée), la source extérieure d'EC est importante mais la remise en suspension des particules par l'activité scolaire dans la classe vient s'ajouter aux particules extérieures contenant de l'EC, induisant un rapport supérieur à 1 (environ 1,5).

En absence d'élèves (la nuit et le weekend), la source quasi unique de EC provenant de l'extérieur principalement en journée induit en principe un rapport inférieur à 1 qui est biaisé dans notre cas (rapport de 1,9 environ) par l'impact résiduel de l'activité des enfants en fin de journée et par la faible vitesse de sédimentation des particules fines contenant l'EC.

Tableau 21 : Comparaison du rapport Int/Ext en EC dans les PM_{2,5} de Saint Pol sur Mer et Liettes avec des études dans la littérature.

Auteurs	Lieu	Date	Taille de particules	Rapport I/E en EC
Cette étude	St Pol/Mer	03-17/06/2009	PM _{2,5}	1,50±0,29 (8h_P) 1,89±1,33 (8h_A)
	Liettes	17/06-01/07/2009	PM _{2,5}	1,53±0,01 (8h_P) 1,93±0,06 (8h_A)
Ho et al. (2004)	Université	2002-2003	PM _{2,5}	0,5±0,1 (24 h)
Na et al. (2005)	Résidence	2001-2002	PM _{2,5}	0,8 (24h)
Li et al. (2003)	Résidence	2003	PM _{2,5}	1,05 (24h)
Martuzevicius et al. (2008)	Maison	2004	PM _{2,5}	0,3-2,2 (24h)
Fromme et al. (2008)	Ecole élémentaire	2005	PM ₁₀	0,7 (8h_P)

P, A sont respectivement pendant la période en présence et absence des élèves

5. Concentration en “Black Carbon” (BC) et en composés organiques aromatiques absorbant dans l’UV à 370 nm

Rappelons ici que le BC et les composés organiques aromatiques mesurés dans la zone UV, à la longueur d’onde 370 nm, définis ici par UVPM dans les PM_{2,5} sont mesurés uniquement dans l’air intérieur des trois écoles en mode continu à l’aide d’un Aethalomètre. Les résultats de l’évolution du BC et UVPM sont rapportés en Figure 57.

De manière générale, les variations de concentration en BC et UVPM ne sont pas significatives d’une journée à l’autre. D’autre part, les pics de BC sont toujours inférieurs à 4,5 µg/m³, suggérant qu’il n’y a pas de sources importantes de BC dans la classe et que des concentrations extrêmes en EC (environ 12 µg/m³) obtenus durant la période en absence d’élèves à Arras (Cf.4.2) sont liées à la contamination d’échantillons. La variation de concentration en BC est bien corrélée avec celle des UVPM : le coefficient de corrélation (R²) entre ces deux paramètres pour l’ensemble des données pendant deux semaines consécutives à un pas de mesure de 5 minutes est de 0,83. La concentration en BC varie de 1000 ng/m³ à environ 4000 ng/m³ alors que les UVPM varient de 500 ng/m³ à 3500 ng/m³ (Figure 57).

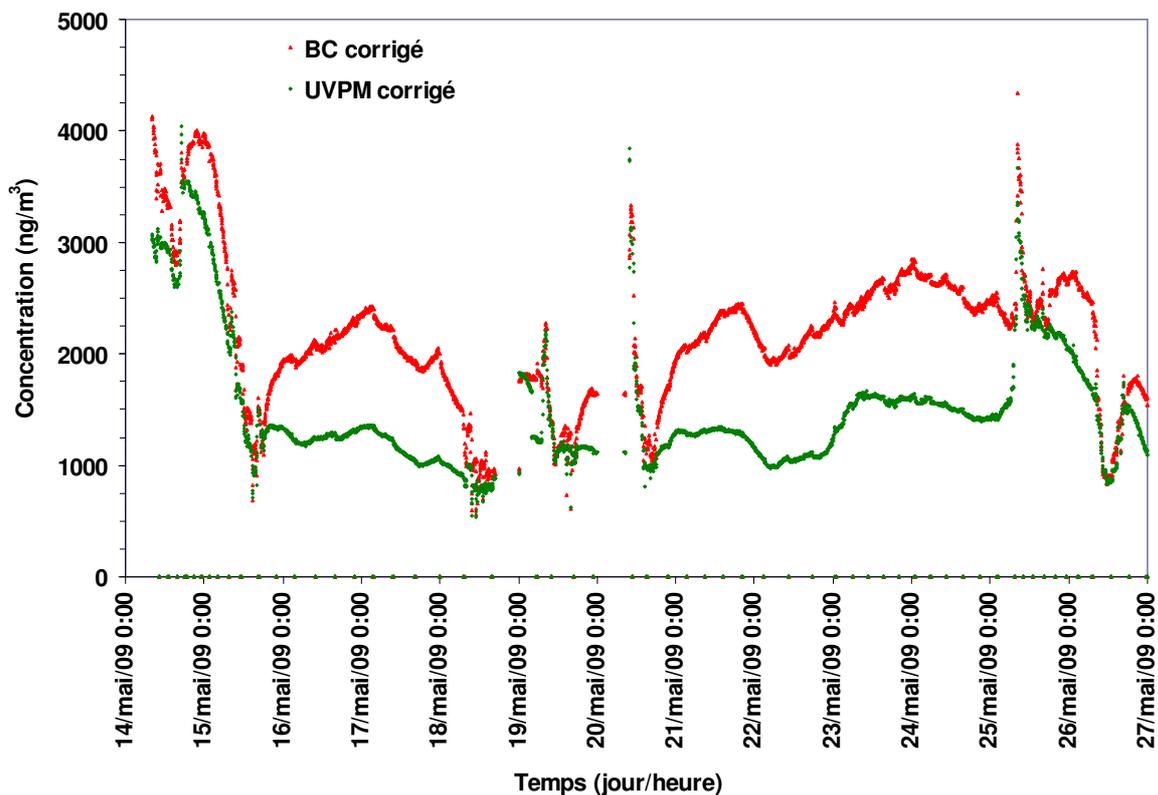


Figure 57 : Variation des teneurs en BC et UVPM au cours de 2 semaines consécutives à l'école d'Arras.

Nous avons ensuite comparé l'impact des activités dans la classe sur la variation de concentration en UVPM et l'évolution de la masse des fines particules de taille similaire (0,5-2,0 μm) obtenue à l'aide du compteur Grimm pendant une journée d'école. Les résultats obtenus sont présentés en Figure 58.

L'évolution en UVPM semble moins marquée et influencée par la présence des élèves et leurs activités que la masse des particules de même taille (Figure 58). Cela peut être lié d'une part, aux sources permanentes de composés organiques aromatiques (absorbant dans l'UV à 370 nm) pendant la journée telles que des solvants de peintures, produits d'entretien, certains adhésifs (Butte et Heinzow, 2002) ainsi que des sources de particules émises par les imprimantes et/ou photocopieurs (utilisés dans les classes des écoles d'Arras et Liétres) (Lee et Hsu, 2007; Ren et al., 2006). Bien que la majorité de ces composés se trouvent en principe en phase gazeuse, ils peuvent s'adsorber sur les fractions les plus fines des particules qui possèdent une grande surface spécifique (Venkataraman et al., 1994; Zhu et al., 2009). Ces fractions fines, incluses dans les $\text{PM}_{2,5}$, peuvent rester en suspension plus longtemps que la fraction plus grossière des $\text{PM}_{2,5}$, expliquant peut-être la non-corrélation observée sur la Figure 58.

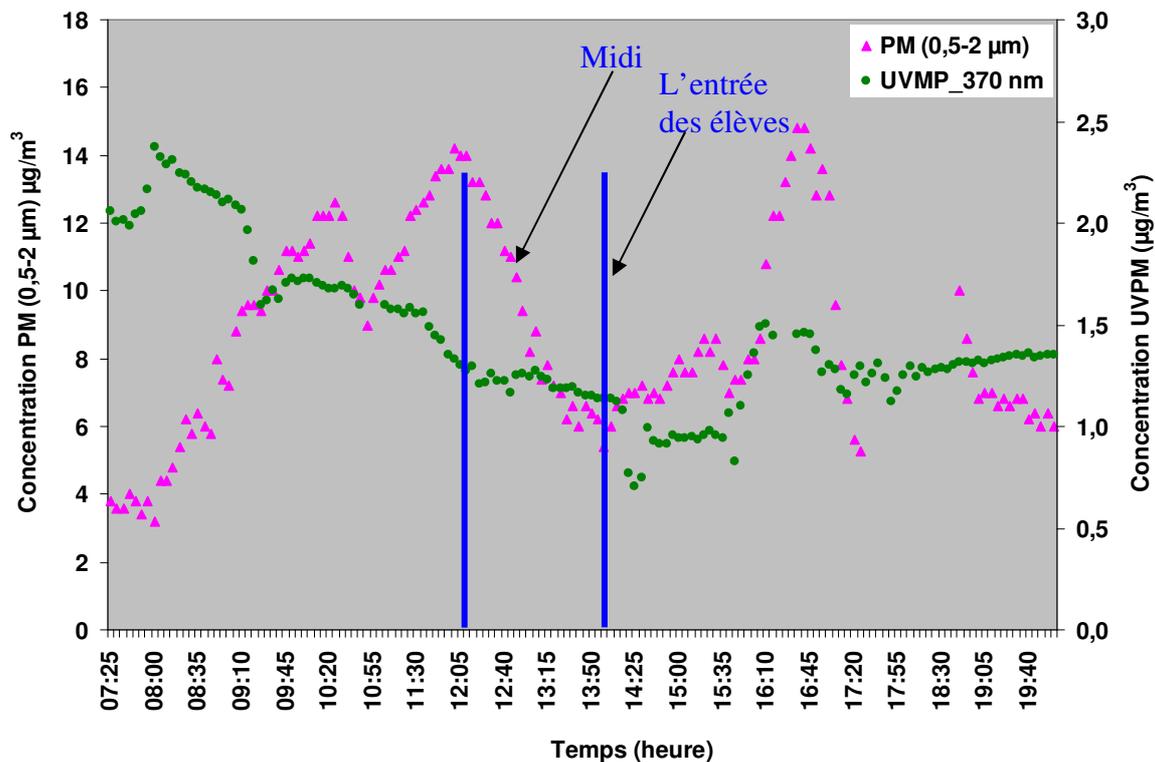


Figure 58 : Variation de concentrations en masse des $PM_{0,5-2}$ et en UVPM dans les $PM_{2,5}$ au cours d'une journée de classe 15/05/2009 à l'école d'Arras.

Rappelons ici que la concentration en EC mesurée par la méthode thermo-optique est de manière générale proche de celle mesurée par la méthode par transmission optique ($EC=1,21.BC$) avec une corrélation (R^2) de 0,76.

6. Composition en métaux de l'air extérieur et intérieur des écoles

6.1. Concentrations moyennes en métaux de l'air à l'extérieur des écoles

La Figure 59 permet de comparer les concentrations moyennes hebdomadaires en métaux dans les PM_{10} prélevées à l'extérieur des 3 écoles. L'école de Saint Pol sur Mer (site urbano-industriel), présente des teneurs en métaux plus élevées que les deux autres écoles. En effet, la zone de Dunkerque est sous l'influence de plusieurs sources d'émission de métaux (Lamaison, 2006) telles que la pétrochimie (La, Ni, V), la sidérurgie (Cd, Pb, Fe), l'usine de ferromanganèse (Mn, Cd, Pb), le transport routier (Cu, Sb, Ba, Zn) alors que sa proximité avec le littoral la soumet également aux embruns marins (Na, Mg). On remarque notamment des teneurs nettement plus abondantes en éléments traces tels que Ag, As, Cd, La, Ni, Pb, Se, V à Saint Pol sur Mer. Cela confirme l'impact des sources industrielles sur la teneur en métaux à l'extérieur de cette école.

L'influence du trafic routier sur les PM_{10} a été également observée. Ainsi, les éléments généralement associés (Sternbeck et al., 2002 ; Querol et al., 2007) à cette source (Cu, Sb, Mo, Ba) présentent des teneurs significativement plus élevées sur les sites des écoles d'Arras (site urbain) et de Saint Pol sur Mer comparées à l'école de Liettes qui se trouve en milieu rural (Figure 59). La teneur moyenne en Cu à Saint Pol sur Mer est relativement plus faible

qu'à Arras suggérant que les sources industrielles de Cu à Saint Pol sur Mer ne sont pas significatives et que la circulation dense des voitures à Arras pourrait contribuer aux fortes teneurs en Cu à l'extérieur de cette école.

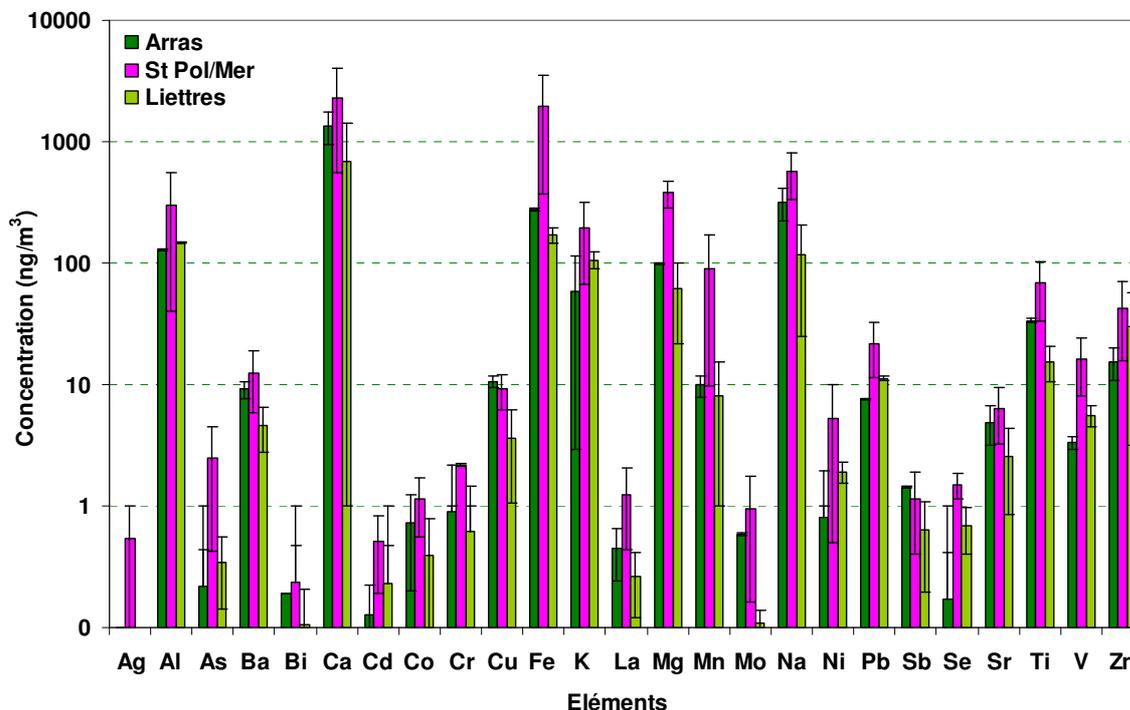


Figure 59 : Concentrations moyennes hebdomadaires (échelle log.) en métaux de l'air extérieur des écoles. Les barres présentent l'écart entre 2 mesures consécutives.

Les teneurs en différents éléments analysés dans ces PM_{10} varient de quelques ng/m^3 (éléments traces) à des centaines de ng/m^3 (éléments majeurs tels que le Ti, Al, Mg), notamment le Ca qui présente la teneur la plus forte (des milliers de ng/m^3). Par exemple, les concentrations moyennes hebdomadaires en Fe sont respectivement de 279, 1951 et 171 ng/m^3 à l'extérieur des écoles d'Arras, de Saint Pol sur Mer et de Liottes. Ces teneurs en Fe particulièrement élevées à l'école de Saint Pol sur Mer confirment la présence de sources d'émissions sidérurgiques dans la zone.

Une analyse approfondie sera réalisée au paragraphe 7.1 ci-après afin d'identifier les sources des métaux dans l'air ambiant extérieur ainsi que dans les classes.

Nous avons comparé nos résultats obtenus sur le site de Saint Pol sur Mer avec deux études précédentes effectuées par Ledoux (2003) sur des particules totales en suspension (TSP) pour un site de prélèvement à proximité du centre ville de Dunkerque et par Lamaison (2006) sur des PM_{10} pour un site de prélèvement à Grande Synthe, à environ 1,5 km de St Pol sur Mer. Les teneurs en 13 métaux de l'air extérieur sont reportées en Figure 60.

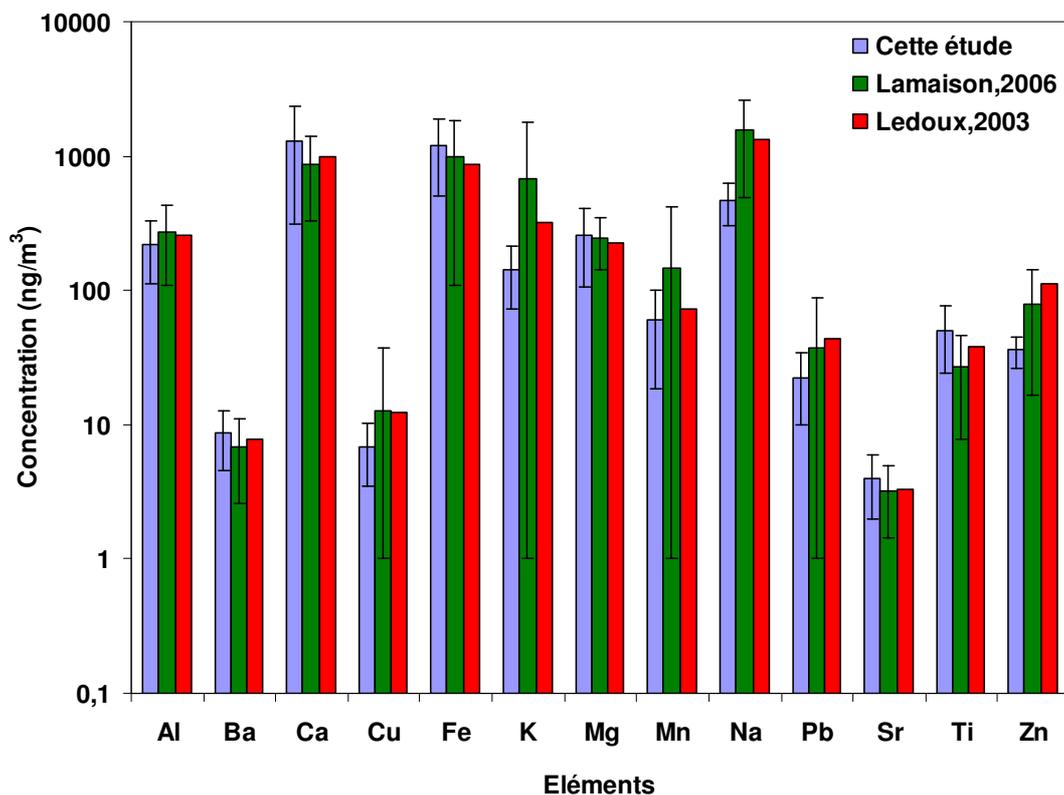


Figure 60 : Comparaison des concentrations élémentaires en ng/m³ dans l'agglomération Dunkerquoise obtenues lors de notre étude avec celles de Lamaison (2006) et Ledoux (2003).

Notons que notre étude a été effectuée pendant une courte période (2 semaines consécutives), les travaux de Ledoux ont eu lieu durant les périodes de juin-juillet 2000 et de janvier-février 2001 alors que les prélèvements de Lamaison ont été effectués entre juin 2003 et février 2005.

On observe des concentrations du même ordre de grandeur (Figure 60) entre ces trois études pourtant effectuées sur des sites géographiquement différents de l'agglomération dunkerquoise. De plus, les concentrations en éléments étudiés ne semblent pas avoir significativement évolués entre 2000, 2005 et 2009. Une étude menée à Dunkerque par Atmo NPdC a également montré une relative stabilité de l'évolution en quatre éléments As, Cd, Ni et Pb pendant la période de 2002 à 2008 (Atmo NPdC, 2009). Enfin, on n'observe pas de différences notables entre les prélèvements TSP et PM₁₀ pour la teneur en ces 13 éléments.

Lamaison (2006) a effectuée pendant deux mois des mesures dans les PM₁₀ (24 échantillons) à proximité d'une voie de circulation routière, dans la ville de Douai (25 Km de Arras) pour la période septembre-octobre 2004. Nos résultats à Arras se situent dans la gamme de variation de celles obtenues à Douai. A titre d'exemple, les teneurs en Al, Cd, Co, Na et V à Arras sont respectivement de 127,7 ; 0,14 ; 0,72 ; 319 et 3,3 ng/m³ à comparer aux valeurs obtenues dans l'étude de Lamaison à Douai de 541±323 ; 0,40±0,75 ; 0,62±0,64 ; 517±383 et 3,9±1,8 ng/m³.

Les résultats obtenus à Liettes peuvent être comparés (Tableau 22) avec les mesures effectuées dans l'étude de Ledoux et al. (2006) en été 2000, au village Les Moères, un site rural proche du littoral à environ 15 Km de Dunkerque. Pour la plus part des éléments, nous

obtenons des valeurs légèrement (Al, Cu, K, Pb), ou nettement (Mg, Na) inférieurs à celles obtenues par Ledoux. Ceci est logique puisque Les Moères est beaucoup plus proche de Dunkerque et de la mer que Liettes (environ 70 Km). Le site de Ledoux n'est donc sans doute pas totalement hors de l'influence des émissions de polluants de la zone Dunkerquoise.

On peut donc confirmer que notre campagne de mesure à St Pol sur Mer est représentative, d'un point de vue élémentaire, de la qualité de l'air de cette zone urbano-industrielle. La qualité de l'air à Arras peut être considérée comme possédant un profil caractéristique urbain tandis que celle à Liettes est représentative d'un site purement rural de la région Nord Pas de Calais.

Tableau 22 : Comparaison des concentrations élémentaires (en ng/m³) à Liettes et Les Moères.

Eléments	Concentration élémentaire (ng/m ³) dans les PM ₁₀	
	Cette étude (Liettes)	Etude de Ledoux (2006) (Les Moères)
Al	121±36	187±242
Ba	4,1±0,8	3,3±3,4
Ca	646±62	542±569
Cu	3,1±0,7	4,0±3,4
Fe	158±17	434,5±562,5
K	109±5	216,3±127,6
Mg	69,7±12,3	175,8±90,7
Mn	6,4±2,5	37,6±57,7
Na	165,8±70,0	845±689
Pb	8,7±3,5	17,5±20,9
Sr	2,1±0,7	1,8±1,2
Ti	19,3±5,4	15,9±19,9
Zn	20,4±14,2	48,6±57,9

6.2. Concentrations moyennes en métaux dans l'air intérieur des écoles

6.2.1. Comparaison avec la littérature

Une tendance similaire aux concentrations en métaux à l'extérieur est observée à l'intérieur des classes des trois écoles. Ainsi, dans la classe de Saint Pol sur Mer, presque tous les éléments ont des concentrations plus élevées que celles des deux autres écoles, en présence (Figure 61) ou en absence d'élèves (Annexe 19).

De manière générale, les teneurs en élément (ng/m³) les plus élevées dans l'air intérieur des classes d'Arras, de Saint Pol sur Mer et de Liettes sont respectivement celles du Ca (3614 ; 6288 ; 4884), Fe (326 ; 1129 ; 397), Al (1343 ; 683 ; 436), K (293 ; 390 ; 412) et Na (178 ; 319 ; 140). A notre connaissance, il y a très peu d'étude dans la littérature sur les métaux dans l'air intérieur, notamment dans les écoles. Une étude menée par Wang et al. (2006) sur la composition des PM₁₀ dans 4 hôpitaux à Guangzhou, en Chine a rapporté des teneurs en éléments majeurs Al, Ca, K et Na respectivement de 1690, 1656, 1735 et 1080 ng/m³ et en éléments traces As, Cd, Cu ; Mn, Se et V respectivement de 48, 91, 68, 52, 22 et 66 ng/m³. Ces valeurs sont plus élevées que dans notre étude, notamment pour les éléments

traces. Cela peut être lié aux concentrations en PM_{10} plus importantes lors de cette étude dans les hôpitaux chinois (environ 150 contre $80 \mu\text{g}/\text{m}^3$) en lien avec les fortes émissions urbaines et le trafic très dense et proche des sites d'étude de Wang et al. (2006). Les limites de détection de la méthode XRF utilisée (Niu et al., 2010) plus élevées que celles de la méthode ICP-MS que nous avons mise en œuvre peuvent également être évoquées.

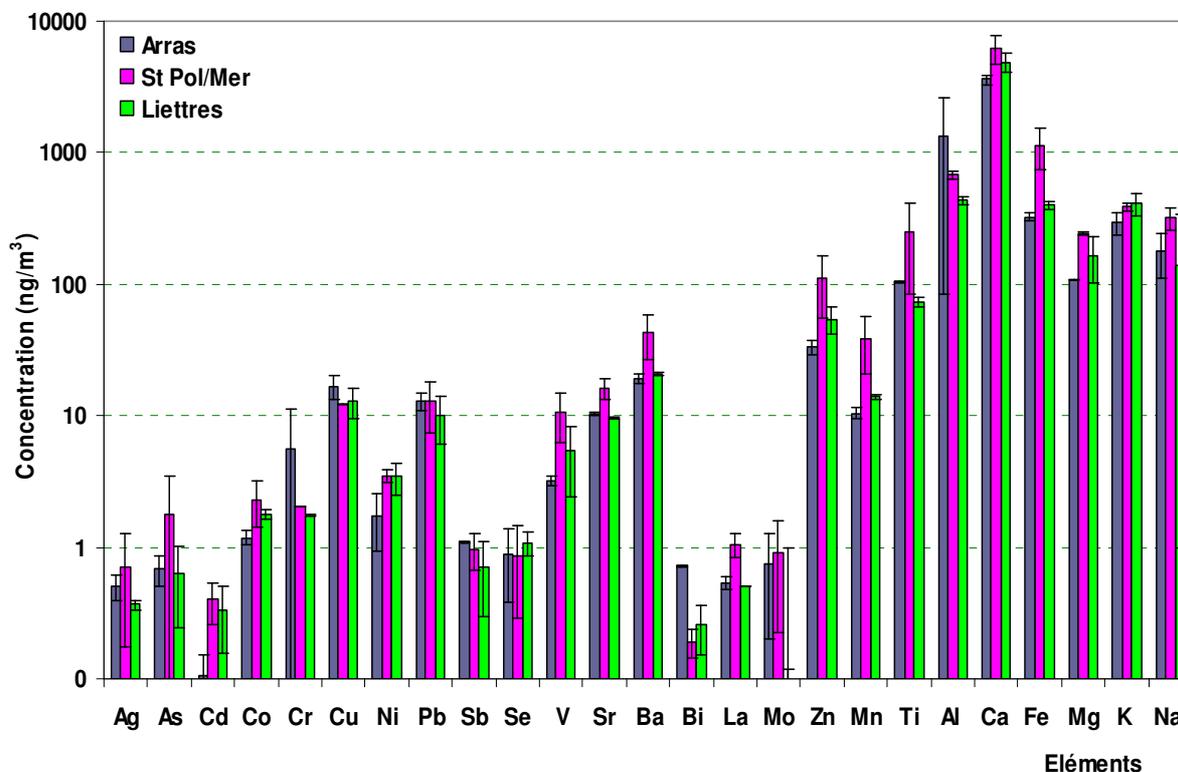


Figure 61 : Concentrations moyennes hebdomadaires observées dans les classes durant la période en présence des élèves. Les barres présentent l'écart entre 2 mesures.

Par contre, les valeurs en Ca dans les trois écoles de notre étude sont bien plus élevées que celles dans les hôpitaux (de 3614 à 6288 ng/m^3 contre $1600 \text{ng}/\text{m}^3$ pour Wang et al. (2006)). Cette forte concentration en Ca dans les écoles est explicable, comme dans l'étude de Fromme et al. (2008), par l'utilisation régulière de craies pendant les cours. Fromme et al. (2008) ont rapporté des concentrations pour les éléments Ca, K, Mg et Na respectivement de 3200; 600; 100 et $1000 \text{ng}/\text{m}^3$ sur les PM_{10} dans une école primaire. Nos résultats sont proches de cette dernière étude pour les éléments Ca, Mg et K. Dans le cas de Na, nos résultats sont significativement inférieurs ($140\text{-}319 \text{ng}/\text{m}^3$). Cela peut être dû à la limite de détection plus élevée de la méthode XRF et/ou à des sources spécifiques intérieures dans leur étude.

6.2.2. Concentration en éléments dans les PM_{10} ($\text{ng}/\mu\text{g}$)

Les résultats obtenus montrent que les teneurs en éléments majeurs et traces dans l'air intérieur prélevées en absence d'activités scolaires sont généralement plus faibles que celles en présence des élèves (Figure 61, Annexe 19). Cela s'explique par des concentrations en

PM₁₀ plus faibles en absence des élèves (de 15-22 µg/m³ contre environ 75 à 115 µg/m³ en présence d'élèves), de même que pour l'air extérieur (de 22,5-29 µg/m³ contre 36-52 µg/m³).

Afin de réduire cet effet de concentration en PM₁₀ sur les teneurs élémentaires, plus ou moins important selon que le prélèvement est effectué en présence ou en absence d'élèves, nous avons calculé la concentration en éléments majeurs et traces des PM₁₀ (en ng/µg de particules). Ceci permet de déterminer si les variations de concentration observées résultent d'une augmentation relative des concentrations en éléments plutôt qu'en masse de PM₁₀. Les résultats sont présentés dans le Tableau 23 (pour les PM₁₀ intérieures) et en Annexe 20 pour les PM₁₀ extérieures.

Contrairement aux concentrations en éléments exprimées en ng/m³, les concentrations plus importantes en PM₁₀ en présence d'élèves n'induisent pas d'augmentation notable des teneurs en éléments traces tels que As, Mo, Ni, Pb, Sb, Se, V, ... dans l'air intérieur et extérieur des écoles. En fait, les concentrations, en ng/µg, en éléments traces des PM₁₀ sont relativement comparables d'une période à l'autre (Tableau 23, Annexe 20) suggérant (1) l'absence de sources notables de métaux liées à la présence des élèves, (2) l'absence de biais lié à la remise en suspension préférentielle de la fraction grossière au niveau élémentaire.

Tableau 23 : Concentration moyenne hebdomadaire (ng/µg de particules) en différents éléments des PM₁₀ à l'intérieur des écoles. (Eléments majeurs représentés en gras).

Ecoles	Arras		Saint Pol/Mer		Liettres		
	Période	Présence	Absence	Présence	Absence	Présence	Absence
Al		15,8	2,94	4,13	2,00	6,05	1,54
Ag		0,006	0,002	0,010	0,003	0,006	0,001
As		0,009	0,021	0,020	0,014	0,009	0,025
Ba		0,224	0,067	0,477	0,143	0,291	0,068
Bi		0,008	0,002	0,0020	0,004	0,003	0,002
Ca		43,9	10,7	72,0	21,5	68,3	4,05
Cd		0,001	0,001	0,004	0,008	0,002	0,001
Co		0,015	0,004	0,027	0,011	0,025	0,006
Cr		0,108	0,046	0,000	0,000	0,083	0,028
Cu		0,197	0,097	0,158	0,122	0,186	0,069
Fe		3,83	3,87	12,8	6,89	5,43	2,89
K		3,43	0,632	4,55	2,25	5,79	3,12
La		0,006	0,002	0,013	0,008	0,007	0,009
Mg		1,71	0,706	2,79	1,24	2,37	1,77
Mn		0,119	0,093	0,455	0,243	0,203	0,101
Mo		0,012	0,066	0,010	0,012	0,003	0,009
Na		2,07	1,44	3,84	3,37	2,20	4,74
Ni		0,046	0,049	0,047	0,107	0,064	0,139
Pb		0,151	0,118	0,184	0,202	0,133	0,191
Sb		0,013	0,018	0,010	0,012	0,010	0,020
Se		0,008	0,009	0,005	0,008	0,009	0,012
Sr		0,127	0,036	0,189	0,067	0,130	0,036
Ti		1,25	0,445	2,80	0,651	1,13	0,245
V		0,038	0,073	0,120	0,324	0,070	0,359
Zn		0,657	0,296	1,30	0,533	0,707	0,305

Il faut noter que les teneurs varient de 72 ng/μg de PM₁₀ pour les éléments majeurs tels que le Ca à environ 10-3 ng/μg de PM₁₀ pour les éléments traces tels que le Cd. Les concentrations exprimées en ng/μg de ces éléments majeurs sont toujours plus élevées en journée, que se soit en air intérieur ou extérieur. Cela est probablement lié à la remise en suspension (Thatcher et al., 1995; Branis et al., 2005) principalement des grosses particules contenant majoritairement des éléments majeurs, induisant une évolution de la spéciation chimique des PM₁₀ (Gemenetzis et al., 2006; Molnár et al., 2007).

Les pourcentages cumulés des éléments majeurs (Al, Ca, Fe, K, Mg, Na) dans les classes à Arras, Saint Pol sur Mer et à Liettes représentent respectivement 7,19 ; 10,29 et 9,13% de la masse totale des PM₁₀ en présence d'élèves contre 2,02 ; 3,72 et 1,80 % en leur absence (Figure 62). Les pourcentages massiques cumulés des éléments traces (Ag, As, Bi, Cd, Co, Cu, La, Mn, Mo, Ni, Pb, Sb, Se, V, Sr, Zn) à Arras, Saint Pol sur Mer et Liettes en période d'occupation des classes sont respectivement de 0,17 ; 0,23 et 0,19% de la masse totale des PM₁₀ contre 0,10 ; 0,16 et 0,14% en dehors des activités scolaires.

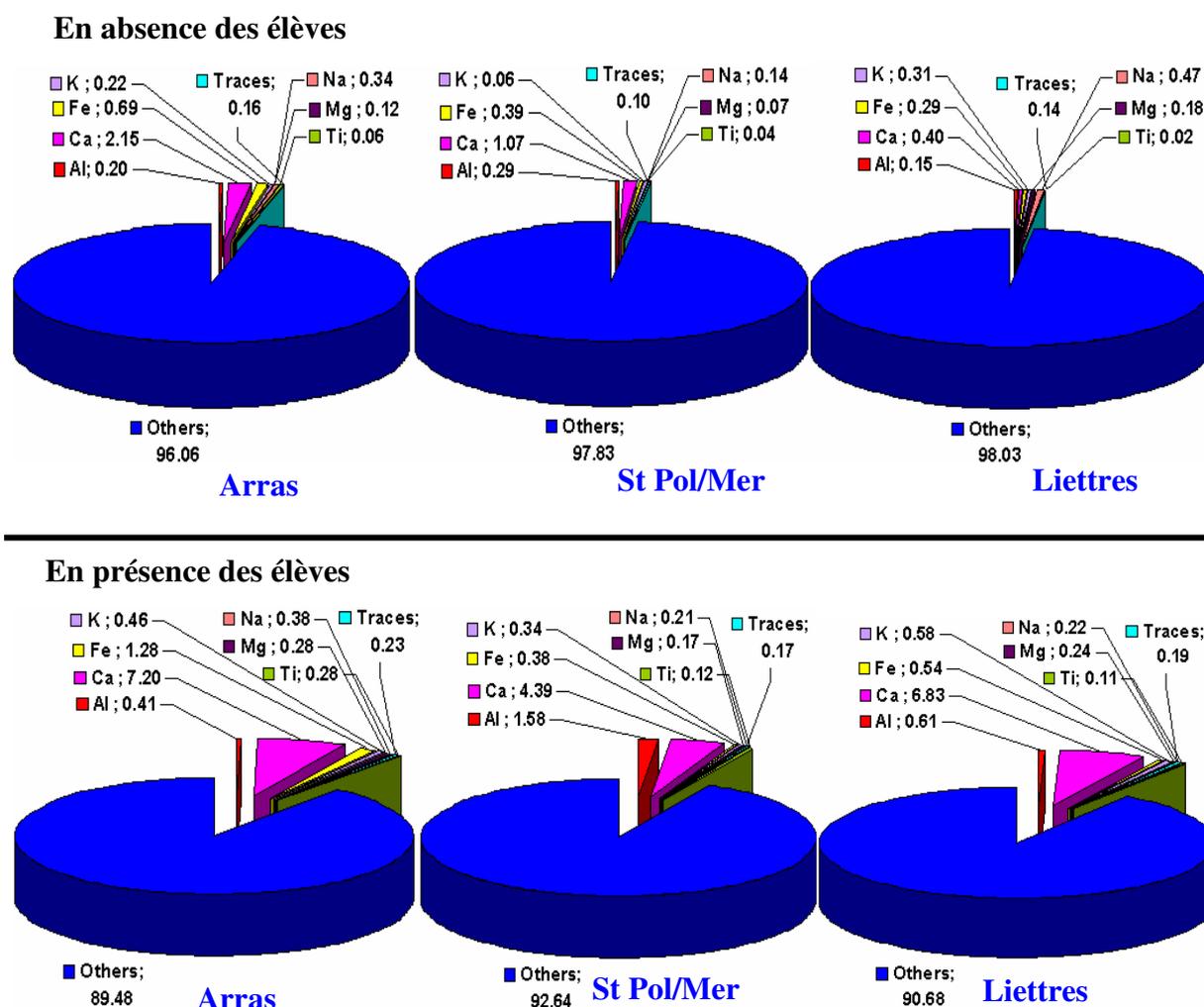


Figure 62 : Bilan des pourcentages en masse des éléments mesurés dans les PM₁₀ à l'intérieur des écoles.

Ces pourcentages massiques élémentaires dans les PM₁₀ prélevées dans les écoles sont assez comparables avec ceux obtenus par Fromme et al. (2008). A titre d'exemple, Fromme et al. (2008) ont rapporté des pourcentages élémentaires dans les PM₁₀ dans une classe en présence d'élèves en Ca, K, Mg, et Na respectivement de 2,8, 0,4, 0,2 et 0,8 %. Ces valeurs dans notre étude sont respectivement de 4,39-7,20% ; 0,34-0,58% ; 0,17-0,28% et 0,21-0,38%. La différence notable en Ca dans notre étude peut être reliée à la fréquence d'utilisation de craie dans les classes ou le type de craie qui influencent la taille, la quantité de particules produite et la teneur en Ca (Dean et al., 2004; Majumdar et al., 2009). D'autre part, certaines particules de l'air intérieur peuvent provenir des matériaux de construction pouvant également modifier la composition chimique globale des particules (Fromme et al., 2008).

A l'extérieur des écoles, les pourcentages cumulés des éléments majeurs dans les PM₁₀ varient de 6,0 à 10,6 % en période scolaire contre une variation de 3,6 à 6,7 % en absence des élèves (Tableau 24).

Tableau 24 : Pourcentages élémentaires (% masse) moyens hebdomadaires des éléments majeurs dans les PM₁₀ à l'extérieur des écoles.

Période Ecoles	Présence			Absence		
	Arras	St Pol/Mer	Liettres	Arras	St Pol/Mer	Liettres
Al	0,56	0,55	0,61	1,17	0,33	0,44
Ca	3,80	4,14	3,61	1,48	1,21	0,66
Fe	0,71	3,56	0,77	1,69	2,14	0,75
K	0,16	0,36	0,43	0,52	0,32	0,45
Mg	0,34	0,74	0,21	0,40	0,46	0,34
Na	0,83	1,14	0,28	1,21	1,19	1,03
Ti	0,09	0,13	0,07	0,19	0,11	0,07
Pourcentage cumulé	6,49	10,62	5,98	6,66	5,76	3,74

Le Ca présente des pourcentages significativement plus élevés en présence d'élève qu'en leur absence (une variation de 3,61 à 4,14 % contre de 0,66 à 1,48 %) pour les trois écoles. Les autres éléments traces analysés dans cette étude présentent des valeurs cumulées très faibles de 0,20 à 0,33% (période d'occupation) et de 0,19 à 0,5% (en absence d'activités scolaires) des PM₁₀ prélevées à l'extérieur des écoles.

Nos résultats sont plutôt comparables avec ceux obtenus dans l'étude menée par Fromme et al. (2008) dans une école primaire uniquement en périodes d'activités scolaires en Allemagne. Ainsi, les pourcentages (valeurs médianes) des éléments Ca, Mg et Na dans cette précédente étude sont respectivement de 1,8, 0,3 et 1,2 % contre (1,90-3,56%), (0,17-0,60%), et (0,32-0,90%) pour nos résultats dans les trois écoles en présence des enfants.

6.2.3. Répartition des métaux dans différentes fractions granulométriques

Cette partie présente la répartition des différents éléments majeurs et traces dans les différentes fractions de PM₁₀. Le Tableau 25 et l'Annexe 21 confirment que les éléments

traces tels que As, Cd, Pb, Bi, Mo, V, Ni, Sb... se trouvent majoritairement dans les fines particules PM₁ et PM_{2,5} contrairement aux éléments majeurs tels que Al, Ca, Ba, Sr, Ti et K qui sont en plus grande quantité dans la fraction grossière PM_{2,5-10}. A titre d'exemple, l'As de l'air intérieur à Saint Pol sur Mer, Arras et Liettes se retrouve respectivement à 98,7, 98,9 et 97,9 % dans les PM_{2,5} en absence d'élèves tandis que ces valeurs en leur présence diminuent respectivement à 90,3, 84,5 et 80,3 %. De même, le Cd présente des valeurs de 99,3, 96,7 et 96,7 % la nuit et le week-end contre 79,3, 70,4 et 73,3 % en journée.

L'étude de Wang et al. (2006) effectuée dans des hôpitaux montre que les fractions fines PM_{2,5} des éléments majeurs tels que Al, Ca, Fe, Mg et Ti sont relativement faibles (inférieurs à 50%) tandis que des éléments traces tels que V, Ni, Cu, Cd, Pb et Zn y sont principalement présents (entre 70 et 90% de teneurs dans les PM_{2,5}). L'étude de Gemenetzi et al. (2006) pour des classes d'universités grecques montre une gamme du rapport PM_{2,5}/PM₁₀ pour des éléments majeurs comprise entre 40 et 60% tandis que celle des éléments traces était comprise entre 70 et 90%. Notons ici que l'étude de Gemenetzi et al. (2006) a été effectuée uniquement en présence des élèves et celle de Wang et al. (2006) sur une période de 24h.

Tableau 25 : Rapports PM_{2,5}/PM₁₀ des éléments majeurs dans l'air intérieur de différentes études.

Etude	Gemenetzi et	Wang et al.	Notre étude		
	al.(2006)	(2006)	St Pol/Mer	Arras	Liettes
Prélèvement	En présence d'élèves	24 h	Présence d'élèves	Présence d'élèves	Présence d'élèves
Al	50	35	62,2	42,8	64,1
Ca	40	34	61,7	37,6	60,4
Fe	60	44	67,1	44,5	65,0
K	70	79	64,9	38,0	58,7
Mg	40	41	62,4	35,9	58,6
Na	nd	45	70,3	36,2	51,2
Sr	80	nd	62,9	39,9	59,1
Ti	60	35	58,5	36,6	56,2

Les éléments majeurs et traces en absence des élèves, dans notre étude, sont donc logiquement toujours plus élevés que pour ces deux études. En présence des élèves, nos rapports PM_{2,5}/PM₁₀ pour les éléments majeurs aux écoles de Saint Pol sur Mer et de Liettes (Tableau 25) sont comparables à ceux de Gemenetzi et al (2006) et relativement plus élevés que ceux de l'école d'Arras et de Wang et al. (2006). Cela est probablement dû à des sources d'émission spécifiques d'éléments tels que Ca, Al, Ti... dans l'étude de Wang et al. (2006), et un échange d'air avec l'extérieur en présence des élèves à Arras plus faible qu'aux deux autres écoles (voir chapitre V, point 2.1.2).

En présence des élèves, les pourcentages des éléments majeurs dans la fraction PM_{2,5-10} à Arras sont plus élevés que dans les classes de deux autres écoles (Tableau 26). La fermeture fréquente de la porte et des fenêtres à Arras contrairement à Saint Pol et Liettes pourrait être la raison principale de cette différence. On peut penser en effet que les grosses particules remises en suspension par les élèves restent dans l'air intérieur des classes fermées plus longtemps que dans les classes ouvertes où l'échange d'air avec l'extérieur est beaucoup plus important.

Ces résultats en accord avec ceux observés précédemment pour les masses et nombres de particules au cours du temps, confirment que les fines fractions dominent les PM₁₀ pendant la période en absence des élèves.

Tableau 26 : Répartition (%) des éléments dans les différentes fractions des PM₁₀ dans l'air intérieur des classes (chiffres en gras, bleu : les majeurs).

Période Ecole	Période en présence d'élèves						Période en absence d'élèves					
	Arras		St Pol/Mer		Liottes		Arras		St Pol/Mer		Liottes	
Fractions	PM _{1/10}	PM _{2,5/10}	PM _{1/10}	PM _{2,5/10}	PM _{1/10}	PM _{2,5/10}	PM _{1/10}	PM _{2,5/10}	PM _{1/10}	PM _{2,5/10}	PM _{1/10}	PM _{2,5/10}
Ag	27,7	49,0	43,9	77,5	24,9	55,7	52,3	85,2	79,8	94,8	85,9	99,9
Al	16,4	42,8	18,1	62,2	28,3	64,1	20,3	82,3	36,1	89,4	58,5	86,8
As	78,5	84,4	69,6	90,3	62,4	80,3	90,1	99,0	90,3	98,6	87,4	97,9
Ba	5,0	41,7	14,7	61,0	13,5	46,2	6,1	62,9	19,9	79,6	8,3	49,6
Bi	18,6	39,6	49,0	78,2	39,1	72,4	59,1	87,6	83,9	97,1	72,2	94,2
Ca	12,8	37,6	15,3	61,7	23,0	60,4	11,7	72,9	19,0	79,2	49,0	76,5
Cd	55,0	70,4	51,3	79,3	44,2	73,3	82,0	96,7	90,7	99,3	89,2	96,7
Co	19,2	42,4	34,3	67,0	26,0	62,1	33,8	78,0	72,9	94,0	57,1	77,5
Cr	31,3	45,9	25,9	45,7	54,6	75,2	39,3	72,0	51,8	85,5	20,1	47,1
Cu	24,9	44,0	32,5	68,9	28,9	59,8	42,2	81,9	60,0	88,6	42,8	82,6
Fe	22,0	44,5	30,4	67,1	31,7	65,0	47,3	90,2	57,8	89,9	63,9	85,5
K	19,1	38,0	29,5	64,9	30,8	58,7	48,7	89,7	88,8	99,9	84,4	94,6
La	12,9	45,5	16,8	70,3	25,8	71,9	21,4	85,5	41,5	90,8	23,8	89,0
Mg	10,7	35,9	18,4	62,4	13,3	58,6	9,1	82,8	28,5	82,6	39,7	80,4
Mn	26,8	47,3	28,2	68,4	33,8	63,8	44,0	86,9	61,6	92,0	38,4	77,3
Mo	49,1	61,5	52,6	66,9	64,2	85,8	48,9	89,0	72,6	95,2	41,5	69,9
Na	11,5	36,2	22,5	70,3	2,7	51,2	17,8	86,4	33,9	87,3	39,6	81,1
Ni	47,3	56,6	48,9	68,0	62,2	78,1	56,9	78,4	81,4	95,1	71,7	82,7
Pb	39,0	56,4	49,7	78,6	52,5	78,4	71,8	93,4	88,3	97,4	91,3	98,2
Sb	45,5	62,4	53,0	82,7	49,6	77,0	68,0	92,4	80,4	96,0	76,0	93,5
Se	77,5	86,4	91,2	100,0	58,8	79,6	86,6	99,9	100,0	100,0	70,2	95,1
Sr	15,6	39,9	15,3	62,9	20,9	59,1	22,6	84,5	25,7	81,1	21,8	70,7
Ti	13,5	36,6	20,0	58,5	26,4	56,2	59,4	84,3	29,7	79,5	19,2	74,1
V	47,8	61,9	76,8	91,2	78,6	89,4	60,8	90,6	93,7	99,1	94,3	98,8
Zn	27,4	50,1	24,5	65,0	33,8	66,6	39,8	83,7	59,2	90,3	57,3	84,0

PM_{1/10} ; PM_{2,5/10} sont respectivement des rapports 100.(PM₁/PM₁₀) et 100.(PM_{2,5}/PM₁₀)

En ce qui concerne les teneurs élémentaires dans les différentes fractions particulières à l'extérieur des écoles, on n'a pas observé, en général, de différences notables entre les valeurs durant la période scolaire et en absence d'élèves (Annexe 21).

7. Identification des sources de pollution en air intérieur et extérieur des écoles

Dans cette partie, nous chercherons à identifier dans un premier temps, des sources de particules à l'extérieur des écoles grâce aux traceurs métalliques et aux mesures en EC et OC notamment. L'identification des sources de particules sera ensuite effectuée à l'intérieur des classes pour différentes typologies (urbano-industrielle et littorale à Saint Pol sur Mer, urbaine à Arras et rurale avec une faible influence du trafic automobile à Liettes).

7.1. Identification des sources de métaux à l'extérieur des écoles

7.1.1. Facteurs d'enrichissement

Le facteur d'enrichissement est calculé selon l'équation 25 définie dans le chapitre II, paragraphe 5.2).

Les éléments de référence les plus souvent employés sont Al (Gao et al., 2002; Gemenetzis et al., 2006; Wang et al., 2006, Ekmekcioglu et Keskin, 2007), Zr, Ti (Swietlicki et Krejci, 1996; Smichowski et al., 2005). Il n'existe pas de règles prédéfinies pour le choix de cet élément si ce n'est qu'il doit être localement, principalement représentatif de sources terrigènes. Pour notre étude, nous avons utilisé les compositions moyennes de la croûte continentale supérieure déterminées par McLennan. (McLennan., 2001) et choisi l'Al comme élément de référence car l'utilisation du Ti au lieu de l'Al n'a pas montré de variations significatives.

Résultats

Etant donné qu'il n'y a pas de différences importantes au niveau des concentrations en métaux des PM₁₀ mesurées à l'extérieur des écoles en présence ou en absence des élèves, nous présenterons ci-dessous les résultats des EF_{el} pour les métaux dans les PM₁₀ moyennées sur une semaine. Les éléments analysés sont classés en 3 catégories selon leurs EF_{el} moyens mesurés dans les PM₁₀ (Figure 63):

- Les éléments fortement enrichis, dont les EF_{el} sont supérieurs à 10 sont, par ordre décroissant Sb, Pb, Cd, Ag, Bi, Mo, Zn, As, Cu, Ni, Cr. Ces éléments sont par conséquent considérés presque exclusivement d'origine anthropique.

- Les éléments possédant des EF_{el} moyens (compris entre 5 et 10) sont, par ordre décroissant V, Co, Se, Mn. Ces éléments ont probablement à la fois une source naturelle (origine terrigène) et une source anthropique.

- Enfin les éléments peu enrichis (EF_{el} ≤ 5), ayant une source naturelle prépondérante sont le Ca, Ba, Fe, K, La, Mg, Na, Sr et Ti suggérant l'existence de sources d'émission anthropique relativement négligeables pour ces éléments.

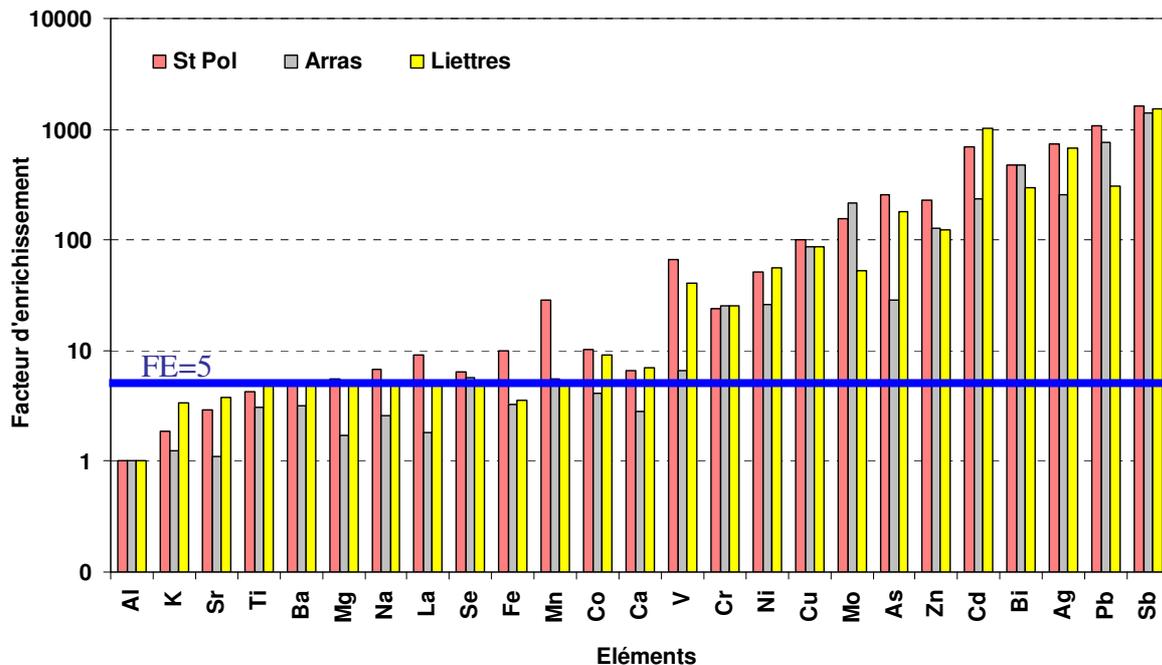


Figure 63 : Facteurs d'enrichissement pour les PM_{10} à l'extérieur des écoles avec Al comme élément de référence.

On observe que le La, Na, Se et Fe sont identifiés comme des éléments naturels dans les PM_{10} des écoles de Arras et Liettes mais sont plus enrichis à l'école de Saint Pol sur Mer impliquant l'existence de sources industrielles pour le Se et le Fe et une forte émission de Na marin à Saint Pol sur Mer (Figure 63). De même, les éléments V et Mn classés dans la catégorie intermédiaire (sources anthropiques et naturelles) pour Arras et Liettes ont probablement également une origine industrielle à l'école de Saint Pol sur Mer.

Pendant la récréation, le chiffon empoussiéré de craie a été secoué à l'extérieur des classes et à proximité des appareils de prélèvement aux écoles de Saint Pol sur Mer et Liettes. Cela s'ajoute donc au Ca en principe purement détritique, expliquant des EF_{el} assez élevés compris entre 5 et 10 pour cet élément (Figure 63).

7.1.2. Classification Hiérarchique (CH)

Cette partie a pour objectif de classer les éléments métalliques, le EC, OC mesurés dans les particules à l'extérieur des écoles, en faisant apparaître des corrélations en fonction des sources d'émission des métaux connues à proximité de chaque école. Le traitement des données par ces méthodes multivariées (CH) sera présenté séparément pour chaque école.

Ayant plus de variables (éléments métalliques, EC, OC) que d'individus (nombre d'échantillons) pour chaque école, nous traiterons dans un premier temps les données par une corrélation deux à deux entre les variables afin d'en réduire le nombre dans les matrices de données. Le critère de choix des éléments (variables) pour les jeux de données sont des éléments robustes qui présentent des concentrations remarquablement plus élevées que leur limite de détection méthodologique, fortement corrélés avec d'autres éléments et bien représentatifs d'une source spécifique pour une école donnée ou qui ne sont corrélés avec

aucun autre élément. Le Tableau 27 présente le nombre d'échantillons et d'éléments pour chaque matrice de données avant et après la réduction de variables. Les corrélations entre éléments sont fournies en Annexe 22. Seules les valeurs de corrélation supérieures à 0,6 sont retenues.

Sources des particules à l'extérieur d'école de Saint Pol sur Mer

On observe dans un premier temps, à St Pol sur Mer que les éléments naturels tels que Sr, Ba, La, Co ... sont bien corrélés entre eux. Les éléments provenant de sources industrielles et naturelles tels que Fe et Mn sont quant à eux corrélés à la fois avec des éléments naturels (Sr, Ba, La, Co) et industriels (Bi, Cd, Mo, Ni, Pb, Zn ...). Les éléments généralement associés aux aérosols marins (Na, Mg, K) sont corrélés entre eux et non corrélés avec les autres éléments. De plus, les éléments de type trafic tels que Cu et surtout Sb sont aussi corrélés avec des éléments naturels, sans doute associés lors de la remise en suspension des particules déposées (Morawska et Zhang., 2002). Enfin, le V généralement relié à la source pétrochimique est faiblement corrélé ou corrélé négativement avec les autres éléments. Le Ni, un autre traceur de la source pétrochimique semble corrélé avec les éléments tels que Cd, Cr, Mo, Pb, Se, Zn... suggérant une ou plusieurs sources de Ni dans la zone étudiée.

En résumé, cette première étape fait apparaître un certain nombre de corrélations entre éléments provenant de même sources (naturelle, industrielle, trafic, marine et pétrochimie) ou associés par des processus physiques ou météorologiques. Seuls les principaux éléments (reconnus comme des traceurs spécifiques et analytiquement fiables) représentant ces différentes sources ont été retenus pour procéder à la CH.

Finalement, grâce à l'analyse de corrélation deux à deux et la bonne connaissance préalable des sources potentielles pour chaque école, 7 éléments significatifs des sources d'émission sont retenus à Saint Pol sur Mer et 6 seulement à Arras et à Liettes.

Tableau 27 : Tableau récapitulatif des différents jeux de données pour la CH (entre parenthèses, le nombre d'éléments conservés après réduction).

Matrice de données	St Pol/Mer		Arras		Liettes	
	éléments	échantillons	éléments	échantillons	éléments	échantillons
PM ₁₀	25 (7)	9	25 (6)	9	25 (6)	9
Toutes les fractions particulaires confondues	25 (7)	17	25 (6)	17	25 (6)	17

Les résultats de CH des éléments métalliques sélectionnés (Fe, Mg, Mn, Na, Sb, Sr, V) dans les PM₁₀ à l'extérieur de l'école à Saint Pol sur Mer sont présentés en Figure 64.

* * * * H I E R A R C H I C A L C L U S T E R A N A L Y S I S * *
* * * * * * * * * * *

Dendrogram using Ward Method

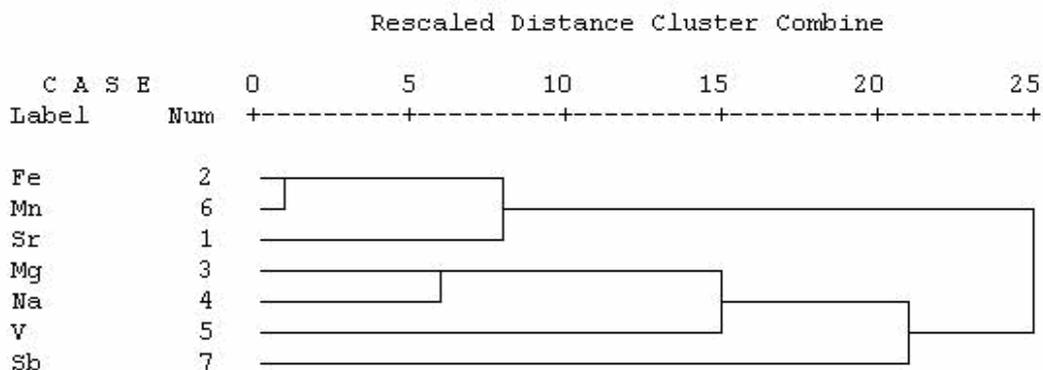


Figure 64 : Classification hiérarchique des éléments dans les PM₁₀ à l’extérieur de l’école de Saint Pol sur Mer.

La Figure 64 met en évidence cinq groupes d’éléments :

- Groupe 1, constitué des éléments Mg, Na (EF_{el} moyen).
- Groupe 2, constitué du Sr (EF_{el} faible).
- Groupe 3, constitué du Fe et Mn (EF_{el} moyen).
- Groupe 4, constitué du V (EF_{el} supérieur à 10).
- Groupe 5, constitué du Sb (EF_{el} supérieur à 1000).

Le groupe 1, associant Na et Mg correspond très certainement à l’aérosol marin. Afin de justifier cette hypothèse, nous avons calculé le rapport inter-élément Na/Mg obtenu dans notre étude et comparé avec des études précédentes notamment avec les travaux réalisés dans la région Dunkerquoise (Lamaison, 2006). Notre ratio Na/Mg est de 2,22±0,66 pour l’ensemble des échantillons contre 8,4 pour les échantillons collectés sur un site purement marin ou de 6,4 si on tient compte de l’ensemble des échantillons prélevés à Dunkerque lors de cette étude précédente (Lamaison, 2006). L’étude de Contini et al. (2010) a publié un ratio Na/Mg de 2,9 influencé par des sources autres que l’aérosol marin. Nos faibles valeurs en Na/Mg par rapport aux résultats de Lamaison (2006) peuvent donc s’expliquer par l’influence d’autres sources de Mg telles que la production de coke à base de charbon et l’utilisation de dolomite CaMg(CO₃)₂ dans les procédés sidérurgiques (Lamaison, 2006).

Comme détaillé précédemment, l’école de St Pol sur Mer était sous l’influence de deux secteurs de vents principaux durant la campagne de prélèvement. Le secteur de vent 350-50° dans la direction Nord-Est favorise le transport des aérosols marins vers l’école de Saint Pol sur Mer. Le secteur de vent 260-290 quant à lui, balaye le secteur industriel et métallurgique. Un nombre d’échantillons plus importants prélevés en fonction de la direction du vent permettant une analyse plus fine sur chaque site et l’utilisation de modèles de type

sources-récepteur tels que la PMF (Positive Matrix Factorisation) pourrait sans doute valider cette hypothèse.

Le Sr du groupe 2 utilisé comme traceur d'émissions naturelles (facteur d'enrichissement faible) est corrélé avec les éléments terrigènes suivant : Ba, Ca, La, Co, Al. Ces éléments sont donc regroupés dans un profil naturel.

Le groupe 3 se trouve à proximité des éléments du groupe 2 et contient un mélange d'éléments anthropiques et naturels (facteurs d'enrichissement moyens pour Fe et Mn) (Figure 64) qui sont probablement issus (1) des poussières naturelles remises en suspension par le vent ou l'action des véhicules sur la route (Wåhlin et al., 2006) et (2) par d'autres sources anthropiques locales de Fe et Mn. Les sources éventuelles de ces deux éléments selon l'étude de Lamaison (2006) réalisée à Grande-Synthe, sont l'usine de ferro-manganèse, l'usine sidérurgique et la cimenterie. Les rapports inter-éléments issus de ces sources obtenus par Lamaison (2006), et ceux calculés lors de notre étude sont présentés dans le Tableau 28.

Les rapports élémentaires observés dans notre étude sont, en général, en accord avec ceux rapportés dans l'étude de Lamaison (2006) si l'on prend en compte l'éloignement de notre site de prélèvement par rapport à certaines sources industrielles. Le Cd et As sont issus principalement de la source ferromanganèse et ne semblent pas influencés par d'autres émissions. Par contre les éléments tels que Fe, Cu, Mn, Pb et Zn ne conservent pas exactement leurs rapports initiaux issus des sources d'émission, sans doute perturbés par d'autres sources anthropiques.

Tableau 28 : Rapports élémentaires dans différentes sources des PM₁₀ et des échantillons PM₁₀ prélevés dans l'agglomération dunkerquoise.

Sources	Ratio élémentaire					
	Pb/Cd	As/Cd	Zn/Pb	Cu/Pb	Mn/Fe	Ca/Fe
Ferro-manganèse ^(*)	24,2	3,41	0,87	0,03		
Sidérurgie ^(*) :						
- Agglomération du minerai	41				0,0007	0,34
- Cokerie	29				0,008	
Lamaison 2006 ^(**)	28,7	3,91	2,14	0,34	0,15	0,88
Cette étude^(**)	38,2±16	4,2±1,2	2,9±1,5	0,8±0,5	0,2± 0,04	1,0±0,4

(*) Les valeurs de l'étude de Lamaison(2006) pour des sources industrielles.

(**) Les valeurs moyennes pour l'ensemble des échantillons PM₁₀.

Le groupe 4 représenté par le V est généralement lié à la source pétrochimique, en lien notamment avec la raffinerie de pétrole et la raffinerie de lubrifiants dans la zone industrielle de Dunkerque et au port où les bateaux utilisent du fuel lourd comme carburant (Lamaison, 2006). Notre rapport moyen de V/Ni (2,37±0,91) est proche des valeurs rapportées dans différentes études telles que celle de Lamaison (2006) sur Grande-Synthe (2,2), et celle de Swietlicki et Krejci. (1996) qui observe un ratio de 1,4 à 1,9 lors d'une étude en Europe

centrale. L'étude de Querol et al. (2007) menée dans une zone industrielle montre que ce rapport traceur de la source pétrochimique varie de 0,2 à 1,1 alors que l'étude de Kulkarni et al (2006) rapporte une valeur moyenne de 0,66 dans les fractions fines PM_{2,5} dans une zone industrielle à Houston (Etats-Unis).

On notera cependant que ce ratio peut varier en fonction d'autres sources d'émission ainsi que du type de pétrole utilisé (Swietlicki et Krejci, 1996). La variabilité de notre ratio V/Ni (2,37±0,91) peut aussi être liée à des directions de vents changeantes d'une semaine à l'autre et/ou d'une période à l'autre. Les données de Météo France montrent en effet que les quatre premiers jours, le vent provient principalement du secteur de 350 à 90° favorisant le transport de particules depuis la source de raffinage de lubrifiants. Les jours suivants la direction des vents n'est pas stable, balayant plusieurs secteurs dans la même journée. Par exemple, le lundi 08 juin 2009 le vent est issu des secteurs 30-100°, 170-270° et 320-350°.

La présence de Sb dans le groupe 5 suggère une source de trafic automobile généralement caractérisé par les éléments Sb, Cu et Zn. Cu et Zn qui peuvent être émis aussi par d'autres sources, notamment la sidérurgie (Lamaison, 2006; Querol et al., 2007). Le rapport Cu/Sb est largement employé pour caractériser la source du trafic automobile. Ce rapport moyen dans notre étude est de 6,58±1, similaire à la valeur (6,5) obtenue pour l'ensemble des échantillons de l'étude de Lamaison (2006) et proche de la valeur (4,6±2,3) rapporté par Sternbeck et al (2002) lors de leur étude dans deux tunnels à Gothenburg, Suède. Iijima et al (2007) ont aussi montré des rapports Cu/Sb pour des travaux menés en laboratoire variant dans une gamme de 4,4 à 19 et dépendant du type de freins employés.

Les sources éventuelles d'autres éléments analysés dans les PM₁₀ à l'extérieur de l'école de Saint Pol sur Mer sont interprétées par rapport aux sources identifiées par la CH ainsi qu'aux corrélations inter-éléments. On constate que les éléments ayant les facteurs d'enrichissement les plus faibles ($EF \leq 5$) tels que Ba, Ca, Mg, Ti présentent non seulement de fortes corrélations entre eux mais également avec des éléments traces issues de sources anthropiques. A titre d'exemple, le Ba est corrélé avec des éléments liés au trafic tels que Cu, Zn, Sb suggérant que les sources de Ba sont à la fois naturelles mais également associées au trafic, probablement par la remise en suspension de poussières déposées sur les routes (Wählin et al., 2006). Les éléments Ca, Mg et Ti présentent également de fortes corrélations avec des éléments provenant de sources sidérurgiques tels que l'As, Cd, Bi, Fe, Mn..., conduisant à penser à des sources communes avec ces derniers (ré-envol de poussières au niveau de l'usine par exemple).

Enfin, les autres éléments traces qui ont été analysés (Bi, Mo, Cr, Ag, Se) présentent de bonnes corrélations (>0,7) avec des éléments issus de différentes sources industrielles (Lamaison, 2006) et sont associés à la source commune anthropique (groupe 3) dont les origines sont probablement multiples sur cette zone.

Sources des particules à l'extérieur des écoles d'Arras et de Liettes

Arras possède une seule source industrielle de métaux à proximité (dans un rayon de 10 Km des écoles), il s'agit de l'entreprise ENERSYS SARL qui fabrique des piles et des

accumulateurs électriques. Cette usine émet éventuellement du Pb et ses composés dans l'air (<http://www.pollutionsindustrielles.ecologie.gouv.fr/IREP/index.php>). Une autre source éventuelle d'émission de métaux située à environ 20 km d'Arras, l'usine verrière (BSN Glasspack) à Wingles, peut émettre des éléments alcalins tels que Ca, Na, K, B et des métaux lourds As, Pb, Zn (atmo NPdC, 2009). Aucune source industrielle n'a été identifiée à Liettes.

La matrice de corrélation inter-élément pour les PM₁₀ à l'extérieur des écoles d'Arras et de Liettes est présentée en Annexe 22. La classification hiérarchique des éléments cibles pris sur la base de l'analyse de corrélation inter-élément et des sources éventuelles se trouvant à proximité de chaque école est présentée en Figure 65 et 66.

Comme indiqué précédemment, des éléments traces tels que Cr, Cu, Mn, Ni, Pb, Sb, Zn, Al, Fe provenant éventuellement de sources anthropiques présentent des concentrations plus élevées à Arras qu'à Liettes.

Le traitement des données met en évidence 4 sources principales pour les éléments analysés dans les PM₁₀ à Arras et 3 sources à Liettes. Les échantillons à Arras présentent une signature trafic automobile, une source anthropique, une source naturelle et un signal lié à l'aérosol marin. Les échantillons à Liettes font apparaître des sources liées aux aérosols marins, naturelles et, malgré le caractère rural de ce site, au trafic automobile (Figure 65).

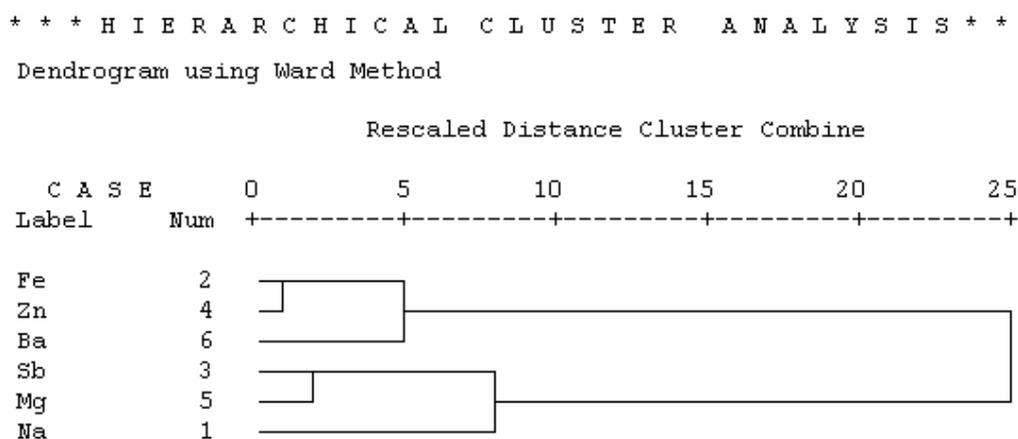


Figure 65 : Classification hiérarchique des éléments dans les PM₁₀ à l'extérieur de l'école à Arras.

A Arras (site urbain caractérisé par une circulation automobile importante autour de l'école), le Na essentiellement associé à la source marine, est corrélé avec le Mg qui présente lui-même une corrélation très importante avec Sb provenant du trafic automobile suggérant deux sources potentielles contribuant aux teneurs en Mg dans les PM₁₀ à cette école : la source marine et la source trafic, probablement liée à la remise en suspension des particules déposées sur la route (Arditsoglou et Samara, 2005) ainsi qu'à la poussière provenant de l'usure des freins (Hildemann et al., 1991).

Le Fe et Zn sont bien corrélés avec des éléments anthropiques tels que Ni, Pb, Mo, Bi, Cr et plus faiblement avec des éléments naturels tels que Ba, Sr, Ti. Ces éléments proviennent

probablement de sources anthropiques urbaines variés (chauffage, transport, construction, ...) associées à un phénomène de remise en suspension de poussières déposées au sol.

Le Ba est fortement corrélé avec des éléments naturels tels que Ca, Sr. C'est donc un bon marqueur des émissions naturelles (Figure 65).

Dans le cas de Liettes, la source marine est bien caractérisée dans le dendrogramme par deux éléments Na et Mg, alors que la présence de Zn, Cu, Sb dans un même groupe est caractéristique du trafic automobile. Ces éléments sont aussi classés proches d'un groupe d'éléments plutôt liés à des émissions détritiques (Sr et Fe) dans cette zone rurale ($EF \leq 5$), suggérant un lien probable avec la source naturelle, par la remise en suspension de poussière déposée sur la route (Figure 66).

Les rapports inter-élémentaires Na/Mg et Sr/Mg dans les PM_{10} à Arras sont respectivement de $3,01 \pm 0,43$; et $0,03 \pm 0,02$ et de $2,2 \pm 1,19$ et $0,02 \pm 0,01$ à Liettes. On voit que ces rapports sont très proches de ceux observés à Saint Pol sur Mer (2,2 pour Na/Mg et 0,017 pour le rapport Sr/Mg), et en accord avec l'étude de Contini et al (2010) qui montre un rapport 2,9 (Na/Mg). Le rapport Na/Mg à Arras est également très proche de la valeur (3,7) rapportée par Lamaison 2006 à Douai, un site urbain à environ 25-30 Km d'Arras. Ces résultats sont donc en accord avec le fait que l'ensemble de la région Nord-Pas-de-Calais est sous influence océanique.

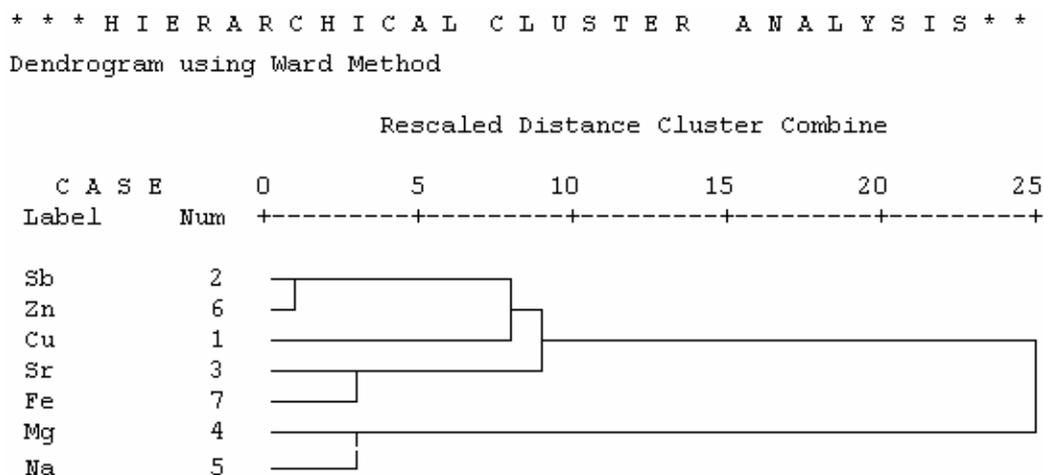


Figure 66 : Classification hiérarchique des éléments dans les PM_{10} à l'extérieur de l'école de Liettes.

Les rapports des traceurs trafic automobile Cu/Sb à Arras et Liettes sont respectivement de $6,99 \pm 1,98$ et $5,75 \pm 1,83$ comparables au $6,58 \pm 1$ observé à Saint Pol sur Mer. Ces valeurs sont donc en accord avec l'étude de Sternbeck et al (2002) qui publie une valeur de $4,6 \pm 2,3$. Les rapports Cu/Sb légèrement plus élevés à Arras et Saint Pol sur Mer par rapport à Liettes pourrait être éventuellement liés à des contributions en Cu issues respectivement de sources industrielles ou urbaines. La source de Cu autre que les émissions automobile a été discutée dans l'étude de Lamaison. (2006) à Grande-Synthe. Il pourrait

s'agir de la fonderie de bronze, à proximité de Saint Pol sur Mer, qui se situe dans le secteur de vent 160-210° (Figure 43) souvent observée les 09, 16 et 17/06/2009.

Pour le cas d'Arras, les transports ferroviaires peuvent être considérés comme une autre source potentielle anthropique de Cu. En effet, selon le CITEPA (2010), le réseau ferroviaire représente 35% des émissions totales de Cu dans l'air en France. Or la ville d'Arras possède la deuxième plus grande gare de la région, située à moins d'1 km du site d'étude.

7.1.3. Corrélations métaux, OC et EC à l'extérieur des écoles

Etant donné que OC, EC présents dans les PM_{2,5} de l'air extérieur proviennent normalement de la combustion, nous avons testé les corrélations entre OC, EC et les traceurs métalliques du trafic automobile tels que Al, Ba, Cu, Sb, Zn. D'après le Tableau 29, OC, EC sont bien corrélés entre eux et avec des traceurs du trafic automobile dans l'air extérieur des écoles. La plus faible corrélation entre OC et EC à Arras (0,62) par rapport aux deux autres écoles (0,9) pourrait être liée aux autres sources de OC à Arras tels que le solvant des produits de nettoyage répandus souvent dans la cour de récréation et les stations service à proximité de cette école (voir chapitre III, point 5.1).

Tableau 29 : Corrélations (R²) entre OC, EC avec des traceurs du trafic automobile à l'extérieur des écoles (nombre de mesures n=5 à chaque école).

Ecoles	OC			EC		
	Arras	St Pol	Liettres	Arras	St Pol	Liettres
Al	1,00	0,97	0,65	0,63	0,79	0,63
Ba	0,80	1,00	0,75	0,72	0,91	0,69
Cu	0,81	0,95	1,00	0,65	0,99	0,92
Sb	0,51	0,86	0,88	0,67	0,69	0,95
Zn	0,82	0,97	0,96	0,83	0,80	0,98
OC	1,00	1,00	1,00	0,62	0,90	0,90
EC	0,62	0,90	0,90	1,00	1,00	100

7.1.4. Rapports OC/EC à l'extérieur des écoles

Le rapport OC/EC est souvent utilisé pour caractériser la source d'émission et la transformation des aérosols carbonés (Ho et al., 2004; Feng et al., 2009). La valeur 1,1 est utilisée dans l'étude de Castro et al. (1999) comme la limite inférieure indiquant la présence de composés organiques secondaires.

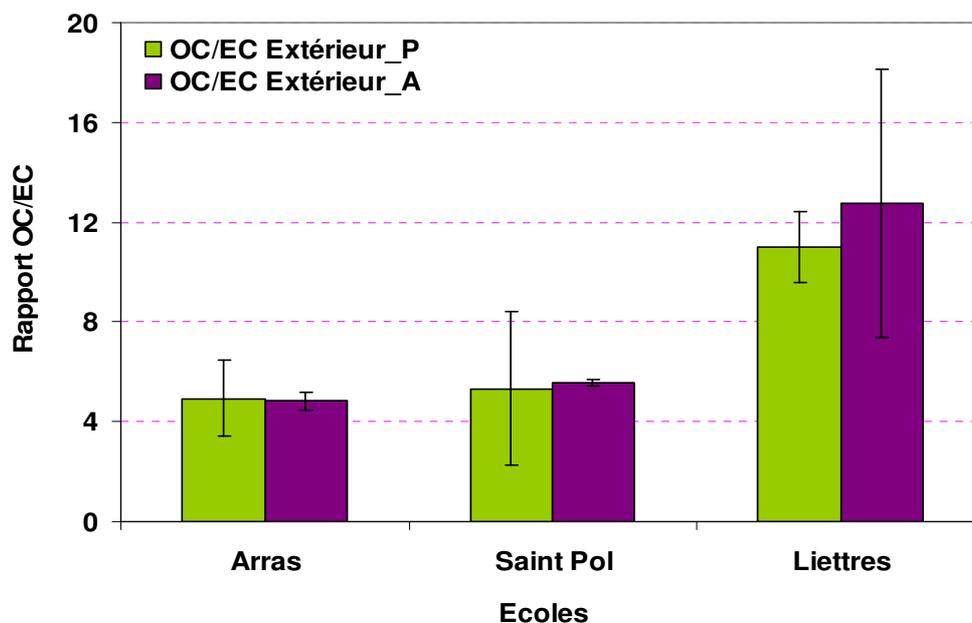


Figure 67 : Rapport OC/EC à l'extérieur des écoles.

Le rapport OC/EC extérieur, présente des valeurs assez stables d'une période à l'autre (Figure 67). Arras et Saint Pol sur Mer ont des rapports OC/EC autour de 5 tandis que pour Liettes, il est supérieur à 10. Feng et al. (2009) ont publié des signatures de sources de OC et EC basées sur le rapport de ces deux fractions carbonées. D'après cette synthèse, le rapport OC/EC (environ 5) observé à l'extérieur des écoles de Arras et Saint Pol sur Mer peut être associé aux gaz d'échappement des véhicules (valeur dans la littérature variant de 1 à 4,2). Le rapport OC/EC de l'ordre de 10 à Liettes suggère une signature liée à la combustion du charbon et de la biomasse (rapport OC/EC de l'ordre de 8 dans la littérature). Ceci a été confirmé par l'observation fréquente de fumée de cheminée provenant des maisons autour de l'école de Liettes pendant la campagne de mesure.

7.2. Identification des sources de particules à l'intérieur des écoles

Cette partie doit nous permettre d'identifier les sources éventuelles de particules dans les classes des trois écoles grâce aux analyses des rapports intérieur/extérieur, de traceurs spécifiques et des facteurs d'enrichissement par rapport à un élément purement d'origine extérieur.

7.2.1. Rapport intérieur/extérieur (Int/Ext) en métaux dans différentes fractions granulométriques particulières

Le rapport Int/Ext est souvent utilisé pour examiner la présence de sources de métaux dans l'air intérieur et la capacité de pénétration des métaux depuis l'extérieur (Na et al., 2004; Wang et al., 2006).

Certains éléments dans une ou/et des différentes fractions particulières (PM_1 ; $PM_{1-2,5}$ et $PM_{2,5-10}$) de l'air intérieur et extérieur présentent souvent des valeurs proches de la limite de

détection. Nous n'avons finalement conservé que les 22 éléments les plus robustes pour le calcul des rapports Int/Ext de différentes fractions particulaires : Al, As, Ba, Bi, Ca, Cd, Co, Cr, Cu, Fe, La, Mg, Mn, Mo, Na, Ni, Pb, Sb, Sr, Ti, V, Zn.

Les rapports Int/Ext élémentaires des fractions particulaires exprimées en ng/m^3 dépendent fortement de la concentration en masse des particules, plus la concentration en masse des particules intérieures augmente (en présence d'élève), plus le rapport Int/Ext élémentaire croît. En absence des élèves, la concentration en masse des particules intérieures inférieure à celle des particules extérieures (voir point 3.4 de ce chapitre) entraîne généralement une chute des rapports Int/Ext de concentration de différents éléments exprimée en ng/m^3 (Annexe 23).

Afin de s'affranchir de cet effet (masse de particules), nous avons calculé les rapports Int/Ext élémentaires pour les concentrations élémentaires exprimés en $\text{ng}/\mu\text{g}$ de particules. Les résultats obtenus durant la période en présence et en absence d'élèves sont respectivement présentés en Figure 68 et Tableau 30.

Pour la fraction la plus petite (PM_1), les rapports Int/Ext de différents éléments calculés à partir des concentrations exprimées en $\text{ng}/\mu\text{g}$ sont généralement comparables avec celles exprimées en ng/m^3 . Les rapports Int/Ext des éléments dans les fractions plus grossières exprimées en ng/m^3 sont par contre plus élevés que celles exprimées en $\text{ng}/\mu\text{g}$ du fait de l'augmentation de la masse des particules émises par des activités dans les classes (Annexe 23; Figure 68).

Nous présentons ci-après les discussions de l'effet des activités des enfants dans la classe sur la répartition de différents éléments dans différentes fractions granulométriques.

✓ **En période d'activités scolaires :**

En période d'occupation, la plupart des éléments ont des rapports Int/Ext dans la fraction la plus fine PM_1 inférieurs ou proches de 1 sauf quelques éléments à Arras et Saint Pol sur Mer tels que Ca, Sr, Ti, Ba et Al (à Arras uniquement) qui présentent des valeurs supérieures à 1 (Figure 68).

Ces éléments détritiques possèdent également des rapports supérieurs à 1 dans les fractions plus grossières $\text{PM}_{1-2,5}$ et $\text{PM}_{2,5-10}$. Les rapports Int/Ext élevés pour ces éléments ont été associés à l'utilisation de craie pendant la classe dans ces trois écoles qui induit une augmentation des concentrations en Ca, Sr et Ti quelle que soit la taille des particules. D'autre part, les activités physiques des élèves favorisent la remise en suspension des plus grosses particules qui sont enrichies en éléments majeurs. Cette redistribution en taille des particules accroît donc les rapports Int/Ext de ces éléments.

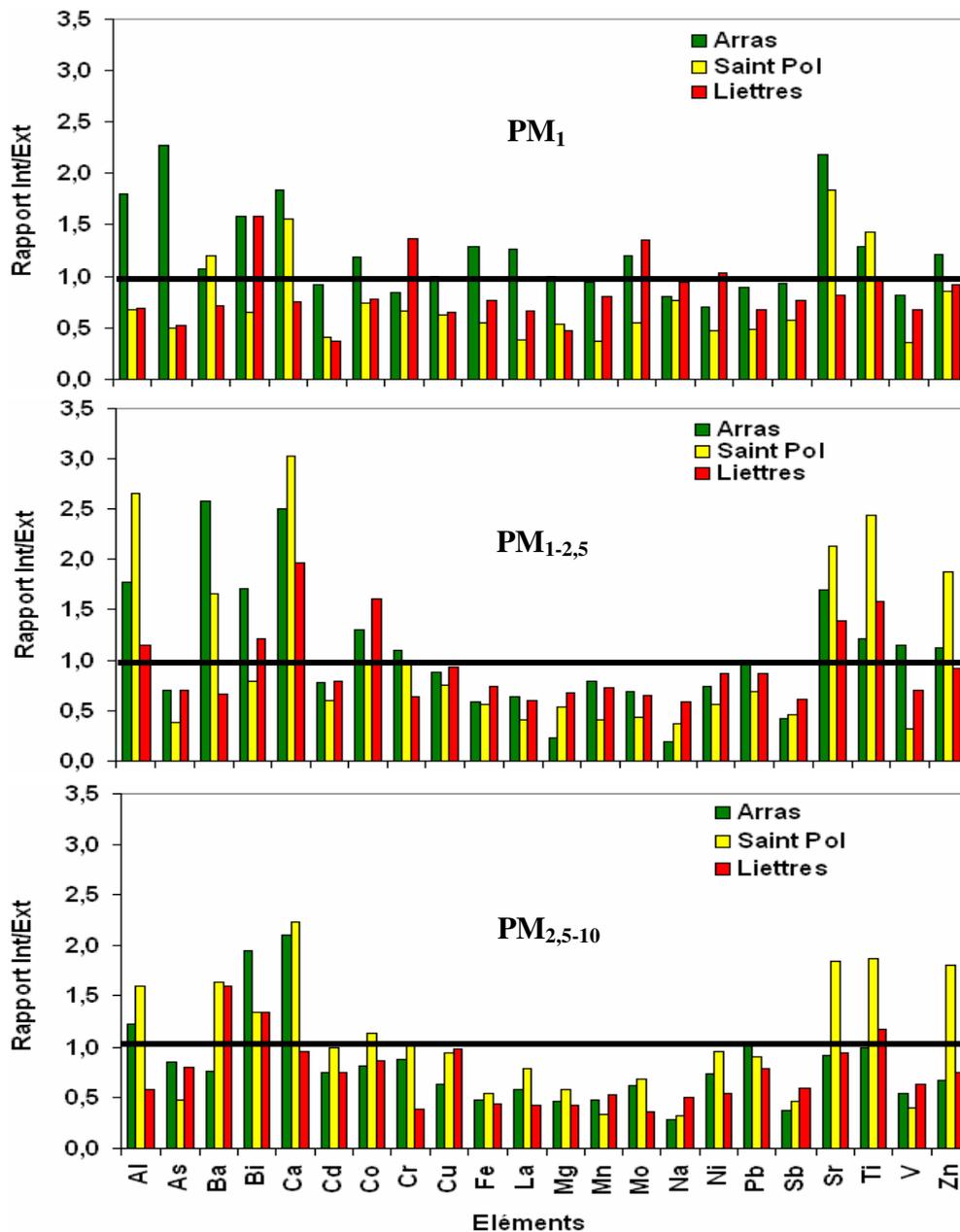


Figure 68 : Rapports élémentaires intérieur/extérieur des différentes fractions particulières en présence des enfants, calculés à partir des données exprimées en ng/ μ g.

Les ratios Int/Ext des éléments (Ca, Sr, Al et Ti) sont légèrement plus élevés dans les fractions $PM_{1-2,5}$ et $PM_{2,5-10}$ par rapport aux PM_1 (Figure 68). Concernant les autres éléments dans les fractions plus grossières ($PM_{1-2,5}$ et $PM_{2,5-10}$), leurs rapports Int/Ext sont globalement inférieurs à 1 et inférieurs à ceux dans la fraction la plus fine PM_1 . Cela suggère que les teneurs en ces éléments ne sont pas influencées par une source de particules intérieures par rapport à celles à l'extérieur des écoles.

En général, les éléments autres que Ca, Sr, Ti, Ba et Al présentent des rapports Int/Ext pour les fractions fines PM_1 et $PM_{1-2,5}$ plus faibles à l'école de Saint Pol sur Mer que dans les autres écoles. On estime que cela est sans doute dû aux concentrations plus élevées mesurées à l'extérieur de cette école.

L'effet de remise en suspension des grosses particules et l'utilisation de craie dans ces écoles contrôlent les ratios Int/Ext des éléments Ca, Sr, Ti, Ba et Al, en relation avec l'état de fermeture et d'ouverture de la porte et des fenêtres. A titre d'exemple, Liettes dont la porte est très souvent ouverte, présente globalement des ratios Int/Ext pour ces éléments inférieurs à ceux des deux autres écoles. On devrait également tenir compte de la fréquence et du type de craie utilisée dans les classes, une information difficile à maîtriser.

Quelques éléments traces présentent des rapports Int/Ext légèrement supérieurs à 1 à l'école d'Arras tels que Co, La, Mo dans la fraction PM_1 ; Zn dans les fractions PM_1 et $PM_{1-2,5}$; et Bi dans les trois fractions. Le Bi possède des rapports supérieures à 1 à Liettes et à Saint Pol sur Mer uniquement pour la fraction $PM_{2,5-10}$. Le Zn montre des ratios supérieurs à 1 pour les fractions plus grossières $PM_{1-2,5}$ et $PM_{2,5-10}$.

Cela est lié sans doute en partie à la faible quantité de ces éléments dans chaque fraction particulaire dans l'air intérieur et/ou extérieur. D'autre part, une contamination des échantillons est possible (souvent observée dans le cas du Zn à ces niveaux de concentration) pendant le prélèvement ou l'analyse au laboratoire (Rasmussen et al., 2007). Enfin, une source intérieure, provenant par exemple de peintures jaunes qui présentent souvent des quantités importantes de zinc est envisageable. Nous allons examiner l'existence de sources intérieures de ces éléments dans le paragraphe 7.2.2.

✓ Période en absence des activités scolaires :

Etant donné les faibles concentrations en particules grossières ($PM_{2,5-10}$) en absence des élèves, les teneurs élémentaires dans ces fractions sont très faibles. Nous n'avons donc pas exploité les données de cette fraction entachée d'une forte incertitude.

Comme on peut s'y attendre, en absence d'élèves (la nuit, le mercredi et le week-end), la plupart des rapports Int/Ext des éléments dans les fractions PM_1 , $PM_{1-2,5}$ des trois écoles sont inférieurs à 1, ceci est dû à l'absence de sources importantes de métaux dans les classes (Tableau 30).

Pour la fraction PM_1 , seul le Ca présente une valeur clairement supérieure à 1 à l'école d'Arras. Les ratios Int/Ext du Ca ont également été observés supérieurs à 1 pour la fraction $PM_{1-2,5}$ pour toutes les écoles (Tableau 30). Par ailleurs, les éléments Sr, Ti à Saint Pol sur Mer et Al à Liettes présentent des valeurs significativement supérieures à 1 pour la fraction $PM_{1-2,5}$. On peut associer cela à la remise en suspension des grosses particules par le balayage du sol après le départ des enfants et à la poussière de craie (fractions fines) restant encore dans l'air intérieur après la classe.

Tableau 30 : Tableau récapitulatif des rapports élémentaires Int/Ext des fractions particulières PM₁ et PM_{1-2,5} en absence des élèves dans les écoles.

Fractions	PM ₁			PM _{1-2,5}		
	Arras	Saint Pol/Mer	Liettres	Arras	Saint Pol/Mer	Liettres
Al	1,07	0,64	0,79	0,78	1,17	1,39
Ag	0,39	0,50	0,99	1,52	1,18	1,37
As	1,08	0,41	1,10	0,44	0,59	1,15
Ba	0,44	0,64	1,08	0,58	0,60	0,84
Ca	1,50	0,89	1,15	1,54	2,80	1,26
Cd	0,44	0,52	1,00	0,28	0,87	1,04
Co	0,63	0,62	0,87	0,73	1,10	1,04
Cu	0,48	0,39	1,09	0,31	1,01	1,00
Fe	0,94	0,36	1,20	0,48	0,58	1,20
K	0,38	0,92	1,10	0,26	0,32	1,04
Mg	0,36	0,50	1,03	0,14	0,38	1,30
Mn	0,79	0,40	0,70	0,45	0,34	1,00
Na	0,40	0,68	0,65	0,16	0,35	1,47
Pb	0,43	0,50	1,07	0,41	0,80	0,81
Sb	0,37	0,45	0,87	0,23	0,36	1,09
Sr	0,74	0,73	1,05	0,66	1,62	1,03
Ti	0,60	0,90	0,79	0,12	1,75	1,18
V	0,46	0,54	1,00	0,53	0,68	1,45
Zn	0,48	0,52	0,89	0,43	1,03	0,67

On constate que les éléments Na et V présentent des valeurs supérieures à 1 pour la fraction PM_{1-2,5} à l'école de Liettres. De même, le rapport Int/Ext de l'Ag est significativement supérieur à 1 pour cette fraction pour les écoles d'Arras et de Liettres. Deux hypothèses sont envisageable : (1) des concentrations proches des limites de détection (voir Annexe 8) pour la fraction PM_{1-2,5}, ou (2) la présence de sources de ces éléments à l'intérieur, bien que nous ne l'ayons pas mis en évidence dans la partie ci-après (facteur d'enrichissement des éléments dans l'air intérieur des écoles).

Globalement, les rapports Int/Ext élémentaires à l'école de Liettres présentent des valeurs plus proches de l'unité et plus élevées que les autres écoles en lien probablement avec l'étanchéité plus faible de cette école (voir dans le chapitre V, point 2).

Il existe très peu d'études publiées sur les concentrations en métaux dans l'air intérieur, notamment sur les rapports intérieur/extérieur élémentaires pour différentes fractions granulométriques et à notre connaissance aucune étude ne calcule des rapports élémentaires à partir de concentrations exprimées en ng/μg de particules. Nous comparerons donc ci-après nos résultats calculés à partir de concentration exprimée en ng/m³ d'air avec quelques études publiées pour les PM_{2,5} et les PM₁₀ (Tableau 31).

Notons que ces rapports Int/Ext en métaux peuvent varier d'une étude à l'autre étant donné les différences au niveau des activités à l'intérieur des locaux, de la perméabilité du bâtiment et des concentrations en métaux à l'extérieur (voir le cas de St Pol sur Mer).

Les rapports Int/Ext en Ca obtenus sont comparables avec l'étude de Fromme et al. (2008) menée dans des écoles où la craie est utilisée pendant la classe, mais sont plus élevés que les deux autres études (Wang et al., 2006; Gellet et al., 2002) dans lesquelles les particules sont prélevées pendant 24h (incluant donc des périodes sans activités humaines). Pour les autres éléments majeurs et terrigènes, nos résultats en présence des élèves sont plus élevés que ces études et proches des valeurs rapportées par Wang et al. (2006). Les éléments traces sont également comparables avec cette étude pré-citée.

Tableau 31 : Comparaison avec la littérature des rapports Int/Ext de différents éléments calculés à partir des concentrations exprimées en ng/m³.

Auteurs	Cette étude			Fromme et al. (2008)	Wang et al. (2006)	Gellet et al. (2002)
Site	St Pol/Mer	Arras	Liettres	Ecoles élémentaires, près de Munich, Allemagne	Hôpitaux, urbains, Chine	Résidences, Californie, Etats-Unis
Période	Pendant la classe			Pendant la classe	2 jours consécutifs	Journalier
Eléments						
Al	2,31	3,30	2,99		0,29	0,58
As	0,67	1,97	1,81		0,76	
Ca	3,52	2,84		1,4	0,41	0,68
Cr	0,95	4,5*	1,72		0,80	
Cu	1,40	1,56	3,57*		0,74	
Fe	0,74	1,17	2,34		0,39	0,38
K	2,51	3*	4,00		0,79	0,57
Mg	0,67	1,10	3,00	0,6	0,55	0,42
Mn	0,57	1,09	1,73*		0,42	
Na	0,58	0,55	1,27	0,9	0,35	
Ni	1,08	1,4*	1,79		0,75	
Pb	1,73	1,69	0,89		0,86	
Ti	3,53	3,10	4,72*		0,38	
V	0,67	0,97	0,93		0,75	
Zn	2,71	2,22	2,68			

* un seul échantillon a pu être analysé

7.2.2. Facteur d'enrichissement par rapport à des éléments provenant de l'extérieur

Les rapports élémentaires Int/Ext ne permettent pas de décrire dans toute sa complexité, la contribution relative des sources extérieures à la concentration élémentaire particulaire de l'air intérieur. En effet, en dehors de l'échange avec l'extérieur, plusieurs phénomènes interviennent au niveau des particules intérieures, que ce soit en présence ou en absence des élèves. Ainsi, la remise en suspension des particules, principalement les plus

grosses, est fortement affectée par les activités des enfants dans les classes comme détaillés précédemment.

Afin d'estimer la présence de sources de métaux dans les classes, nous avons calculé un facteur d'enrichissement (EF_{ext}) par rapport à un élément possédant une signature typique de l'air ambiant extérieur comme décrit par Koutrakis et al (1987). Le choix de l'élément de référence est effectué de manière à ce qu'il soit exclusivement émis par une source extérieure et que la taille des particules étudiées dans les classes soit comparable avec celle des particules extérieures contenant l'élément de référence, ici des fines particules. En effet, le calcul de l' EF_{ext} ne peut s'appliquer qu'aux petites particules PM_1 car la capacité de pénétration des grosses particules est très faible, induisant un biais dans le calcul de ce facteur d'enrichissement (Koutrakis et al., 1987).

Dans notre étude, nous utilisons Pb comme élément de référence, suivant en cela les travaux de Koutrakis et al. (1987). Le Ni, Zn, Se sont également de bons candidats car ces éléments sont associées aux très fines particules extérieures (inférieur à $1 \mu m$) et proviennent probablement de sources industrielles et/ou de combustion de carburant (Gellet et al., 2002; Morawska et Zhang, 2002).

La formule du rapport s'écrit comme suit :

$$EF(X) = \frac{(X/Y)_{int\acute{e}rieur}}{(X/Y)_{ext\acute{e}rieur}}$$

où X : élément étudié dans les PM_1

Y : éléments de référence (Ni ou Pb ou Sb)

$(X/Y)_{int\acute{e}rieur}$ et $(X/Y)_{ext\acute{e}rieur}$ sont respectivement le rapport de concentration de l'élément étudié et de référence dans l'échantillon d'air intérieur et leur rapport de concentration dans l'échantillon d'air extérieur.

De manière générale, les résultats obtenus pour différents éléments de référence sont comparables. Nous ne présentons donc ici que les résultats utilisant le Pb comme élément de référence, les EF_{ext} obtenus avec un autre élément de référence (Ni) sont reportés en Annexe 24. Afin d'estimer la présence de sources permanentes d'émission internes de métaux dans les classes, nous avons exploité les facteurs d'enrichissement obtenus en absence d'élèves (Tableau 32). La période en présence des enfants nous a permis d'évaluer également l'influence des activités scolaires (Annexe 25). Pour interpréter les résultats, nous avons suivi les recommandations en termes de valeurs limites du facteur d'enrichissement proposés par Koutrakis et al (1987). En considérant les limites de détection méthodologiques de chaque élément nous avons exclu de la base de données les éléments suivants : Ag, La, Mo dont les teneurs dans les PM_1 étaient très proches de ces limites.

Les éléments se classifient en trois groupes : les éléments possédant des EF_{ext} inférieurs à 1,3 sont associés à des sources extérieures, ceux possédant des EF_{ext} supérieurs à 2 sont associés aux sources intérieures et enfin, les EF_{ext} entre 1,3 et 2 correspondent aux éléments ayant des sources à la fois intérieures et extérieures.

En absence de toutes activités dans les classes, les particules intérieures proviennent soit de l'extérieur, soit de sources d'émission internes. De manière générale, tous les éléments traces (As, Cd, Co, Cu, Fe, Mn, Ni, Sb, Se, V, Zn) et les éléments majeurs tels que Al, Ba, Mg dans les classes de ces trois écoles présentent des EF inférieurs à 1,3 indiquant une origine principalement externe (Tableau 32). Les éléments enrichis dans la craie tels que Ca, Sr, et Ti (école de Saint Pol sur Mer) ; et Sr, Ti (école d'Arras) présentent, des valeurs entre 1,3 et 2 suggérant des sources également extérieures. Ces trois éléments se trouvent donc en grandes quantités dans les particules fines qui restent en suspension après le départ des enfants comme discuté précédemment. D'autres sources éventuelles pour ces éléments majeurs restent possibles mais ne sont pas détaillées dans la littérature.

Tableau 32 : Facteurs d'enrichissement hebdomadaires dans les PM₁ utilisant le Pb comme élément de référence, en absence des élèves (mesure sur deux semaines consécutives).

Ecole	Saint Pol sur Mer		Arras		Liettres	
	S1	S2	S1	S2	S1	S2
As	0,81	0,86	1,20	1,30	1,01	1,04
Ba	1,26	1,31	1,24	nd	1,60	0,68
Cd	1,29	1,26	0,97	1,10	0,91	0,96
Co	1,14	1,32	1,90	0,98	1,20	0,86
Cu	1,32	0,95	1,16	1,09	1,21	1,10
Mn	0,98	0,56	2,58	1,12	0,70	0,56
Ni	1,25	1,40	1,70	1,10	1,18	0,94
Pb	1,00	1,00	1,00	1,00	1,00	1,00
Sb	0,94	0,86	0,79	0,90	0,60	1,05
Se	0,32	0,64	0,87	0,85	0,55	0,77
Sr	1,65	1,25	2,34	1,12	1,22	0,88
Ti	2,00		2,27	0,76	0,73	0,40
V	0,96	1,30	1,23	0,91	1,05	1,01
Zn	1,15	0,94	1,20	0,85	0,70	1,04
Al	1,40	0,64	4,74	1,44	0,89	0,60
Ca	1,65	2,12	6,00	1,34	1,79	0,30
Fe	0,70	0,77	7,10	2,08	1,30	0,82
K	2,58	0,85	0,91	0,86	1,02	1,12
Mg	1,19	0,74	0,20	0,69	1,30	0,30
Na	1,50	1,03	1,01	0,86	1,40	0,61

S1 et S2 sont respectivement les valeurs de la Semaine 1 et Semaine 2; nd : non déterminé

Les trois éléments Al, Ca et Fe présentent, dans l'école d'Arras, des valeurs très élevées de EF_{ext} avec des variabilités importantes en lien avec la variabilité d'utilisation de la craie et de la remise en suspension des particules d'une semaine à l'autre.

En présence d'élèves, nous avons obtenu les mêmes résultats au niveau des sources intérieures de particules par rapport à la partie 7.2.1 (rapport Int/Ext des éléments). On identifie les éléments Al, Ca, Sr et Ti comme issus de sources intérieures aux écoles d'Arras et Saint Pol sur Mer, que l'on attribue à la craie et l'apport de poussières par les élèves

(chaussures, vêtements...). A Liettes, ces sources sont masquées étant donné le fort taux d'échange avec l'extérieur (Annexe 25).

Les autres éléments traces tels que As, Cd, Cu, Fe, Mg, Mn, Pb, Sb, Se, et V sont probablement issus de l'extérieur (les FE sont inférieurs à 1,3).

A ce stade, nous observons que les éléments Co, Na (EF_{ext} compris entre 1,3 et 2,2 à Arras et Saint Pol sur Mer) sont à la fois originaires de sources intérieures et extérieures. La source intérieure reflète sans doute une ou des sources, non clairement établies, liées à la présence des élèves qui entraîne une augmentation en ces éléments plus forte que l'élément de référence (Pb) dans l'air intérieur.

7.2.3. Rapport OC/EC à l'intérieur des écoles

Cette partie permet de mettre en évidence des sources d'émission et la transformation des aérosols carbonés dans l'air intérieur des écoles. La valeur 1,1 est utilisée dans l'étude de Castro et al. (1999) comme la limite inférieure indiquant la présence de composés organiques secondaires. Les données de l'école d'Arras ont été exclues dues à la contamination comme détaillé en partie 4.2.

Notre résultat montre qu'à Saint Pol sur Mer et Liettes, ce rapport est toujours supérieur à 1,1 pour les deux semaines consécutives. Il existe donc des sources d'OC dans les classes de ces écoles (Figure 69).

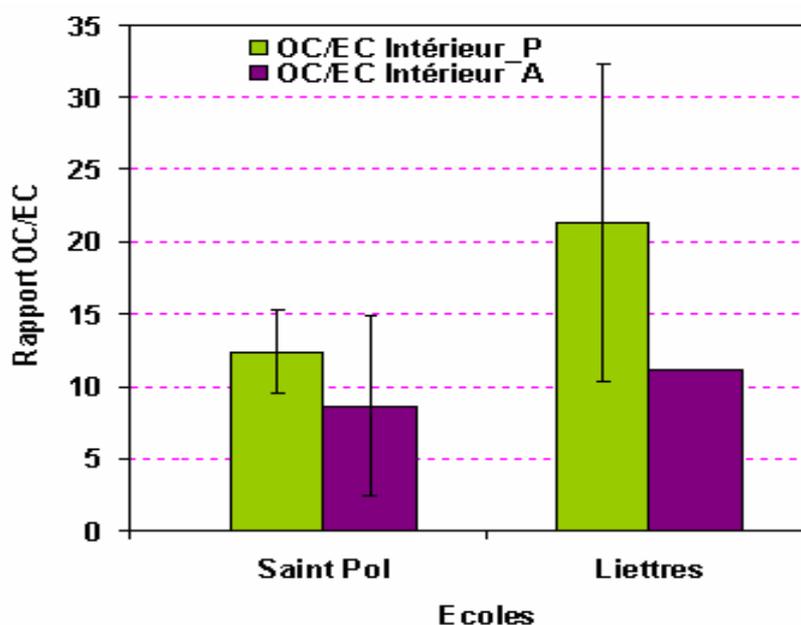


Figure 69 : Rapport OC/EC dans différentes écoles.

Nos rapports OC/EC dans les classes sont plus élevés que les valeurs publiées (de 1,5 à 4,5) par Ho et al. (2004) ou de l'ordre de 2,5 par Fromme et al. (2008) mais comparables avec les résultats (4,4-10,8) rapportés par Na et al. (2005) lors d'une étude menée dans des écoles aux Etats-Unis. Comme expliqué précédemment, cela pourrait être lié aux sources de OC dans la salle telles que l'utilisation de solvant pour le nettoyage (COV pouvant s'adsorber

sur les particules), la peinture, les activités physiques des enfants qui remettent en suspension des particules contenant de l'OC (manipulation des livres, des cahiers ou particules émises par leurs vêtements...). La remise en peinture de l'intérieur du bâtiment sur deux étages observée à l'école de Saint Pol sur Mer pendant la campagne et des travaux dans la salle adjacente de la salle étudiée à Liettes pourrait aussi être un facteur important pouvant entraîner l'augmentation du rapport OC/EC à l'intérieur du bâtiment de ces écoles.

8. Conclusion

Ce chapitre nous a permis de caractériser les particules de l'air intérieur et extérieur de trois écoles de la région Nord Pas de Calais selon leur distribution granulométrique au niveau de leur masse, de leur nombre, de leur composition élémentaire (EC, OC, black Carbon et métaux). Afin d'identifier des sources de particules à l'extérieur des écoles de différentes typologies (urbano-industrielle-littorale ; urbaine ; rurale), nous avons utilisé la classification hiérarchique et les rapports élémentaires caractéristiques de sources d'émission. Les sources de particules dans l'air intérieur des écoles ont été étudiées par l'analyse des rapports Int/Ext élémentaires et des facteurs d'enrichissement par rapport à un élément purement d'origine extérieure.

Caractérisation des particules de l'air intérieur et extérieur

Les concentrations des PM₁₀ à l'extérieur des écoles sont inférieures à la valeur limite de la moyenne sur 24h Européenne (50µg/m³) durant et hors période scolaire sauf à Saint Pol sur Mer en journée lié probablement à fois aux activités des enfants dans la cour et aux activités industrielles et urbaines proches de ce site. Dans les classes, ces teneurs sont toujours inférieures à la valeur de gestion journalière de l'OMS (50µg/m³) en absence des élèves mais la dépassent systématiquement en leur présence.

La présence des élèves et leurs activités dans les classes induisent une augmentation des grosses particules tandis qu'en leur absence, les fines fractions deviennent prépondérantes dans les PM₁₀ intérieures. En revanche, la répartition granulométrique des différentes fractions de PM₁₀ à l'extérieur est comparable d'une période à l'autre.

La présence des élèves et leurs activités dans les classes d'écoles sont également à l'origine de sources de OC qui se trouve principalement dans des fractions fines de particules et sans doute associée aux émissions de COV.

L'influence de la typologie géographique des sites étudiés sur les teneurs en métaux dans l'air est bien marquée à la fois à l'extérieur et l'intérieur des écoles. L'école de Saint Pol sur Mer (site industriel et urbain) présente des teneurs en différents éléments d'origine anthropique plus élevées par rapport aux autres écoles. Le trafic automobile est également identifié par des teneurs élevées en Sb et Cu aux écoles d'Arras et Saint Pol sur Mer.

Les éléments majeurs se trouvent principalement dans la fraction grossière PM_{2,5-10} tandis que les traces se trouvent majoritairement dans les fines fractions. Les éléments majeurs analysés dans cette étude représentent environ 7-10% de la masse des PM₁₀ de l'air

intérieur en présence d'élèves tandis que ces valeurs en leur absence chutent fortement (inférieur de 5%). A l'extérieur des écoles les pourcentages de ces éléments sont comparables d'une période à l'autre. Les éléments traces représentent environ 0,2-0,5% de la masse des PM₁₀ de l'air intérieur et extérieur.

L'augmentation de la masse des particules dans l'air intérieur en présence des élèves, notamment les grosses particules, entraîne une croissance relative des teneurs en métaux exprimées en ng/m³ dans l'air intérieur (rapports Int/Ext des éléments supérieurs à 1). Par contre, cela ne change pas clairement les teneurs en éléments traces exprimées en ng/μg de particules. Les teneurs en éléments majeurs (Ca, Ba, Al, Sr, Ti) des particules sont remarquablement liées à la source de craie et à l'apport des élèves par leur chaussures, vêtements...

Les enrichissements ou appauvrissements en éléments observés semblent le plus souvent en lien avec des processus physiques (vitesse de dépôt, filtration, remise en suspension, ...) en fonction de la distribution granulométrique et des sources extérieures de particules selon les écoles.

Les sources extérieures sont classées selon les écoles :

1. Ecole de Saint Pol sur Mer :

Cinq sources extérieures ont été identifiées :

- La source marine mise en évidence par la classification hiérarchique et caractérisée par les rapports Na/Mg et Sr/Mg, éventuellement affectés par d'autres sources de Sr et Mg dans la région.

- La source pétrochimique caractérisée par les éléments Ni, V et La, et un rapport Ni/V de $2,37 \pm 1$, lié à la combustion de pétrole. Ce rapport est en accord avec la littérature et très proche de la valeur rapportée par Lamaison (2006).

- La source transport automobile, corrélée aux éléments Cu, Sb et Zn, et caractérisée par un ratio Cu/Sb de $6,58 \pm 1$ en accord avec la littérature. Les mesures d'OC, EC sont également bien corrélées avec la source du trafic automobile.

- Une source anthropique probablement issue de la sidérurgie et de l'usine de ferromanganèse liée aux éléments Ca, Cd, Fe, Mn, Pb...

- La source naturelle corrélée aux éléments d'origine terrigènes Sr, Ti, Al, Ca...

2. Ecole d'Arras :

Quatre sources principales sont identifiées à l'extérieur de cette école :

- La source marine qui ressort de la classification hiérarchique et qui est caractérisée par les rapports Na/Mg et Sr/Mg plus ou moins affectés par d'autres sources de Sr et Mg de la zone.

- La source transport automobile, corrélée aux éléments Cu, Sb et Zn, et définie par le ratio Cu/Sb de $6,99 \pm 1,98$ en accord avec la littérature. Elle est également à l'origine de sources d'émission des EC, OC.

- La signature de sources anthropiques liées aux Fe, Mn, Mo, Ni, Pb n'étant pas fortement marquée, ces sources n'ont pas pu être clairement attribuées.
- La source naturelle corrélée aux éléments d'origine terrigènes Sr, Ti, Al, Ca...

3. Ecole de Liettes :

Les sources industrielles de particules pour cette école située en milieu rurale sont non significatives et ne sont pas clairement mises en évidence par la Classification Hiérarchique. Par contre, les sources de trafic automobile (Cu, Sb) et naturelle (Sr, Ca, Al, Ti) sont bien marquées. Le rapport élémentaire Cu/Sb de la source automobile est de $5,75 \pm 1,83$, comparable aux deux écoles précédentes. La source d'aérosols marins est également présente à l'extérieur de cette école. Les teneurs en EC, OC sont bien corrélées et sont probablement issues de la source de combustion de biomasse et du trafic automobile local.

Les sources de particules dans l'air intérieur des classes :

De manière générale, en absence d'élèves à l'intérieur des bâtiments de ces écoles, on n'observe pas de sources d'émission significatives de particules. En absence d'activités scolaires, les particules proviennent donc principalement de l'extérieur dont la fraction la plus fine peut pénétrer facilement et rester longtemps en suspension.

En présence des élèves, les sources intérieures en éléments majeurs (Ca, Al, Sr et Ti) sont liées à l'utilisation de craie pendant la classe et à l'apport de grosses particules par les enfants lors de leurs déplacements. Ces sources ont été clairement mises en évidence dans les écoles d'Arras et de Saint Pol sur Mer.

Les échantillons de l'école de Liettes ne font pas ressortir de sources intérieures significatives de particules, étant donné l'échange important d'air avec l'extérieur pour cette classe très ventilée (nombreuses fissures aux murs, portes souvent ouvertes).

Aucune source intérieure importante d'éléments traces métalliques n'est identifiée dans les trois écoles. Par contre, les sources de composés organiques (OC) sont plus remarquables à l'intérieur des classes en lien, d'une part, avec les activités des enfants et d'autre part avec des émissions permanentes intérieures de sources importantes de COV (peinture, immobilier, matériaux de construction...).

Répartition des éléments métalliques dans différentes fractions granulométriques :

Globalement, les teneurs des éléments traces pour différentes fractions granulométriques dans l'air intérieur sont relativement comparables à celles dans l'air extérieur. On peut donc imaginer une répartition similaire de ces éléments dans les particules intérieures et extérieures. Autrement dit, les sources intérieures et les activités des enfants dans les classes ne changent pas significativement la répartition des éléments métalliques dans les différentes fractions particulières.

**CHAPITRE V : MODELISATION DU
COMPORTEMENT DYNAMIQUE DES
PARTICULES DANS L'AIR INTERIEUR**

Dans ce chapitre, nous présentons les différentes étapes d'application d'un modèle déterministe monozone permettant de prévoir l'évolution des concentrations en masse de particules de différentes granulométries en fonction des concentrations extérieures, des conditions de ventilation, des activités des élèves dans la classe.

Nous discutons, dans un premier temps, du développement du modèle monozone sous l'environnement Matlab 7.11. Puis, nous présentons les résultats de détermination des paramètres du modèle (p , α , λ , et G) obtenus à l'aide des mesures de terrain effectuées lors des campagnes 2009. Les résultats issus des tests de sensibilité, de calage et de robustesse ainsi que la validation du modèle sont détaillés dans la suite du chapitre. Finalement, nous présentons les résultats d'application du modèle pour des jeux de données de PM_{10} provenant d'autres écoles de la région Nord Pas de Calais collectées lors de la campagne 2008. Les perspectives associées à ce type de modélisation du transfert extérieur-intérieur des particules dans les écoles sont alors évoquées.

D'un point de vue technique, un modèle fonctionnant pour les concentrations en masse de particules, peut également être utilisé pour des données de concentrations en nombre de particules. Les plus basses limites de détection des compteurs à particules devraient alors permettre une meilleure résolution du modèle pour les fines particules. Les concentrations en masse de particules étant réglementées en air extérieur et possédant des valeurs guides en air intérieur, nous avons préférentiellement travaillé avec les teneurs en masse, les résultats présentés dans ce chapitre correspondant uniquement à ce cas.

1. Du développement à l'application du modèle sur Matlab 7.11

Comme abordé dans le point 6 du chapitre II, ce travail a consisté à développer un modèle simple qui fonctionne avec des jeux de données issues de mesures facilement accessibles, mais donnant des résultats en termes de concentrations en particules prévues avec des marges d'erreurs acceptables. Ce modèle doit notamment pouvoir modéliser l'évolution de la concentration en particules pendant la classe, donc en présence des occupants, sachant que :

- La variation des teneurs en particules est liée à des phénomènes physiques complexes en lien avec les activités des enfants et l'état d'ouverture et de fermeture de la porte et des fenêtres,
- L'information en termes d'exposition des personnes aux risques sanitaires est la plus importante,
- La modélisation en présence des élèves dans une classe n'a, à notre connaissance, pas encore été publiée.

La construction du modèle numérique se base sur des données acquises sur une période de 2 semaines consécutives à l'école d'Arras et sur la définition du modèle conceptuel

à partir des phénomènes physico-chimiques décrits dans le chapitre II. La démarche globale de la construction à l'application du modèle monozone retenue est présentée sur la Figure 70. L'équation du bilan de conservation en masse (Équation 30 au chapitre II) pour des particules fines (0.5-2 μm) et grossières (2-10 μm) doit être résolue pour différentes conditions spécifiques (ex : état stationnaire) sous l'environnement Matlab 7.11. Le détail de cette programmation sera présenté ci-après. Une fois le modèle établi, des tests de sensibilité vis-à-vis de la variation de paramètres constants du modèle sont réalisés. Un calage du modèle avec les valeurs optimales des paramètres du modèle est ensuite effectué afin d'établir le modèle définitif. La robustesse du modèle vis-à-vis de la variation de paramètres mesurables dans chaque école tels que la concentration extérieure en particules, le taux de renouvellement d'air est alors testée sur le modèle final (Figure 70).

L'étape de validation du modèle développé à partir des données de l'école d'Arras est effectuée avec des données validées de l'école de Saint Pol sur Mer. Il s'agit en effet de faire fonctionner le modèle développé à Arras avec ses paramètres optimaux en utilisant des données d'entrée de concentration en particules à l'extérieur et de taux de renouvellement d'air mesurées à l'école de Saint Pol sur Mer. Les concentrations en particules dans l'air intérieur prévues par le modèle sont alors comparées avec les concentrations mesurées dans cette école.

Le modèle ainsi validé est appliqué pour modéliser l'évolution des concentrations en particules fines et grossières dans les classes d'autres écoles échantillonnées lors de la campagne 2008. Pour cette application, nous utiliserons, comme données d'entrée, des mesures de concentration en particules collectées en 2008 par Atmo Nord Pas de Calais dans l'air ambiant extérieur et nous comparerons les concentrations en particules dans l'air intérieur calculées et mesurées. Cette dernière étape peut être considérée comme une validation du modèle dans des conditions réelles d'utilisation par des AASQA (Associations Agréées Surveillance de la Qualité de l'Air) par exemple.

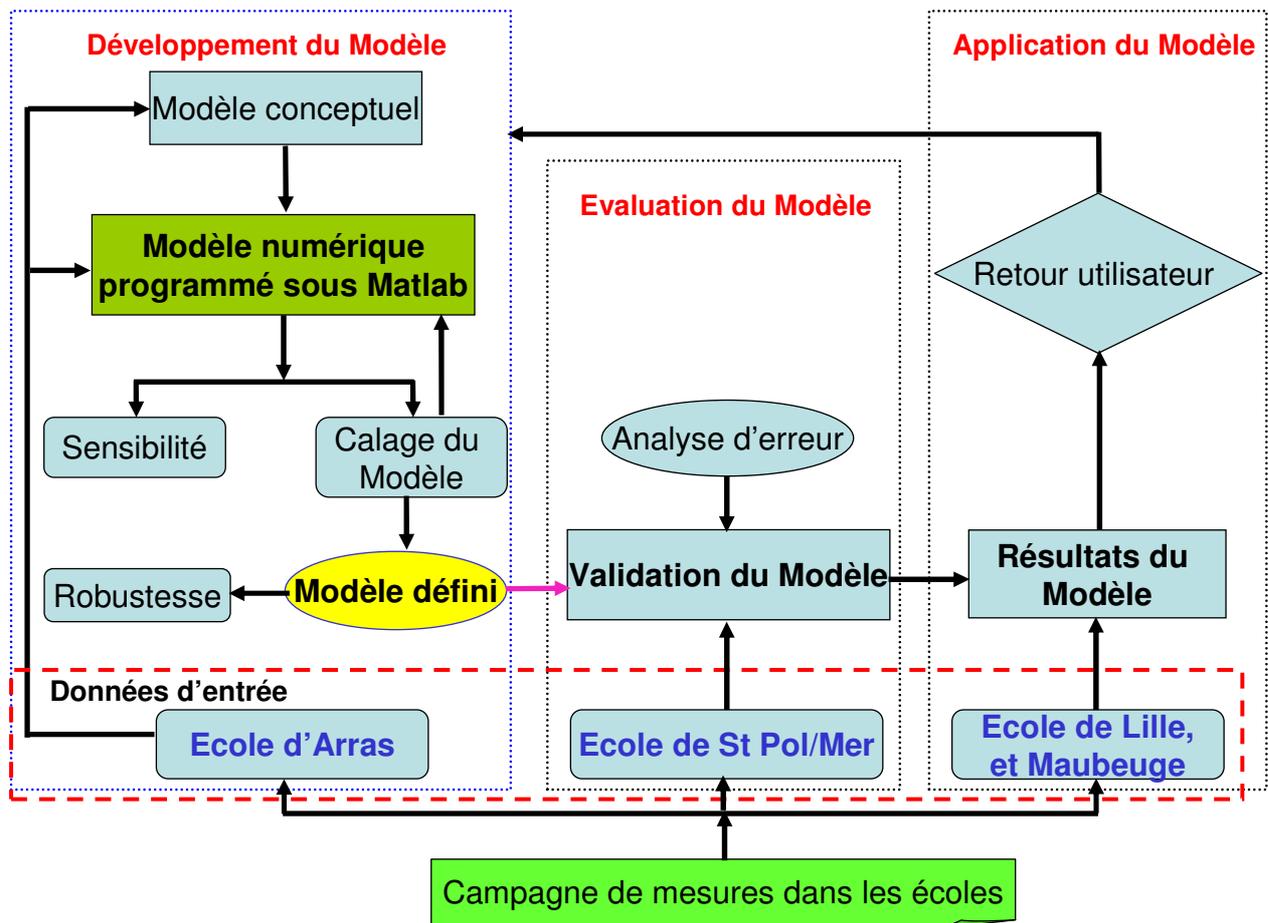


Figure 70 : Démarche globale de la construction à l'application du modèle monozone (adapté de EPA, 2009).

La programmation développée sur Matlab a pour but de modéliser l'évolution des concentrations en particules en fonction du temps pendant les périodes en présence des élèves (les jours de classe), et celles en leur absence (tous les soirs, nuits et week-ends). Ces deux types de période présentent des comportements très différents au niveau des processus physico-chimiques influençant la teneur en particules dans les classes. Pour cela, des résolutions des équations différentielles du bilan de masse ont été effectuées sous Matlab pour des conditions spécifiques telles que l'état stationnaire, l'état transitoire.

La procédure de programmation est globalement décrite en Figure 71. Seules les données de concentrations intérieures et extérieures massiques des particules à l'école d'Arras sont fournies sous la forme d'un tableau contenant n lignes et p colonnes. Les n lignes correspondent aux n données d'entrée des variables et les p colonnes aux paramètres du modèle suivants :

- Les concentrations en particules à l'extérieur de l'école C_{ext} ($\mu\text{g}/\text{m}^3$),
- Le taux de renouvellement d'air α (h^{-1}),
- Le facteur de pénétration p (sans dimension),
- Le taux de dépôt λ (h^{-1}),
- La vitesse de génération des particules G (mg/h),

- La surface du sol où il y a remise en suspension des particules S (m²),
- L'ensemble des surfaces de dépôt des particules A (m²),
- Le volume de la salle V (m³).

On ajoute une colonne étiquette pour les jours du lundi au dimanche de façon à ce que le lundi corresponde à 1 jusqu'au dimanche qui correspond à 7.

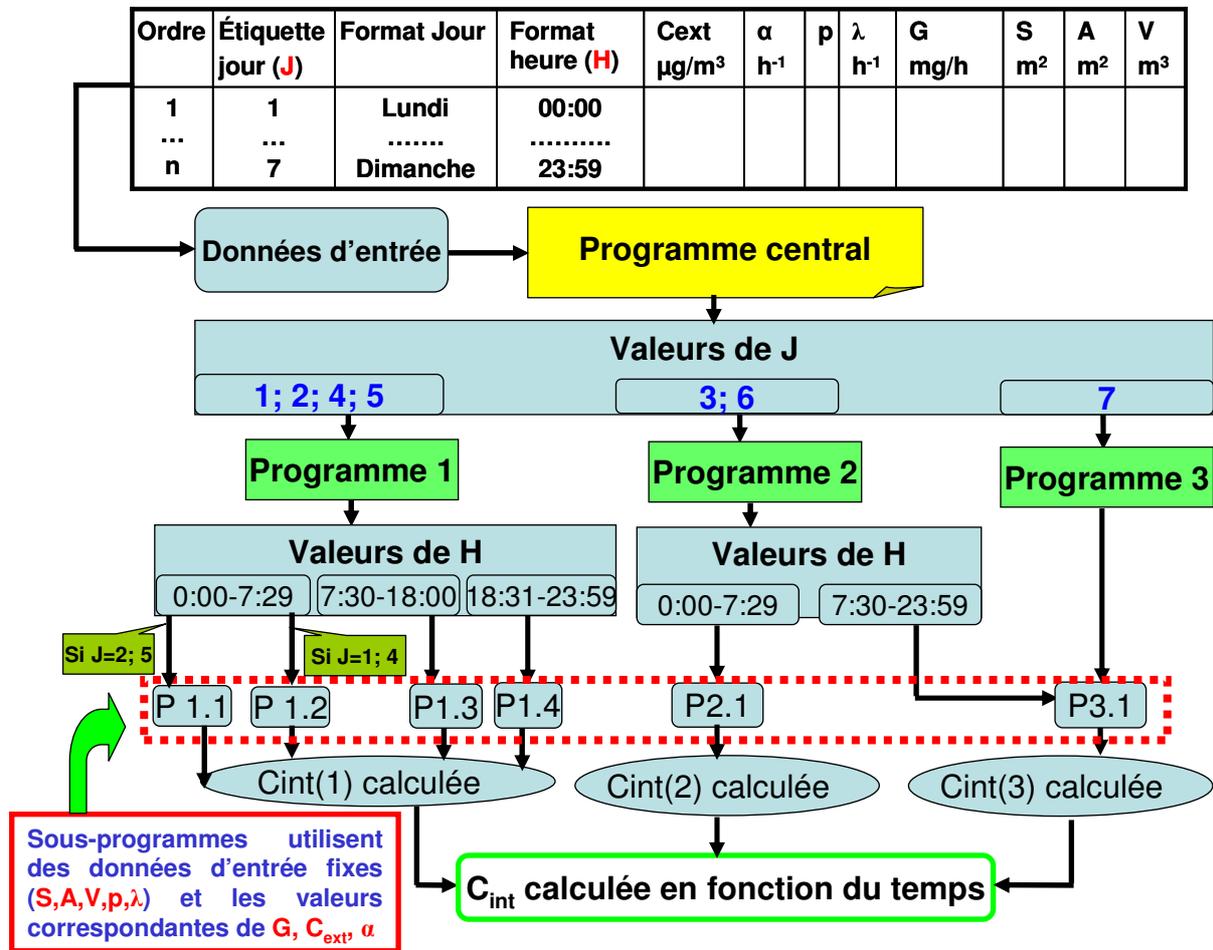


Figure 71 : Flow chart de la programmation sur Matlab.

Le programme central cherche, dans un premier temps, l'étiquette du jour dit J. Si J est égal à 1 ; 2 ; 4 ; ou 5 correspondant au Lundi, Mardi, Jeudi ou Vendredi (jours de classe), le programme central lance un programme dit Programme 1 afin de rechercher les données d'entrée correspondantes (Figure 71). Si J est égale à 3 ou 6 (Mercredi ou Samedi), un Programme 2 entre en fonction avec les données d'entrée correspondantes. Finalement, un Programme 3 est lancé avec les données d'entrées correspondantes si J est égale à 7 (Dimanche).

Dans le Programme 1, selon la période du jour (valeur de l'étiquette de l'heure H) et selon le jour (valeur de l'étiquette J), Matlab lance des sous programmes du Programme 1 avec les données d'entrée correspondantes. À titre d'exemple, si les valeurs de H se trouvent dans la gamme de 7h30 à 18h (durant la classe), le sous Programme P1.3 sera lancé ; Si les

valeurs de H se trouvent dans la gamme de 18h01 à 23h59 (après la classe), le sous Programme P1.4 est mis en route (Figure 71).

A ce stade, il faut comprendre que les périodes de 0h00 à 7h29 des différents jours de la semaine dans le groupe du Programme 1 présentent différents comportements au niveau des teneurs en particules dans l'air intérieur qui sont liés aux activités des enfants la veille. Concrètement, le lundi (J = 1) et le jeudi (J = 5) sont uniquement influencés par des phénomènes de pénétration et de dépôt des particules. Par contre, le mardi et le vendredi (J = 2 ou 6) sont également influencés par le dépôt résiduel des particules en suspension lié aux activités des enfants la veille (le lundi et jeudi). Ainsi, selon les jours de la semaine, pour la période de 0h00 à 7h29, le Programme 1 appellera le sous programme P1.1 pour le mardi ou le vendredi (J = 2 ou 5) et le sous programme P1.2 pour le lundi ou le jeudi (J = 1 ou 4) comme présenté en Figure 71.

De même, le Programme 2 lancera le sous programme P2.1 pour la période de 0h00 à 7h29 ou le sous programme P3.1 pour la période de 7h30 à 23h59 selon le jour J et l'heure H traité par le programme central. (Figure 71). Le sous programme P3.1 fonctionne également pour les données d'entrée correspondant à J=7 (le dimanche).

Notons ici que tous les sous programmes P1.1 , P1.2 , P1.3 , P1.4 , P2.1 et P3.1 utilisent soit des paramètres fixes du modèle tels que le volume V de la pièce étudiée (m^3), la surface du sol (m^2), le facteur de pénétration p, le taux de dépôt λ (h^{-1}), soit des valeurs variables en fonction du temps, comme la vitesse de génération G (mg/h) et le taux de renouvellement d'air α (h^{-1}).

Toutes les valeurs de concentration en particules intérieures (correspondant à chaque période) calculées par les différents sous programmes sont placées par ordre chronologique dans un vecteur où le nombre d'espaces est égal au nombre de données de concentration en particules extérieures (chaque valeur de concentration en particules extérieures donne une valeur correspondante en particules intérieures dans la classe) (Figure 71).

Le pas de calcul pour le modèle des concentrations en PM dans l'air intérieur C_{int} correspond au plus petit pas de temps des variables donc ici une minute pour la mesure des concentrations en PM extérieures C_{ext} à l'aide de compteurs Grimm.

2. Résultats de détermination des paramètres du modèle

2.1. Détermination du taux de renouvellement d'air α

Le taux de renouvellement d'air peut être déterminé par la méthode de traceur CO_2 ou par la méthode de pression différentielle (norme ISO 9972). L'échange d'air avec l'extérieur pendant la période en absence des élèves est contrôlé par les caractéristiques intrinsèques de la classe (la perméabilité). En présence d'élèves, cet échange est dû à la fois à la perméabilité de la classe et à l'état d'ouverture/fermeture de la porte et des fenêtres.

A Liettes, la porte est fréquemment ouverte pendant la classe (campagne ayant eu lieu pendant une période chaude) permettant au vent de souffler directement dans la salle de

classe. On observe donc des concentrations souvent faibles en CO₂ émis par la respiration pendant la classe et une décroissance très rapide après la classe. Il ne nous a donc pas été permis de mesurer le débit d'air échangé avec l'extérieur par la méthode des traceurs gazeux. D'autre part, cette école présente de nombreuses fissures et trous sur les murs et autour des fenêtres ainsi qu'au niveau du plafond. La méthode par pression différentielle qui nécessite de mettre en surpression ou en dépression la salle n'a donc pas pu être utilisée également. Nous avons donc éliminé les données de cette école.

Nous présentons donc ci-après les résultats obtenus à Arras et St Pol pendant la période en absence des élèves (après la classe, à partir de 18h30) et en leur présence (de 8h45 à 16h45 les jours de classe).

2.1.1. Comparaison des deux méthodes *en absence* des élèves

2.1.1.1. Méthode du traceur CO₂

Les taux de renouvellement d'air moyens en absence des élèves à l'école d'Arras et de Saint Pol sur Mer sont respectivement de $0,09 \pm 0,02 \text{ h}^{-1}$ (nombre de mesures = 35) et $0,10 \pm 0,02 \text{ h}^{-1}$ (nombre de mesures = 39). Rappelons que les volumes des salles étudiées sont assez similaires avec 216 m^3 (Arras) et 210 m^3 (Saint Pol sur Mer).

Ces résultats sont comparables avec ceux reportés par Guo et al. (2008) lors d'une étude menée dans une école en Australie, où en absence d'élèves, la porte et les fenêtres fermées, le taux de renouvellement est relevé à $0,12 \pm 0,04 \text{ h}^{-1}$. Leur étude sur l'impact du régime de ventilation sur la vitesse d'échange d'air et les concentrations en polluants dans les classes d'écoles montre que la vitesse d'échange d'air est maximale ($7,92 \text{ h}^{-1}$) à l'ouverture de fenêtres et lors de la mise en route de ventilateurs au plafond et du climatiseur (Guo et al., 2008). Cette valeur est minimale ($0,12 \text{ h}^{-1}$) lors de la fermeture des fenêtres et de la porte, et de l'arrêt des ventilateurs du plafond et du climatiseur. Man et Yeung. (1999) ont rapporté des vitesses d'échange d'air dans des bâtiments qui varient peu (de $0,096$ à $0,2 \text{ h}^{-1}$) à chaque étage quand la fenêtre est fermée. Par contre, ces valeurs varient de façon significative entre les étages en fonction des différents régimes de fermeture/ouverture des fenêtres (Chao, 2001). L'étude de Williams et al. (2003) a également montré que la vitesse d'échange d'air sur 24h dans 37 maisons varie de façon significative : de $0,05$ à $4,87 \text{ h}^{-1}$.

L'étude de Kirchner et al. (2003) montre également que parmi 13 écoles étudiées en France, six présentent des valeurs de débit d'air neuf inférieures à $0,5 \text{ m}^3/\text{h}/\text{personne}$. Si l'on considère que chaque classe renferme 25 élèves pour un volume de l'ordre de 200 m^3 , ces écoles présentent donc des taux de renouvellement d'air inférieurs à $0,07 \text{ h}^{-1}$, calculés selon la relation $Q = \alpha.V$ (voir chapitre II, partie 4.5).

Cette méthode est également appliquée afin de calculer le taux de renouvellement d'air à midi lorsque les élèves sortent déjeuner et que les portes et fenêtres restent souvent fermées. De même, on peut l'utiliser pendant la récréation (cas où les portes sont ouvertes) en supposant que tous les élèves sortent de la classe. Concrètement, nous calculons le taux de renouvellement d'air à partir du moment où les élèves sortent de la classe mais pendant une

courte période (de quelques minutes à une quinzaine de minutes) pour limiter la contribution du CO₂ émis par les élèves éventuellement encore présents dans la salle. Ce calcul permet surtout d'estimer le taux de renouvellement d'air portes ouvertes, sachant que les valeurs d' α dans ce cas sont très élevées et assez variables. Les résultats de taux de renouvellement d'air pendant la récréation, et à midi sont présentés ci-après en partie 2.1.2.

2.1.1.2. Méthode de pression différentielle

Le principe de cette méthode ainsi que les étapes afin de déterminer les débits d'air neuf traversant une seule façade pendant la période en absence des élèves sont détaillés au chapitre II, paragraphe 6.2.1.2. Ces débits d'air sont ensuite convertis en taux de renouvellement d'air α à l'aide de la relation : $Q = \alpha \cdot V$.

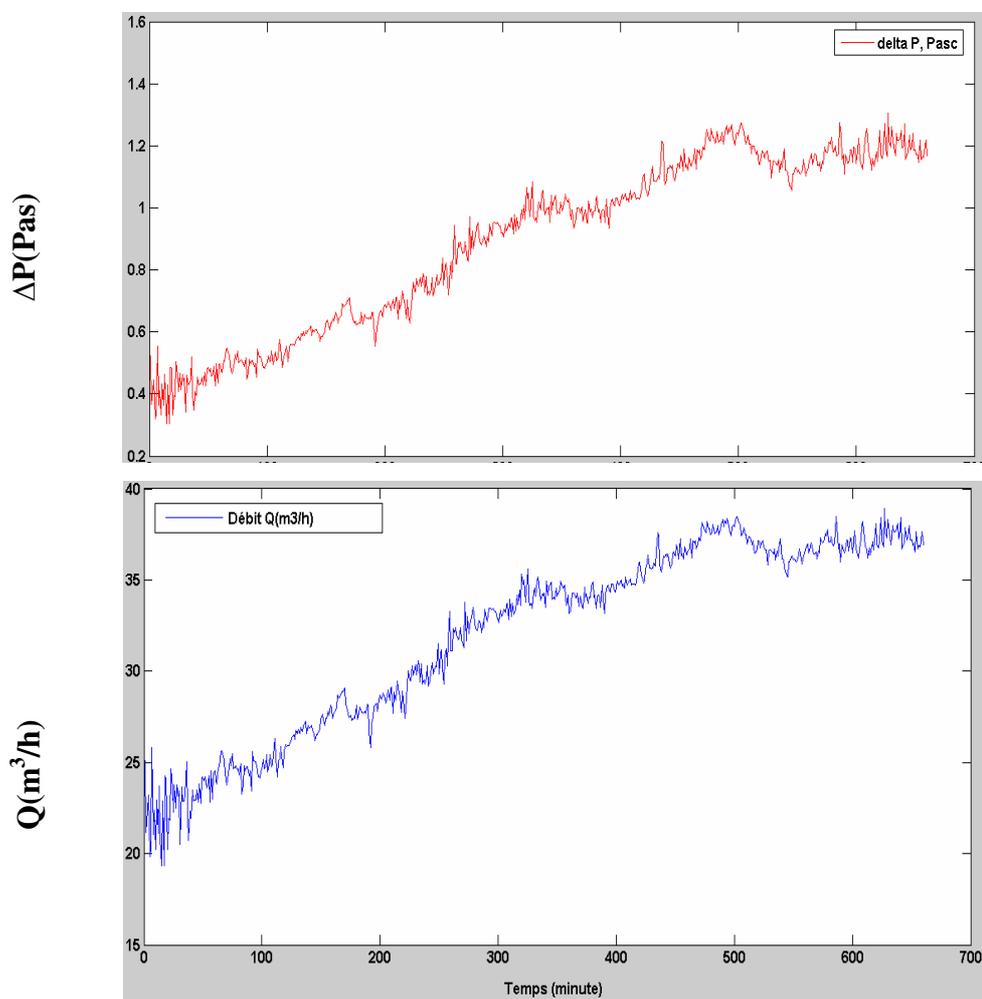


Figure 72 : Différence de pression mesurée (ΔP) entre la salle et l'extérieur et débit d'air calculé (Q) traversant la façade à l'école d'Arras la soirée du lundi 18/05/2009.

Les équations permettant de calculer le débit d'air neuf Q à partir des données de différence de pression entre l'intérieur et l'extérieur des classes lorsque la salle est en dépression ou en surpression sont fournis en Annexe 12.

La Figure 72 propose un exemple de détermination du débit d'air neuf Q obtenu par la méthode de pression différentielle effectuée à l'école d'Arras la soirée du lundi 18/05/2009.

Nous n'avons pu effectuer que 3 calculs correspondant à 3 nuits du débit d'air neuf en absence des élèves à l'école d'Arras et 3 autres à l'école de Saint Pol sur Mer car plusieurs nuits présentaient des valeurs de ΔP très variables (négatives et positives) où les conditions n'étaient pas stables : l'air sortait et entraît alternativement dans la salle étudiée. Nous avons employé uniquement des périodes où le ΔP était positif (air entrant dans la salle) pour pouvoir les comparer avec la méthode du traceur CO_2 .

Le Q moyen (donc α moyen) est calculé sur les cinq premières heures après le départ des élèves pour pouvoir comparer avec le taux de renouvellement d'air selon la méthode de décroissance du CO_2 appliquée à la même période.

Tableau 33 : Comparaison du taux de renouvellement d'air α (h^{-1}) estimé par deux méthodes.

Ecole	Taux de renouvellement d'air α (h^{-1})	
	Méthode décroissance du traceur CO_2 (n=36)	Méthode de pression différentielle (n=3)
Arras	0,09	0,13
St Pol/Mer	0,10	0,16

n : nombre de mesures

Comme l'indique le Tableau 33, les taux de renouvellement obtenus par la méthode de pression différentielle sont relativement comparables avec ceux obtenus par la méthode du traceur CO_2 à l'école d'Arras et de Saint Pol sur Mer.

Notons que les deux méthodes ne sont pas tout à fait identiques d'un point de vue méthodologique puisque le traçage par CO_2 prend en compte les échanges avec les pièces adjacentes et pas uniquement celui traversant la façade. Plusieurs phénomènes physiques (écoulement d'air, échanges avec d'autres pièces...) influencent différemment ces deux procédures. La méthode de pression différentielle permet une plus grande résolution temporelle et une meilleure estimation de l'air frais extérieur entrant mais ne permet pas d'estimer le débit d'air neuf en présence des élèves (ouverture des portes et des fenêtres).

Nous avons donc utilisé par la suite la méthode du traceur CO_2 pour calculer le taux d'échange d'air pendant la période en présence (méthode ASHRAE) et en absence (méthode de décroissance du CO_2) des élèves pour la partie de modélisation.

2.1.2. Taux de renouvellement d'air α dans les classes d'Arras et de St Pol sur Mer

La méthode ASHRAE 1993 décrite dans le chapitre II (paragraphe 6.2.1.2) a été utilisée afin de déterminer le taux de renouvellement d'air α en présence des élèves dans la classe.

Le Tableau 34 met en évidence différentes valeurs de taux de renouvellement d'air pour différents scénarios. On constate que pendant la classe, les deux écoles d'Arras et de Saint Pol sont relativement bien ventilées (0,8 et 1,22 h⁻¹). Ces valeurs d' α correspondent aux régimes de ventilation moyens de 7,9 m³/h/élève à Arras et de 9,9 m³/h/élève à Saint Pol sur Mer, comparable dans la plupart de cas, aux écoles en France (Kirchner et al., 2003). L'étude menée par Santamouris et al. (2008) dans 27 écoles en Grèce montre également des résultats similaires avec un débit d'air neuf moyen d'environ 10,8 m³/h/élève dans les écoles où il n'y a pas de VMC.

Tableau 34 : Taux de renouvellement d'air α (h⁻¹) estimé par le traceur CO₂.

Situation	Arras	Saint Pol sur Mer	Méthode	N. mesures
Pendant la classe	0,80±0,25	1,22±0,25	ASHRAE	(n=25)
Pendant la récréation	3,37±1,24	2,15±1,10	Décroissance du CO ₂	(n=25)
Le midi	0,43±0,25	0,20±0,10	Décroissance du CO ₂	(n=6)
En absence des élèves	0,09±0,02	0,10±0,02	Décroissance du CO ₂	(n=36)

Il faut noter cependant que la méthode ASHRAE prend en compte plusieurs hypothèses telles qu'une vitesse de génération du CO₂ identique pour chaque élève, un échange avec l'extérieur et pas avec les salles adjacentes. Ces approximations pour calculer le taux de renouvellement d'air induisent probablement un biais.

Les taux de renouvellement d'air dans ces écoles pendant la récréation sont assez élevés mais aussi variables. Ils présentent des valeurs de 2 à 3 fois supérieures à celles pendant la classe, environ 9 à 10 fois plus élevés que celles à midi et de 20 à 30 fois plus élevées que celles en absence des élèves (Tableau 34). Il s'agit d'échange avec l'extérieur par les portes et fenêtres, donc fortement dépendants des conditions météorologiques (vent). A midi, les enfants sortent pour déjeuner et les salles sont fermées la plupart du temps. Le manque d'informations validées sur l'état d'ouverture/fermeture des portes et fenêtres dans ces écoles ne nous permet pas d'aller plus loin dans l'interprétation des données mais les valeurs d' α relativement faibles et peu variables confirment cette hypothèse. Enfin, les taux de renouvellement d'air obtenus pendant la période en absence d'élèves (soirs, nuits et week-ends) présentent les valeurs les plus faibles, liées à la fermeture des portes et fenêtres.

2.2. Détermination des paramètres d'entrée λ , p et G

2.2.1. Détermination du taux de dépôt λ

Les résultats de taux de dépôt pour différentes tailles de particules dans les écoles d'Arras et de Saint Pol sur Mer sont présentés en Figure 73. Comme on pouvait s'y attendre, les particules ayant un diamètre élevé voient leur taux de dépôt augmenter. Cela est dû au phénomène de gravité qui domine le mécanisme de dépôt des particules supérieur à 0,3 μm (Lai, 2002; Thatcher et al., 2002; He et al., 2005; Hussein et Kulmala, 2008) tandis que pour

les particules ultrafines ($< 0,1 \mu\text{m}$), le taux de dépôt est gouverné par la diffusion Brownienne (Nazaroff, 2004; He et al., 2005; Hussein et Kulmala, 2008). Le taux de dépôt est minimal (voir Figure 74) pour la gamme des particules de $0,1$ à $0,3 \mu\text{m}$ où le mécanisme de dépôt est le moins influencé par la diffusion due au mouvement Brownien et par la force de gravité (Lai et Nazaroff, 2000; Nazaroff, 2004; He et al., 2005).

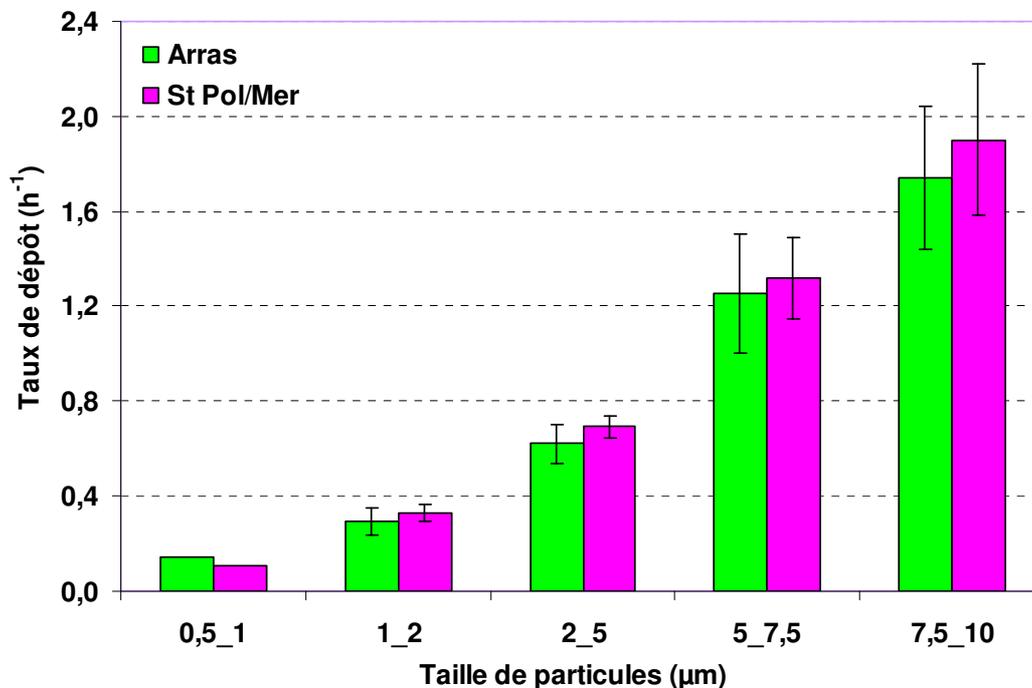


Figure 73 : Taux de dépôt calculés pour différentes tailles de particules dans les écoles d'Arras et de Saint Pol sur Mer.

Le taux de dépôt des particules dépend également de plusieurs facteurs tels que le taux de renouvellement d'air, la turbulence de l'air intérieur, les sources d'émission des particules, et la rugosité des surfaces des matériaux (Lai et Nazaroff, 2000; Abadie, 2002; Thatcher et al., 2002). D'autres phénomènes tels que des effets de champ électrostatique, la rugosité de la surface intérieure de la salle étudiée, l'intensité de la turbulence du flux d'air intérieur jouent également un rôle plus ou moins important selon les cas (Lai, 2002).

Les résultats sont comparables d'une école à l'autre, et très proches des travaux publiés dans la littérature. Par exemple, pour la fraction de $1-2 \mu\text{m}$ nos taux de dépôt sont respectivement de l'ordre de $0,29 \text{ h}^{-1}$ et $0,32 \text{ h}^{-1}$ pour l'école d'Arras et de Saint Pol sur Mer, en cohérence avec les valeurs de la littérature pour cette fraction qui varient dans la gamme de $0,2-0,5 \text{ h}^{-1}$ (Figure 73).

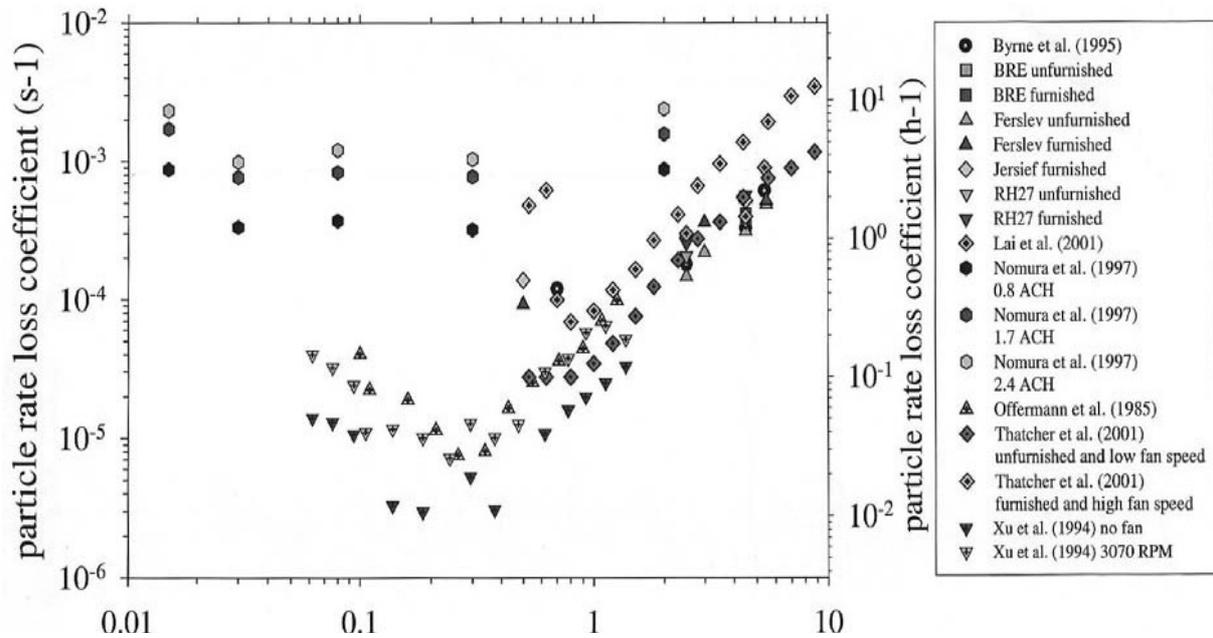


Figure 74 : Taux de dépôt selon les différentes tailles de particules (Lai, 2002).

Afin d'alimenter le modèle pour la suite de ce chapitre, nous avons également déterminé les taux de dépôt pour la fraction fine PM (PM_{0,5-2} μm), pour la fraction grossière (PM₂₋₁₀ μm) ainsi que pour les PM₁₀ (0,5-10 μm). Les résultats à l'école d'Arras et de Saint Pol sur Mer sont respectivement 0,25 et 0,29 h⁻¹ pour les fines PM ; 0,77 et 0,81 h⁻¹ pour la fraction grossière ; 0,71 et 0,74 h⁻¹ pour les PM₁₀.

Les taux de dépôt pour les différentes fractions particulières sont ensuite convertis en vitesse de dépôt pour chaque fraction particulière en utilisant l'équation suivante :

Équation 51 :
$$\lambda_d = \frac{\lambda \cdot V}{A}$$

où λ_d est la vitesse de dépôt de particules (m/h) ; V et A sont respectivement le volume de la salle étudiée (m³) et l'ensemble des surfaces permettant la déposition des particules (m²). Les valeurs estimées (la somme des surfaces planes : sol, tables, chaises, armoires, ...) de A à l'école d'Arras et de Saint Pol sur Mer sont environ de 200 m². Dans cette étude, les ratios V/A à l'école d'Arras et de Saint Pol sur Mer sont respectivement de 1,1 et 1,05 m. Les résultats obtenus sont reportés dans le Tableau 35.

Tableau 35 : Vitesses de dépôt (m/h) des différentes fractions particulières.

Fraction particulaire (μm)	Vitesses de dépôt (m/h)	
	Arras	St Pol sur Mer
	(N. de mesures : 6)	(N. de mesures : 8)
0,5-1	0,15±0,05	0,12±0,06
1-2	0,32±0,06	0,35±0,04
2-5	0,67±0,06	0,74±0,05
5-7,5	1,35±0,20	1,41±0,17
7,5-10	1,87±0,30	2,47±0,40
0,5-2	0,27±0,04	0,32±0,04
2-10	0,83±0,09	0,87±0,06
0,5-10	0,77±0,07	0,79±0,05

Ces résultats sont comparables avec l'étude de Chao et al. (2003) qui indique, par exemple, une vitesse de dépôt moyenne de 0,11 m/h pour des particules de 0,54 à 0,78 μm mais avec un ratio $V/A \approx 0,45$ m. Ce ratio V/A peut avoir un impact significatif lorsque l'on considère les vitesses de dépôts λ_d plutôt que les taux de dépôt λ .

2.2.2. Détermination du facteur de pénétration p

Nous avons calculé les facteurs de pénétration pour les grosses (2-10 μm) et fines (0,5-2 μm) particules et les PM_{10} (0,5-10 μm) car les teneurs de chaque fraction (0,5-1 ; 1-2 ; 2-5 ; 5-7,5 ; 7,5-10 μm) étaient trop faibles à l'état d'équilibre dans les salles après le départ des élèves. Cela aurait pu introduire des erreurs dans les calculs du facteur de pénétration pour les plus petites tranches granulométriques. Les facteurs de pénétration pour les grosses et fines particules calculées selon la procédure détaillée au chapitre II sont reportés en Figure 75.

Comme on peut s'y attendre, les grosses PM pénètrent dans la salle plus difficilement que les fines lié aux mécanismes d'interception et d'impaction (Chao et al., 2003; Nazaroff, 2004). Les particules ayant des diamètres aérodynamiques dans la gamme de 0,1 à 1 μm pénètrent au contraire plus facilement. En dessous de cette taille, leur capacité de pénétration diminue à cause du mécanisme dominé par la diffusion Brownienne (Nazaroff, 2004).

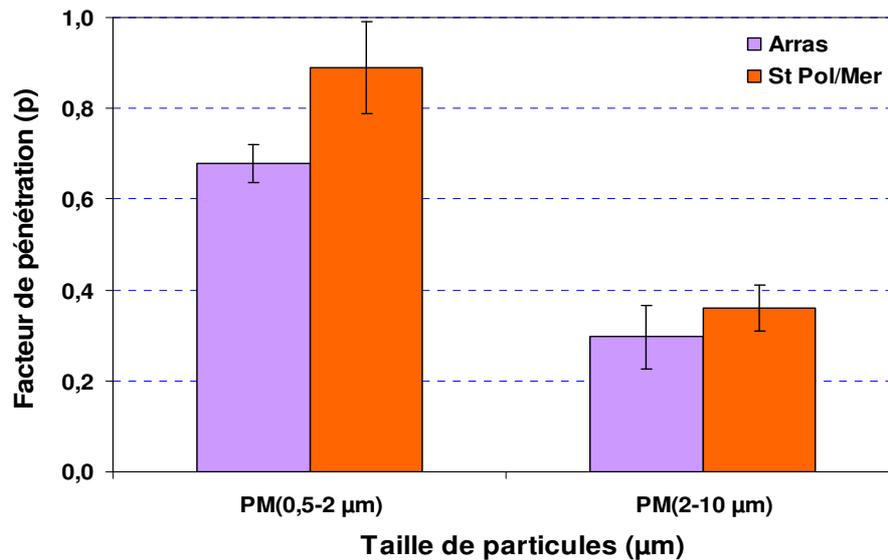


Figure 75 : Facteur de pénétration dans les écoles d'Arras et de Saint Pol sur Mer.

L'étude de Thatcher et al. (2003) menée dans 2 maisons Californiennes relève que les fines PM présentent des facteurs de pénétration de l'ordre de 0,8-0,9, contre 0,68 (Arras) et 0,89 (Saint Pol sur Mer) dans notre cas, sachant que le facteur de pénétration dépend fortement de la perméabilité du bâtiment. Pour les PM_{10} , les facteurs de pénétration à Arras et à Saint Pol sur Mer sont respectivement de 0,6 et de 0,75 contre 0,48 pour les $PM_{8,7}$ selon Thatcher et al. (2003). Plusieurs études menées sur le facteur de pénétration p mesuré in situ sont résumées dans l'étude de Olea Popescu (2009). Globalement, les valeurs de p peuvent varier de 0,25 à 0,8 pour les $PM_{2,5}$ et de 0,1 à 0,9 pour les PM_{10} .

2.2.3. Détermination de la vitesse de génération G

Le terme vitesse de génération de particules G combine à la fois la vitesse de remise en suspension liée à la masse de particules déposées au sol et celle d'émission intérieure des particules (chapitre II). L'utilisation de G nous permet de modéliser l'évolution de la concentration des particules dans la classe des écoles en présence et en absence des élèves.

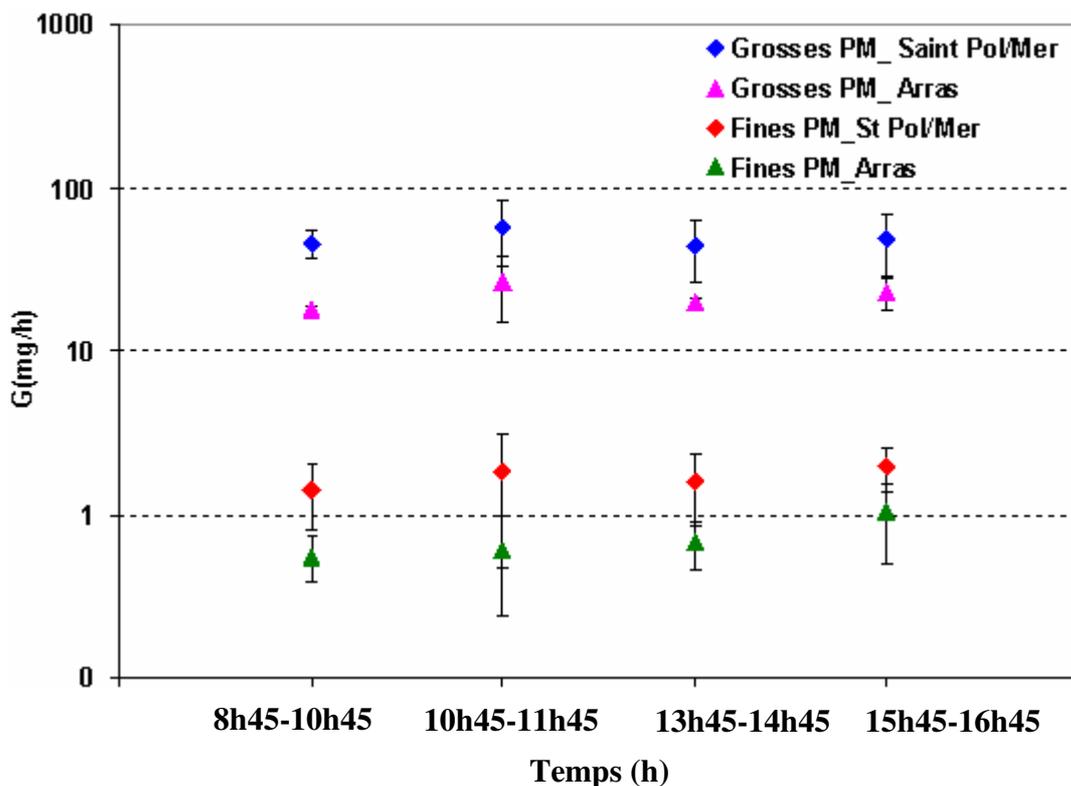


Figure 76 : Vitesse de génération des particules à différentes périodes de la journée pendant la classe (en présence des élèves).

La Figure 76 montre que les vitesses de génération G des grosses PM dans les écoles d'Arras et de Saint Pol sur Mer sont remarquablement plus élevées que pour les fines PM et qu'elles varient assez fortement d'un jour à l'autre. D'après le Tableau 36, G varie pour les grosses PM de 15,1 à 39,7 mg/h à l'école d'Arras et de 44,8 à 82 mg/h à l'école de Saint Pol sur Mer. Ces valeurs, beaucoup plus faibles pour les fines PM, vont de 0,49 à 1,53 mg/h à Arras et de 0,9 à 2,55 mg/h à Saint Pol sur Mer.

On remarque également que les G moyens pour les grosses et fines PM à l'école de Saint Pol sur Mer sont toujours supérieurs à ceux d'Arras. Cela est cohérent avec le nombre d'élèves à Saint Pol sur Mer plus nombreux qu'à Arras : 27 contre 23 en moyenne et lié, peut être, aux activités plus intenses et fréquentes à Saint Pol sur Mer qu'à Arras car les sols de ces deux écoles sont similaires (carrelage). Notons ici que la fréquence de nettoyage à l'école d'Arras est comparable avec celle de Saint Pol sur Mer (4 fois par semaine).

Pour une école donnée, les valeurs de G pour les grosses PM semblent ne pas être significativement variables d'une période à l'autre pendant une journée de classe. Cela suggère que les activités des enfants dans la classe et les conditions d'aération pour une journée donnée sont relativement stables.

Tableau 36 : Distribution statistique de G à différentes périodes pendant la classe (nombre de périodes de calcul : 20 pour l'école d'Arras et 32 pour l'école de Saint Pol sur Mer).

Ecole		8h45-10h15	10h45-11h45	13h45-14h45	15h45-16h40
Arras	Grosses PM G (mg/h)				
	Min	17,5	17,4	19,0	15,1
	Moyen	18,1	26,5	19,7	22,7
	Max	19,0	39,7	20,9	26,2
	Ecart-type	0,8	11,7	1,0	5,0
	Fines PM G (mg/h)				
	Min	0,44	0,11	0,49	0,5
	Moyen	0,55	0,60	0,67	1,03
	Max	0,64	1,53	0,91	1,40
	Ecart-type	0,17	0,36	0,22	0,53
St Pol/Mer	Grosses PM G (mg/h)				
	Min	32,0	41,0	32,0	33,0
	Moyen	45,7	58,0	44,8	49,2
	Max	59,2	82,0	67,6	71,0
	Ecart-type	9,2	24,9	18,4	20,0
	Fines PM G (mg/h)				
	Min	0,95	0,90	1,10	1,45
	Moyen	1,41	1,83	1,59	1,94
	Max	1,89	2,50	2,40	2,55
	Ecart-type	0,62	1,35	0,73	0,58

3. Comparaison de l'évolution des concentrations en particules intérieures mesurées et calculées par le Modèle à l'école d'Arras

Après avoir calculé les paramètres d'entrée du modèle p , λ , G et α , nous avons utilisé des valeurs moyennes pour chaque paramètre et introduit les concentrations en particules de l'air extérieur dans le modèle pour calculer la variation temporelle des concentrations en grosses PM (Figure 77) et fines PM (Figure 79) à l'intérieur. Nous avons comparé ces valeurs calculées avec celles mesurées dans la classe de l'école d'Arras.

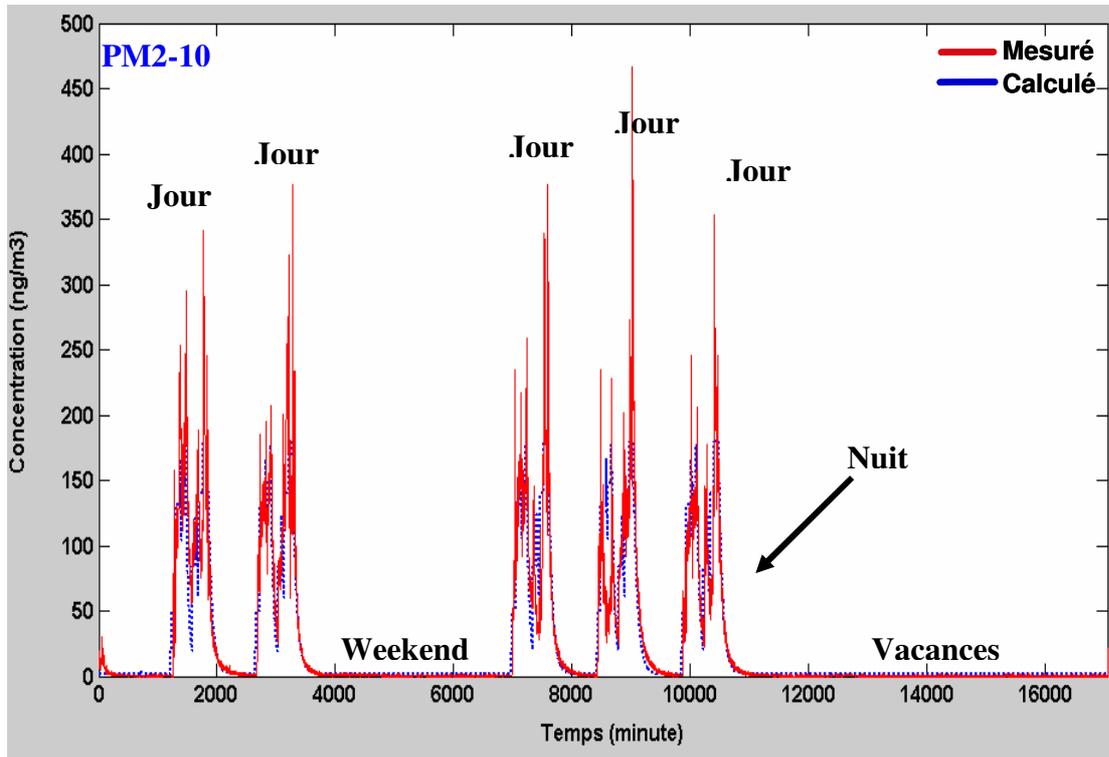


Figure 77 : Comparaison l'évolution de concentration en grosses PM entre la mesure et le modèle à l'école d'Arras.

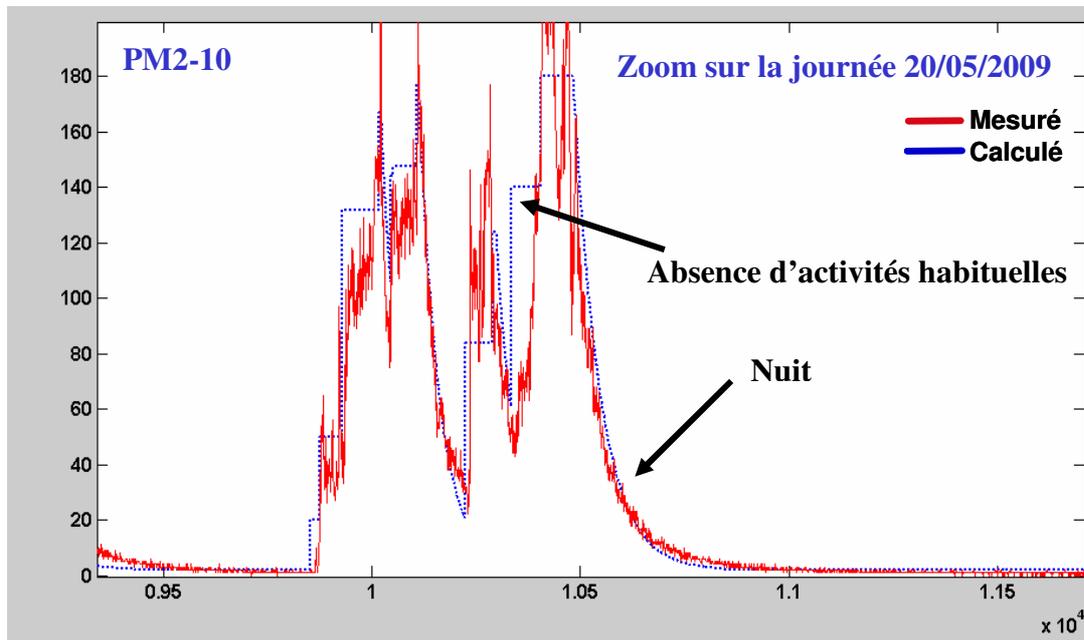


Figure 78 : Zoom sur l'évolution de concentration en grosses PM mesurée et prédite par le modèle à l'école d'Arras, journée 20/05/2009.

L'évolution des concentrations en grosses et fines particules prédites par le modèle est visiblement proche de celle mesurée dans la salle de classe, notamment pendant la période de décroissance en absence des élèves où il y a peu de phénomènes influençant les teneurs en particules (principalement la vitesse de dépôt). En présence des élèves, où les teneurs en

particules sont fortement variables, liées aux activités des enfants, le modèle rend bien compte des augmentations rapides des teneurs en PM mais avec un écart pour les grosses et fines PM visible notamment en absence d'activités scolaires habituelles (sous-activités) ou lié à des activités inaccoutumées (sur-activités) dans la salle (Figure 77, 78, 79 et 80).

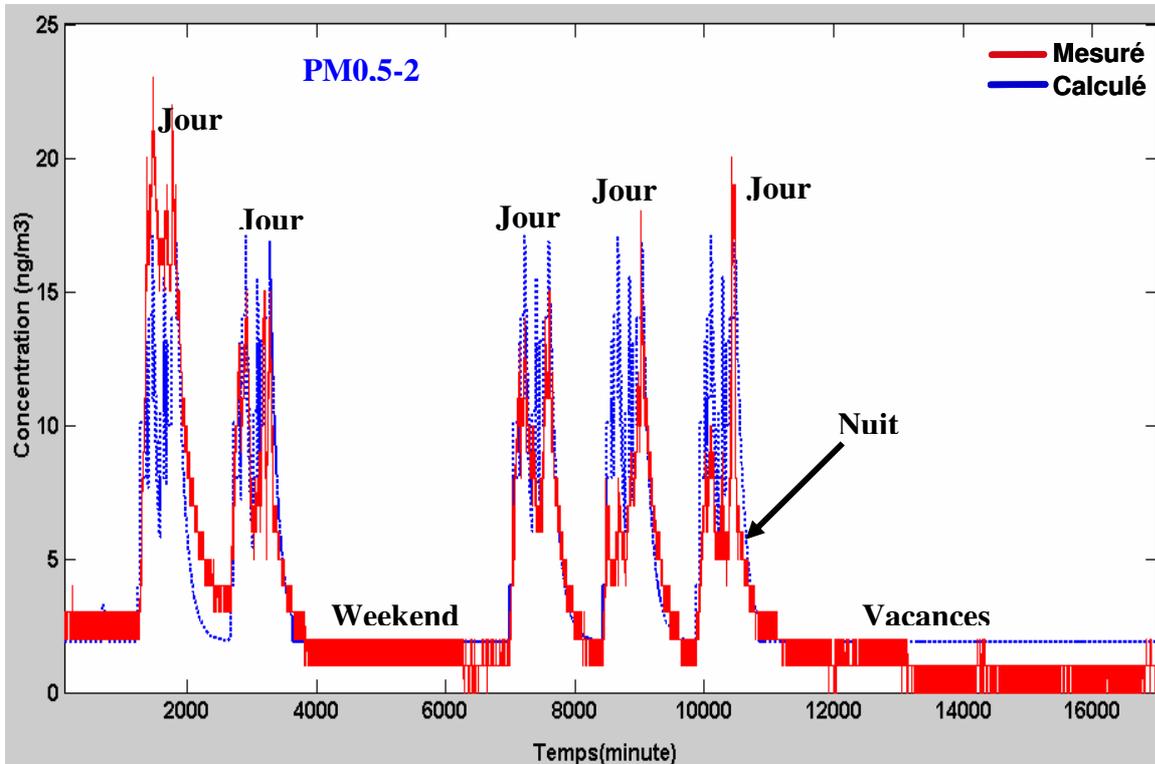


Figure 79 : Comparaison de l'évolution de concentration en fines PM entre la mesure et le modèle à l'école d'Arras.

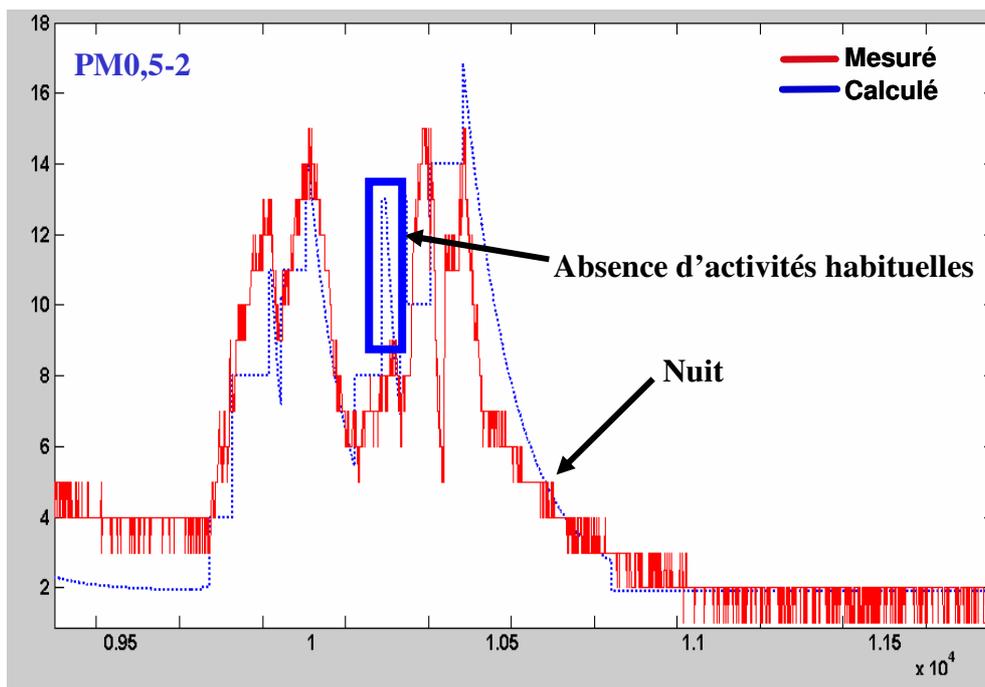


Figure 80 : Zoom sur l'évolution de concentration en fines PM mesurée et prédite par le modèle à l'école d'Arras, journée 20/05/2009.

Pour les fines PM, la limite de détection de l'appareil de comptage (GRIMM) entraîne également un biais notamment la nuit lorsque les teneurs sont proches de 0.

Nous allons analyser plus finement ci-après la comparaison entre le modèle et la mesure lors des analyses de sensibilité, de calage et de robustesse du modèle suivi par la validation du modèle.

4. Tests de sensibilité, calage et robustesse du modèle

Dans cette partie, les données de l'école d'Arras seront utilisées pour comparer avec les valeurs calculées à l'aide du modèle aux valeurs mesurées.

4.1. Tests de sensibilité du modèle

Nous avons réalisé des tests de sensibilité aux paramètres du modèle p , λ , et G pour une gamme de taille de particule donnée. L'évolution des concentrations calculées par le modèle correspondant à chaque changement de valeurs de ces paramètres ont été comparées avec la mesure par l'intermédiaire d'analyses statistiques :

Nous avons sélectionné les paramètres statistiques tels que l'Erreur Normalisée Moyenne (EN), la Racine Carrée de l'Erreur quadratique moyenne (RMSE ou Root Mean Square Error) et le Biais Moyen (BM) comme les principaux critères permettant d'interpréter les comparaisons entre le modèle et la mesure. Ils sont définis comme suit :

$$\text{Équation 52 : } EN = \frac{\sum_{i=1}^n |C_{\text{int}(\text{calculé})} - C_{\text{int}(\text{mesuré})}|}{\sum_{i=1}^n C_{\text{int}(\text{mesuré})}} \cdot 100$$

$$\text{Équation 53 : } RMSE = \sqrt{\frac{1}{n} \cdot \sum_{i=1}^n (C_{\text{int}(\text{calculé})} - C_{\text{int}(\text{mesuré})})^2}$$

$$\text{Équation 54 : } BM = \frac{1}{n} \cdot \sum_{i=1}^n (C_{\text{int}(\text{calculé})} - C_{\text{int}(\text{mesuré})})$$

Parmi ces critères, l'EN est largement utilisée dans la littérature et sera considéré comme le critère déterminant dans toutes les interprétations de ce travail (Eder et al., 2007; Yu et al., 2007). Notons ici que les valeurs de p , et de λ pour les grosses et fines PM reportées dans le Tableau 37 adoptent une gamme de valeurs souvent publiées dans la littérature. Les valeurs de G pour les grosses et fines PM sont celles calculées à l'école d'Arras.

Notons ici qu'une forte variation de l'erreur normalisée moyenne (EN) lorsque l'on fait varier un paramètre considéré traduit une grande sensibilité du modèle vis à vis de ce paramètre. Il ressort que le modèle est très sensible à la variation de G , peu sensible à celle de λ , et très peu sensible à p pour les grosses et fines PM. En effet, l'erreur normalisée moyenne (EN) varie de 29,3 à 53,3% pour les grosses PM et de 35,6 à 55,5% chez les fines PM vis-à-

vis de la variation des G (du G_{\min} au G_{\max}). Elle varie de 31 à 39% et de 35,5 à 41% pour les grosses et fines PM respectivement lors de la variation des λ , et de seulement 29,1 à 29,3% et de 35,3 à 35,5% dans le cas de la variation de p. On remarque que la sensibilité vis-à-vis de la variation des paramètres du modèle est comparable pour les fines et les grosses PM.

Les valeurs de Biais Moyen négatives et positives observées reflètent les sous-estimations et surestimations du modèle vis à vis des valeurs mesurées.

Tableau 37 : Analyses statistiques (Biais Moyen, Erreur Normalisée Moyenne et Racine Carrée de l'Erreur Quadratique Moyenne) de l'écart entre le modèle et la mesure.

Variation des paramètres	BM ($\mu\text{g}/\text{m}^3$)		RMSE ($\mu\text{g}/\text{m}^3$)		EN (%)	
	PM0,5-2	PM2-10	PM0,5-2	PM2-10	PM0,5-2	PM2-10
p = 0,1 – 1	0,68 – 0,74	2,7 – 2,9	3,3 – 3,4	28,8 – 28,9	35,3 – 35,5	29,1 – 29,3
$\lambda = 0,4 - 2$ (h^{-1})		-7,0 – 6,9		30,7 – 35,1		31 – 39
$\lambda = 0,2 - 1$ (h^{-1})	-0,4 – 1,1		3,3 – 3,6		35,5 – 41	
G =15,1 – 39,7 (mg/h)		-19,2 – 23,5		29,6 – 51,6		29,3 – 53,3
G =0,55 – 1,53 (mg/h)	-2,7 – 2,4		3,3 – 5,5		35,6 – 55,5	

4.2. Calage du modèle

Il s'agit de faire varier les paramètres du modèle dans une large gamme de valeurs représentatives des conditions rencontrées comme pour les tests de sensibilité. La valeur optimale de chaque paramètre correspond au plus faible écart obtenu entre les valeurs mesurées et celles calculées par le modèle. Les résultats de calage du modèle pour les paramètres p, λ , et G sont reportés en Figure 81, 82 et 83.

La Figure 81 met en évidence des valeurs du facteur de pénétration p optimales pour les grosses et fines PM respectivement de l'ordre de 0,9 et 0,4. En dessous et au dessus de ces valeurs, le modèle obtient une EN plus importante vis-à-vis de la mesure.

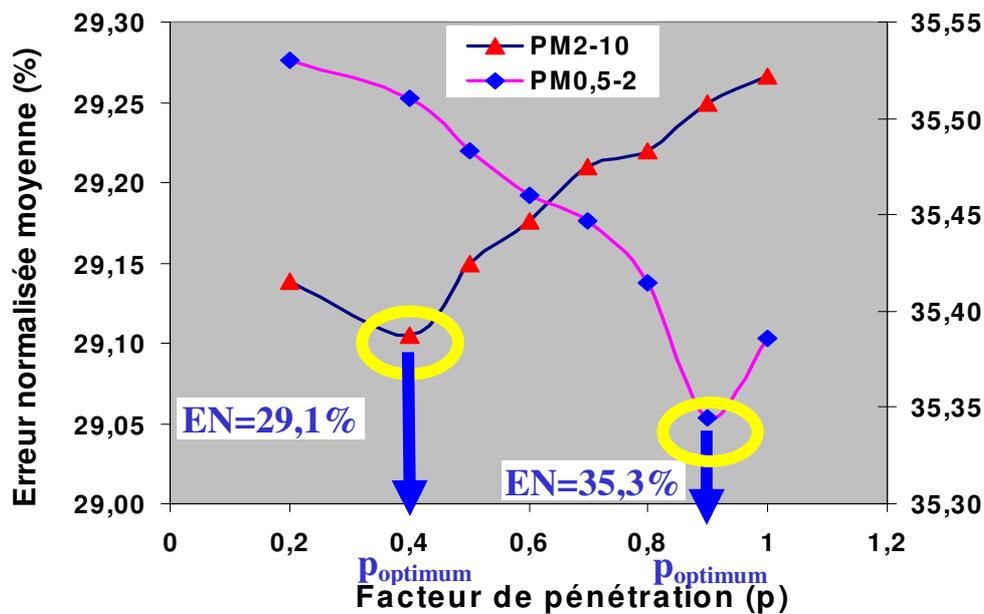


Figure 81 : Comparaison entre la mesure et le modèle concernant l'évolution des concentrations en fines et grosses PM en fonction du paramètre p à l'école d'Arras.

De même, la Figure 82 révèle des valeurs optimales du taux de dépôt λ pour les grosses et fines PM respectivement de 0,8 et 0,3 h^{-1} . Les EN correspondant à ces valeurs sont de 31% pour les grosses PM et de 35,5% pour les fines PM. La gamme de variation de λ pour les PM a été choisie sur la base de résultats publiés dans la littérature (Figure 74).

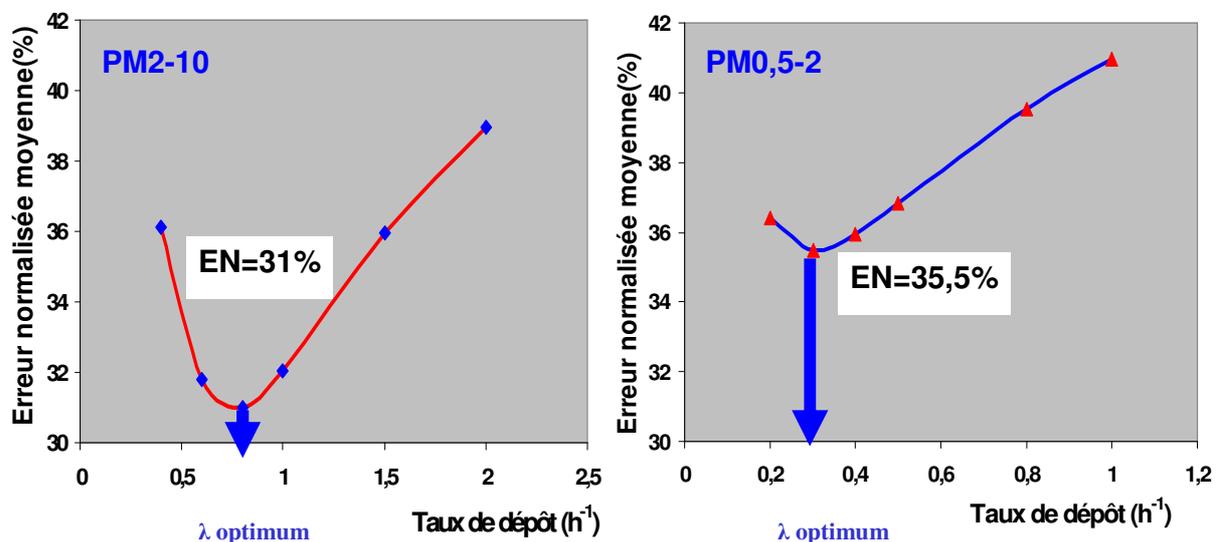


Figure 82 : Comparaison entre la mesure et le modèle concernant l'évolution des concentrations en fines et grosses PM en fonction du paramètre λ à l'école d'Arras.

D'après la Figure 83, les valeurs optimales de G sont respectivement de l'ordre de 21,7 mg/h pour les grosses PM et d'environ 0,71 mg/h pour les fines PM. Les valeurs d'EN pour ces G optimaux s'élèvent respectivement à 29,3% et 35,3%.

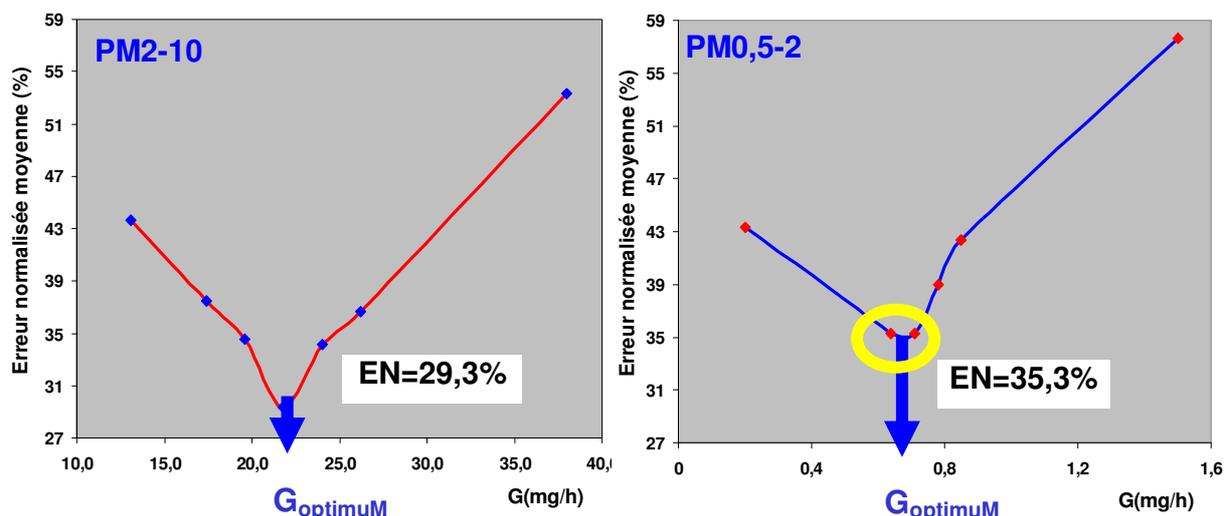


Figure 83 : Comparaison entre la mesure et le modèle concernant l'évolution des concentrations en fines et grosses PM en fonction du paramètre G à l'école d'Arras.

En résumé :

Les valeurs optimales des paramètres du modèle développé à l'école d'Arras pour les grosses et fines PM rassemblées ci-après permettent de caler le modèle, elles seront utilisées pour les études de robustesse et de validation :

PM2-10	PM0,5-2
p : 0,4	p : 0,9
λ : 0,8 h ⁻¹	λ : 0,3 h ⁻¹
G: 21,7 mg/h	G : 0,71 mg/h

4.3. Robustesse du modèle

Cette partie présente les résultats de la robustesse du modèle vis-à-vis de la variation des paramètres d'entrée du modèle mesurés sur le terrain : il s'agit du taux de renouvellement d'air α pendant la journée et pendant la nuit, ainsi que de la concentration en particules à l'extérieur C_{ext} .

4.3.1. Robustesse du modèle vis-à-vis de la variation d' α

La robustesse du modèle sera évaluée à partir de la variation de l'Erreur Normalisée Moyenne EN vis à vis de la variation du paramètre étudié.

4.3.1.1. Scénario de jour

La variation du taux de renouvellement d'air en journée utilisée dans les tests de robustesse du modèle est une gamme de valeurs observées pendant la campagne à l'école d'Arras.

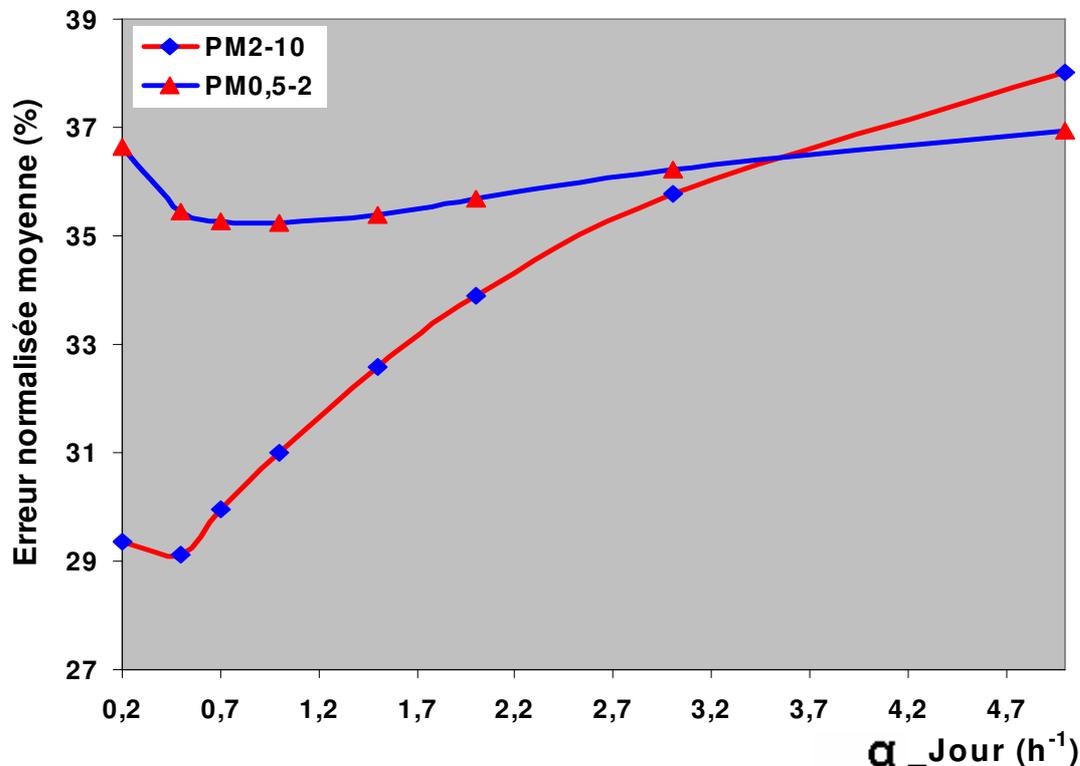


Figure 84 : Robustesse du modèle vis-à-vis du taux de renouvellement d'air en journée.

Elle varie de 0,2 à environ 5 h⁻¹, en lien notamment avec l'état d'ouverture/fermeture de la porte et des fenêtres, et avec la vitesse des vents. Notons ici que ces taux de renouvellement d'air recouvrent également des périodes de sortie des élèves (le midi, juste après la classe, pendant la récréation, ...) où la porte et les fenêtres sont fréquemment ouvertes. La Figure 84 montre que le modèle est plus robuste (EN peu modifié) à la variation du taux de renouvellement d'air en journée pour les fines que pour les grosses PM.

4.3.1.2. Scénario de nuit

Nous avons utilisé pour le scénario de nuit une gamme de valeurs du taux de renouvellement d'air plus faible qu'en journée, incluant des valeurs mesurées et celles publiées lors d'études menées dans des écoles françaises en absence des élèves (Kirchner et al., 2003) allant de 0,1 à 1 h⁻¹.

Les résultats montrent que la robustesse du modèle pour les grosses PM est très légèrement meilleure que pour les fines PM (Figure 85). Le facteur de pénétration plus élevé pour les fines que pour les grosses PM induit une plus grande sensibilité des fines vis à vis du

taux de renouvellement d'air. La nuit, les fines PM extérieures pénètrent dans la salle plus facilement par les fissures lorsque α augmente, ce qui influence les résultats du modèle.

Les EN légèrement plus élevées pour les fines que pour les grosses PM, sont sans doute liés aux très faibles concentrations en fines PM dans la salle après la classe et à la limite de détection de l'appareil de mesure utilisé dans cette étude (voir Figure 78 et 80).

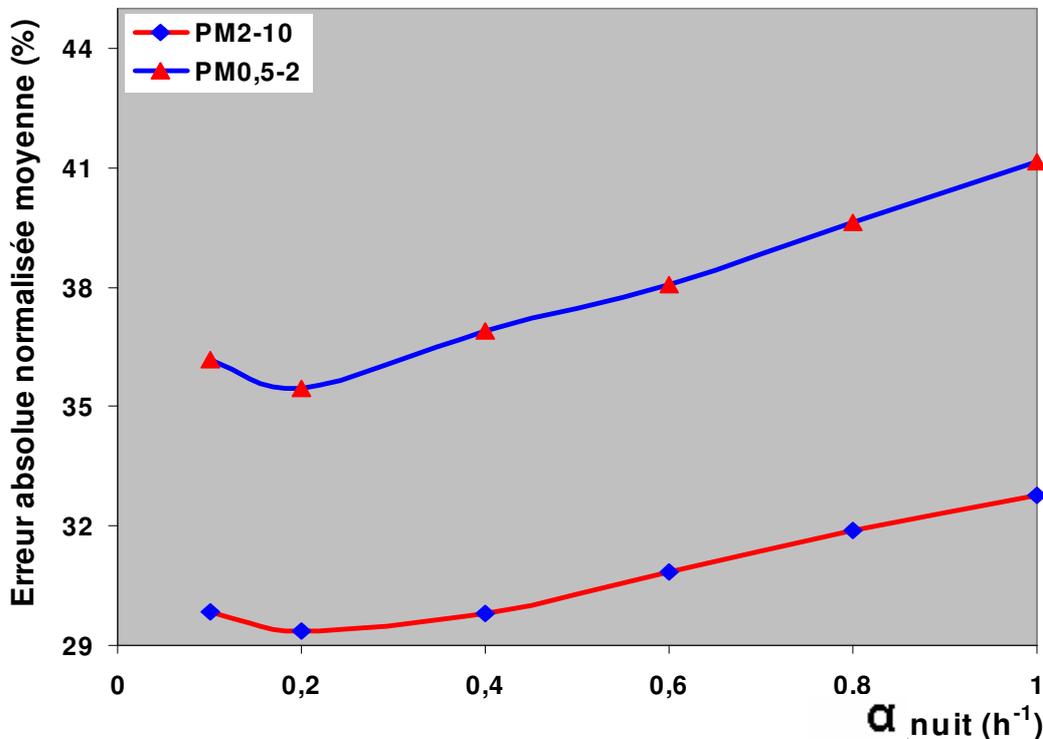


Figure 85 : Robustesse du modèle vis-à-vis du taux de renouvellement d'air la nuit.

4.3.2. Robustesse du modèle vis-à-vis de la variation de concentration en PM extérieures

Les concentrations en particules extérieures utilisées dans l'étude de robustesse du modèle sont des valeurs se situant dans la gamme des concentrations que nous avons mesurées à l'extérieur de l'école d'Arras. Nous avons également tenu compte des valeurs limites annuelles Européennes des concentrations en particules pour l'air extérieur ($40 \mu\text{g}/\text{m}^3$ pour les PM_{10} et $25 \mu\text{g}/\text{m}^3$ pour les $\text{PM}_{2,5}$) comme seuils de référence pour calculer les gammes de variation des concentration en grosses et fines PM. Ces gammes de concentration en grosses et fines particules mesurées à l'extérieur de l'école sont respectivement de $3,6$ à $100 \mu\text{g}/\text{m}^3$ et de $1,4$ à $38 \mu\text{g}/\text{m}^3$, les valeurs supérieures correspondant à 4 fois le 98^{ème} percentile. Nous n'avons pas utilisé les valeurs maximales pour éviter des valeurs extrêmes non significatives.

Comme on peut s'y attendre, le modèle est plus robuste (EN peu variable) pour les grosses PM que pour les fines PM, cela peut être expliqué par la pénétration plus facile de la fraction fine des particules extérieures (Figure 86).

On constate également que, pour les fines PM, l'EN reste relativement stable jusqu'à $10 \mu\text{g}/\text{m}^3$ correspondant aux concentrations maximales mesurées à l'extérieur pendant la campagne puis croît rapidement quand la concentration à l'extérieur augmente de façon exceptionnelle (Figure 86, à droite). Cela pourrait être lié à la phase de calage du modèle qui a utilisé des valeurs de terrain comprises entre 2 à $9 \mu\text{g}/\text{m}^3$.

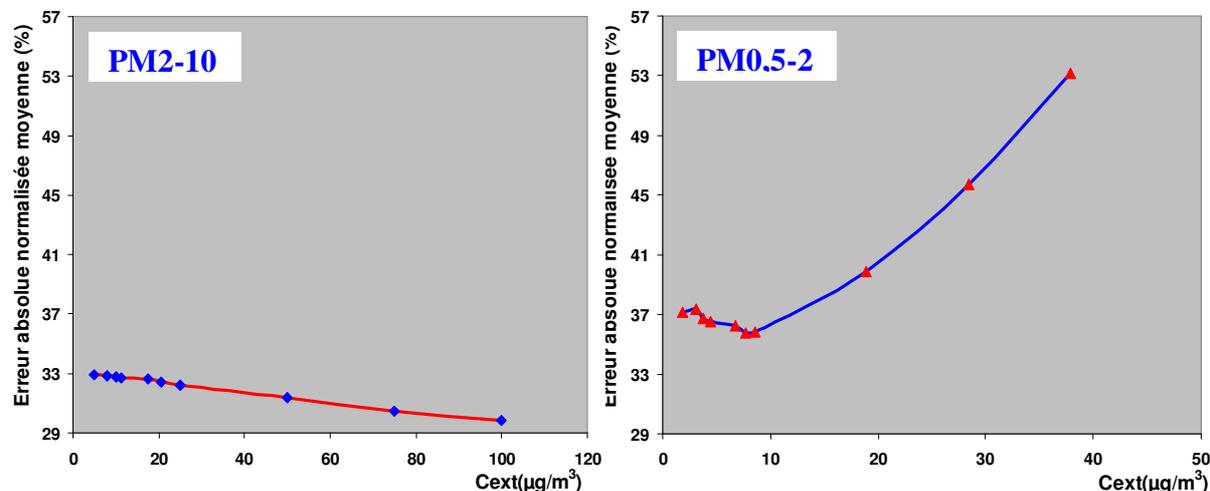


Figure 86 : Robustesse du modèle à la variation de concentrations en PM extérieures.

Globalement, les variations importantes de taux de renouvellement d'air ou de concentrations en particules de l'air extérieur n'affectent que modérément les résultats du modèle (EN < 50%), confirmant sa robustesse vis-à-vis de conditions d'application réalistes.

5. Validation du modèle

Cette partie présente les résultats de comparaisons graphiques ainsi que les analyses statistiques entre les concentrations en particules mesurées dans la classe de l'école de Saint Pol sur Mer et celles prédites par le modèle. Les paramètres constants du modèle tels que p , λ , et G utilisés pour cette validation sont les valeurs optimales obtenues lors de l'étape de calage du modèle à Arras (voir partie 4.2 de ce chapitre).

D'un point de vue sanitaire, la période en présence des enfants (en journée) dans la classe est la plus intéressante car elle représente l'exposition maximale des enfants aux particules. De ce fait, nous avons également effectué des analyses statistiques sur les concentrations calculées par le modèle uniquement en présence des élèves (en journée) venant s'ajouter aux résultats globaux comprenant les périodes en présence et en absence d'élèves.

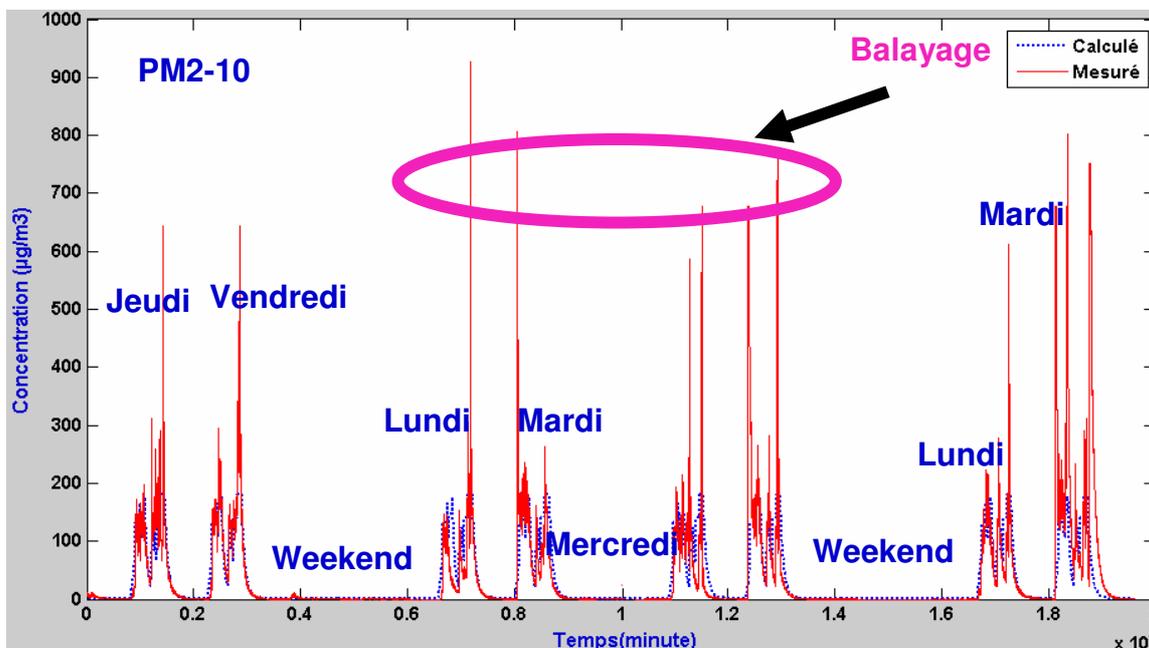


Figure 87 : Comparaison de la variation de concentration en grosses PM mesurée (courbe rouge) et prédite par le modèle (courbe bleu) à l'école de Saint Pol sur Mer.

D'après la Figure 87, le modèle suit correctement l'évolution des concentrations en grosses et fines PM mesurées dans la salle pendant 2 semaines consécutives : depuis l'entrée des élèves le matin jusqu'à la fin de la classe, et la nuit. En revanche, il prend mal en compte l'ensemble des pics extrêmes de très courte durée liés à des événements exceptionnellement intenses (Balayage, mouvement important des élèves...).

En présence des élèves, le modèle est capable de reproduire plus de 66% des valeurs mesurées pour les grosses PM et plus de 70% pour les fines PM dans la limite d'un facteur 1,5 par rapport à la corrélation idéale (Figure 88 et 90). C'est à dire que plus de 66% des valeurs prédites par le modèle pour les grosses PM et plus de 70% pour les fines PM se trouve dans une gamme 1,5 fois supérieure ou inférieure aux valeurs mesurées. Certains points modélisés sont cependant plus dispersés vis à vis des données mesurées, présentant de fortes surestimations liées à l'absence d'activités habituelles, ou sous-estimations liés aux activités inhabituelles (balayage...). Notons également que l'arrivée de nombreux élèves juste avant le démarrage de la classe peut aussi entraîner une sous-estimation du modèle qui n'est pas programmé pour ce type d'évènement exceptionnel. Pour les fines PM, on constate également un écart entre le modèle et la mesure pour les valeurs faibles (la nuit) lié à la limite de détection de l'appareil de mesure.

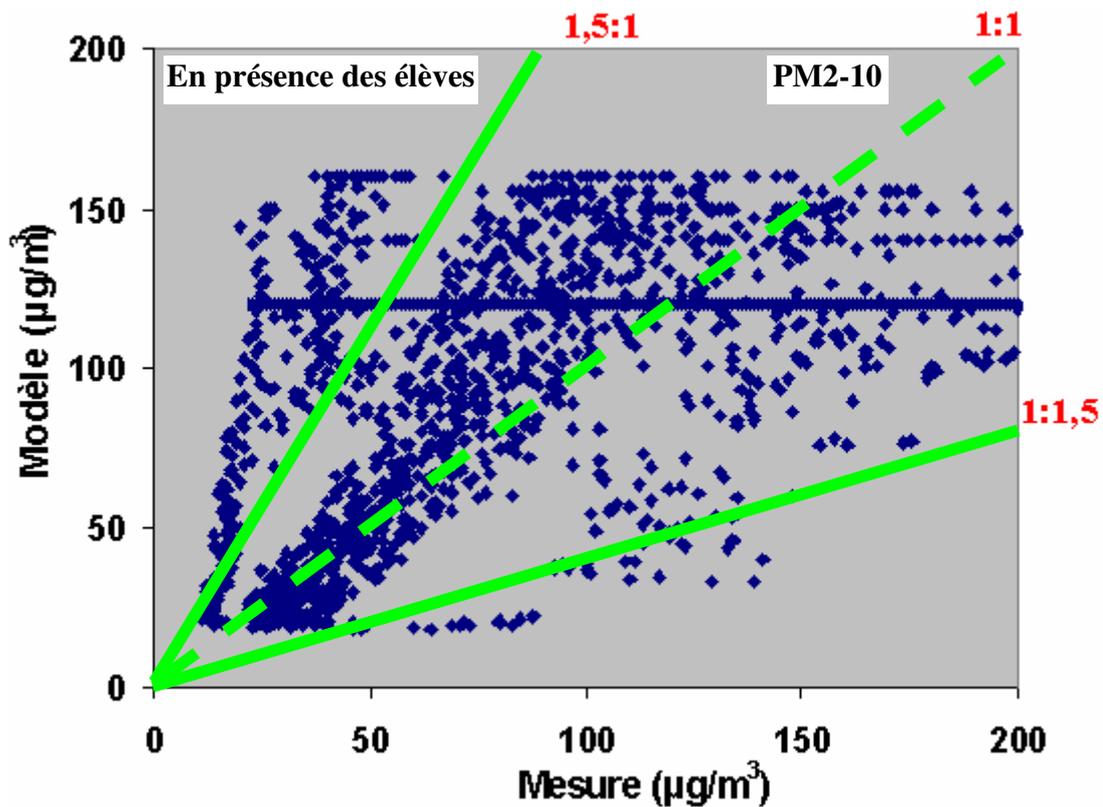


Figure 88 : Corrélation entre le modèle et la mesure pour les grosses PM en présence d'élèves à Saint Pol sur Mer (hors pics extrêmes).

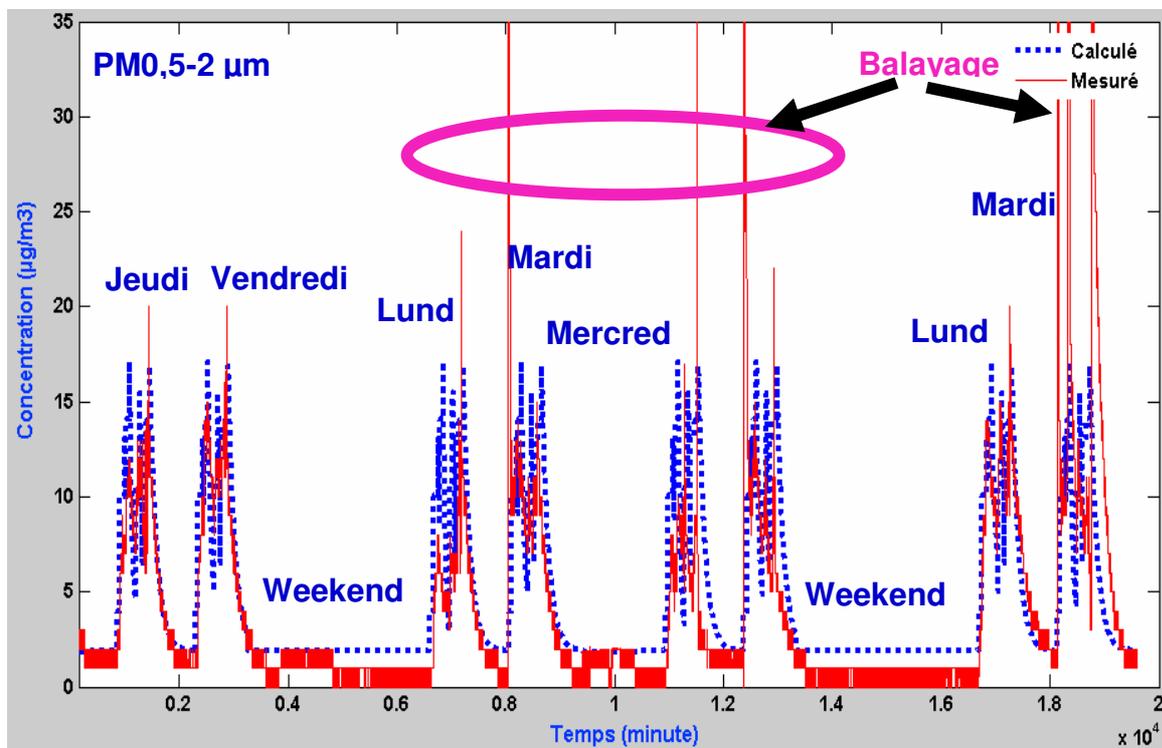


Figure 89 : Evolution des concentrations en fines PM mesurées (courbe rouge) et prédite par le modèle (courbe bleu) à l'école de Saint Pol sur Mer.

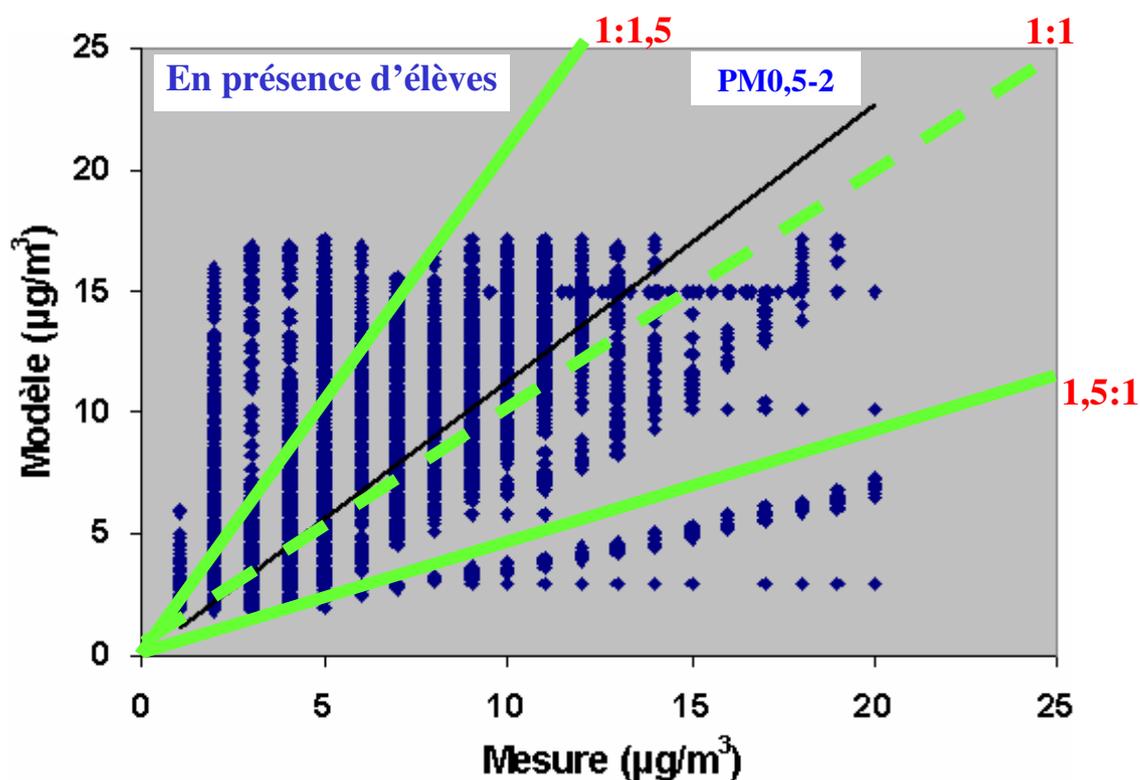


Figure 90 : Corrélation entre le modèle et la mesure pour les fines PM en présence d'élèves (hors pics extrêmes).

Les analyses statistiques (Tableau 38) montrent que les biais moyens entre le modèle et la mesure pour les grosses et fines PM obtenus en présence des élèves sont comparables avec ceux obtenus sur l'ensemble de la période de 15 jours (en présence et en absence confondues) : 9 contre 8,1 $\mu\text{g}/\text{m}^3$ pour les grosses PM et 1,6 contre 1,4 $\mu\text{g}/\text{m}^3$ pour les fines PM.

Tableau 38 : Résumé des analyses statistiques entre le modèle et la mesure.

Analyse statistique	Scénarios			
	En présence et absence confondues		En présence	
	PM ₂₋₁₀	PM _{0,5-2}	PM ₂₋₁₀	PM _{0,5-2}
Biais Moyen ($\mu\text{g}/\text{m}^3$)	8,1	1,4	9	1,6
RMSE ($\mu\text{g}/\text{m}^3$)	38	3,7	40	3,7
Erreur Normalisée Moyenne, EN (%)	45	41,4	37,4	33,2

En présence des élèves, le modèle présente une plus faible erreur normalisée par rapport à la mesure qu'en présence et en absence confondues : 37,4% contre 45% pour les grosses PM, et 33,2% contre 41,4% pour les fines PM. L'EN est donc plus faible en présence

d'élèves qu'en leur absence. On peut relier cela aux biais importants obtenus pour les très faibles concentrations en particules mesurées pendant la nuit (en absence des élèves), avec des valeurs proches de la limite de détection des appareils de mesure (Annexe 26).

Rappelons ici que les valeurs des paramètres du modèle p , λ , et G utilisés à St Pol sur mer sont celles estimées à l'école d'Arras. Globalement, p et λ sont relativement comparables d'une école à l'autre et le modèle est peu sensible à ces paramètres contrairement à G pour lequel le modèle apparaît très sensible. Par ailleurs, G est très variable d'une école à l'autre en lien notamment avec le nombre d'enfants dans les classes et leurs différentes activités. Les scores du modèle, notamment l'EN, seraient probablement améliorés si l'on utilisait des valeurs plus justes de G à l'école de Saint Pol sur Mer.

6. Application du modèle pour les écoles lors de la campagne 2008

Le but de cette partie d'application du modèle est de modéliser l'évolution des concentrations en particules dans les classes des écoles qui ont été étudiées lors de la campagne 2008. Nous avons utilisé pour cela les données de concentrations en particules extérieures issues des sites de surveillance de Atmo Nord Pas de Calais à proximité des écoles étudiées (à quelques centaines de mètres voire quelques kilomètres) et la mesure du taux de renouvellement d'air évalué par le traceur CO_2 . Pour cela, nous avons utilisé le modèle dans lequel nous avons introduit les données de concentrations en particules extérieures et les taux de renouvellement d'air mesurés dans les classes des écoles de la campagne 2008. Le modèle utilise donc des paramètres considérés constants pour une taille de particules donnée, obtenus à l'école d'Arras tels que le p , λ et G .

Nous présentons ci-après le cas de l'école de Lille car il s'agit d'une des écoles les plus représentatives au niveau du rythme scolaire, et c'est une des écoles où nous avons des informations relativement complètes sur les activités des élèves pendant la classe. Ainsi, les paramètres du modèle appliqués pour l'école de Lille sont les suivants : $p=0,6$; $\lambda=0,65 \text{ h}^{-1}$; $\alpha \text{ jour}=1,5 \text{ h}^{-1}$; $\alpha \text{ nuit}=0,8 \text{ h}^{-1}$; $G=35,6 \text{ mg/h}$.

Nous ne présentons que les résultats de modélisation concernant l'évolution des concentrations en PM_{10} dans les classes des écoles car il manque des données de concentrations en particules pour les autres fractions (non mesurées par ATMO NPdC). Notons que ces données en PM_{10} extérieures sont sous un format quart-horaire alors que l'intervalle de mesure ayant servi au développement du modèle à Arras est d'une minute. Nous avons donc changé le pas de calcul dans le modèle pour nous adapter à l'intervalle de mesure des PM extérieures. C'est d'ailleurs sous cette configuration quart-horaire que le modèle est le plus pertinent au vu des concentrations en PM_{10} extérieures disponibles auprès des AASQA sur le territoire Français.

Pendant la campagne de mesure dans les écoles en 2008, les enfants travaillaient le lundi, mardi, jeudi, et vendredi comme lors de la campagne 2009 mais également le samedi matin. Le modèle considère donc cette demi-journée supplémentaire comme un mardi ou un vendredi matin.

Grâce aux données de concentrations en PM₁₀ mesurées pendant une semaine dans les classes des écoles lors de la campagne 2008 (données de ATMO NPdC), nous avons pu les comparer avec les résultats issus du modèle (Figure 91, 92 et Tableau 39).

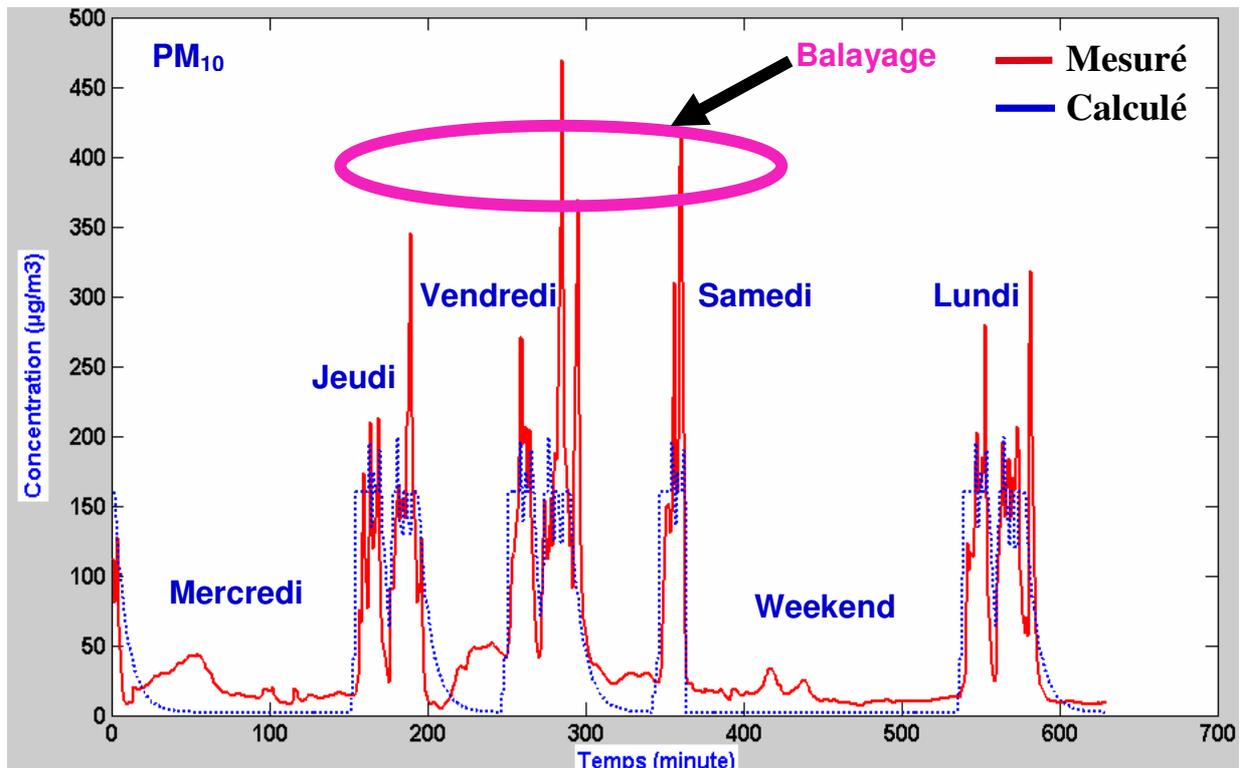


Figure 91 : Variation des concentrations en grosses PM mesurées (courbe rouge) et prédites par le modèle (courbe bleue) à l'école de Lille.

En général, le modèle prédit correctement l'évolution des concentrations en PM₁₀ dans la classe à Lille (Figure 91). En présence d'élèves, le modèle est proche de la mesure pour des plages caractéristiques les jours de classe, mais comme attendu, il modélise mal les teneurs extrêmes en PM₁₀ liées à des activités inhabituelles (balayage, mouvement...). En absence d'élèves, le modèle présente visiblement un écart avec la mesure lié sans doute aux limites de détection des appareils de mesure des PM₁₀ (Figure 91).

Rappelons que les concentrations en PM₁₀ de l'air extérieur de l'école de Lille mesurées par Atmo Nord Pas de Calais sont des valeurs quart-horaires. Cela peut induire un lissage des concentrations en PM intérieures calculées qui ne prendra pas en compte les variations rapides de ces teneurs. D'autre part, les concentrations en PM₁₀ à l'extérieur de cette école sont issues d'un site de surveillance situé à quelques kilomètres de l'école pouvant entraîner une incertitude supplémentaire dans le calcul des concentrations en PM₁₀ dans la classe.

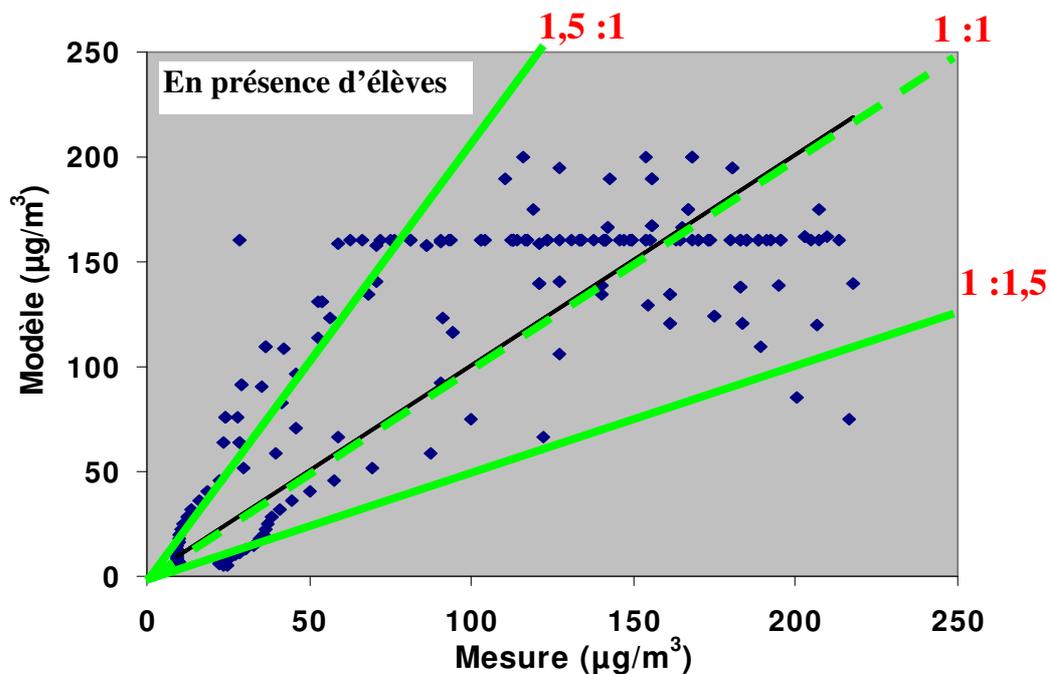


Figure 92 : Corrélation entre le modèle et la mesure pour les PM₁₀ en présence d'élèves (hors pics extrêmes) à Lille.

En général, la corrélation entre le modèle et la mesure est acceptable. Le modèle est capable de reproduire plus de 80% des valeurs de concentration en PM₁₀ dans la classe dans la limite de $\pm 1,5$ fois la corrélation idéale (Figure 92).

Le modèle présente un biais moyen plus élevé pendant la période en présence des élèves qu'en leur absence, en lien avec des concentrations en PM₁₀ beaucoup plus élevées en journée (Tableau 39). Il présente cependant des RMSE et EN plus faibles pendant la période en présence des élèves ($43,3 \mu\text{g}/\text{m}^3$ et 39,1%) que pendant la semaine, toutes périodes confondues ($46,4 \mu\text{g}/\text{m}^3$ et 43,4 %).

Tableau 39 : Résumé des analyses statistiques entre le modèle et la mesure à l'école de Lille.

	En présence et absence des élèves	En présence des élèves
Biais moyen ($\mu\text{g}/\text{m}^3$)	13	22
RMSE ($\mu\text{g}/\text{m}^3$)	46,4	43,3
EN (%)	43,8	39,1

L'application du modèle à d'autres écoles en utilisant des valeurs de G proches de leurs vraies valeurs est présentée dans la partie 8 de ce chapitre.

7. Scénario en vue d'atteindre les concentrations en particules recommandées en air intérieur dans les écoles d'Arras et de Saint Pol sur Mer (campagne 2009)

Au-delà de la prédiction des concentrations en particules dans l'air intérieur en fonction de paramètres physiques et de valeurs d'entrée, la modélisation peut nous aider à évaluer l'impact de décisions permettant de diminuer les teneurs en particules dans l'air intérieur.

On peut par exemple calculer les valeurs du taux de renouvellement d'air α en présence des élèves à l'école d'Arras et de Saint Pol sur Mer (campagne 2009) permettant de ne pas dépasser les concentrations en PM_{10} recommandées par l'OMS (Organisation Mondiale de la Santé). Le calcul d' α en présence des élèves (α jour) a été effectué selon l'équation du calcul de G décrite au chapitre II, partie modélisation. Concrètement, il est calculé comme suit :

Équation 55 :

$$G = \alpha.V.(C_{int} - p.C_{ext}) + \lambda.V.C_{int}$$

ou

$$\alpha = \frac{G - \lambda.V.C_{int}}{V.(C_{int} - p.C_{ext})}$$

où V est le volume de la salle, m^3 ,

p est le facteur de pénétration des PM sans dimension,

λ est le taux de dépôt (h^{-1}),

C_{int} , C_{ext} sont respectivement de concentration en particules intérieure et extérieure ($\mu g/m^3$),

G est la vitesse de génération des PM (mg/h),

α est le taux de renouvellement d'air en présence des élèves (h^{-1}).

G prend les valeurs correspondant à l'école d'Arras et de Saint Pol sur Mer, p et λ prennent les valeurs fixes de l'école d'Arras. C_{ext} sont les valeurs mesurées à l'extérieur de ces écoles. C_{int} correspond aux valeurs recommandées par l'OMS de $25 \mu g/m^3$ pour les fines PM ($PM_{2.5}$) et $50 \mu g/m^3$ pour les PM_{10} .

Pour atteindre $25 \mu g/m^3$ en $PM_{2.5}$ dans la classe en présence des élèves, le renouvellement d'air frais venant de l'extérieur doit atteindre $1 h^{-1}$ et $1,5 h^{-1}$, respectivement à l'école d'Arras et de Saint Pol sur Mer (Tableau 40). Ces valeurs sont respectivement de 7,7 (gamme de variation $6 - 9 h^{-1}$) et $4,7 h^{-1}$ (gamme de variation $4 - 6 h^{-1}$) pour atteindre les $50 \mu g/m^3$ correspondant aux PM_{10} . Ces dernières valeurs sont très élevées, même dans le cas d'une école équipée d'un système de VMC. Selon l'étude de Blondeau et al. (2005) menée dans huit écoles en France, le taux de renouvellement d'air variait de 0 à $1,7 h^{-1}$. L'étude de

Kirchner et al. (2003) menée dans 9 écoles en France révèle également des taux de renouvellement d'air allant de 0 à 3 h⁻¹.

Tableau 40 : Valeurs estimées de α pour atteindre les concentrations en particules recommandées par OMS à l'école d'Arras et de Saint Pol sur Mer.

Particules	Concentrations journalières recommandées par l'OMS ($\mu\text{g}/\text{m}^3$)	α moyen (h^{-1})	
		Ecole d'Arras (n=20)	Ecole de St Pol (n=32)
PM _{2,5}	25	1	1,5
PM ₁₀	50	7,7	4,7

n: nombre de mesures

On constate donc que le renouvellement de l'air ne peut pas permettre à lui seul (problème de bruit, de consommation d'énergie, de confort), d'abaisser suffisamment les teneurs en particules, notamment pour la fraction grossière, dans l'air intérieur. Pour cette fraction, un travail sur la remise en suspension, notamment sur la masse de particules déposées au sol, semble nécessaire.

L'Équation 55 montre une relation positive entre G et la concentration en PM dans la classe (C_{int}). Pour faire baisser la concentration en PM dans la classe il faut donc diminuer G. D'autre part, G est défini selon l'équation suivante :

Équation 56 :
$$G = R \cdot m_d \cdot S + E$$

On ne peut pas quantifier indépendamment sur le terrain les paramètres R, m_d , et E de cette équation mais on peut estimer R (remise en suspension) et E (Emission de sources internes). En effet, en appliquant la procédure déjà utilisée plus haut dans le cas du taux de renouvellement d'air, on peut calculer les valeurs de G permettant de respecter les valeurs de PM recommandées dans l'air intérieur.

Concrètement, dans l'Équation 56, la surface du sol S est constante, les paramètres R et E dépendent fortement du nombre d'élèves et de leurs activités dans la classe qui sont difficiles à maîtriser, contrôler ou minimiser. Il ne reste donc que le paramètre m_d sur lequel on peut intervenir assez facilement pour diminuer G et donc, la concentration en PM dans la classe.

Notons ici que m_d , qui représente la masse de particules déposées sur le sol, est influencé par la fréquence des balayages et/ou nettoyages humides mais aussi par l'apport de poussières par les élèves (chaussures, vêtements...) comme décrit dans le chapitre IV. Pour diminuer m_d , on peut donc nettoyer plus souvent le sol et inciter les enfants à déposer leurs

chaussures et vêtements à l'extérieur. On peut également réfléchir à mettre en place différents systèmes de grilles métalliques, paillassons et/ou tapis électrostatiques devant l'entrée de l'école et/ou de chaque classe afin de dépoussiérer les chaussures.

8. Optimisation du calcul de G

L'une des perspectives d'application du modèle pour d'autres écoles consiste à estimer au mieux les valeurs de G pour une école donnée à l'aide d'informations simples et facilement disponibles tels que :

- Le nombre des élèves dans la classe,
- La fréquence de nettoyage du sol,
- Le taux de renouvellement d'air mesuré dans la classe.

Pour se faire, les autres paramètres du modèle tels que p , λ se voit attribuer des valeurs obtenues à l'école d'Arras. Le taux de renouvellement d'air α est mesuré sur le terrain, et les concentrations en PM à l'extérieur sont accessibles auprès d'Atmo NPdC.

Le principe de l'estimation des valeurs de G pour une école est de créer une base de données récapitulative des informations observées dans les écoles lors de la campagne 2008 (nombre d'élèves dans la classe, fréquence de nettoyage du sol, taux de renouvellement d'air mesuré dans la classe) et les valeurs correspondantes de G. Les valeurs de G (Tableau 41) sont calculées à partir des concentrations en PM mesurées dans l'air intérieur des écoles de la campagne 2008 selon l'Équation 55.

Tableau 41 : Tableau récapitulatif de l'estimation de G dans les écoles de la campagne 2008.

Ecoles	Nombre d'élèves		Fréquence/jour de nettoyage du sol		α jour moyen (h ⁻¹)		G moyen (mg/h)	
	Salle 1	Salle 2	Salle 1	Salle 2	Salle 1	Salle 2	Salle 1	Salle 2
Valenciennes	22	20	Mer	Lun, Mar, Jeu, Ven	1,31	1,94	27,9	19
Maubeuge	22	26	Lun, Ven, Sam	Mar, Ven, Sam	1,38	1,73	25	28
Lens	24	21	Mer, Jeu, Sam	Mer, Jeu, Ven, Sam	2,51	0,72	44,6	25,6
Lilles	20	16	Lun, Mar, Jeu, Ven	Lun, Mar, Ven, Sam	1,77	2,03	35,6	14,7
Marquise	17	10	Mer, Sam	Mer	0,99	1,26	16,3	14,9
Liettres	24	24	Mer, Sam	Mer, Sam	4,48	4,48	25	27,5
St Pol/Mer*	27		Lun, Mar, Jeu, Ven		1,1		50	
Arras*	23		Lun, Mar, Jeu, Ven		0,5		35,5	

*) Les écoles d'Arras et de Saint Pol sur Mer correspondent aux valeurs lors de la campagne 2009.

Dans le cadre d'une utilisation du modèle où l'on ne connaît pas à priori les valeurs de G et où il n'est pas possible de les calculer (le cas le plus général), il sera alors possible d'utiliser ce tableau de données. En effet, en s'appuyant sur les caractéristiques des classes étudiées telles que le nombre d'élèves, la fréquence de nettoyage du sol, et α jour, on peut affiner globalement la gamme de valeurs de G qui doit être appliquée. Concrètement, ces valeurs de G pourront être utilisées pour alimenter le modèle lors des modélisations effectuées pour des écoles présentant des caractéristiques proches de celles de la campagne 2008.

Cette méthode permet d'affiner le choix de la valeur de G en fonction d'observations dans les écoles, l'objectif étant de diminuer les écarts entre le modèle et la mesure lorsqu'il est appliqué à d'autres écoles.

Concrètement, on cherche de révéler les facteurs ayant une influence significative (nombre d'élèves, taux de renouvellement d'air, fréquence de nettoyage) sur G et à hiérarchiser les effets de ces facteurs à l'aide d'une méthode de régression non linéaire décrite par le modèle suivant :

Équation 57 :
$$G = \sum_{j=1}^N h_j F_j + \sum_{j=1}^N \sum_{k=1}^N h_{jk} F_j F_k + e \quad \text{avec } j \neq k$$

où h_j et h_{jk} sont les coefficients des facteurs F_j et de l'interaction $F_j F_k$, e représentant le résidu est une constante et N est le nombre de facteurs. F_j et F_k sont standardisés afin que chaque facteur ait la même incidence lors de l'ajustement du modèle et que leurs valeurs varient entre -1 et +1. Pour transformer les valeurs réelles des facteurs (x_j) en valeurs standardisées (F_j), on applique l'équation suivante :

Équation 58 :
$$F_i = \frac{x_j - x_{\min}}{x_{\max} - x_{\min}} \times 2 - 1$$

où x_j , x_{\max} , et x_{\min} sont la valeur mesurée de chaque facteur, son maximum et son minimum, respectivement.

Les coefficients h_j et h_{jk} ont été déterminés en appliquant la méthode de Marquardt (Marquardt et al., 1963). Leur signification pour un niveau de confiance de 95% a été évaluée afin de déterminer s'il était nécessaire de les maintenir dans l'Équation 57.

Ce processus de convergence aboutit à une équation finale ne comportant que quatre facteurs significatifs (le nombre d'élèves n , le taux de renouvellement d'air α , l'interaction entre le nombre d'élèves/fréquence de nettoyage, et l'interaction entre le nombre d'élèves/ α) présentés dans l'équation suivante :

Équation 59 :

$$G (\mu\text{g/h}) = (10,5 \pm 6) \cdot F_n + (5,5 \pm 7) \cdot F_\alpha + (10,8 \pm 4,7) \cdot F_n \cdot F_{\text{nettoyage}} - (9,0 \pm 8) \cdot F_n \cdot F_\alpha + (23,1 \pm 5,5)$$

avec $R^2=0,68$

D'après l'Équation 59, le facteur standardisé nombre d'élèves n , et les facteurs standardisés combinés $n \times$ nombre de nettoyage, et $n \times \alpha$ ont les plus fortes influences sur l'augmentation de G . La forte influence du nombre d'élèves sur G est également confirmée par la corrélation significative visible en Figure 93. Le taux de renouvellement d'air α présente un relativement faible facteur sur G .

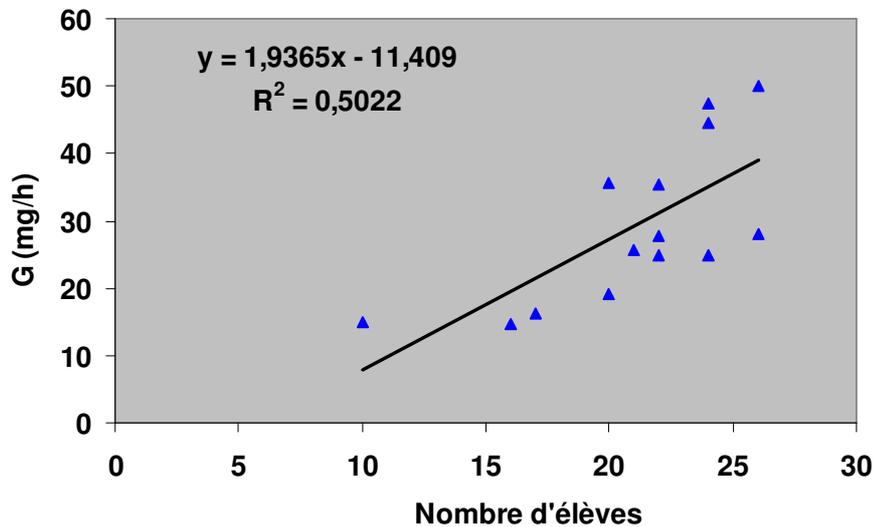


Figure 93 : Relation entre G et le nombre d'élèves dans la classe.

Notons que les coefficients de la régression (Équation 59) présentent de grandes variabilités pouvant être dues à la combinaison de différents phénomènes influençant G que nous n'avons pas pu déterminer tels que l'intensité des activités des élèves..., mais aussi au nombre limité d'écoles où a été calculé G lors de la campagne 2008. La détermination d'un plus grand nombre de valeurs de G pour d'autres situations et d'autres écoles devrait permettre d'affiner l'Équation 59.

9. Conclusion

Un modèle déterministe monozone simple a été développé sous l'environnement Matlab. Les paramètres du modèle dits "constants" pour une classe de taille de particules tels que le taux de dépôt (λ) et le facteur de pénétration (p) ont été déterminés à l'école d'Arras et de Saint Pol sur Mer lors de la campagne 2009 avec des résultats satisfaisants. Les valeurs moyennes de λ pour les fines PM, les grosses PM et les PM_{10} sont respectivement de l'ordre de 0,28 ; 0,81 et 0,74 h^{-1} . Les valeurs correspondantes pour p s'élèvent à 0,80 ; 0,30 et 0,70.

Le paramètre du modèle α (taux de renouvellement d'air) a été déterminé par la méthode du traceur CO_2 émis par les élèves pendant la période en présence des élèves ainsi qu'en leur absence et par la méthode de pression différentielle uniquement en absence des élèves. Le taux de renouvellement d'air varie fortement en présence des élèves en lien avec l'ouverture et la fermeture de la porte et des fenêtres. En absence des élèves, il est stable et les

résultats obtenus par ces deux méthodes sont comparables. L'école de Saint Pol sur Mer apparaît un peu plus perméable aux flux d'air que l'école d'Arras.

Le paramètre G du modèle (défini comme la vitesse de génération des particules, mg/h) est variable d'une école à l'autre, et d'un jour à l'autre pour les grosses et les fines PM mais évolue moins d'une période à l'autre pendant la journée.

Ce modèle monozone est très sensible à la variation de G mais peu sensible à la variation de λ , et très peu sensible vis à vis de p.

Le modèle a été calé sur les données de l'école d'Arras en utilisant des valeurs optimales des paramètres du modèle p, λ , G.

Le modèle a été validé de manière satisfaisante à l'école de Saint Pol sur Mer avec une prédiction de la variation des concentrations en particules dans la classe proche de la mesure, que ce soit en présence des élèves ou en leur absence. L'analyse statistique montre également que les erreurs normalisées moyennes entre les résultats prédits par le modèle et ceux mesurés pendant 2 semaines consécutives sont de 45% et 41,4% pour les grosses et fines PM. Ces valeurs, pendant la période en présence des élèves s'élèvent de 37,4% et 33,2%. En absence d'élèves, les erreurs normalisées moyennes sont plus élevées qu'en leur présence, que l'on attribue aux fortes incertitudes sur les mesures de très faibles concentrations en particules.

L'application du modèle à une autre école échantillonnée lors de la campagne 2008 en utilisant des données de concentrations en particules extérieures mesurées sur les sites de surveillance (ATMO NPdC) à proximité de ces écoles montre une corrélation satisfaisante entre l'évolution des concentrations en PM₁₀ intérieures mesurées et celles prédites par le modèle. Par exemple, les erreurs normalisées moyennes entre le modèle et la mesure à l'école de Lille s'élève à 43,8% pour les deux périodes confondues (présence et absence d'élèves), et à 39,1% pour la période en leur présence. Le modèle est capable de reproduire plus de 80% des valeurs de concentration en PM₁₀ dans la classe dans la limite de $\pm 1,5$ fois la corrélation idéale pour l'école de Lille.

La mise en œuvre de scénarios en vue de limiter les teneurs en particules dans l'air intérieur en dessous des valeurs recommandées par l'OMS indique que l'augmentation du taux de renouvellement d'air ne permet pas de résoudre complètement cette problématique sauf à induire des échanges très importants avec l'extérieur entraînant un inconfort (vent, froid, humidité,...) et une perte de chaleur excessive. La remise en suspension de particules déposées au sol étant la principale cause des dépassements des valeurs recommandées en PM₁₀, la réduction de ces teneurs passe donc par une réflexion sur cette problématique.

CONCLUSION GENERALE

Ce travail de thèse avait pour objectif, d'une part, de caractériser puis d'étudier l'origine et le devenir des particules atmosphériques respirables (PM₁₀) en air intérieur, et, d'autre part, de modéliser le comportement dynamique des particules dans des classes d'écoles. Pour se faire, deux campagnes de prélèvements et de mesures ont été effectuées dans l'air intérieur et extérieur d'écoles primaires du Nord Pas de Calais en 2008 (8 écoles) et en 2009 (3 écoles) pour des périodes respectivement de 1 et 2 semaines. Un suivi continu en termes de paramètres de confort (T, HR, CO₂, CO, P), de pression différentielle entre l'intérieur et l'extérieur du bâtiment, de masse et nombre de particules et de Black Carbon a été réalisé pendant deux périodes bien distinctes : en présence et en absence d'élèves. Ces mesures ont été complétées par des prélèvements de particules en fonction de leur distribution granulométrique, permettant une analyse ultérieure de la composition chimique en élément métalliques majeurs et traces et en carbone organique (OC) et élémentaire (EC). Différentes techniques statistiques pour étudier le traçage des sources des polluants particuliers tels que l'Analyse en Composante Principale (ACP), la Classification Hiérarchique (CH), les ratios élémentaires, les facteurs d'enrichissement ou les corrélations ont été mises en œuvre.

La première campagne en 2008 a permis de classer les écoles en fonction de leur typologies (proximité des sources extérieures) et des caractéristiques intrinsèques des bâtiments, facilitant ainsi la sélection des 3 écoles (Arras, St Pol sur Mer, Liettes) pour la campagne ciblée de 2009, en vue de répondre aux objectifs de la thèse. Une analyse multivariée a distingué ces 3 écoles selon leur environnement respectivement : urbain fortement soumis au trafic automobile, mixte industriel-urbain-marin, et rural.

L'évolution des concentrations en nombre et en masse de particules au cours d'une semaine d'école caractéristique a fait apparaître de très fortes variations selon la taille des particules et la présence d'activités dans la classe. En présence d'élèves, les teneurs en PM₁₀ dépassent largement et presque systématiquement (moyenne des huit écoles : $97 \pm 28 \mu\text{g}/\text{m}^3$) la valeur de gestion journalière ($50 \mu\text{g}/\text{m}^3$) pour l'air intérieur (recommandations OMS et ANSES). Leurs activités dans la classe sont aussi à l'origine de sources d'OC que l'on trouve principalement dans les fractions fines des particules. En absence d'élèves, les teneurs en PM dépendent fortement de la perméabilité du bâtiment et de la taille des particules.

Les analyses chimiques élémentaires ont confirmé l'impact de la pollution atmosphérique extérieure sur la qualité de l'air intérieur. La signature géochimique des particules liée à la proximité d'émissions industrielles (Fe, Mn, Ni, V...), urbaines et automobiles (Cu, Sb, Ba, EC...) et de la source marine (Na, Mg) se retrouve clairement dans la composition des particules intérieures. Ce phénomène est plus particulièrement marqué pour la fraction fine qui pénètre plus facilement par les fissures de la façade des bâtiments.

Aucune source spécifique de métaux n'a pu être mise en évidence dans les classes étudiées mais certains éléments majeurs tels que le Ca, Al, Sr et Ti se trouvent nettement associés à l'utilisation de craie et peuvent représenter jusqu'à 10% de la masse de PM₁₀. L'augmentation de la masse des particules en air intérieur liée à la présence des élèves, notamment pour la fraction grossière, ne change pas notablement leur composition chimique.

En deuxième partie de la thèse, nous avons développé un modèle déterministe monozone simple permettant d'isoler et de quantifier les paramètres physiques à l'origine des variations de concentration en particules en fonction de leur taille. L'objectif était de produire un modèle utilisable à partir d'un nombre réduit et facilement accessible d'informations et de mesures sur le terrain permettant de prévoir, avec une incertitude raisonnable, les variations de concentration en particules et l'exposition des enfants durant la classe.

La principale difficulté est liée à la présence d'activités dans la classe qui induisent à la fois des sources nouvelles et très variables de particules et des phénomènes de remise en suspension importants, notamment pour la fraction grossière. Il est extrêmement difficile, lors d'étude en conditions réelles, de séparer ces deux phénomènes qui sont intrinsèquement liés et associés à de multiples facteurs perturbant les teneurs des particules en suspension.

Ce sont cependant ces périodes de classe, qui présentent à la fois de fortes variabilités de concentrations et des dépassements systématiques des valeurs recommandées qui sont intéressantes d'un point de vue sanitaire.

Notre approche a donc consisté à générer un paramètre physique synthétique tenant compte à la fois de la remise en suspension et des sources intérieures de particules pendant la classe. Ce paramètre G , nommé vitesse de génération des particules (mg/h), varie notamment en fonction de la taille des particules, de l'intensité des activités et de la quantité de particules déposées au sol. Il introduit toutefois une plus grande incertitude dans le modèle que les autres paramètres tels que le facteur de pénétration (p), le taux de renouvellement d'air (α), ou le taux de dépôt (λ). Le modèle nous a permis de calculer les valeurs de ces paramètres grâce aux mesures de terrain dont les résultats se trouvent en accord avec les données de la littérature.

Les valeurs moyennes de λ calculées pour les fines PM (0,5-2 μm) et les grosses PM (2-10 μm) à l'école d'Arras et de Saint Pol sur Mer sont comparables et s'élèvent respectivement à environ 0,3 et 0,8 h^{-1} . Pour p , les valeurs correspondantes sont de 0,75 et 0,35. Le taux de renouvellement d'air α varie fortement en présence des élèves en lien avec l'ouverture et la fermeture de la porte et des fenêtres ainsi qu'avec les conditions météorologiques, contrairement aux périodes en leur absence où il reste relativement stable.

L'analyse statistique montre que le modèle ainsi développé à l'école d'Arras a pu être validé pour les données de l'école de St Pol sur Mer. Les erreurs normalisées moyennes (ENM) entre les résultats prédits par le modèle et ceux mesurés pendant 2 semaines consécutives sont acceptables : 45% et 41,4% pour les grosses et fines PM respectivement. Ces valeurs pendant les périodes en présence d'élèves s'élèvent respectivement à 37,4% et 33,2%. En absence d'élèves, les ENM plus élevées sont probablement dues aux incertitudes de mesure plus grandes pour les très faibles concentrations en particules, la nuit notamment.

Le modèle appliqué à l'école de Lille (campagne 2008), sur la base de mesures extérieures de PM_{10} quart horaire d'ATMO NPdC, montre des corrélations satisfaisantes entre l'évolution des concentrations en PM_{10} intérieures mesurées et celles prédites par le modèle, et des ENM acceptables (proches des valeurs de validation du modèle).

Les perspectives de ce travail concernent notamment :

- L'estimation de la contribution relative des sources d'émission intérieures et extérieures à la teneur en particules dans les locaux,
- La modélisation de l'évolution temporelle des concentrations en polluants particuliers (métaux, HAP, pesticides, ...) dans les lieux publics,
- L'étude de la remise en suspension et des émissions de particules liées aux activités dans des espaces clos.
- L'établissement de scénarii en vue d'une meilleure réglementation en termes d'aménagement et d'architecture, de renouvellement et/ou de filtration de l'air, de choix des matériaux et d'évaluation des risques sanitaires liés à l'exposition des personnes.

REFERENCES BIBLIOGRAPHIQUES

- Abadie, M.** (2002). “Contribution à l’étude de la pollution particulaire : rôle des parois, rôle de la ventilation.” Thèse de l’université de la Rochelle.
- AFSSET** (2009). Propositions de Valeurs Guides de qualité d’Air Intérieur, Particules.
- Ahmed, T., Dutkiewicz, V. A., Shareef, A., Tuncel, G., Tuncel, S., Husain, L.** (2009) “Measurement of black carbon (BC) by an optical method and a thermal-optical method: Intercomparison for four sites.” *Atmospheric Environment* **43**, 6305-6311.
- Alleman, L. Y., Lamaison, L., Perdrix, E., Robache, A., Galloo, J. C.** (2010). “PM10 metal concentrations and source identification using positive matrix factorization and wind sectoring in a French industrial zone.” *Atmospheric Research* **96**, 612–625.
- Alzona J., Cohen, B. L., Rudolph, H., Jow, H. N; and Frohlinger, J. O.** (1978). “Indoor-outdoor relationships for airborne particulate matter of outdoor origin.” *Atmospheric Environment* **13** (1), 55-60.
- Arditsoglou, A. et Samara, C.** (2005). “Levels of total suspended particulate matter and major trace elements in Kosovo: a source identification and apportionment study.” *Chemosphere* **59**, 669-678.
- ASHRAE** (1989). Handbook : Fundamentals, Infiltration and Ventilation. ASHRAE 1989, chapter 23.
- ASHRAE** (1993). Handbook : Fundamentals. Atlanta : American Society of Heating, Refrigerating and Air-Conditioning Engineers.Inc.
- Atmo NPdC** (2007). Rapport d’étude N° 23/2007/SE.
- Atmo NPdC** (2009). Rapport N°01-2009-SE. “Rapport final sur la qualité de l’air à l’intérieur et aux abords de 10 écoles et lieux d’accueil de la petite enfance du Nord-Pas de Calais du 25 Mars au 17 Juin 2008”.
- Bernstein, J. A., Alexis, N., Bacchus, H., Bernstein, I. L., Fritz, Pat., Horner, E., Li, N.Mason, S., Nel, A., Oullette, J., Reijula, K., Reponen, T., Seltzer, James., Smith, Alisa. et Tarlo, S. M.** (2008). “The health effects of nonindustrial indoor air pollution.” *Journal Allergy Clin Immunol* **121**(3), 585–591.
- Bertoni, G., Ciuchini, C., Tappa, R.** (2004). “Measurement of long-term average carbon dioxide concentrations using passive diffusion sampling.” *Atmospheric Environment* **38**, 1625–1630.
- Bi, X., Sheng, G., Feng, Y., Fu, J., Xie, J.** (2005) “Gas- and particulate-phase specific tracer and toxic organic compounds in environmental tobacco smoke.” *Chemosphere* **61**, 1512–1522.
- Bilos, C., Colombo, J. C., Skorupta, C. N. et Presa, M. J. R.** (2001). “Sources, distribution and variability of airborne trace metals in La Plata City area, Argentina.” *Environmental Pollution* **111**, 149-158.
- Binnig, J., Meyer, J., Kasper, G.** (2007). “Calibration of an optical particle counter to provide PM2.5 mass for well-defined particle materials.” *Aerosol Science* **38**, 325- 332.
- Blondeau, P., Lordache, V., Poupard, O., Genin, D., Allard, F.** (2005). “Relationship between outdoor and indoor air quality in eight French schools.” *Indoor air* **15**, 2-12.

- Blondeau, P., Poupard, O., Iordache, V., Allard, F., Ghiaus, C., Genin, D., Burlot M., Caini, F.** (2002). "Etude de l'impact de la pollution atmosphérique sur l'exposition des enfants en milieu scolaire- recherche de moyen de prédiction et de protection." Rapport du programme PRIMEQUAL, Convention ADEME n° 99.04.054, 286p.
- Borchiellini, R. et Furbringer, J. -M.** (1999). "An evaluation exercise of a multizone air flow model." *Energy and Buildings* **30**, 35–51.
- Bouchoux, G. et Sablier, M. L.** (2005). "Spectrométrie de masse Principe et appareillage." dans *Techniques de l'ingénieur*, P2645.
- Branis, M., Rezacova, O., Domasova, M.** (2005). "The effect of outdoor air and indoor human activity on mass concentration of PM₁₀, PM_{2,5}, and PM₁ in a classroom." *Environmental research* **99**, 143- 149.
- Brunekreef, B. et Holgate, S. T.** (2002). "Air pollution and health." *The Lancet* **360**, 1233-1242.
- Butte, W. et Heinzow, B.** (2002). "Pollutants in House Dust as Indicators of indoor contamination." *Rev Environ Contam Toxicol* **175**, 1-4.
- Byrne, M. A., Goddard, A. J. H., Lange, C. et Reed, J.** (1997). "Stable tracer aerosol deposition measurements in a test chamber." *Journal of Aerosol Science* **26**, 645-653.
- Cabada, J. C., Rees, Sarah., Takahama, S., Khlystov, A., Pandis, S. N., Davidson, C. I., Robinson, A. L.** (2004). "Mass size distributions and size resolved chemical composition of fine particulate matter at the Pittsburgh supersite." *Atmospheric Environment* **38**, 3127-3141.
- Cahill, T.A.** (1995). "Compositional analysis of atmospheric aerosols." *Chemical Analysis Series* **133**, 467-476.
- Camuffo, D., Brimblecombe, P., Van Grieken, R., Busse, H.-J., Sturaro, G., Valentino, A., Bernardi, A., Blades, N., Shooter, D., Bock, L. D., Gysels, K., Wieser, M., Kim, O.** (1999). "Indoor air quality at the Correr Museum, Venice, Italy. " *The Science of the Total Environment* **236**,135-152.
- Castro, L. M., Pio, C. A., Harrison, R. M., Smith, D. J. T.** (1999). "Carbonaceous aerosol in urban and rural European atmospheres: estimation of secondary organic carbon concentrations." *Atmospheric Environment* **33**, 2771-2781.
- Cellier, P., Garrec, J.-P., Brignon, J.-M. et Jacquemoud, S.** (2005). "Impacts sur les écosystèmes", dans *Pollution par les particules atmosphériques: état des connaissances et perspectives de recherche* édité par P. P. Pédrit, La Documentation Française, 221- 236.
- Chaloulakou, A. et Mavroidis, I.** (2002). "Comparison of indoor and outdoor concentrations of CO at a public school. Evaluation of an indoor air quality model." *Atmospheric Environment* **36**, 1769–1781.
- Chang, M., Kim, S., Sioutas, C.** (1999). "Experimental studies on particle impaction and bounce: effects of substrate design and material." *Atmospheric Environment* **33**, 2313-2322.
- Chao, C. Y. H** (2001) "Comparison between indoor and outdoor air contaminant levels in residential buildings from passive sampler study." *Building and environment* **36**, 999-1007.

- Chao, C. Y., H., Wan, M. P., Cheng, E. C. K.** (2003) "Penetration coefficient and deposition rate as a function of particle size in non-smoking naturally ventilated residences." *Atmospheric Environment* **37**, 4233–4241.
- Charlesworth, P.** (1988). "Air Exchange rate and Airtightness Measurement Techniques- An Application Guide." *Air infiltration and Ventilation centre*. University of Warwick Science Park. Barclays Venture Centre. Coventry. CV4 7EZ Great Britain.
- Chow, J. C. et Watson, J. G.** (1998). "Guideline on Speciated Particulate Monitoring." U.S. Environmental Protection Agency.
- Chow, J. C., Watson, J. G., Kuhns, H., Etyemezian, V., Lowenthal, D. H., Crow, D., Kohl, S. D., Engelbrecht, J. P., Green, M. C.** (2004). "Sources profiles for industrial, mobile, and area sources in the Big Bend Regional Aerosol Visibility and Observational study." *Chemosphere* **54**, 185-208.
- Chow, J. C., Watson, J. G., Lu, Z., Lowenthal, D. H., Frazier, C. A., Solomon, P. A., Thuillier, R. H., Magliano, K.** (1996). "Descriptive analysis of PM_{2.5} and PM₁₀ at regionally representative locations during SJVAQS/AUSPEX." *Atmospheric Environment* **30**(12), 2079-2112.
- Chow, J. C., Watson, J.G., Edgerton, S. A., Vega, E.** (2002). "Chemical composition of PM_{2.5} and PM₁₀ in Mexico City during winter 1997." *The Science of The Total Environment* **287**(3), 177-201.
- CITEPA.** Emissions dans l'air en France mis à jour en mai 2010 : <http://www.citepa.org/index.htm>.
- Colbeck, I.** (1995). "Particle emission from outdoor and indoor sources." In: K.E. Samara (Editor), Airbone particulate matter pp. 1-34.
- CONTAM 2.4** User Guide and Program Documentation, NIST 2006.
- CONTAMW 1.0** User Manual, NIST 2000.
- Contini, D., Genga, A., Cesari, D., Siciliano, M., Donateo, A., Bove, M. C., Guascito, M. R.** (2010). "Characterisation and source apportionment of PM₁₀ in an urban background site in Lecce." *Atmospheric Research* **95**, 40–54.
- Crist, K. C., Liu, B., Kim, M., Deshpande, S. R., John, K.** (2008) "Charaterization of fine particulate matter in Ohio: Indoor, Outdoor, and personal exposures." *Environmantal Research* **16**, 62-71.
- D. A. V., Glenn, T. R. et Eisenreich, S. J.** (2002). "Characterization of atmospheric trace elements on PM_{2.5} particulate matter over the New-York - New Jersey harbor estuary." *Atmospheric Environment* **36**, 1077-1086.
- Daskalova, N. et Boevski, I.** (1999). "spectral interference in the determination of trace elements in the environmental materials by inductively coupled plasma atomic emission spectrometry." *Spectrochimica Acta Part B* **54**, 1099-1122.
- De la Guardia, M. et Garrigues, S.** (1998). "Strategies for the rapid characterization of metals and organic pollutants in solid wastes and contaminated soils by using mass spectrometry." *Trends in analytical chemistry* **17**, 263-272.

- Dean, J. R., Deary, M. E., Gbafa, B. K., Scott, W. C.** (2004). “Characterisation and analysis of persistent organic pollutants and major, minor and trace elements in Calabash chalk.” *Chemosphere* **57**(1), 21-25.
- Demokritou, P., Lee, S. J, Ferguson, S, T., Koutrakis, P.** (2004). “A compact multi stage (cascade) impactor for the characterization of atmospheric aerosols.” *Aerosol Science* **35**, 281–299.
- Destailats, H., Maddalena, R. L., Singera, B. C., Hodgson, A. T., McKone, T. E.** (2008). “Indoor pollutants emitted by office equipment: A review of reported data and information needs.” *Atmospheric Environment* **42**, 1371–1388
- Eder, B., Kang, D., Mathur, R., Yu, Sh., Schere, K.** (2005). “An Operational Evaluation of The Eta-CMAQ Air Quality Forecast Model: Summer 2005.” 4th Annual CMAS Models-3 Users’ Conference, September 26-28, 2005. Téléchargeable sur <http://www.cmascenter.org/conference/2005/archive.cfm>
- Ehrlich, C., Noll, G., Kalkoff, W. D., Baumbach, G., Dreiseidler, A.** (2007). “PM10, PM2.5 and PM1.0-Emissions from industrial plants-Results from measurement programmes in Germany.” *Atmospheric Environment* **41**(29), 6236-6254.
- Ekmekcioglu, D. et Keskin, S.** (2007). “Characterization of Indoor Air Particulate Matter in Selected Elementary Schools in Istanbul, Turkey.” *Indoor Built Environ* **16**, 169-176.
- Eleftheriadis, K. et Colbeck, I.** (2000). “The fractionation of atmospheric coarse aerosol by a tunnel sampler employing stage impactors.” *Journal of Aerosol Science* **31**, 321-334.
- EN 12341: 1999.** “Air Quality - Determination of the PM₁₀ fraction of suspended particulate matter”.
- EN 14907: 2005.** “Ambient Air Quality – Standard gravimetric measurement method for the determination of the PM_{2,5} mass fraction of suspended particulate matter”.
- Englert, N.** (2004). “Fine particles and human health - a review of epidemiological studies.” *Toxicology Letters* **149**, 235-242.
- EPA** (2009). “Guidance on the Development, Evaluation, and Application of Environmental Models.” EPA/100/K-09/003, 99 pages. www.epa.gov/crem
- EPA- USA** (2004). Air quality criteria for particulate matter, Vol 1.
- EPA-USA** (2001). Air Quality Criteria for Particulate Matter- Volume I. EPA 600/P-99/002B. Washington, D.C.
- EURACHEM/CITAC** (2000). “Guide EURACHEM/CITAC - Quantifier l'incertitude dans les mesures analytiques - 2ème édition”. Traduit en Français sous l'égide du Laboratoire National d'Essais. Téléchargeable sur le site : www.lne.fr
- Feng, Y., Chen, Y., Guo H., Zhi, G., Xiong S., Li, J., Sheng, G., Fu, J.** (2009). “Characteristics of organic and elemental carbon in PM_{2,5} samples in Shanghai, China.” *Atmospheric research* **92**, 434-442.
- Fernández, A. J., M. Ternero, et al.** (2000). “An approach to characterization of sources of urban airborne particles through heavy metal speciation.” *Chemosphere - Global Change Science* **2**(2), 123-136.

- Ferro, A. R., Kopperud, R. J., and Hildemann, L. M.** (2004). "Source Strengths for indoor human activities that resuspend particulate matter." *Environmental Science and Technology* **38**, 1759-1764.
- Feustel, H. E.** (1999). "COMIS- an international multizone air-flow and contaminant transport model." *Energy and Buildings* **30**, 3–18.
- Foltescu, V. L., Selin-Lindgren, E., Isakson, J., Öblad, M., Tiede, R., Sommar, J., Pacyna, J. M. et Toerseth, K.** (1996). "Airborne concentrations and deposition fluxes of major and trace species at marine stations in Southern Scandinavia." *Atmospheric Environment* **30**, 3857-3872.
- Fontan, J.** (2003). *Les pollutions de l'air. Les connaître pour les combattre.* Edition Vuibert Sciences.
- Franklin, P. J.** (2007). "Indoor air quality and respiratory health of children." *Paediatric Respiratory Reviews* **8**, 281-286.
- Fromme H., Twardella, D., Dietrich, S., Heitmann, D., Schierl, R., Liebl, B., Ruden, H..** (2007). "Particulate matter in the indoor air of classrooms-exploratory results from Munich and surrounding area." *Atmospheric Environment* **41**, 854-866.
- Fromme, H., Diemer, J., Dietrich, S., Cyrus, J., Heinrich, J., Lang, W., Kiranoglu, M., Twardella, D.** (2008). "Chemical and morphological properties of particulate matter (PM₁₀, PM_{2.5}) in school classrooms and outdoor air." *Atmospheric Environment* **42**, 597-6605.
- Funasaka, K., Miyazaki, T., K., Tsuruho, K. T., Mizuno, T., Kuroda, K.** (2000). "Relationship between indoor and outdoor carbonaceous particulates in roadside households." *Environmental Pollution* **110** (1), 127-134.
- Fung, K.K.** (1990) "Particulate carbon speciation by MnO₂ oxidation." *Aerosol Science Technology* **12**, 122–127.
- Gallego, J. L. R., Ordóñez, A., Loredó, J.** (2002). "Investigation of trace element sources from an industrialized area (Avilés, northern Spain) using multivariate statistical methods." *Environment International* **27**, 589-596.
- Gao, N. P., Niu, J. L.** (2007). "Modeling particle dispersion and deposition in indoor environments." *Atmospheric Environment* **41**, 3862–3876.
- Gao, Y., Nelson, E. D., Field, M. P., Ding, Q., Li, H., Sherrell, R. M., Gigliotti, C. L., Ry, Geller, M. D., Changa, M., Sioutasa, C., Ostrob, B. D., Lipsett, M. J.** (2002). "Indoor/outdoor relationship and chemical composition of fine and coarse particles in the southern California deserts." *Atmospheric Environment* **36**, 1099-1110.
- Gemenetzi, P., Moussas, P., Arditoglou, A., Samara, C.** (2006). "Mass concentration and elemental composition of indoor PM_{2.5} and PM₁₀ in University rooms in Thessaloniki, northern Greece." *Atmospheric Environment* **40**, 3195–3206.
- Gettler–Summa, M. et Pardoux, C.** (2005). "La classification automatique." Cours à l'université Paris - Dauphine.
- Gulijk, C. V., Marijnissen, J. C. M., Makkee, M., Moulijn, J. A.** (2003). "Oil-soaked sintered impactors for the ELPI in diesel particulate measurements." *Aerosol Science* **34**, 635-640.

- Guo, H., Morawska, L., He, C., Gilbert, D.** (2008). “Impact of ventilation scenario on air exchange rates and on indoor particle number concentrations in an air-conditioned classroom.” *Atmospheric Environment* **42**, 757–768.
- Haasa, A., Weber, A., Dorer, V., Keilholz, W., Pelletret, R.** (2002). “COMIS v3.1 simulation environment for multizone air flow and pollutant transport modelling.” *Energy and Buildings* **34**, 873–882.
- Halios, Ch. H., Assimakopoulos, V. D., Helmis, C. G., Flocas, H. A.** (2005). “Investigating cigarette-smoke indoor pollution in a controlled environment.” *Science of the Total Environment* **337**, 183-190.
- Hameri, K., Koponen, I. K., Aalto, P. P., Kulmala, M.** (2002). “Technical note: The particle detection efficiency of the TSI-3007 condensation particle counter.” *Aerosol Science* **33**, 1463-1469.
- Hansen, A.D.A.** (2003). “The Aethalometer™ - real-time Aerosol Analysis for Carbonaceous Aerosol Species. Magee Scientific Company, Berkeley, CA, USA.
- He, C., Morawska, L., Hitchins, J., Gilbert, D.** (2004). “Contribution from indoor sources to particle number and mass concentrations in residential houses.” *Atmospheric Environment* **38**, 3405–3415.
- He, C., Morawska, L., Hitchins, J., Gilbert, D.** (2005). “Particle deposition rates in residential houses.” *Atmospheric Environment* **39**, 3891–3899.
- He, C., Morawska, L., Taplin, L.** (2007). “Particle Emission Characteristics of Office Printers.” *Environmental Science & Technology* **41**(17), 6039-6045.
- Heudorf, U., Neitzert, V., Spark, J.** (2009). “Particulate matter and carbon dioxide in classrooms - The impact of cleaning and ventilation.” *International Journal of Hygiene and Environmental Health* **212**(1), 45-55.
- Hildemann, L. M., Markowski, G. R., Cass, G. R.** (1991). “Chemical-composition of emissions from urban sources of fine organic aerosol.” *Environmental Science and Technology* **25**(4), 744-759.
- Hitzenberger, R., Berner, A., Galambos, Z., Maenhaut, W., Cafmeyer, J., Schwarz, J., Muller, K., Spindler, G., Wiedprecht, W., Acker, K., Hillamo, R., Makel, T.** (2004). “Intercomparison of methods to measure the mass concentration of the atmospheric aerosol during INTERCOMP2000—influence of instrumentation and size cuts.” *Atmospheric Environment* **38**, 6467–6476.
- Ho, K. F., Cao, J. J., Harrison, R. M., Lee, S. C., Bau, K. K.** (2004). “Indoor/outdoor relationships of organic carbon (OC) and elemental carbon (EC) in PM_{2.5} in roadside environment of Hong Kong.” *Atmospheric environment* **38**, 6327-6335.
- Howard-Reed, C., Wallace, L. A., Emmerich, S. J.** (2003) “Effect of ventilation systems and air filters on decay rates of particles produced by indoor sources in an occupied townhouse.” *Atmospheric Environment* **37**, 5295-5306.
- <http://www.pollutionsindustrielles.ecologie.gouv.fr/IREP/index.php>

- Hussein, T., Glytsos, Thodoros., Ondráček, J., Dohányosová, P., Zdímal, V., Hämeri K., Lazaridis, M., Smolík J., Kulmala, M.** (2006) "Particle size characterization and emission rates during indoor activities in a house." *Atmospheric Environment* **40**, 4285–4307.
- Hussein, T., Hameri, K., Heikkinen, M. S. A., Kulmala, M.** (2005). "Indoor and outdoor particle size characterization at a family house in Espoo–Finland." *Atmospheric Environment* **39**, 3697-3709.
- Hussein, T., Kulmala, M.** (2008). "Indoor Aerosol Modelling: Basic Principals and Practical Applications." *Water Air Soil Pollut: focus* **8**, 23-34.
- Iijima, A., Sato, K., Yano, K., Tago, H., Kato, M., Kimura, H., Furuta, N.** (2007). "Particle size and composition distribution analysis of automotive brake abrasion dusts for the evaluation of antimony sources of airborne particulate matter." *Atmospheric Environment* **41**, 4908-4919.
- INERIS** (2004). "Exposition par inhalation aux aérosols ; Principes et méthodes de mesures." N°INERIS-DRC-04-56770-AIRE-n°0401-Obl.
- INVS, 2007.** Pollution atmosphérique : Particules ultrafines et santé.
- INVS, 2008.** Programme de surveillance air et santé Analyse des liens à court terme entre pollution atmosphérique urbaine et mortalité dans neuf villes françaises : www.invs.sante.fr
- Janssen, N. A. H., Hoek, G., Harssema, H., Brunekreef, B.** (1997). "Childhood exposure to PM10: relation between personal, classroom, and outdoor concentrations." *Occupational and Environmental Medicine* **54**, 888-894.
- Jantunen, M., Hanninen, O., Koistinen, K., Hashim, J. H.** (2002) "Fine PM measurements: personal and indoor air monitoring." *Chemosphere* **49**, 993-1007.
- Jeong, C-H., Lee, D-W., Kim, E., Hopke, P. K.** (2004). "Measurement of real-time PM2.5 mass, sulfate, and carbonaceous aerosols at the multiple monitoring sites." *Atmospheric Environment* **38** (31), 5247-5256.
- Jones, A. P.** (1999). "Indoor air quality and health." *Atmospheric Environment* **33**, 4535-4564.
- Kamens, R., Lee, C-T., Wiener, R. et Leith. D.** (1991). "A study of characterize indoor particles in three non-smoking homes". *Atmospheric Environment* **25**, 939–948.
- Karthikeyan, S., Joshi, U. M., Balasubramanian, R.** (2006). "Microwave assisted sample preparation for determining water-soluble fraction of trace elements in urban airborne particulate matter: Evaluation of bioavailability." *Analytica Chimica Acta* **576**, 23-30.
- Kirchner S., Pasquier N., Iannaccone, C., Gauvin, S., Pietrowski, D., Bus, N., Derbez, M., Golliot, F., Ramalho, O., Skoda-Schmoll, C., Collignan, B., O'Kelly, P., Ribéron, J., Villenave, Jg., Cardinal, A., Brosselin, P., Dor, F., Zeghnoun, A., Nedellec, V et Mosqueron, L.** (2003). "Observatoire de la qualité de l'Air Intérieur-Programme d'action 2003". Rapport DDD/SB-2003-67.
- Kirchner, S., Arenes J. -F., Cochet, C., Derbez, M., Duboudin, C., Elias, P., Gregoire, A., Jédor, B., Lucas J.-P., Pasquier, N., Pigneret, M., Ramalho, O.** (2007). "État de la qualité de l'air dans les logements français." *Environnement, Risques & Santé* **6**(4), juillet-août 2007.

- Koponen, I. K., Asmi, A., Keronen, P., Puhto, K., Kulmala, M.** (2001). "Indoor air measurement campaign in Helsinki, Finland 1999: the effect of outdoor air pollution on indoor air." *Atmospheric Environment* **35**, 1465-1477.
- Koutrakis, P., Spengler, J. D. et Chang, B-H.** (1987). "Characterizing sources of indoor and outdoor aerosols using PIXE." *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research B* **22**, 331-336.
- Kulkarni, P., Chellam, S. et Fraser, M. P.** (2006). "Lanthanum and lanthanides in atmospheric fine particles and their apportionment to refinery and petrochemical operations in Houston, TX." *Atmospheric Environment* **40**, 508-520.
- Kulkarni, P., Chellam, S., Flanagan, J. B., Jayant, R. K. M.** (2007). "Microwave digestion: ICP-MS for elemental analysis in ambient airborne fine particulate matter: Rare earth elements and validation using a filter borne fine particle certified reference material." *Analytica Chimica Acta* **599**, 170-176.
- Kulmala, M., Asmi, A., Pirjola, L.** (1999). "Indoor air aerosol model: the effect of outdoor air, filtration and ventilation on indoor concentrations." *Atmospheric Environment* **33**, 2133-2144.
- Lai, A. C. K. et Nazaroff, W. W.** (2000). "Modeling indoor particle deposition from turbulent flow onto smooth surfaces." *Journal of Aerosol Science* **31**, 463-476.
- Lai, A.C.K.** (2002). "Particle deposition indoors: a review." *Indoor air* **12**, 211-214.
- Lamaison L.** (2006). "Caractérisation des particules atmosphériques et identification de leurs sources dans une atmosphère urbaine sous influence industrielle." Thèse de doctorat de l'université de Lille 1.
- Lamaison, L., Alleman, L. Y., Robache, A., Galloo, J.-C.** (2009). "Quantification of Trace Metalloids and Metals in Airborne Particles Applying Dynamic Reaction Cell Inductively Coupled Plasma Mass Spectrometry." *Applied Spectroscopy* **63**, 87-91.
- Lazaridis, M., Semb, A., Larssen, S., Hjellbrekke, A. -G., Hov, Ø., Hanssen, J. E., Schaug, J., Tørseth, Kjetil.** (2002). "Measurements of particulate matter within the framework of the European Monitoring and Evaluation Programme (EMEP) I. First results." *The Science of the Total Environment* **285**, 209-235.
- Lazaridis, M., V. Aleksandropoulou, et al.** (2006). "Physico-chemical characterization of indoor/outdoor particulate matter in two residential houses in Oslo, Norway: measurements overview and physical properties; URBAN-AEROSOL Project." *Indoor Air* **16**(4), 282-295.
- Lebart, L., Morineau, A., Piron, M.** (2004). "Statistique exploratoire multidimensionnelle." Cours, Dunod 3^{ème} édition.
- Ledoux, F.** (2003). "Les aérosols particuliers atmosphériques sur le Dunkerquois : caractérisations chimiques, physiques, spectroscopiques et évaluation de leur toxicité." Thèse de l'Université du Littoral Côte d'Opale.
- Lee, C.-W. et Hsu, D.-J.** (2007). "Measurements of fine and ultrafine particles formation in photocopy centers in Taiwan." *Atmospheric Environment* **41**(31), 6598-6609.

- Lee, H S., Kang, B.-W., Cheongs, J. P, Lee, S.-K.** (1997). "Relationships between indoor and outdoor air quality during the summer season in Korea." *Atmospheric Environment* **31** (11), 1689-1693.
- Lee, S.C., Lam, S., Fai, H. K.** (2001). "Characterization of VOCs, ozone, and PM10 emissions from oze equipment in an environmental chamber." *Building and Environment* **36**, 837-842
- Lefèvre, R. A., Brignon, J. M., Vergès-Bermin, V.** (2005). "Les interactions avec le patrimoine bâti", dans Pollution par les particules atmosphériques : état des connaissances et perspectives de recherche édités par P. Primequal-Prédit, La Documentation Française, 237-251.
- Lewtas, J.** (2007). "Air pollution combustion emissions: Characterization of causative agents and mechanisms associated with cancer, reproductive, and cardiovascular effects." *Mutation Research* **636**, 95-133.
- Li, C. S., Lin, C. H.** (2003). "Carbon profile of residential indoor PM1 and PM2.5 in the subtropical region." *Atmospheric Environment* **37**, 881-888.
- Limb, M. J.** (1997). "Ventilation in school An Annotated Bibliography." International Energy Agency. Energy conservation in buildings and community systems programme. Air infiltration and Ventilation centre. University of Warwick Science Park. Barclays Venture Centre. Coventry. CV4 7EZ Great Britain.
- Lin, H.-Y., C.-H. Hung, et al.** (2008). "Characteristics and source identification of roadside suspended particles." *Transportation Research Part D: Transport and Environment* **13**(8), 531-538.
- Liu, D-L., Nazaroff, W. W.** (2001). "Modeling pollutant penetration across building envelopes." *Atmospheric Environment* **35**, 4451-4462
- Long, C. M., Suh, H. H., Cabtalano, P., Koutrakis, P.** (2001). "Using time and size-resolved particulate data to quantify indoor penetration and deposition behaviour." *Environmental Science and Technology* **35**, 2089-2099.
- Lunden, M. M., Kirchstetter, T. W., Thatcher, T. L., Hering, S. V., Brown, N. J.** (2008). "Factors affecting the indoor concentrations of carbonaceous aerosols of outdoor origin." *Atmospheric Environment* **42**, 5660-5671.
- Lunden, M. M., Revzan, K. L., Fischer, M. L., Thatcher, T. L., Littlejohn, D., Hering, S. V., Brown, N. J.** (2003). "The transformation of outdoor ammonium nitrate aerosols in the indoor environment." *Atmospheric Environment* **37**, 5633- 5644.
- Luoma, M. et Batterman, S. A.** (2001). "Characterization of Particulate Emissions from Occupant Activities in Offices." *Indoor Air* **11**(1), 35-48.
- Mader, B. et Pankow, J.** (2001). "Gas/Solid Partitioning of Semivolatile Organic Compounds (SOCs) to Air Filters. 3. An Analysis of Gas Adsorption Artifacts in Measurements of Atmospheric SOC's and organic Carbon (OC) When Using Teflon Membrane Filters and Quartz Fiber Filters." *Environmental Science and Technology* **35**, 3422-3432.

- Majumdar, D et Prince William, S. P. M.** (2009). "Chalk dustfall during classroom teaching: particle size distribution and morphological characteristics." *Environ Monit Assess* **148**, 343-351.
- Man, C. K. et Yeung, H. S.** (1999) "Modeling and measuring the indoor radon concentrations in high-rise buildings in Hong Kong." *Applied Radiation and Isotopes* **50**, 1131-1135.
- Marchand, C., Calvé, S. L., Mirabel, Ph., Glasser, N., Casset, A., Schneider, N., De Blay, F.** (2008) "Concentrations and determinants of gaseous aldehydes in 162 homes in Strasbourg (France)" *Atmospheric Environment* **42**, 505–516.
- Maroni, M., Seifert, B., Lindvall, T.** (1995). "Air Quality Monographs - Vol 3" Elsevier Science Publisher.
- Marquardt D.W.** (1963). "An algorithm for least-squares estimation of nonlinear parameters." *Journal for the Society of Industrial and Applied Mathematics* **11**, 431-441.
- Martuzevicius, D., Grinshpun, S. A., Lee, T., Hu, S., Biswas, P., Reponen, T., LeMasters, G.** (2008). "Traffic-related PM_{2.5} aerosol in residential houses located near major highways: Indoor versus outdoor concentrations." *Atmospheric Environment* **42**, 6575-6585.
- Matthijssen, V., Ten Brink, D.** (2007). "Aerosol, climate, and the hydrological cycle." *Science*, **294**, 2119–2124.
- McLennan, S. M.** (2001). "Relationships between the trace element composition of sedimentary rocks and upper continental crust." *Geochemistry Geophysics Geosystems* **2**.
- Mic1100 Low Flow-rate Air Sampler user manual (2003), 68p.
- Miller, N. C., Ross, D. L., Nasr, M. M.** (1998). "Effect of formulation factors on the observed bounce in cascade impactors used to measure the spray particle size of metered dose inhalers." *International Journal of Pharmaceutics* **173**, 93–102.
- Miller, S. L., Nazaroff.** (2001). "Environmental tobacco smoke particles in multizone indoor environments." *Atmospheric Environment* **35**, 2053-2067.
- Millero, F. J.** (1974). "The physical chemistry of sea water." *Annual reviews of Earth and Planetary Science* **2**, 101-150.
- Molnár, P., Bellander, T., Sällsten, G., Bomand, J.** (2007). "Indoor and outdoor concentrations of PM_{2.5} trace elements at homes, preschools and schools in Stockholm, Sweden." *Journal of Environmental Monitoring* **9**, 348-357.
- Monn, C.** (2001). "Exposure assessment of air pollutants: a review on spatial heterogeneity and indoor/outdoor/personal exposure to suspended particulate matter, nitrogen dioxide and ozone." *Atmospheric Environment* **35**, 1–32
- Morawska, L. et Jamriska, M.** (1996). "Deposition of Radon progeny on indoor surfaces." *J. Aerosol Sci.* **27**(2), 305-312.
- Morawska, L. et Zhang, J. J.** (2002). "Combustion sources of particles. 1. Health relevance and source signatures." *Chemosphere* **49**, 1045-1058.
- Morawska, L., He, C., Johnson, G., Guo, H., Uhde, E and Ayoko, G.** (2009). "Ultrafine Particles in Indoor Air of a School: Possible Role of Secondary Organic Aerosols". *Environmental Science and Technology* **43**, 9103-9109.

- Morawska, L., He, C., Hitchins, J., Mengersen, K., Gilbert, D.** (2003). “Characteristics of particle number and mass concentrations in residential houses in Brisbane, Australia.” *Atmospheric Environment*, **37**, 4195-4203.
- Mosqueron, L. et Nedellec, V.** (2001), “Inventaire des données françaises sur la qualité de l'air à l'intérieur des bâtiments.” *Observatoire de la Qualité de l'Air Intérieur*, 173p.
- Na, K., Cocker III, D. R.** (2005). “Organic and elemental carbon concentrations in fine particulate matter in residences, schoolrooms, and outdoor air in Miria Loma, California.” *Atmospheric Research* **39**, 3325-3333.
- Na, K., Sawant, A. A., Cocker III, D. R.** (2004). “Trace elements in fine particles matter within a community in western Riverside County, CA: focus on residential sites and a local high school.” *Atmospheric Environment* **38**, 2867-2877.
- Nazaroff, W. W.** (2004). “Indoor particle dynamics.” *Indoor Air* **14**, 175-183.
- NIOSH Manual of Analytical Methods (NMAM) METHOD 5040.** (1999). Elemental carbon (Diesel particulate). Fourth Edition.
- Niu, J., Rasmussen, P. E., Wheeler, A., Williams, R., Chénier, M.** (2010). “Evaluation of airborne particulate matter and metals data in personal, indoor and outdoor environments using ED-XRF and ICP-MS and co-located duplicate samples.” *Atmospheric Environment* **44**, 235-245.
- Olea Popescu, L. L.** (2009). “Influence de la pollution extérieure sur la qualité de l'air intérieur : rôle des fissures dans le transfert de particules solides.” Thèse de l'université de la Rochelle.
- OQAI.** (2004). Revue des enquêtes sur la qualité de l'air intérieur dans les logements en Europe et aux Etats-Unis. DDD/SB-2004-045.
- OQAI.** (2006). Campagne nationale Logements Etat de la qualité de l'air dans les logements français. Rapport final.
- Oravisjärvi, K., Timonen, K. L., Wiikinkoski, T., Ruuskanen, A. R., Heinänen, K. Et Ruuskanen, J.** (2003). “Source contributions to PM_{2.5} particles in the urban air of a town situated close to a steel works.” *Atmospheric Environment* **37**, 1013-1022.
- Ott, W. R. et Siegmann, H C.** (2006). “Using multiple continuous fine particle monitors to characterize tobacco, incense, candle, cooking, wood burning, and vehicular sources in indoor, outdoor, and in-transit settings.” *Atmospheric Environment* **40**, 821–843.
- Owen, M. K. et Ensor, D. S.** (1992). “Airborne particle sizes and sources found in indoor air.” *Atmospheric Environment* **26A** (12), 2149-2162.
- Özkaynak, H.** (1999). “Modelling population exposures to particulate matter.”. Particulate Methodology Workshop, National Research Center for Statistics and Environment, Seattle, Washington, US.
- Özkaynak, H., Xue, J., Spengler, J., Wallace, L., Pellizzari, E. et Jenkins, P.** (1996). “Personal exposure to airborne particles and metals: results from the Particle TEAM study in Riverside, California.” *Journal of Exposure Analysis and Environmental Epidemiology* **6**, 57-78.

- Pacyna** (1998). "Source inventories for atmospheric trace metals", dans *Atmospheric particles* édité par R. M. Harrison et R. E. van Grieken, John Wiley & Sons. **5**, 385- 423.
- Pacyna, J. et Pacyna, E. G.** (2001). "An assessment of global and regional emissions of trace metals to the atmosphere from anthropogenic sources worldwide." *Environmental Reviews* **9**, 269-298.
- Park, S. S., Hansen, A. D. A., Cho, S. Y.** (2010). "Measurement of real time black carbon for investigating spot loading effects of Aethalometer data." *Atmospheric Environment* **44** (11), 1449-1455.
- Perez, N., Pey, J., Querol, X., Alastuey, A., Lopez, J. M., Viana, M.** (2008). "Partitioning of major and trace components in PM₁₀-PM_{2.5}-PM₁ at an urban site in Southern Europe." *Atmospheric Environment* **42**, 1677-1691.
- Persily, A. K.** (1997). "Evaluating Building IAQ and ventilation with Indoor Carbon Dioxide." *ASHRAE transaction* **103** (2), 1-11.
- Peterson M. et Richards, M. H.** "Thermal-Optical-Transmittance Analysis for Organic, Elemental, Carbonate, Total Carbon, and OCX2 in PM_{2.5} by the EPA/NIOSH Method - #83." Rapport 2002. Research Triangle Park, NC 27709.
- Phillips, J. L., Field, R., Goldstone, M., Reynolds, G. L., Lester, J. N., Perry, R.** (1993) "Relationships between indoor and out door air quality in four naturally ventilated offices in the United Kingdom." *Atmospheric Environment* **27**(A), 1743-1753.
- Pope, C.A., Burnett, R. T., Thun, M. J., Calle, E. E., Krewski, D., Ito, K., Thurston, G. D.** (2002). "Lung cancer, cardiopulmonary mortality, and long-term exposure to fine particulate air pollution." *The Journal of the American Medical Association* **287**(9), 1132-1141.
- Poupard, O., Blondeau, P., Iordache, V., Allard, F.** (2005) "Statistical analysis of parameters influencing the relationship between outdoor and indoor air quality in schools." *Atmospheric Environment* **39**, 2071-2080.
- Prati, P., Zucchiatti, A., Lucarelli, F. et Mandò, P. A.** (2000). "Source apportionment near a steel plant in Genoa (Italy) by continuous aerosol sampling and PIXE analysis." *Atmospheric Environment* **34**, 3149-3157.
- PRIMEQUAL** (2007). Evaluation du programme.
- Prouvost, H. et Declerco, C.** (2004). "Impact des particules en suspension sur la santé respiratoire des enfants. Intérêt et faisabilité de l'étude d'un panel d'enfants lillois." ORS, Nord-Pas de Calais, 42 pages.
- Putaud, J.-P., Raes, F., Van Dingenen, R., Brüggemann, E., Facchin, et al.** (2004). "A European aerosol phenomenology-2: chemical characteristics of particulate matter at kerbside, urban, rural and background sites in Europe." *Atmospheric Environment* **38**, 2579-2595.
- Querol, X., Alastuey, A., Moreno, T., Vian, M. M., Castillo, S., Pey, J., et al.** (2008). "Spatial and temporal variations in airborne particulate matter (PM₁₀ and PM_{2.5}) across Spain 1999–2005." *Atmospheric Environment* **42**, 3964-3979.

- Querol, X., Viana, M., Alastuey, A., Amato, F., Moreno, T., Castillo, S., et al.** (2007). "Source origin of trace elements in PM from regional background, urban and industrial sites of Spain." *Atmospheric Environment* **41**, 7219-7231.
- Raes, F., Van Dingenen, R., Vignati, E., Wilson, J., Putaud, J.-P., Seinfeld, J. H., Adams, P.** (2000). "Formation and cycling of aerosols in the global troposphere." *Atmospheric Environment* **34**, 4215-4240.
- Ramanathan, V., Crutzen, P. J., Kiehl, J. T. et Rosenfeld, D.** (2001). "Aerosols, climate and the hydrological cycle." *Science of the Total Environment* **294**, 2119-2124.
- Rasmussen, P. E., Wheeler, A. J., Hassan, N. M., Filiatreult, A., Lanouette, M.** (2007). "Monitoring personal, indoor, and outdoor exposures to metals in airborne particulate matter: Risk of contamination during sampling, handling and analysis." *Atmospheric Environment* **41**, 5897-5907.
- Reff, A., Turpin, B. J., Offenberg, J. H., Weisel, C. P., Zhang, J., Morandi, M., Stock, T., Colome, S., Winer, A.** (2007). "A functional group characterization of organic PM_{2.5} exposure: Results from the RIOPA study." *Atmospheric Environment* **41**, 4585-4598.
- Ren, Y., Cheng, T., Chen, J.** (2006). "Polycyclic aromatic hydrocarbons in dust from computers: one possible indoor source of human exposure." *Atmospheric Environment* **40**(36), 6956-6965.
- Ren, Z., Stewart, J.** (2003). "Simulating air flow and temperature distribution inside buildings using a modified version of COMIS with sub-zonal divisions." *Energy and Buildings* **35**, 255-271.
- Renoux, A. et Boulaud, D.** (1998) "Les aérosols : physique et métrologie." *Edition Tec et Doc*, Lavoisier, Paris.
- Rosell-Llompart, J., Loscertales, I. G., Bingham, D. et de la Mora, J. F.** (1996) "Sizing nanoparticles and ions with a short differential mobility analyzer." *Journal of Aerosol* **27**, 695- 719.
- Rupprecht, M. et Brobst, T.** (1998). "Development of a method for the systematic use of bilinear multivariate calibration methods for the correction of the interferences in inductively coupled plasma- mass spectrometry." *Analytica Chimica Acta* **358**, 205-225.
- Salonen, R. O., Pennanen, A. S., Vahteristo, M., Korkeila, P., Alm, S., Randell, J. T.** (2008). "Health risk assessment of indoor air pollution in Finnish ice arenas." *Environment International* **34**, 51-57.
- Salthammer, T., Fauck, C., Schripp, T., Meinlschmidt, P., Willenborg, S., Moriske, H-J.** (2011). "Effect of particle concentration and semi-volatile organic compounds on the phenomenon of 'black magic dust' in dwellings." *Building and Environment, In Press, Corrected Proof, Available online 29 March 2011*
- Sánchez de la Campa, A. M., Pio, C., de la Rosa, J. D., Querol, X., Alastuey, A., González-Castanedo, Y.** (2009). "Characterization and origin of EC and OC particulate matter near the Doñana National Park (SW Spain)." *Environmental Research* **109**(6), 671-681.

- Sandroni, V., Smith, C. M. M., Donovan, A.** (2003). "Microwave digestion of sediment, soils and urban particulate matter for trace metal analysis." *Talanta* **60**, 715-723.
- Santamouris, M., Synnefa, A., Assimakopoulos, M., Livada, I., Pavlou, K., Papaglastra, M., Gaitani, N., Kolokotsa, D., Assimakopoulos, V.** (2008). "Experimental investigation of the air flow and indoor carbon dioxide concentration in classrooms with intermittent natural ventilation." *Energy and Buildings* **40**(10), 1833-1843.
- Sawant, An. A., Na, K., Zhua, X., Cocker, K., Butt, S., Song, C., Cocker III, D. R.** (2004). "Characterization of PM_{2.5} and selected gas-phase compounds at multiple indoor and outdoor sites in Mira Loma, California." *Atmospheric Environment* **38**, 6269-6278.
- Sem, G. J.** (2002). "Design and performance characteristics of three continuous-flow condensation particle counters: a summary." *Atmospheric Research* **62**, 267-294.
- Singh, M., Misra, C., Sioutas, C.** (2003). "Field evaluation of a personal cascade impactor sampler (PCIS)." *Atmospheric Environment* **37**, 4781-4793.
- Smichowski, P., Marrero, J. et Gómez, D.** (2005). "Inductively Coupled plasma optical emission Spectrometric determination of trace element in PM₁₀ airborne particulate matter collected in an industrial area of Argentina." *Microchemical journal* **80**, 9-17.
- Smichowski, P., Marrero, J. et Gómez, D.** (2005). "Inductively Coupled plasma optical emission Spectrometric determination of trace element in PM₁₀ airborne particulate matter collected in an industrial area of Argentina." *Microchemical journal* **80**, 9-17.
- Spindler, G., Müller, K., Brüggemann, E., Gnauk, T., Herrmann, H.** (2004). "Long-term size-segregated characterization of PM₁₀, PM_{2.5}, and PM₁ at the IfT research station Melpitz downwind of Leipzig (Germany) using high and low-volume filter samplers." *Atmospheric Environment* **38**(31), 5333-5347.
- Squinazi, F.** (2002). "La pollution de l'air à l'intérieur des bâtiments (allergènes exclus)." *Rev Fr Allergol Immunol Clin* **42**, 248-55.
- Sternbeck, J., Sjödin, Å., Andréasson, K.** (2002). "Metal emissions from road traffic and the influence of resuspension - results from two tunnels studies." *Atmospheric Environment* **36**, 4735-4744.
- Stranger, M., Potgieter-Vermaak, S. S., Van Grieken, R.** (2007). "Comparative overview of indoor air quality in Antwerp, Belgium." *Environment International* **33**, 789-797.
- Swietlicki, E. et Krejci, R.** (1996). "Source characterisation of the Central European atmospheric aerosol using multivariate statistical methods." *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research B* **109/110**, 519-525.
- Thatcher, T. L. et Layton, D. W.** (1995). "Deposition, resuspension and penetration of particles within a residence" *Atmospheric Environment* **29**, 13, 1487-1497.
- Thatcher, T. L., Lai, A. C. K., Moreno-Jackson, R., Sextro, R. G., Nazaroff, W. W.** (2002). "Effects of room furnishings and air speed on particle deposition rates indoors." *Atmospheric Environment* **36**, 1811-1819.
- Thatcher, T. L., Lunden, Me. M., Revzan, K. L., Sextro, Ri. G. et Brown, N. J.** (2003). "A concentration rebound method for measuring particle penetration and deposition in the indoor environment." *Aerosol Science and Tehchnology* **37**, 847-864.

- Tippayawong, N., Khuntong, P., Nitatwichit, C., Khunatorn, Y., Tantakitti.** (2009). "Indoor/outdoor relationships of size-resolved particle concentrations in naturally ventilated school environments." *Building and Environment* **44**, 188-197
- Tung, T. C. W., Chao, C. Y. H., Burnett, John.** (1999). "A methodology to investigate the particulate penetration coefficient through building shell." *Atmospheric Environment* **33**, 881–893.
- Uhde, E. et Salthammer, T.** (2007). "Impact of reaction products from building materials and furnishings on indoor air quality--A review of recent advances in indoor chemistry." *Atmospheric Environment* **41**, 3111-3128.
- Vasiliou, J. G., Sorensen, D., McMurry, P. H.** (1999). "Sampling at controlled relative humidity with a cascade impactor." *Atmospheric Environment* **33**, 1049-1056
- Venkataraman, C., Lyons, J. M., Friedlander S. K.** (1994). "Size Distributions of Polycyclic Aromatic Hydrocarbons and Elemental Carbon. 1. Sampling, Measurement Methods, and Source Characterization." *Environmental Science & Technology* **28**(4), 555-562.
- Viala, A. et Grimaldi, F** (1988). "Polluants gazeux et particulaires à l'intérieur des habitations et des locaux scolaires." *Pollution atmosphérique*, 144-152.
- Virkkula, A., Mäkelä, T., Hillamo, R., Yli-Tuomi, T., Hirsikko, A., Hämeri., Koponen, I. K.** (2007). A simple procedure for correcting loading effects of Aethalometer data. *Journal of the Air and Waste Management Association* **57**, 1214-1222.
- Wåhlin, P., Berkowicz, R. et Palmgren, F.** (2006). "Characterization of traffic-generated particulate matter in Copenhagen." *Atmospheric Environment* **40**, 2151-2159.
- Wang, C.-F., Yang, J.-Y., Ke, C.- H.** (1996) "Multi-element analysis of airborne particulate matter by various spectrometric methods after microwave digestion." *Analytica Chimica Acta* **320**, 207-216.
- Wang, X., Bi, X., Sheng, G., Fu, J.** (2006). "Hospital indoor PM₁₀/PM_{2.5} and associated trace elements in Guangzhou, China." *Science of the Total Environment* **366**, 124-135.
- Watson, J. G., Chow, J. C., Moosmüller, H., Green, M., Frank, N., Pitchford, M.** (1998). "Guidance for using continuous monitors in PM_{2.5} monitoring networks." U.S. Environmental Protection Agency.
- Weckwerth, G.** (2001). "Verification of traffic emitted aerosol components in the ambient air of Cologne (Germany)." *Atmospheric Environment* **35**, 5525-5536.
- Weschler, C. J. et Shields, H. C.** (1997). "Potential reaction among indoor pollutants." *Atmospheric Environment* **31**, 3487-3495.
- Weschler, C. J. et Shields, H. C.** (1999). "Indoor ozone/terpene reactions as a source of indoor particles." *Atmospheric Environment* **33**, 2301-2312.
- WHO- Europe** (2005). "Particulate matter, ozone, nitrogen dioxide and sulfur dioxide." Air Quality Guidelines Global Update. World Health Organization.
- WHO-Europe** (2000). Guidelines for Air Quality. <http://www.who.int/peh/>
- WHO-Europe** (2003). "Health Aspects of Air Pollution with Particulate Matter, Ozone and Nitrogen Dioxide, World Health Organisation Europe, Bonn, Germany".

- WHO-Europe** (2006). Health risks of particulate matter from long-range transboundary air pollution, 113 pages.
- Williams, R., Suggs, J., Rea, A., Sheldon, L., Rodes, Charles., Thornburg, J.** (2003). "The Research Triangle Park particulate matter panel study: modeling ambient source contribution to personal and residential PM mass concentrations." *Atmospheric Environment* **37**, 5365-5378.
- Wilson, W. E., Chow, J. C., Claiborn, C., Fusheng, W., Engelbrecht, J. et Watson, J. G.** (2002). "Monitoring of particulate matter outdoors." *Chemosphere* **49**, 1009-1043.
- Wolkoff, P. et Kjærgaard, S. K.** (2007). "The dichotomy of relative humidity on indoor air quality." *Environment International*, **33**, 850-857.
- Wolkoff, P., Wilkins, C. K., Clausen, P. A., Larsen K.** (1993). "Comparison of Volatile Organic Compounds From Processed Paper And Toners From Office Copiers And Printers: Methods, Emission Rates, And Modeled Concentrations." *Indoor Air* **3**(2), 113-123.
- Wolkoff, P., Wilkins, C. K., Clausen, P. A., Nielsen, G. D.** (2006). "Organic compounds in office environments: sensory irritation, odor, measurements and the role of reactive chemistry." *Indoor Air* **16**(1), 7-19.
www.invs.sante.fr/extrapol.
- Yang, K. X., Swami, K., Husain, L.** (2002). "Determination of trace metals in atmospheric aerosols with a heavy matrix of cellulose by microwave digestion-inductively coupled plasma mass spectroscopy." *Spectrochimica Acta Part B* **57**, 73-84.
- Yin, J. et Harrison, R. M.** (2008). "Pragmatic mass closure study for PM_{1.0}, PM_{2.5} and PM₁₀ at roadside, urban background and rural sites." *Atmospheric Environment* **42**(5), 980-988.
- Yu, C. et Crump, D.** (1998). "A review of the emission of VOCs from polymeric materials used in buildings." *Building and Environment* **33**(6), 357-374.
- Yu, Sh., Mathur, R., Schere, K., Kang, D., Eder, Brian., Pleim, J., Otte, T.** (2005). "A comprehensive evaluation of the Eta-CMAQ forecast model performance for O₃, its related precursors, and meteorological parameters during the 2004 ICARTT study." 4th Annual CMAS Models-3 Users' Conference, September 26-28, 2005.
<http://www.cmascenter.org/conference/2005/archive.cfm>
- Zhang, R., Ho, K.-F., Cao, J., Han, Z., Zhang, M., Cheng, Y., Lee, S-C.** (2009). "Organic carbon and elemental carbon associated with PM₁₀ in Beijing during spring time." *Journal of Hazardous Materials* **172**(2), 970-977.
- Zhua, L., Lua, H., Chena, S., Amagai, T.,** (2009). "Pollution level, phase distribution and source analysis of polycyclic aromatic hydrocarbons in residential air in Hangzhou, China." *Journal of Hazardous Materials* **162**, 1165-1170.

LISTE DES ILLUSTRATIONS

Liste des figures :

Figure 1 : Schéma simplifié des processus physico-chimiques de transformation des aérosols atmosphériques (adapté de Raes et al., 2000).	21
Figure 2 : La composition des particules atmosphériques PM ₁₀ ; PM _{2,5} et PM ₁ en site urbain (Perez et al., 2008).	22
Figure 3 : La composition des particules PM ₁₀ en air intérieur et extérieur d'une école (Fromme et al., 2008).	24
Figure 4 : La contribution des secteurs d'activité à l'émission des PM _{2,5} (CITEPA, 2010). ...	27
Figure 5 : Classement des effets des PM ₁₀ estimés pour toutes les causes de mortalité moyenne annuelle selon les niveaux de PM ₁₀ (WHO- Europe, 2005).	35
Figure 6 : Niveau d'accumulation des particules en fonction de leur taille (CITEPA, 2000). 36	
Figure 7 : Principe d'un modèle stochastique (Blondeau et al., 2002).	44
Figure 8 : Schéma des différents éléments d'un dispositif de collection par filtration (Renoux et Boulaud, 1998).	51
Figure 9 : Schéma de principe de l'impaction en cascade (Renoux et Boulaud, 1998).	52
Figure 10 : Impacteur en cascade Dekati à 4 étages (10µm, 5µm, 1 µm et filtre back-up).	53
Figure 11 : Schéma du principe de mesure d'un compteur optique.	56
Figure 12: Schéma de principe du Sunset Laboratory Thermal-Optical Carbon Analyzer.	59
Figure 13 : Thermo-gramme de séparation de EC, OC (NIOSH 5040, 1999).	60
Figure 14 : Variation du BC à 880 nm au cours de 2 semaines consécutives à l'école d'Arras.	61
Figure 15 : La corrélation entre l'EC et BC dans les classes d'écoles de Saint Pol sur Mer (St) et Liettes (Li).	63
Figure 16 : Schéma de principe d'une source ICP-MS.	67
Figure 17 : Schéma d'une chambre dynamique réactionnelle – DRC.	68
Figure 18 : Diagramme des causes et des effets des différentes sources d'incertitude.	75
Figure 19 : Coupure visuelle de l'arbre.	82
Figure 20 : Schéma du transport, de l'élimination des particules dans un des compartiments (Thatcher et al., 2003).	83
Figure 21 : Exemple du calcul de taux de renouvellement d'air α à Arras après la classe. (C _{in} (0)=1370 ppm, C _{out} =390 ppm).	88
Figure 22 : Dispositif expérimental pour la détermination du taux de renouvellement d'air par la méthode de pression différentielle (Blondeau et al., 2002).	91
Figure 23 : Ventilateur, fausse porte, micro-manomètre et système d'acquisition des données à l'extérieur (à gauche) et à l'intérieur de la classe (à droite) de l'école d'Arras lors de la campagne 2009.	91
Figure 24 : Exemple de calcul de taux de dépôt et le facteur de pénétration des particules dans une classe d'école d'Arras 2009, effectué après la classe.	95
Figure 25 : Exemple de la détermination du G pendant la classe pour les PM ₂₋₁₀ à l'école d'Arras lors de la campagne 2009.	97

Figure 26 : Localisation géographique des écoles dans la région Nord Pas de Calais.....	101
Figure 27 : A gauche, vue extérieure de l'école HQE Jean Mineur,.....	105
Figure 28 : A gauche, vue extérieure de l'école du Pont-Allant,.....	106
Figure 29 : A gauche, vue extérieure de la pièce étudiée à l'école Durot (Seclin),.....	106
Figure 30 : A gauche, vue extérieure de la pièce étudiée (fléchée) à l'école Turgot,.....	107
Figure 31 : A gauche, vue extérieure de l'école Vancauwenberghe,.....	108
Figure 32 : Vue intérieure de la classe au Complexe Scolaire Pierre Mendès France.....	108
Figure 33 : A gauche, vue extérieure de la classe étudiée (fléchée) à l'école Ledoux,.....	109
Figure 34 : A gauche, vue extérieure de la pièce étudiée à école Paul Bert,	109
Figure 35 : La concentration moyenne (ng/m^3) sur une semaine en éléments majeurs et traces des PM_{10} durant la période en présence des élèves (obtenue par Microvol)......	117
Figure 36 : L'Arbre de Classification Hiérarchique des écoles en utilisant les données en présence (P) et en Absence (A) des élèves.....	118
Figure 37 : L'arbre de classification hiérarchique des écoles, uniquement en absence d'élèves.	119
Figure 38 : Ecole à Arras, vue spatiale (Google map).	121
Figure 39 : Ecole à Saint Pol sur Mer, vue spatiale (Google map).	121
Figure 40 : Ecole à Liettes, vue spatiale (Google map).	122
Figure 41 : L'ensemble des matériels utilisés pour la mesure et le prélèvement à l'intérieur et l'extérieur de l'école de St Pol sur Mer (03-17/06/2009).	123
Figure 42 : La rose des vents à l'extérieur de l'école d'Arras (vue aérienne) pendant la période du 13 au 27/05/2009.	129
Figure 43 : La rose des vents et l'emplacement des principales activités industrielles proches de l'école de Saint Pol sur Mer pendant la période du 03 au 17/06/2009.	130
Figure 44 : La rose des vents à l'extérieur de l'école à Liettes pendant la période du 17/06 au 01/07/2009.	131
Figure 45 : Comparaison des concentrations moyennes hebdomadaires en masse des PM_{10} extérieures en présence et absence des élèves dans les classes des 3 écoles. Les barres représentent l'écart entre les 2 mesures consécutives.	134
Figure 46 : Comparaison des concentrations moyennes hebdomadaires en masse des PM_{10} intérieures dans les 3 écoles en présence et en absence des élèves. Les barres représentent l'écart entre les 2 mesures consécutives.	135
Figure 47 : Pourcentage en masse des différentes fractions granulométriques par rapport aux PM_{10} , à l'extérieur des écoles en présence (gauche) et en absence (droite) des élèves.	137
Figure 48 : Pourcentage en masse de la moyenne hebdomadaire des différentes fractions granulométriques par rapport aux PM_{10} à l'intérieur des écoles, en présence et en absence des élèves.	138
Figure 49 : Rapports Int/Ext en masse des différentes fractions granulométriques (en présence d'élèves à gauche et en absence d'élèves à droite). Le trait horizontal bleu correspond à un rapport égal à 1.	139

Figure 50 : Zoom sur les rapports Int/Ext en masse des différentes fractions granulométriques en absence des élèves (après fermeture de la porte à gauche et après 23h à droite).	141
Figure 51 : Variation des concentrations en masse des particules fines (0,5-2 μm) et grosses particules (2-10 μm) pendant 2 semaines à école de Saint Pol sur Mer.....	142
Figure 52 : Zoom sur la variation de concentration en masse des particules (2-10 μm) pendant une journée de classe (08/06/2009) à l'école de Saint Pol sur Mer.	143
Figure 53 : Variation du nombre de fines particules (0,3-1 μm) pendant deux semaines à l'école d'Arras.....	145
Figure 54 : Variation du nombre de grosses particules (2-10 μm) pendant deux semaines à l'école d'Arras.....	146
Figure 55 : Concentrations moyennes hebdomadaires en OC dans les $\text{PM}_{2,5}$ des 3 écoles. P et A respectivement en présence et absence des élèves. Les barres représentent l'écart sur 2 mesures consécutives.	147
Figure 56 : Concentrations moyennes hebdomadaires en EC dans les $\text{PM}_{2,5}$ de 3 écoles. Les barres d'erreurs représentent l'écart de 2 mesures consécutives.....	148
Figure 57 : Variation des teneurs en BC et UVPM au cours de 2 semaines consécutives à l'école d'Arras.....	151
Figure 58 : Variation de concentrations en masse des $\text{PM}_{0,5-2}$ et en UVPM dans les $\text{PM}_{2,5}$ au cours d'une journée de classe 15/05/2009 à l'école d'Arras.....	152
Figure 59 : Concentrations moyennes hebdomadaires (échelle log.) en métaux de l'air extérieur des écoles. Les barres présentent l'écart entre 2 mesures consécutives.....	153
Figure 60 : Comparaison des concentrations élémentaires en ng/m^3 dans l'agglomération Dunkerquoise obtenues lors de notre étude avec celles de Lamaison (2006) et Ledoux (2003).	154
Figure 61 : Concentrations moyennes hebdomadaires observées dans les classes durant la période en présence des élèves. Les barres présentent l'écart entre 2 mesures.	156
Figure 62 : Bilan des pourcentages en masse des éléments mesurés dans les PM_{10} à l'intérieur des écoles.....	158
Figure 63 : Facteurs d'enrichissement pour les PM_{10} à l'extérieur des écoles avec Al comme élément de référence.....	163
Figure 64 : Classification hiérarchique des éléments dans les PM_{10} à l'extérieur de l'école de Saint Pol sur Mer.....	165
Figure 65 : Classification hiérarchique des éléments dans les PM_{10} à l'extérieur de l'école à Arras.	168
Figure 66 : Classification hiérarchique des éléments dans les PM_{10} à l'extérieur de l'école de Liettes.....	169
Figure 67 : Rapport OC/EC à l'extérieur des écoles.....	171
Figure 68 : Rapports élémentaires intérieur/extérieur des différentes fractions particulières en présence des enfants, calculés à partir des données exprimées en $\text{ng}/\mu\text{g}$	173
Figure 69 : Rapport OC/EC dans différentes écoles.	179

Figure 70 : Démarche globale de la construction à l'application du modèle monozone (adapté de EPA, 2009).	187
Figure 71 : Flow chart de la programmation sur Matlab.....	188
Figure 72 : Différence de pression mesurée (ΔP) entre la salle et l'extérieur et débit d'air calculé (Q) traversant la façade à l'école d'Arras la soirée du lundi 18/05/2009.	191
Figure 73 : Taux de dépôt calculés pour différentes tailles de particules dans les écoles d'Arras et de Saint Pol sur Mer.	194
Figure 74 : Taux de dépôt selon les différentes tailles de particules (Lai, 2002).....	195
Figure 75 : Facteur de pénétration dans les écoles d'Arras et de Saint Pol sur Mer.....	197
Figure 76 : Vitesse de génération des particules à différentes périodes de la journée pendant la classe (en présence des élèves).....	198
Figure 77 : Comparaison l'évolution de concentration en grosses PM entre la mesure et le modèle à l'école d'Arras.	200
Figure 78 : Zoom sur l'évolution de concentration en grosses PM mesurée et prédite par le modèle à l'école d'Arras, journée 20/05/2009.	200
Figure 79 : Comparaison de l'évolution de concentration en fines PM entre la mesure et le modèle à l'école d'Arras.	201
Figure 80 : Zoom sur l'évolution de concentration en fines PM mesurée et prédite par le modèle à l'école d'Arras, journée 20/05/2009.	201
Figure 81 : Comparaison entre la mesure et le modèle concernant l'évolution des concentrations en fines et grosses PM en fonction du paramètre p à l'école d'Arras.....	204
Figure 82 : Comparaison entre la mesure et le modèle concernant l'évolution des concentrations en fines et grosses PM en fonction du paramètre λ à l'école d'Arras.....	204
Figure 83 : Comparaison entre la mesure et le modèle concernant l'évolution des concentrations en fines et grosses PM en fonction du paramètre G à l'école d'Arras.....	205
Figure 84 : Robustesse du modèle vis-à-vis du taux de renouvellement d'air en journée.	206
Figure 85 : Robustesse du modèle vis-à-vis du taux de renouvellement d'air la nuit.....	207
Figure 86 : Robustesse du modèle à la variation de concentrations en PM extérieures.	208
Figure 87 : Comparaison de la variation de concentration en grosses PM mesurée (courbe rouge) et prédite par le modèle (courbe bleu) à l'école de Saint Pol sur Mer.....	209
Figure 88 : Corrélation entre le modèle et la mesure pour les grosses PM en présence d'élèves à Saint Pol sur Mer (hors pics extrêmes).....	210
Figure 89 : Evolution des concentrations en fines PM mesurées (courbe rouge) et prédite par le modèle (courbe bleu) à l'école de Saint Pol sur Mer.	210
Figure 90 : Corrélation entre le modèle et la mesure pour les fines PM en présence d'élèves (hors pics extrêmes).	211
Figure 91 : Variation des concentrations en grosses PM mesurées (courbe rouge) et prédites par le modèle (courbe bleu) à l'école de Lille.....	213
Figure 92 : Corrélation entre le modèle et la mesure pour les PM_{10} en présence d'élèves (hors pics extrêmes) à Lille.	214
Figure 93 : Relation entre G et le nombre d'élèves dans la classe.	220

Liste des tableaux

Tableau 1 : Concentrations en particules ($\mu\text{g}/\text{m}^3$) et en différents éléments métalliques particulaires (ng/m^3) dans l'air intérieur (Gemenetzis et al., 2006).	25
Tableau 2 : Eléments caractéristiques émis par diverses sources de combustion (Morawska et al., 2002).	27
Tableau 3 : Concentrations moyennes et vitesse d'émission des $\text{PM}_{2,5}$ lors de différentes activités humaines dans une maison (He et al., 2008).	30
Tableau 4 : Concentrations moyennes en $\text{PM}_{2,5}$ et PM_{10} de l'air intérieur d'après la littérature.	31
Tableau 5 : Réglementation européenne pour As, Cd, Ni et Pb dans les particules PM_{10} dans l'air ambiant.	38
Tableau 6 : Valeurs Guides de l'OMS et de différents pays pour les PM_{10} et $\text{PM}_{2,5}$ pour des expositions par inhalation (adapté du AFSSET, 2009).	39
Tableau 7 : Caractéristiques de certains préleveurs à impaction (Hitzenberger et al., 2004).	53
Tableau 8 : Exemples de mises en solution et de techniques d'analyses des particules atmosphériques dans la littérature.	65
Tableau 9 : Quelques interférences isobariques (Rupprecht et Bropst, 1998).	69
Tableau 10 : Exemple des ratios élémentaires utilisé et les sources correspondantes dans la littérature (Lamaison, 2006).	80
Tableau 11 : Caractéristiques des écoles.	103
Tableau 12 : Tableau récapitulatif des prélèvements de la campagne 2008.	112
Tableau 13 : Tableau récapitulatif des concentrations en CO_2 mesurés pendant une semaine dans 8 écoles de la région Nord Pas de Calais.	113
Tableau 14 : Concentrations moyennes ($\mu\text{g}/\text{m}^3$) en particules PM_{10} obtenues par pesée dans l'air intérieur des différentes classes.	114
Tableau 15 : Comparaison des concentrations moyennes en PM_{10} obtenues à l'aide du Microvol et du compteur optique Grimm (données de Atmo NPdC).	115
Tableau 16 : Rapport PM_{10} intérieur/extérieur pour les périodes correspondantes	116
Tableau 17 : Synthèse des prélèvements et des mesures dans l'air intérieur et extérieur des écoles de la campagne 2009.	125
Tableau 18 : Tableau récapitulatif des paramètres de confort en air extérieur et intérieur des écoles (2 semaines de mesure consécutives). Les unités sont CO_2 (ppm), T ($^{\circ}\text{C}$), HR(%), CO (ppm) et P (Pa).	133
Tableau 19 : Comparaison de la concentration en masse des PM_{10} ($\mu\text{g}/\text{m}^3$) dans des écoles avec des études dans la littérature.	136
Tableau 20 : Description statistique des données en nombre de particules à l'école d'Arras.	144
Tableau 21 : Comparaison du rapport Int/Ext en EC dans les $\text{PM}_{2,5}$ de Saint Pol sur Mer et Liettes avec des études dans la littérature.	150

Tableau 22 : Comparaison des concentrations élémentaires (en ng/m ³) à Liettres et Les Moères.....	155
Tableau 23 : Concentration moyenne hebdomadaire (ng/μg de particules) en différents éléments des PM ₁₀ à l'intérieur des écoles. (Eléments majeurs représentés en gras).	157
Tableau 24 : Pourcentages élémentaires (% masse) moyens hebdomadaires des éléments majeurs dans les PM ₁₀ à l'extérieur des écoles.	159
Tableau 25 : Rapports PM _{2,5} /PM ₁₀ des éléments majeurs dans l'air intérieur de différentes études.....	160
Tableau 26 : Répartition (%) des éléments dans les différentes fractions des PM ₁₀ dans l'air intérieur des classes (chiffres en gras, bleu : les majeurs).	161
Tableau 27 : Tableau récapitulatif des différents jeux de données pour la CH (entre parenthèses, le nombre d'éléments conservés après réduction).....	164
Tableau 28 : Rapports élémentaires dans différentes sources des PM ₁₀ et des échantillons PM ₁₀ prélevés dans l'agglomération dunkerquoise.....	166
Tableau 29 : Corrélation (R ²) entre OC, EC avec des traceurs du trafic automobile à l'extérieur des écoles (nombre de mesures n=5 à chaque école).	170
Tableau 30 : Tableau récapitulatif des rapports élémentaires Int/Ext des fractions particulaires PM ₁ et PM _{1-2,5} en absence des élèves dans les écoles.....	175
Tableau 31 : Comparaison avec la littérature des rapports Int/Ext de différents éléments calculés à partir des concentrations exprimées en ng/m ³	176
Tableau 32 : Facteurs d'enrichissement hebdomadaires dans les PM ₁ utilisant le Pb comme élément de référence, en absence des élèves (mesure sur deux semaines consécutives).....	178
Tableau 33 : Comparaison du taux de renouvellement d'air α (h ⁻¹) estimé par deux méthodes.	192
Tableau 34 : Taux de renouvellement d'air α (h ⁻¹) estimé par le traceur CO ₂	193
Tableau 35 : Vitesses de dépôt (m/h) des différentes fractions particulaires.....	196
Tableau 36 : Distribution statistique de G à différentes périodes pendant la classe (nombre de périodes de calcul : 20 pour l'école d'Arras et 32 pour l'école de Saint Pol sur Mer).	199
Tableau 37 : Analyses statistiques (Biais Moyen, Erreur Normalisée Moyenne et Racine Carrée de l'Erreur Quadratique Moyenne) de l'écart entre le modèle et la mesure.....	203
Tableau 38 : Résumé des analyses statistiques entre le modèle et la mesure.	211
Tableau 39 : Résumé des analyses statistiques entre le modèle et la mesure à l'école de Lille.	214
Tableau 40 : Valeurs estimées de α pour atteindre les concentrations en particules recommandées par OMS à l'école d'Arras et de Saint Pol sur Mer.	216
Tableau 41 : Tableau récapitulatif de l'estimation de G dans les écoles de la campagne 2008.	218

ANNEXES

Liste des annexes

Annexe 1 : Sources d'émission intérieures en COV et particules.....	259
Annexe 2 : Etudes françaises récentes sur la qualité de l'air intérieures (source Mosqueron et Nedellec, 2001)	260
Annexe 3 : Les résultats avant et après correction des composés organiques aromatiques mesurés dans l'UV.	262
Annexe 4 : Caractéristiques techniques des appareils de prélèvement et de mesure.	263
Annexe 5 : Le programme de température pour la mise en solution des particules par minéraliseur Milestone, ETOS TC.....	264
Annexe 6 : Conditions opératoires en ICP-AES.	265
Annexe 7 : Conditions opératoires en ICP-MS.....	266
Annexe 8 : Les blancs laboratoires et de terrain, et les limites de détection analytiques et méthodologiques.	267
Annexe 9 : Justesse des analyses calculées à partir des matériaux certifiés de référence NIST SRM 1648 et NIST SRM 2584.	269
Annexe 10 : Les paramètres opératoires, les blancs ainsi que les QC pour la mesure de EC, OC (Adapté de Peterson et Richards, 2002).	271
Annexe 11 : Mesure de la différence de pression (ΔP , Pa) entre l'intérieur et l'extérieur du bâtiment.....	273
Annexe 12 : Calcul du débit d'air traversant la façade par la méthode de pression différentielle.	275
Annexe 13 : Variation de teneur en CO ₂ au cours d'une semaine dans les classes d'écoles.	276
Annexe 14 : La concentration moyenne (ng/m ³) sur une semaine des éléments majeurs et traces dans les PM ₁₀ prélevées dans les classes durant la période en absence des élèves (données Microvol).	280
Annexe 15 : Questionnaires durant la campagne de prélèvement et de mesure dans les écoles (Exemple à Ecole de Liettes)	281
Annexe 16 : La variation de concentration en masse ($\mu\text{g}/\text{m}^3$) des PM _{0,5-2} et PM ₂₋₁₀ (μm) en air intérieur et extérieur des écoles.	286
Annexe 17 : Rapports intérieur/extérieur de concentration en masse des particules PM _{0,5-2} et PM ₂₋₁₀ (μm) au cours deux semaines.....	288
Annexe 18 : Variation de concentration en nombre des particules PM _{0,3-1} et PM ₂₋₁₀ (μm) à école de Saint Pol sur Mer et à Liettes.....	291
Annexe 19 : Concentration en masse (ng/m ³) moyenne hebdomadaire (sur 2 semaines consécutives) des éléments majeurs et traces dans les PM ₁₀ dans les classes des écoles.	293
Annexe 20 : Concentration (ng/ μg) élémentaires moyennes dans les PM ₁₀ extérieures des écoles.....	294
Annexe 21 : Pourcentages élémentaires moyens hebdomadaires (%) de différentes fractions particulaires dans les PM ₁₀ à l'extérieur des écoles.	295
Annexe 22 : Les corrélations inter-élémentaires à l'extérieur des écoles.	296

Annexe 23 : Rapports intérieurs/extérieurs élémentaires de différentes fractions particulières (calculés à partir de concentrations exprimées en ng/m^3).	299
Annexe 24 : Facteurs d'enrichissement hebdomadaires des PM_{10} utilisant le Ni comme élément de référence, en absence des élèves (mesure sur deux semaines consécutives).	301
Annexe 25 : Facteurs d'enrichissement (par rapport au Pb) des PM_{10} obtenus en période d'activités scolaires.	302
Annexe 26 : Statistique des résultats calculés par le modèle et ceux mesurés à l'école de Saint Pol sur Mer.	303

Annexe 1 : Sources d'émission intérieures en COV et particules.

Aldéhydes	Sources intérieures
Formaldéhyde (Atmo NPdC, 2009)	Produits de construction et de décoration (bois collés, plaques de plâtre, mousses isolantes urée-formol, enduits préservateurs du bois, certains vernis pour parquet, certaines colles pour textiles muraux, laines d'isolation contenant un liant organique, etc.), mais également : résines, textiles, ameublement, fumée de tabac, produits nettoyants pour sol, cosmétiques, papier à copier sans carbone, émission de livres et magazines neufs, photocopieurs, etc. Le formaldéhyde est également très présent dans l'environnement, notamment issu de la photochimie
BTX et autres COV	Carburants, fumée de tabac, produits de bricolage, ameublement, matériaux de construction et éléments de décoration. Peintures, vernis, colles et adhésifs, encres, moquettes, tapis, calfatage siliconé et insecticides. Produits de type antimite, parfums d'intérieur et produits d'entretien, savons et cosmétiques. Matières plastiques, matériaux isolants, encres d'imprimerie.
Les particules (Franklin, 2007; WHO-Europe 2006)	Combustion du carburant, du bois et du tabac, cuisine, Photocopieurs et imprimantes, activités générales, nettoyage...

Annexe 2 : Etudes françaises récentes sur la qualité de l'air intérieures (source Mosqueron et Nedellec, 2001)

Paramètre	Auteur	Année	Ville	Saison	Durée de prélèvement	Mode recrutement/ population	méthodologie	Typologie	n (effectif)
PM _{2,5}	Derbez (2001) Sentinelles de l'air, APPA	2001-2005	Dunkerque Lille Marseille Grenoble	Hiver + été	N	Volontariat	N	Habitat	30 / ville
PM _{2,5}	Momas (1999)	1999-2002	Paris	Hiver + été	48 h	Enquête C/Tc	Pompe SKC + Cyclone	Habitat	100
PM _{2,5}	Annesi (2000) Projet ISAAC	1999-2001	Créteil Clermont-Ferrand Reims ; Marseille Strasbourg; Bordeaux La Rochelle	Juin-décembre Avril-juin Mars-juin Février-juin Janvier-mars	5 jours	N	Pompe Gil Air + cyclone	Ecoles primaires	20 écoles /ville (3 à 4 classes par école)
Profil granulométrique	Blondeau (2001)	1999-2002		Eté + hiver	15 jours	Critères géographiques + caractéristiques du bâti	Grimm (profil granulométrique)	Ecoles	8 écoles
PM _{2,5}	Zmirou (1999) Projet VESTA	1999-2001	Grenoble Nice Clermont Paris Toulouse	Hiver + été	48 h	Enquête C/T	Pompe SKC + cyclone	Habitat	40 / centre

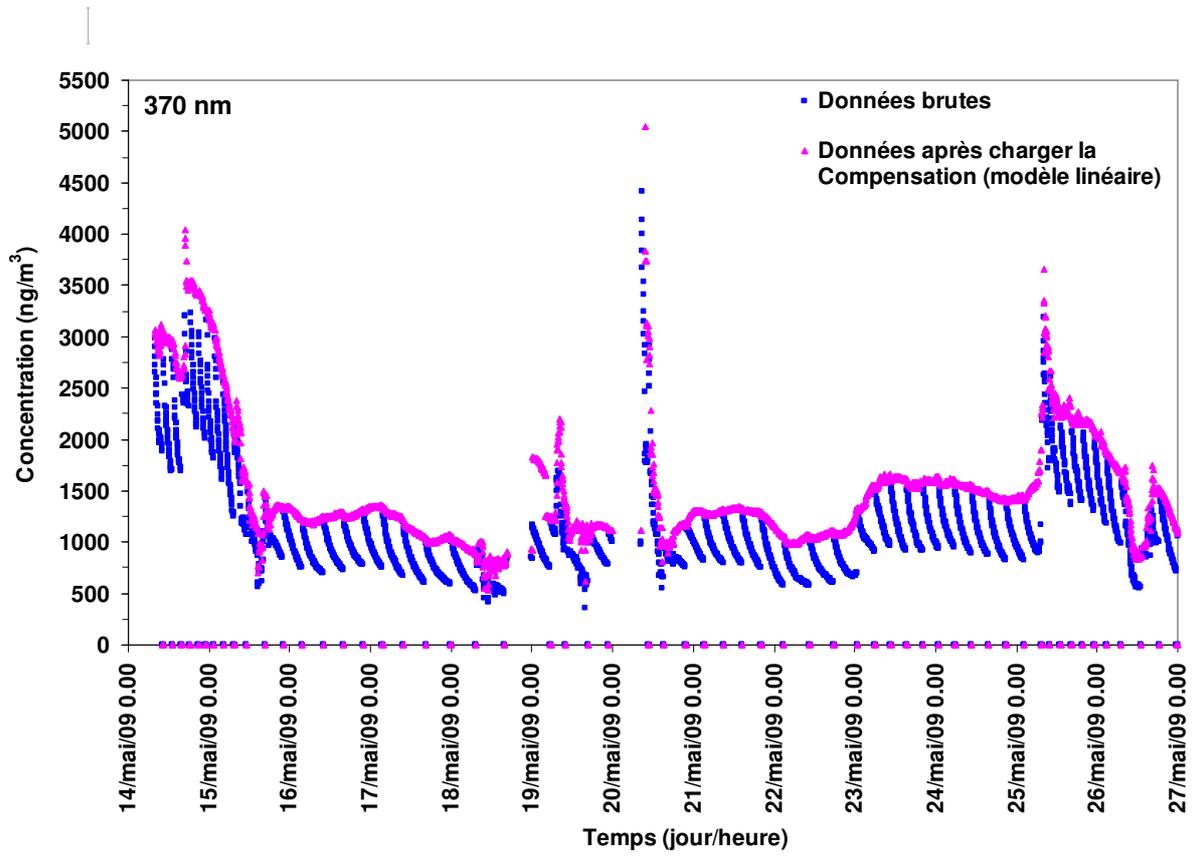
^a : TSP = Total Suspended Particulate ^b : FN = Fumées Noires ^c : C/T = Cas / Témoins ^d : Tirage au sort ^e : NF = Non Fumeurs ^N : pas information

Annexe 2 : Etudes françaises récentes sur la qualité de l'air intérieure (source Mosqueron et Nedellec, 2001), suite.

Paramètre	Auteur	Année	Ville	Saison	Durée de prélèvement	Mode recrutement/population	méthodologie	Typologie	n (effectif)
PM _{2,5}	Mosqueron (2000)	1999-2000	Paris	Été + hiver	Temps de présence sur 24 h	TAS ^d NF ^e	Pompe Gil Air + Cyclone	Habitat + bureau	55
PM ₈ Poussières	Vincent (1997)	1992	Paris	N	N	3 immeubles selon ventilation	N	Immeubles de bureaux	3
	Kirchner (1993)		Paris	Février-Mai	8 h	6 immeubles	Pompe	Immeubles de bureaux	6
TSP ^a FN ^b	Laurent 1993	1990-1991	Paris	1 an	48 – 72 h	Critères géographiques + caractéristiques du bâti	Analyseur automatique	Ecoles + crèches	10
PM ₈	Mouillesseaux (1993)	1986-1991	Paris	N	N	N	Analyseur automatique	Immeubles de bureaux	112
Poussières	Grimaldi (1992)	1990	Marseille	Hiver + été	8 h + 16 h	N	N	Ecole maternelle+ université	2
FN ^b	Faugere (1992)	1991	Bordeaux	Hiver + été	15 minutes	Quartier en cours de réhabilitation	RAM 1	Habitat	100
FN ^b	Barguil (1990)	1987-1988	Paris	Hiver + été	24 h	Volontariat	Réfectométrie	Habitat	9

a : TSP = Total Suspended Particulate b : FN = Fumées Noires c : C/T = Cas / Témoins d : Tirage au sort e : NF = Non Fumeurs N : pas d'information

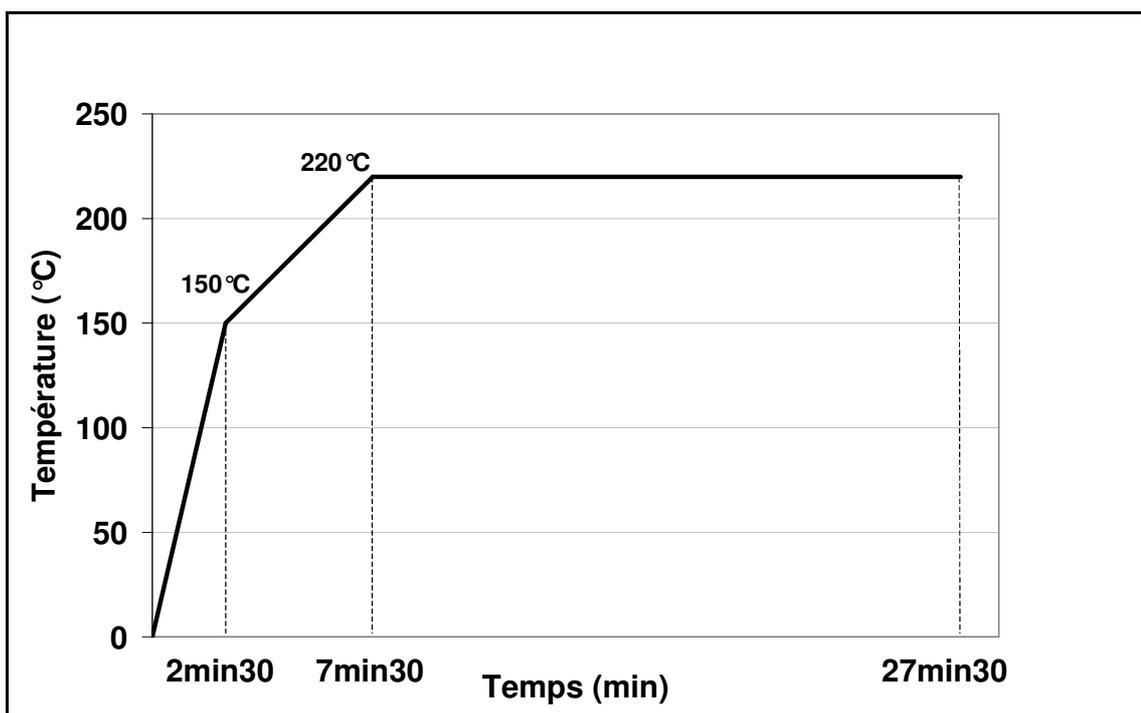
Annexe 3 : Les résultats avant et après correction des composés organiques aromatiques mesurés dans l'UV à l'école d'Arras.



Annexe 4 : Caractéristiques techniques des appareils de prélèvement et de mesure.

Matériel	Principe de la mesure	Caractéristiques techniques	Pas de temps au cours de cette étude
Microvol	Par filtration	Taille de particule : PM ₁₀ pour la mesure de concentration en masse et en métaux, et PM _{2,5} pour la mesure de OC, EC. Débit d'air traité : 3 L/mn ± 5%. Filtre en téflon : pour le prélèvement des PM ₁₀ . Filtre en fibre de quartz pour le prélèvement des PM _{2,5}	Mesure en présence et absence d'élèves
Impacteur en cascade Dekati	Par impaction en cascade	Quatre fractions particulières : PM ₁ ; PM _{1-2,5} ; PM _{2,5-10} , et PM _{>10} µm. Mesure de concentration en masse et en métaux. Débit d'air traité : 30 L/mn ± 5%.	Mesure en présence et absence d'élèves
Grimm	Diffraction de la lumière	Taille de particules : 0,3- 10 µm. Débit d'air traité : 1,2 l/mn ± 5%. interface : RS232, 3 entrées analogiques. Microprocesseur : µ-controler 80552 Visualisation des résultats par le logiciel GRIMM 1.105 et 1.108	1 (mn)
Aerotrak	Diffraction de la lumière	Taille de particules : 0,3- 10 µm, seuil de coupure : 50% ± 10%. Débit 2,83 (L/mn). Efficacité de comptage : 50% ± 10% pour les PM _{0,3} µm ; 100% ± 10% pour les particules supérieures à 0,45 µm en diamètre. Visualisation des résultats par le logiciel TrackPro™	1 (mn)
Q-trak	Infrarouge non diffusif (CO ₂) ; Électrochimique (CO) ; Thermistor (°C) ; Capacitif à couche mince (%H)	CO ₂ :0- 5000 ppm, résolution de ±1 ppm. Précision : ±3%. CO : 0 - 500 ppm, Résolution : ±0,1 ppm. Précision : ±3%. °C : 0 - 60°C. résolution de ±0,1 °C. Précision : ±0,6 °C %H : 5 - 95 %, résolution : ±1%. Précision : ±3%.	1 (mn)
Aethalomètre AE-21	Atténuation optique	Débit : 2- 5 (L/mn) avec une précision de 5%: Black carbon (880nm) et composés aromatiques (370 nm).	5(min)
Micro manomètre différentiel FCO 12 (Furness Controls Ltd.)	Mesure de pression	Gamme de mesure : 0 – 20 kPa Précision : ± 1% de 20 kPa à 10 Pa diminuant jusqu'à ± 2,5 % entre 10 et 1 Pa. Signal de sortie : ± 5V. Temps de réponse : de 20 ms à 10 secondes	5(s)
Centrale d'acquisition SA32 (AOIP)		32 voies de mesure. 2 relais de sortie adressable sur chaque seuil. Programmation par le logiciel LTC 32W via l'interface RS232. 3 cadences de mesures programmables par voie : 7, 20, et 50 m/s	5(s)

Annexe 5 : Le programme de température pour la mise en solution des particules par minéraliseur Milestone, ETOS TC.



Annexe 6 : Conditions opératoires en ICP-AES.

□ Longueurs d'onde utilisées en ICP-AES

Eléments	Longueur d'onde utilisée pour la mesure (nm)	Longueur d'onde utilisée pour le contrôle (nm)
Al	396,1	394,4
Ba	455,4	230,4 et 233,5
Ca	393,3	
Fe	259,9	238,2 et 240,4
K	766,4	
Mg	2802	279,5 et 285,2 (2)
Mn	257,6	259,3 et 260,5
Na	589,5	
Si	221,6	212,4 et 251,6
Ti	323,4	337,2

□ Réglages de l'ICP-AES

Instrument	Iris Intrepid, ThermoElemental
Arrivée échantillon	
Pompe	Pompe péristaltique
Vitesse de pompe	110 tpm (2,03 mL/min)
Nébulisation	
Gaz de nébulisation	Argon
Débit de gaz	26,5 PSI
Plasma	
Puissance	1000 W
Débit d'argon	15 lpm
Débit d'argon auxiliaire	0,5 lpm
Détection	
Visée	Axiale
Balayage du CID	Azote
Eléments	
Nombre d'éléments	11
Nombre de longueur d'onde	27
Analyse	
Nombre de réplicats	3
Temps d'arrivée d'échantillon	80 s
Temps de rinçage	140 s
Temps d'intégration UV	30 s
Temps d'intégration Visible	30 s

L'argon est fourni par la société Air Liquide. Pureté 99,999%.

La mesure des photons en mode axial permet d'obtenir une sensibilité maximale.

Annexe 7 : Conditions opératoires en ICP-MS.

□ Isotopes mesurés

Eléments	Isotope utilisé et abondance isotopique entre parenthèses	Autre isotope utilisé et abondance isotopique entre parenthèses
Ag	107 (52%)	109 (48%)
Bi	209 (100%)	
Cd	111 (13%)	112 (24%)
Ce	140 (88%)	142 (11%)
Cs	133 (100%)	
Cu	63 (69%)	65 (31%)
Eu	151 (48%)	153 (52%)
Hf	180 (35%)	178 (27%), 177 (19%)
La	139 (99,9%)	
Mo	98 (24%)	95 (16%), 97 (10%)
Pb	208 (52%)	206 (24%), 207 (22%)
Pd	105 (22%)	106 (27%), 108 (26%), 104 (11%)
Pt	195 (34%)	194 (33%), 196 (25%), 198 (7%)
Rb	85 (72%)	87 (28%)
Rh	103 (100%)	
Sb	121 (57%)	123 (43%)
Sm	152 (27%)	147 (15%), 149 (14%)
Sn	119 (9%)	120 (33%), 118 (24%)
Sr	88 (83%)	86 (10%)
Th	232 (100%)	
U	238 (99%)	
W	184 (31%)	182 (26%), 183(14%)
Zn	64 (49%)	66 (28%)
Zr	90 (51%)	92 (17%)

□ Conditions opératoires en analyse ICP-MS

Instrument ICP-MS	Perkin-Elmer SCIEX ELAN 6100 DRC
Arrivée échantillon	
Pompe	Pompe péristaltique
Nébulisation	
Gaz de nébulisation	Argon (99,999%)
Débit de gaz	Optimisé quotidiennement (entre 0,96 et 0,99 mL.min ⁻¹)
Nébuliseur	Polycon concentric nebulizer (Glass Expansion)
Chambre de nébulisation	HF resistant Tracey spray chamber (Glass Expansion)
Plasma	
Puissance r.f.	1100 W
Débit de gaz de plasma	15 L.min ⁻¹
Débit de gaz auxiliaire	1,2 L.min ⁻¹
Interface	Cônes en platine
Autolens	On
Détection	
Dwell time	100 ms
Balayage	20
Lectures	1
Réplicats	3

Annexe 8 : Les blancs laboratoires et de terrain, et les limites de détection analytiques et méthodologiques.

Concentration des blancs laboratoires, (ppt). Nombre de mesures : 20			Concentration des blancs de terrain, (ppt). Nombre de mesures : 15	
Elément	ICP-MS	ICP-AES	ICP-MS	ICP-AES
Ag	0,02		0,08	
Al		205		238
As	0,00		0,04	
Ba	10,93		7,97	
Bi	0,00		0,01	
Ca		263		1178
Cd	0,09		0,05	
Co	0,06		0,17	
Cr	15,37		22,76	
Cu	0,58		1,02	
Fe		19,6		108
K		72		109
La	0,04		0,14	
Mg		0,58		0,62
Mn	1,06		10,3	
Mo	0,19		0,97	
Na		0,39		0,20
Ni	18,03		24,7	
Pb	0,27		0,45	
Sb	0,15		0,40	
Se	0,00		0,16	
Sr	2,55		3,19	
Ti	21,16		38,6	
V	0,17		0,32	
Zn	103,62		98,1	

Annexe 8 (suite) : Limite de détection (Nombre de mesures : 20).

Elément	Limite détection analytique (ppt)		Limite de détection méthodologique (ppt)	
	ICP-MS	ICP-AES	ICP-MS	ICP-AES
Al	199		261	
Ag	0,10		0,18	
As	0,33		0,60	
Ba	5,5	20,8	64	108
Ca		233		900
Cd	0,48		1,84	
Co	0,33		0,58	
Cr	10,9		13,62	
Cu	0,81		3,8	
Fe		109		168
K		263		371
La	0,04		1,0	
Mg		166		387
Mn	1,7		4,1	
Mo	0,08		0,24	
Na		475		771
Ni	6,4		9,6	
Pb	0,63		1,2	
Sb	0,13		0,22	
Se	9,7		12,7	
Sr	2,2	8,0	3,3	8,6
Ti	11,1	15,3	15	21,7
V	0,4		3,4	
Zn	6,0		20	

**Annexe 9 : Justesse des analyses calculées à partir des matériaux certifiés de référence NIST
SRM 1648 et NIST SRM 2584.**

La moyenne, le taux de recouvrement en pourcentage du NIST 1648 (Nbre de mesures : 20).

Elément	SRM 1648 valeur certifiée (µg/g)	ICP-MS			ICP-AES		
		Moyen (µg/g)	σ (%)	R (%)	Moyen (µg/g)	σ (%)	R(%)
K	10500 ±100				7829	7,1	74,6
Na	4250 ±20				4298	23,6	101,1
Mg	8000				8044	7,8	100,5
Ba	(737)	597,4	6,52	107,1	671	5,1	91,1
Al	34200 ±1100				31565	19,6	92,3
Si	(125270)				33035	12,1	26,4
V	127 ±7	112,2	7,1	105,2			
Ti	(4000)	2725	9,0	99,7			
Fe	39100 ±1000				37303	5,6	95,4
Co	(18)	15,1	4,5	107,2			
Ni	82 ±3	72,5	16,1	105,6			
Sb	(45)	38,4	2,6	99,8			
La	(42)	28,4	4,4	67,7			
Cd	75 ±7	68,9	4,1	96,2			
Ag	(6)	5,9	5,9	98,4			
Pb	6550 ±80	5473	8,8	100,6			
Zn	4760 ±140	4482	2,1	95,6			
Mn	786 ±17	704,7	9,3	103,3			
Cr	403 ±12	233,3	12	73,0			
Cu	609 ±27	517,3	5,8	94,6			
As	115 ±10	106	6,5	100,2			
Se	27 ±1	23,5	22,0	87,1			

σ : écart-type ; R (%) : taux de recouvrement en pourcentage ; Entre parenthèses : valeur non certifiée.

**Annexe 9 : Justesse des analyses calculées à partir des matériaux certifiés de référence NIST
SRM 1648 et NIST SRM 2584 (suite).**

La moyenne, le taux de recouvrement en pourcentage du NIST 2584 (Nbre de mesures : 20).

Elément	SRM 2584 valeur certifiée (µg/g)	ICP-MS			ICP-AES		
		Moyen (µg/g)	σ (%)	R (%)	Moyen (µg/g)	σ (%)	R (%)
K	9500 ±1400				8726	6,0	91,9
Na	27700 ±1200				28459	4,2	102,7
Mg	15900 ±300				16284	4,8	102,4
Ba	(1300.0)	1151	5,5	97,2	1308	4,7	100,7
Al	23200 ±600				26300	19,6	113,4
Si	(106000)				39731	3,0	34,1
Ca	63300.0 ±3000				77697	17,3	122,7
Ti	4200.0 ±300	4273	7,0	101,7			
Fe	16400.0 ±1200				15695	4,5	95,7
Co	(10)	9,2	3,4	111,9			
Ni	(90)	83,4	15,0	102,5			
Sb	(4)	15,6	104,7	106,7			
La	19 ±2	14,9	8,3	87,5			
Cd	10 ± 1	8,0	15,5	92,74			
Sr	(160.0)	9,2	3,8	101,1			
Pb	9761 ±67	7945	5,2	100,4			
Zn	2580 ±150	2548	2,7	96,7			
Mn	(370.0)	332	3,9	100,2			
Cr	135 ±9.1	127,3	5,5	94,3			
Cu	(320)	285,7	4,1	98,8			
As	17.4 ±4.2	14	9,6	94,4			
Se	(2) ±1	5,39	172	269,5			

σ : écart-type ; R(%): taux de recouvrement en pourcentage ; Entre parenthèses : valeur non certifiée.

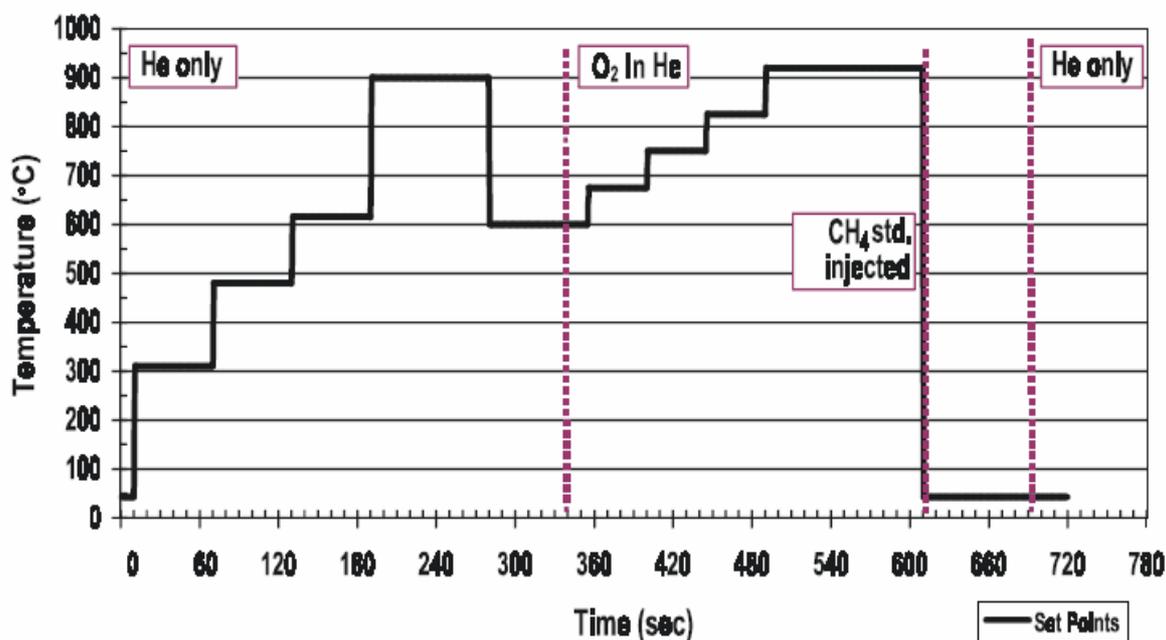
**Annexe 10 : Les paramètres opératoires, les blancs ainsi que les QC pour la mesure de EC, OC
(Adapté de Peterson et Richards, 2002).**

Les paramètres opératoires

Mode	Temps (seconde)	Rampe de température
Hélium	10	ambient
Hélium	60	310
Hélium	60	480
Hélium	60	615
Hélium	90	900
Hélium	30	0
Oxygène	10	0
Oxygène	35	600
Oxygène	45	675
Oxygène	45	750
Oxygène	45	825
Oxygène	120	90
CalibrationOx	30	1
CalibrationOx	50	0
CalibrationHe	30	0
Mode autonome	1	0
End		

Annexe 10 (suite).

Rampes de température

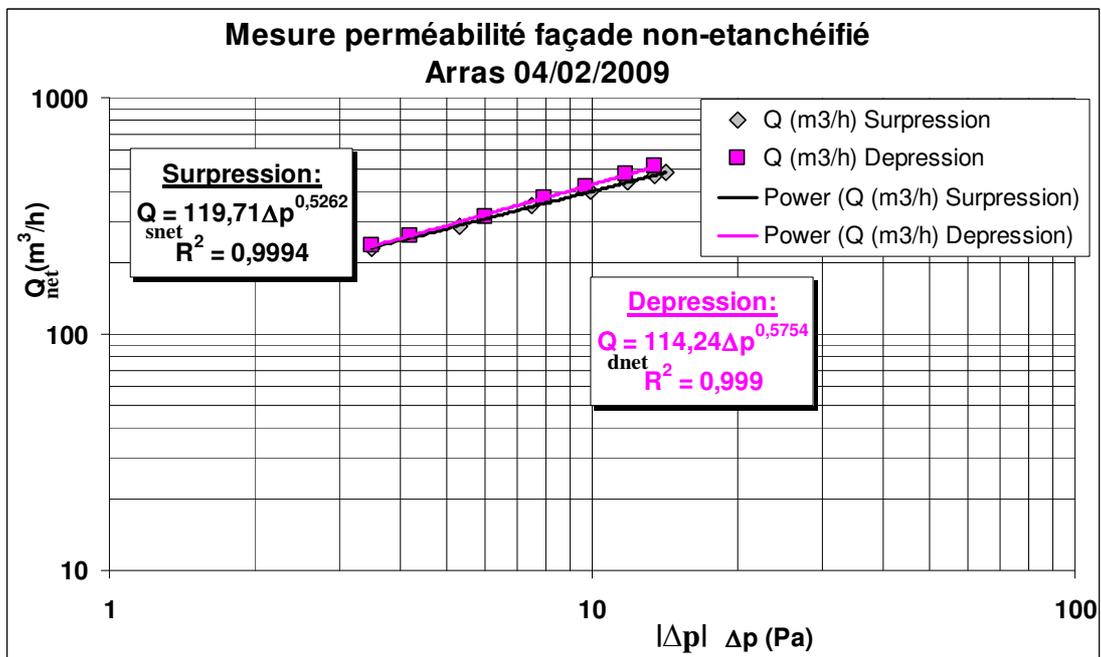
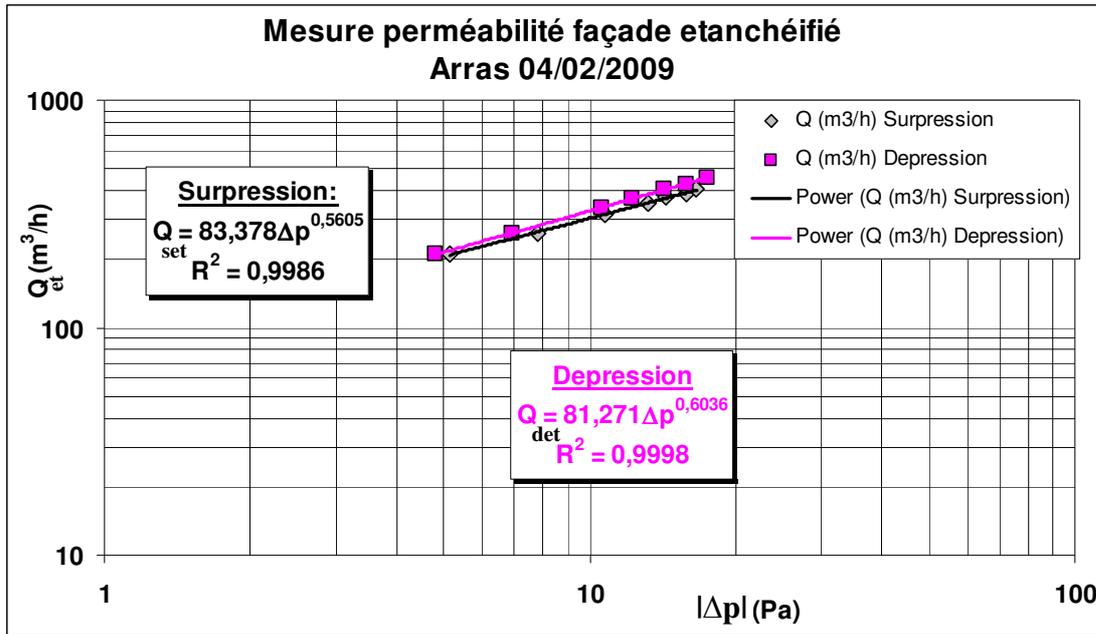


Blancs laboratoires et QC de OC, EC

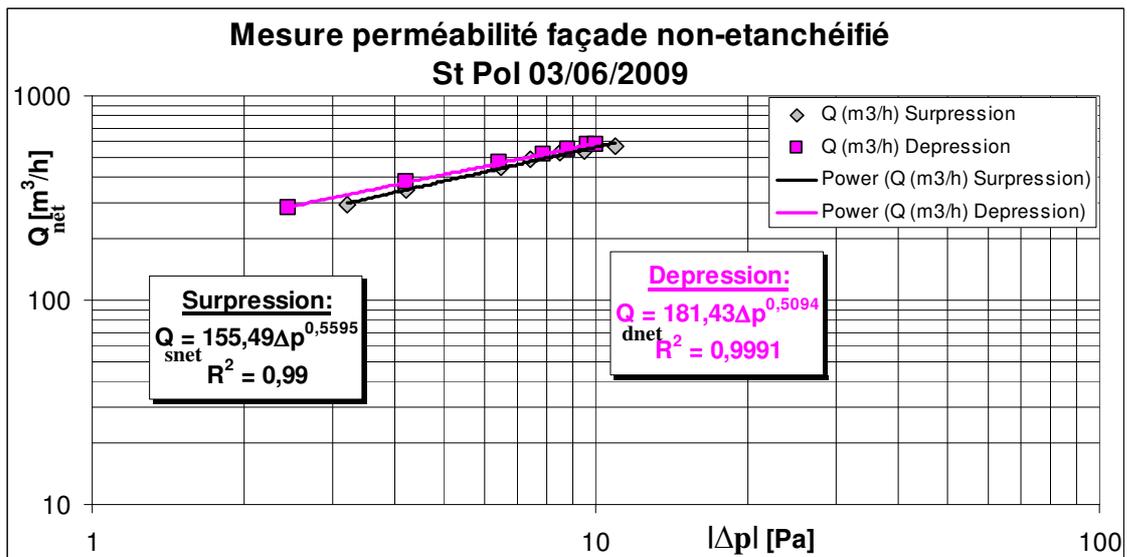
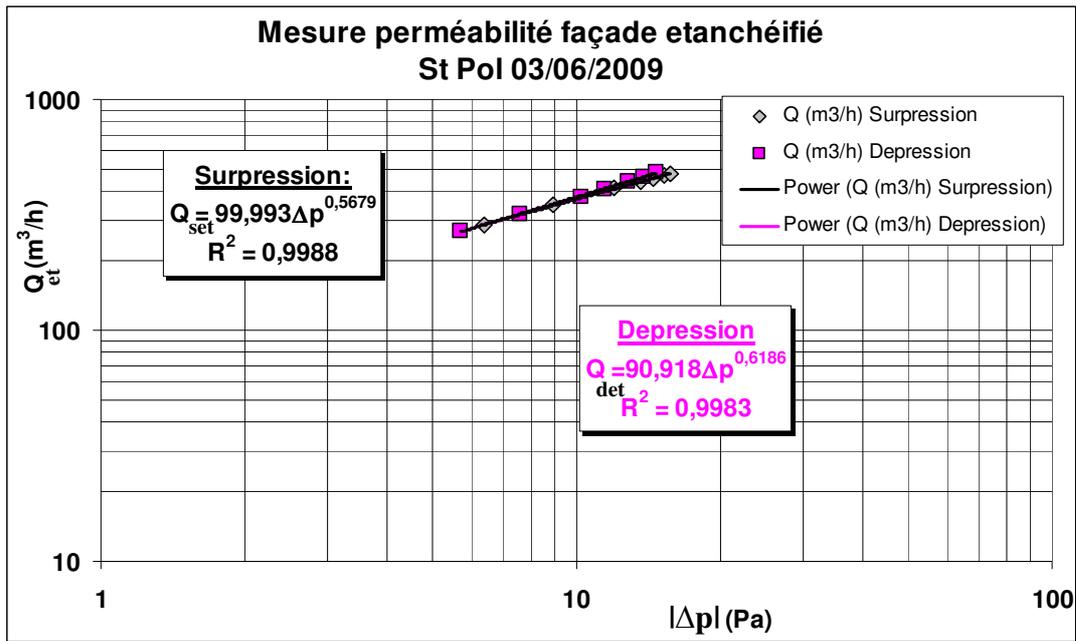
Eléments	Blanc laboratoire ($\mu\text{g}/\text{filtre}$) (n=20)	Limite de détection méthodologique ($\mu\text{g}/\text{filtre}$)	QC ($\mu\text{gOC}/\mu\text{L}$) (n=15)
OC	0,51	0,16	4,176 (99,26%)
EC	0	$3,9 \cdot 10^{-4}$	

n : nombre de mesures; entre parenthèse: le taux de recouvrement (%).

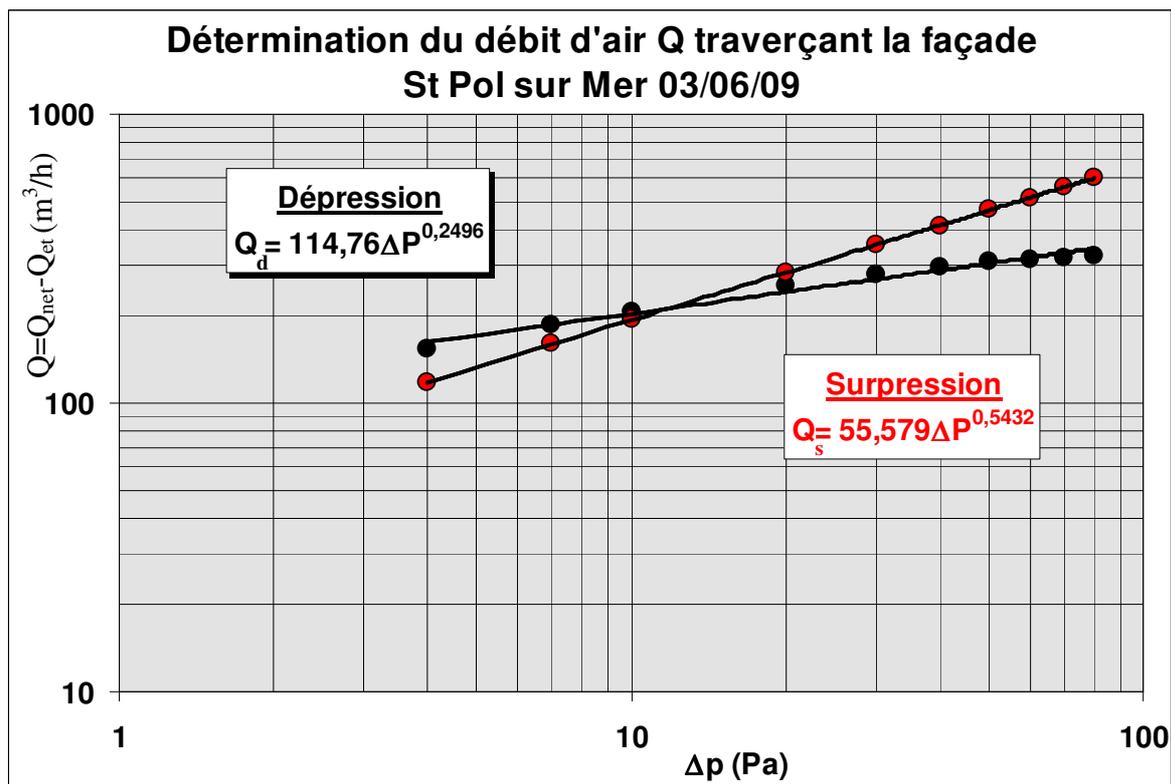
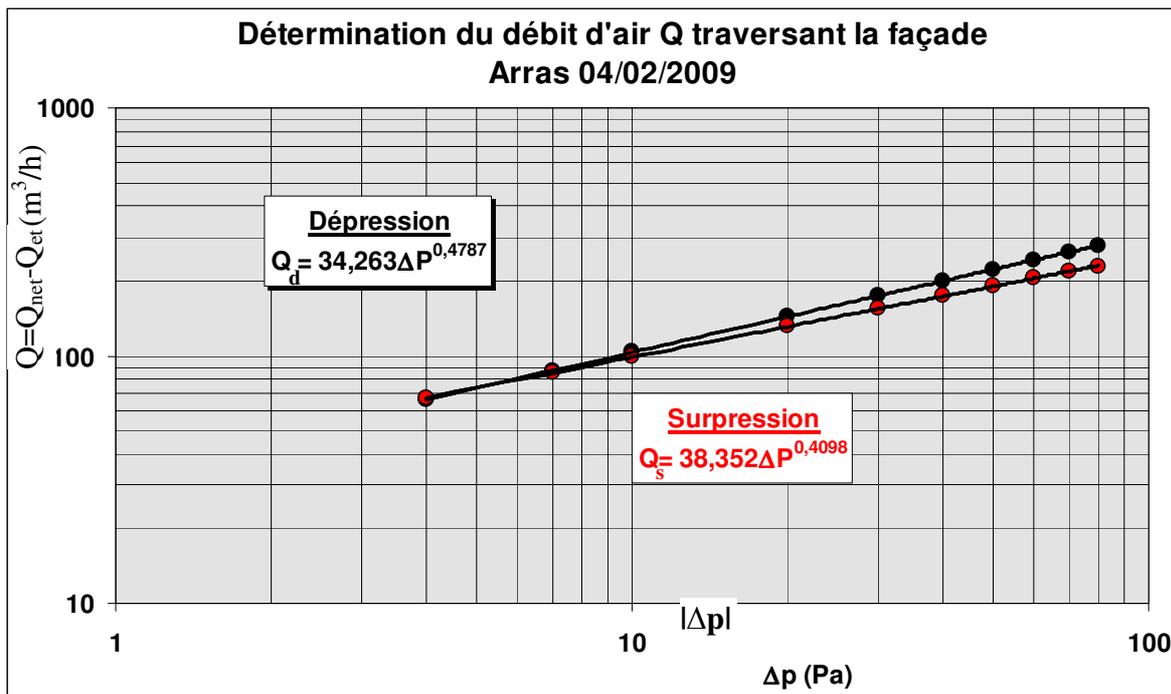
Annexe 11 : Mesure de la différence de pression (ΔP , Pa) entre l'intérieur et l'extérieur du bâtiment



Annexe 11 : Mesure de la différence de pression (ΔP , Pa) entre l'intérieur et l'extérieur du bâtiment (suite).

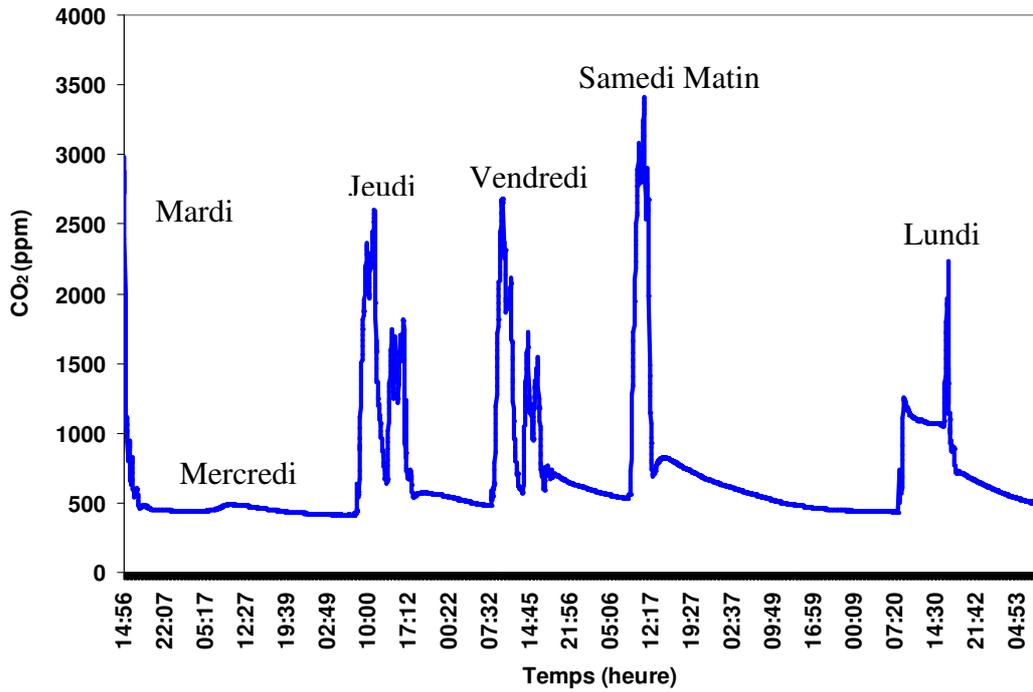


Annexe 12 : Calcul du débit d'air traversant la façade par la méthode de pression différentielle.

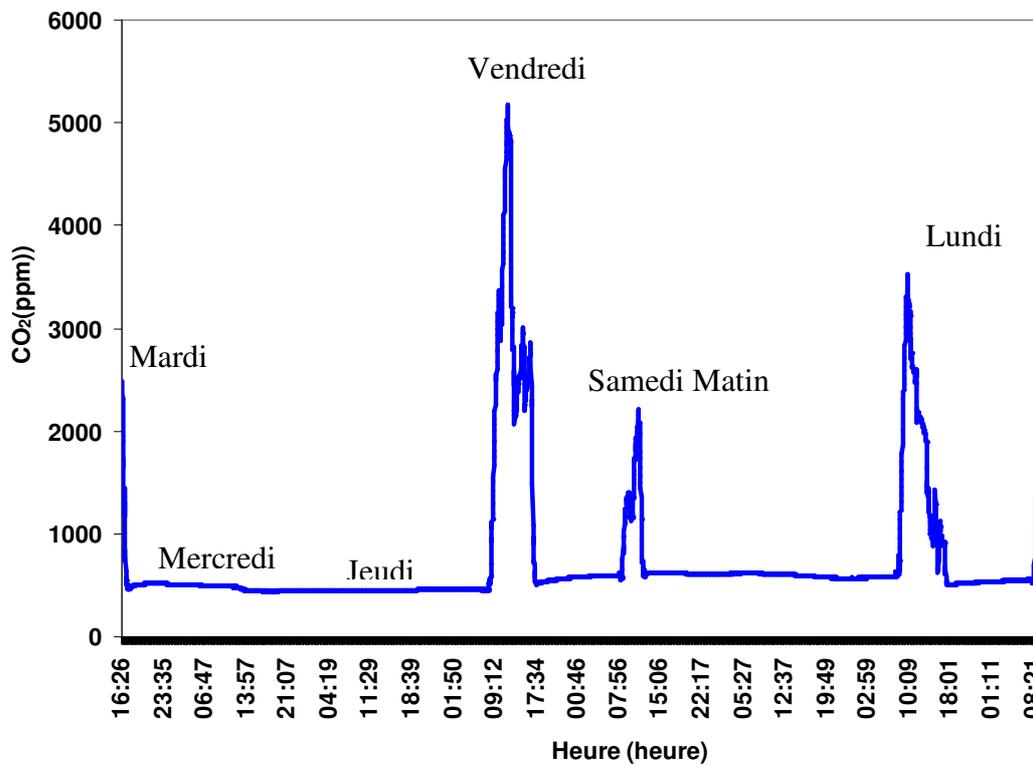


Annexe 13 : Variation de teneur en CO₂ au cours d'une semaine dans les classes d'écoles.

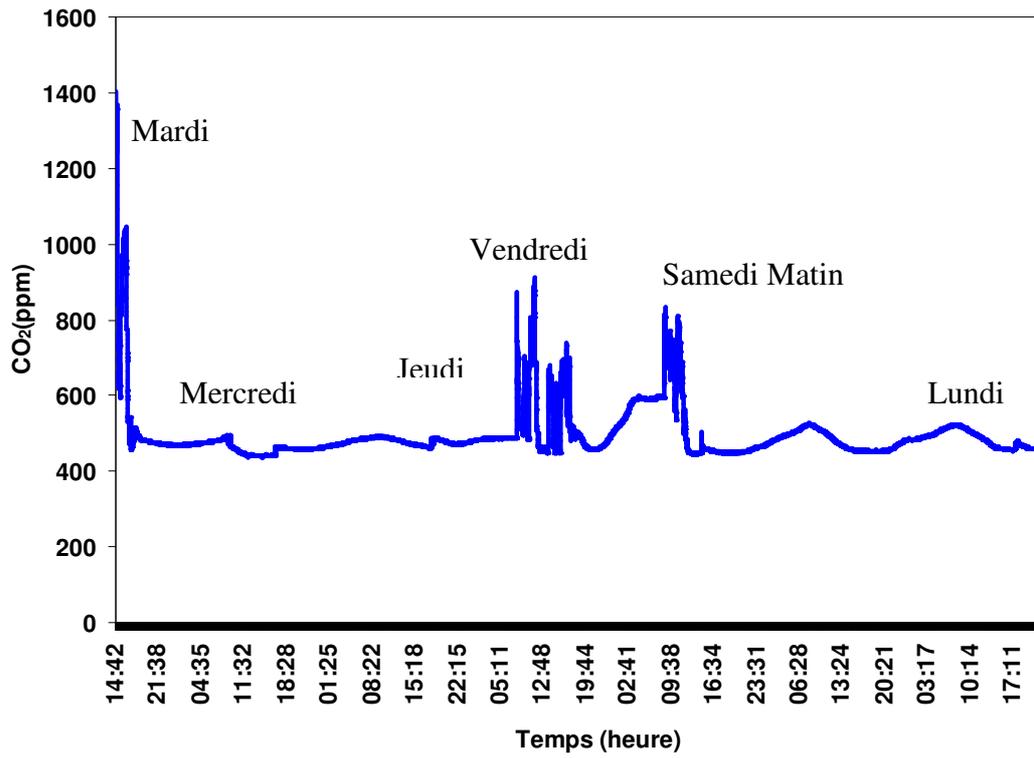
Ecole de Valenciennes



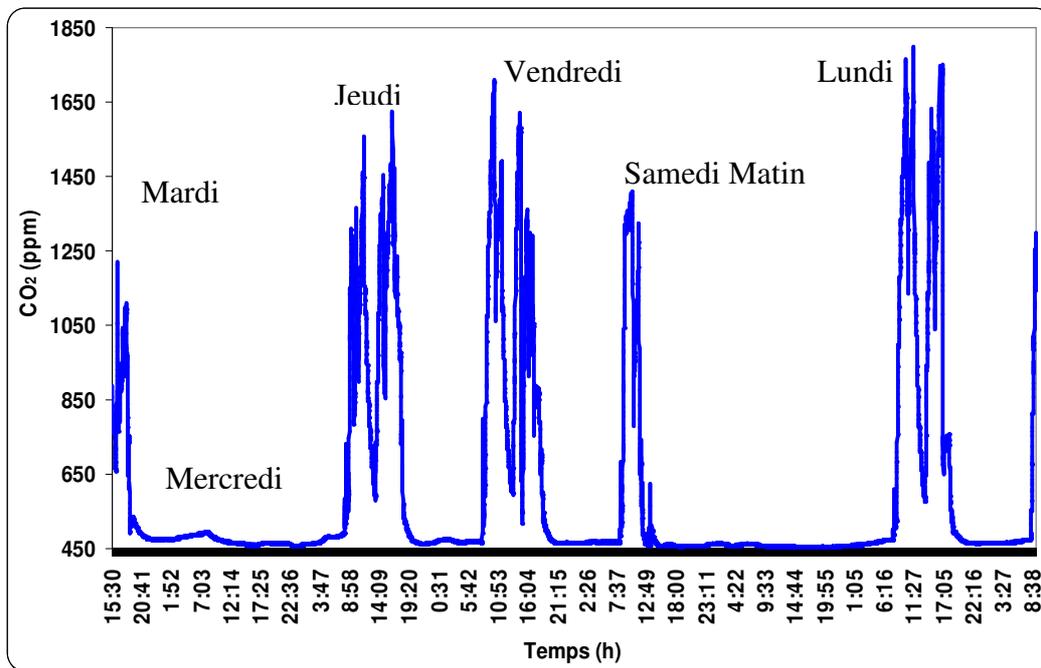
Ecole de Maubeuge



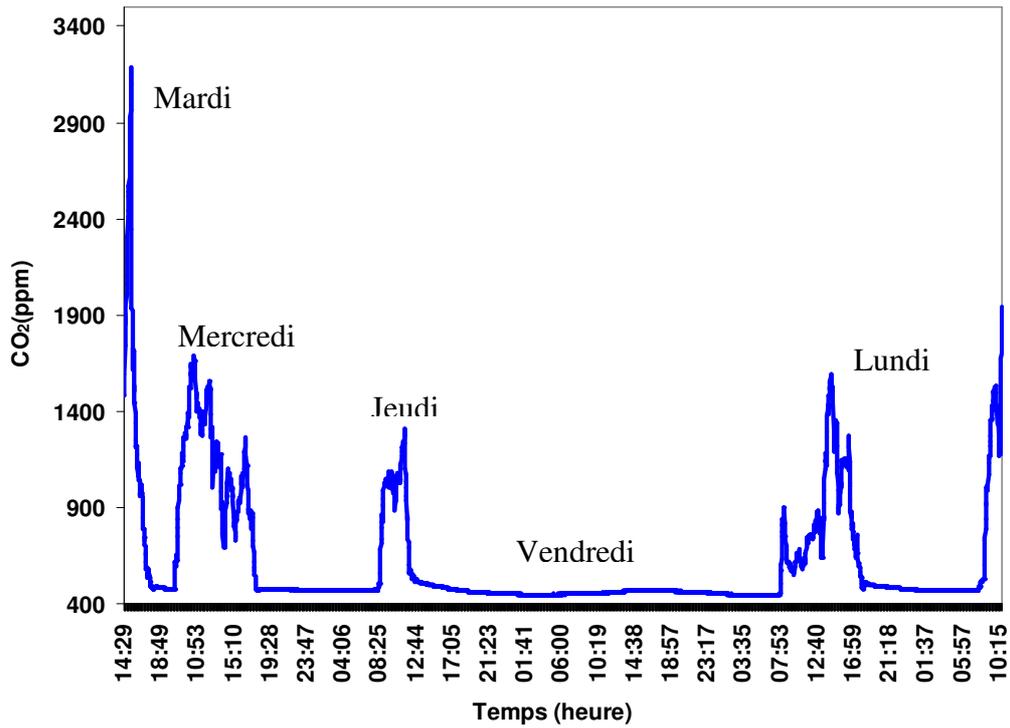
Ecole de Seclin



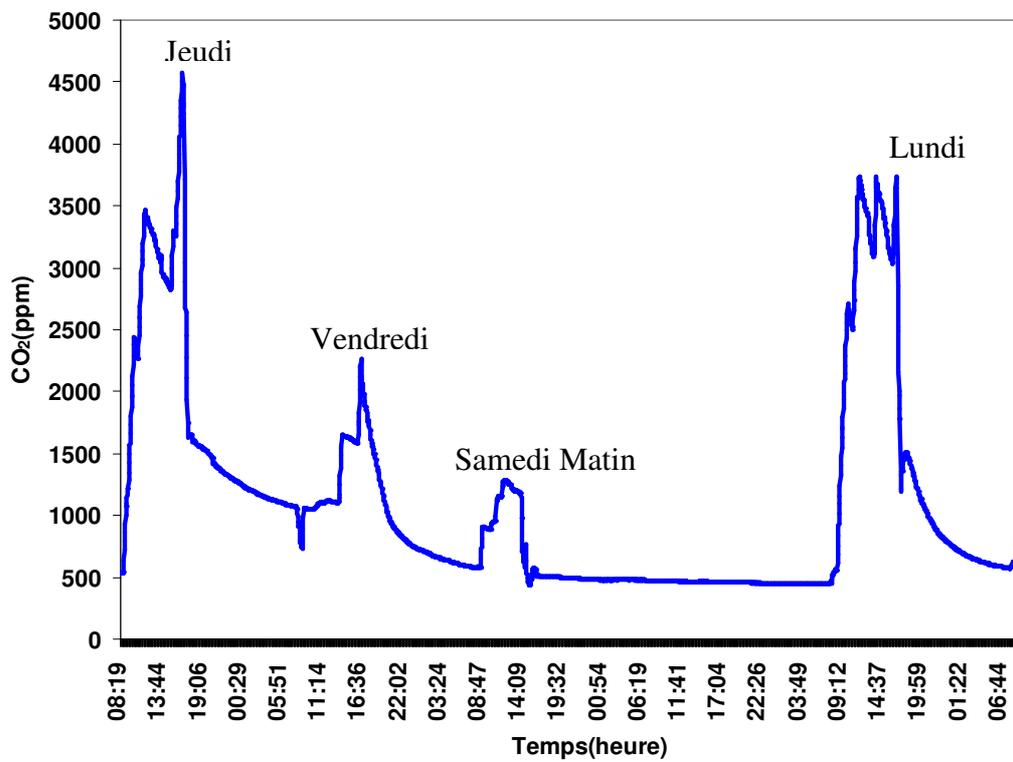
Ecole de Lille



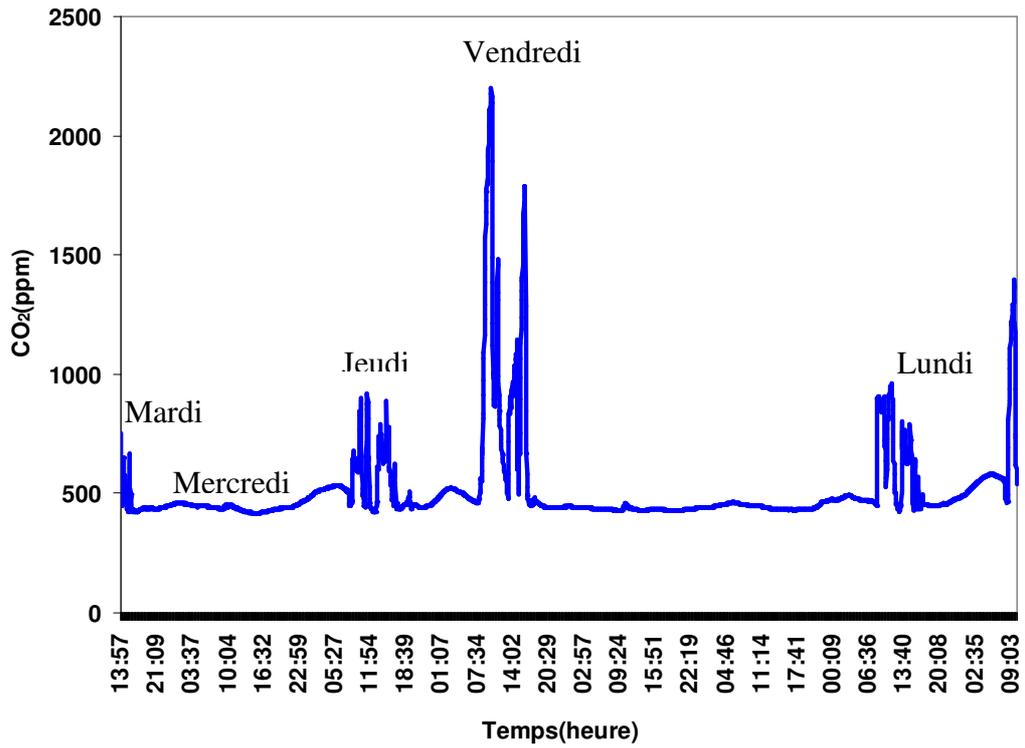
Ecole de Saint Pol sur Mer



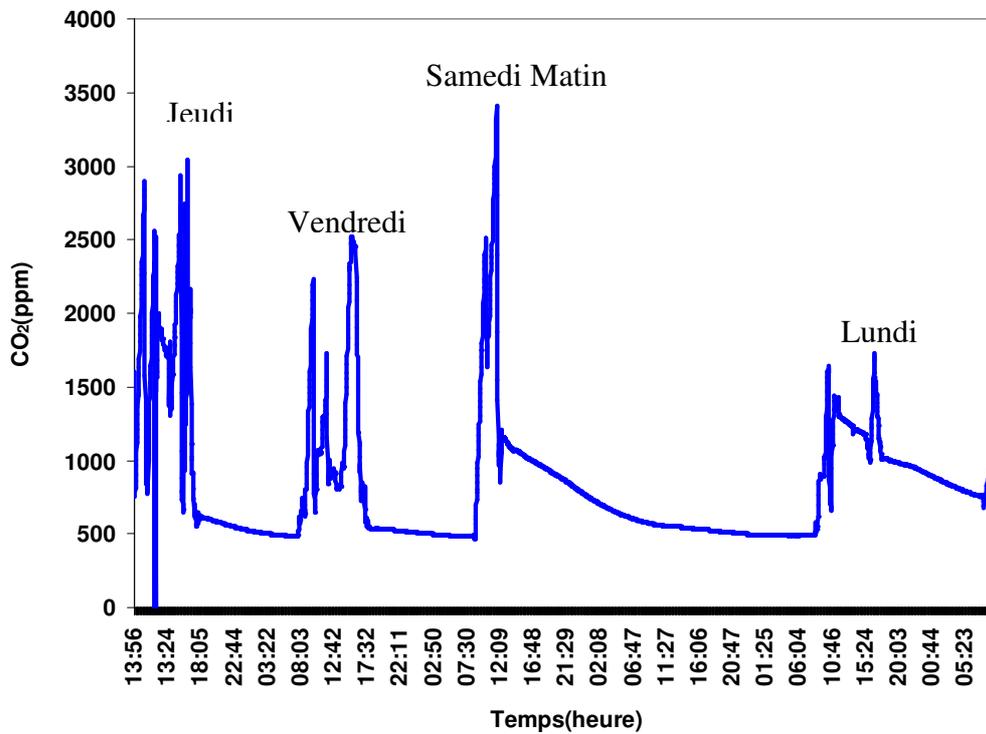
Ecole de Marquise



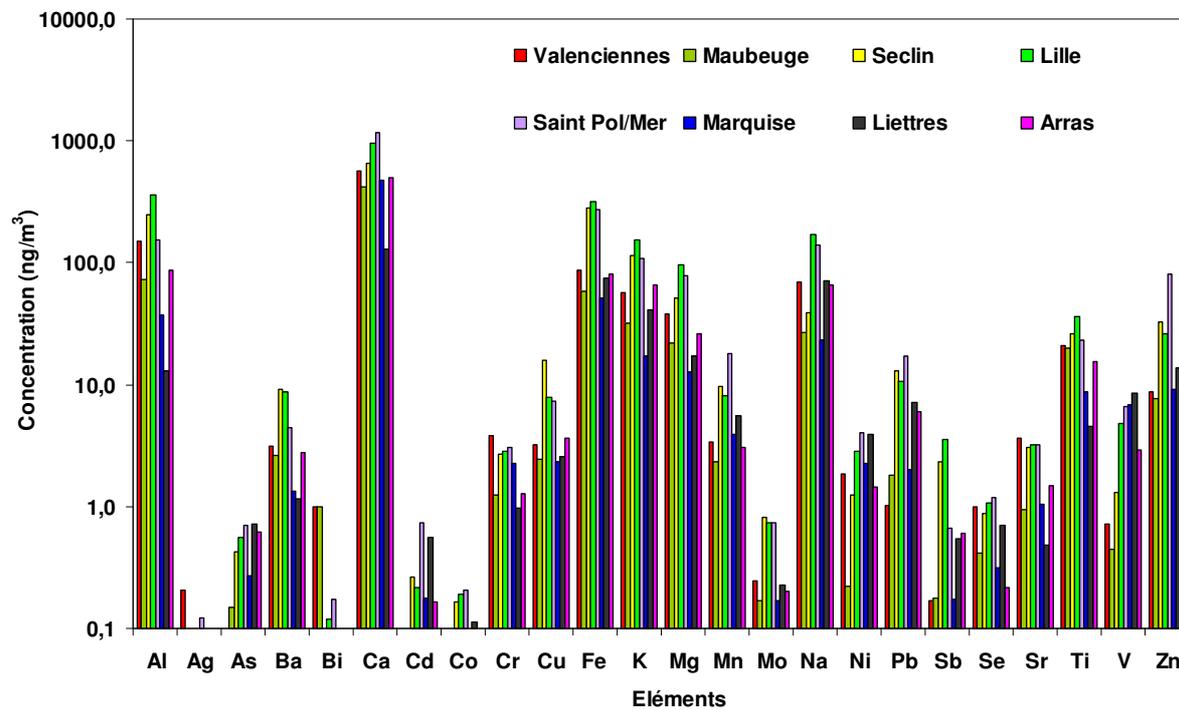
Ecole de Liettes



Ecole d'Arras



Annexe 14 : La concentration moyenne (ng/m³) sur une semaine des éléments majeurs et traces dans les PM₁₀ prélevées dans les classes durant la période en absence des élèves (données Microvol).



**Annexe 15 : Questionnaires durant la campagne de prélèvement et de mesure dans les écoles
(Exemple à Ecole de Lièvres)**

Questionnaire sur les activités scolaires dans la classe étudiée

Semaine 1	Jeudi (18.06.09)		Vendredi (19.06.09)		Lundi (22.06.09)							
	Matin	Après-midi	Matin	Après-midi	Matin	Après-midi						
Ouverture des fenêtres (ou portes communicantes avec l'extérieur)												
Ouverture des fenêtres	N	N	N	N								
Durée en mn												
Ouverture des portes communicantes avec une autre pièce du bâtiment ou le couloir												
Ouverture des portes	O	O	O	O	O	O						
Durée en mn	8 ^h 30-10 ^h 30 11 ^h 30-13 ^h	2 ^h 30	3h	15h15-16h30	Toute la journée							
Effectif présent (en moyenne sur 1/2 journée)												
Adultes	2	1	1	1	1	2						
Enfants	21	21	21	21	20	19						
Activités (estimer la durée par jour en mn)												
Peintures	N			N	N	N						
Vernis	N			N	N	N						
Collages	O			O	O	O						
Feutres	N			O	N	N						
Sorties	N			O	N	30						
Autres												
Avez-vous utilisé dans votre salle ?												
Des anti-poux ou autres insecticides	O			N	N	N						
Des produits de nettoyage pour une cage contenant des animaux domestiques (lapins, rongeurs)	N			N	N	N						
Des pesticides	N			N	N	N						
Pendant la récréation vous êtes dans la classe ?	N			N	N	N						
Pendant la récréation la porte est ouverte ?	O			O	O	O						
Cette semaine, le chauffage était en fonctionnement ? Non												
Cette semaine, des personnes ont fumé dans la salle ? Non												
Relevés CO₂	Avant	Après	Avant	Après	Avant	Après	Avant	Après	Avant	Après	Avant	Après
	récré	récré	récré	récré	récré	récré	récré	récré	récré	récré	récré	récré
		780					816	480			576	796

Semaine 2	Mardi (23.06.09)		Jeudi (25.06.09)		Vendredi (26.06.09)							
	Matin	Après-midi	Matin	Après-midi	Matin	Après-midi						
Ouverture des fenêtres (ou portes communicantes avec l'extérieur)												
Ouverture des fenêtres	N	N	N	N	N	N						
Durée en mn												
Ouverture des portes communicantes avec une autre pièce du bâtiment ou le couloir												
Ouverture des portes	O	O	N	O	O	O						
Durée en mn	Toute la journée	Toute la journée		13 ^h 30-16 ^h 30	10h30-14h15	15h-15h45						
Effectif présent (en moyenne sur 1/2 journée)												
Adultes	1	1	1	1	1	1						
Enfants	19	22	21	21	21	21						
Activités (estimer la durée par jour en mn)												
Peintures	N	N	N	N	N	N						
Vernis	N	N	N	N	N	N						
Collages	O	O	O	O	O	N						
Feutres	O	O	N	N	N	N						
Sorties	N	N	O	N	O	O						
Autres												
Avez-vous utilisé dans votre salle ?												
Des anti-poux ou autres insecticides	N	N	N	N	N	N						
Des produits de nettoyage pour une cage contenant des animaux domestiques (lapins, rongeurs)	N	N	N	N	N	N						
Des pesticides	N	N	N	N	N	N						
Cette semaine, le chauffage était en fonctionnement ? Non												
Cette semaine, des personnes ont fumé dans la salle ? Non												
Relevés CO₂	<i>Avant récré</i>	<i>Après récré</i>	<i>Avant récré</i>	<i>Après récré</i>	<i>Avant récré</i>	<i>Après récré</i>	<i>Avant récré</i>	<i>Après récré</i>	<i>Avant récré</i>	<i>Après récré</i>	<i>Avant récré</i>	<i>Après récré</i>
		533		478	747	572	417		441	465	527	432

Semaine 2	Lundi (29.06.09)		Mardi (30.06.09)					
	<i>Matin</i>	<i>Après-midi</i>	<i>Matin</i>	<i>Après-midi</i>				
Ouverture des fenêtres (ou portes communicantes avec l'extérieur)								
Ouverture des fenêtres	N	N	N	N				
Durée en mn								
Ouverture des portes communicantes avec une autre pièce du bâtiment ou le couloir								
Ouverture des portes	O	O	O	O				
Durée en mn	Toute la journée	Toute la journée	Toute la matinée	15 ^h 30-16 ^h 30				
Effectif présent (en moyenne sur 1/2 journée)								
Adultes	1	1	1	1				
Enfants	20	21	22	22				
Activités (estimer la durée par jour en mn)								
Peintures	N	N	N	N				
Vernis	N	N	N	N				
Collages	O	O	O	O				
Feutres	N	N	N	N				
Sorties	N	N	N	N				
Autres								
Avez-vous utilisé dans votre salle ?								
Des anti-poux ou autres insecticides	N	N	N	N				
Des produits de nettoyage pour une cage contenant des animaux domestiques (lapins, rongeurs)	N	N	N	N				
Des pesticides	N	N	N	N				
Cette semaine, le chauffage était en fonctionnement ? Non								
Cette semaine, des personnes ont fumé dans la salle ? Non								
Relevés CO₂	<i>Avant récré</i>	<i>Après récré</i>	<i>Avant récré</i>	<i>Après récré</i>	<i>Avant récré</i>	<i>Après récré</i>	<i>Avant récré</i>	<i>Après récré</i>
	611	446	653	450	650	577	1051	950

Questionnaire sur les activités de balayage et nettoyage dans la classe



**QUESTIONNAIRE DESCRIPTIF DES ACTIVITES DE NETTOYAGE
PENDANT LES CAMPAGNES DE MESURE
(à remplir par le personnel de ménage)**

DATE DE LA CAMPAGNE :

Du 17/06 au 01/07/2009

Désignation de la salle :

salle 1 (CM1/CM2)

!!! Avertissement : remplir le tableau au jour le jour

Cette semaine, vous avez :

Semaine 1

	Jeudi		Vendredi		Lundi		Mercredi	
	<i>Matin</i>	<i>Après-midi</i>	<i>Matin</i>	<i>Après-midi</i>	<i>Matin</i>	<i>Après-midi</i>	<i>Matin</i>	<i>Après-midi</i>
Periode de balayage et nettoyage (h)		17 ^h 15-18 ^h	N	17 ^h 49-18 ^h 30		17 ^h 5-17 ^h 30	11 ^h -11 ^h 45	N
Lavage du sol	N	N		O	N	N	O	N
Type de produits utilisés			Vigor				Vigor	
Nettoyage des vitres	N	N		N	N	N	N	N
Type de produits utilisés								
Nettoyage du mobilier	N	N		O	N	N	O	N
Type de produits utilisés			Savon				Savon	
Nettoyage des tapis/moquettes	N	N		O	N	N	O	N
Type de produits utilisés			Vigor				Savon	
Ouverture des fenêtres	N	N		N	N	N	N	N

Semaine 2	Jeudi		Samedi		Lundi			
	Matin	Après-midi	Matin	Après-midi	Matin	Après-midi	Matin	Après-midi
Periode de balayage et nettoyage (h)	N	15 ^h 20-15 ^h 45	10 ^h 35-12 ^h			17 ^h 5-17 ^h 30		
Lavage du sol		N	O	N		O		
Type de produits utilisés			Vigor			Vigor		
Nettoyage des vitres		N	O	N		O		
Type de produits utilisés			Savon			Savon		
Nettoyage du mobilier		N		N				
Type de produits utilisés								
Nettoyage des tapis/moquettes		N	O	N		O		
Type de produits utilisés			Savon			Savon		
Ouverture des fenêtres		N	N	N		N		

Entourer la bonne réponse

Si aucun produit n'est utilisé, par exemple passage d'un chiffon simple, entourer NON

Dans la semaine, avez-vous utilisé dans cette salle des désodorisants d'intérieur sous forme d'aérosols ?

OUI

X

NON

--

Dans la semaine, avez-vous utilisé dans cette salle des désodorisants d'intérieur sous forme de diffuseur électrique ?

OUI

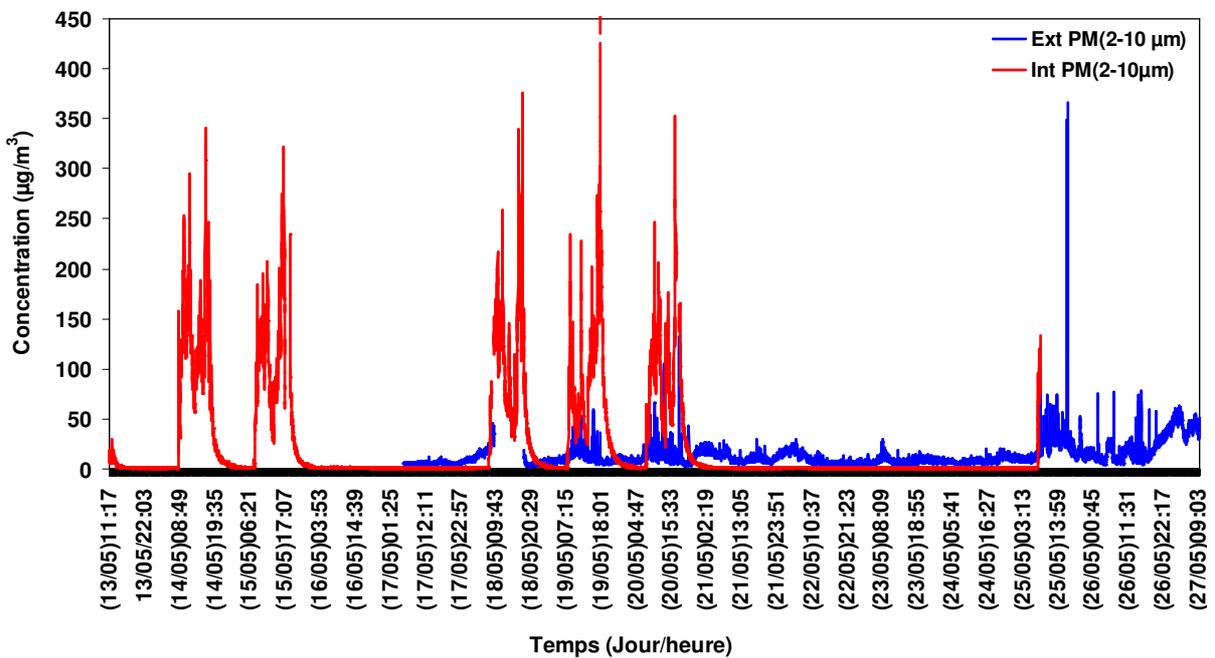
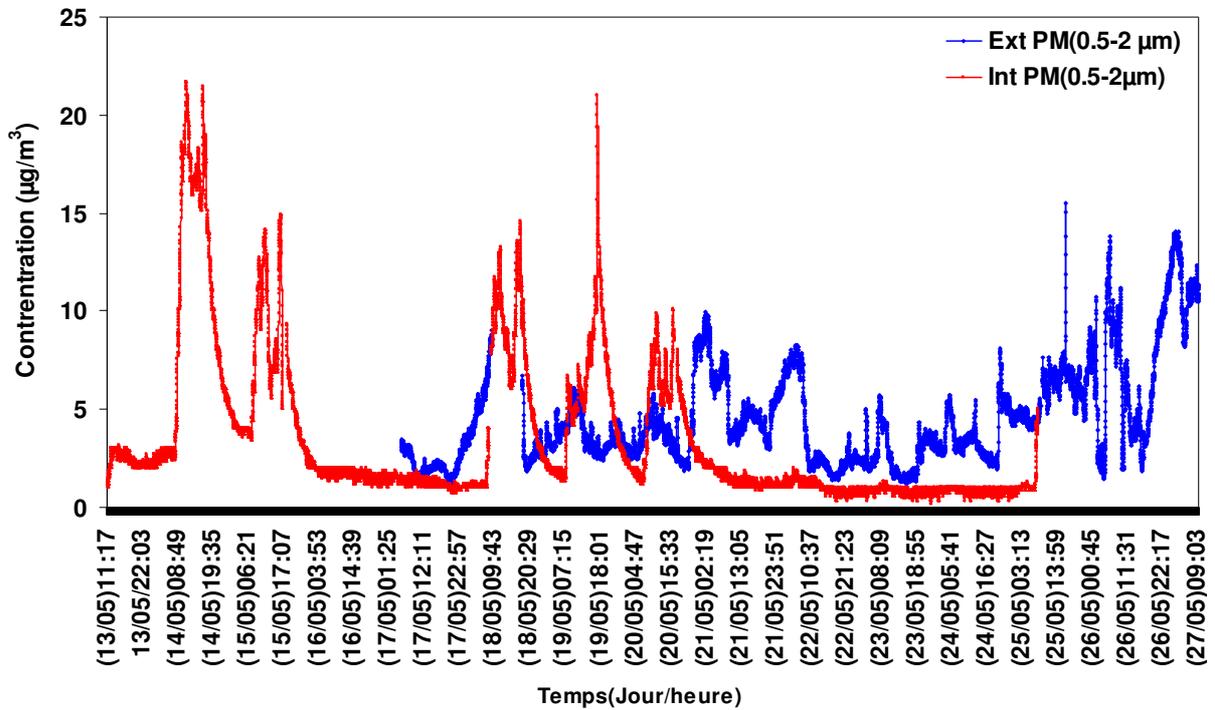
--

NON

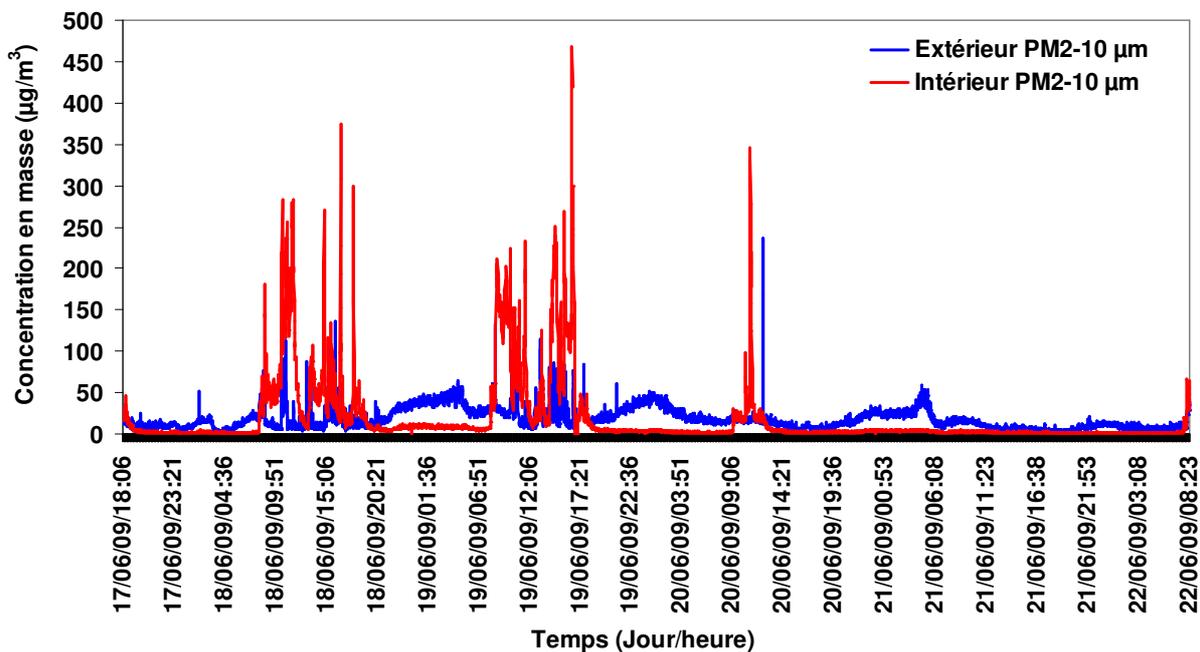
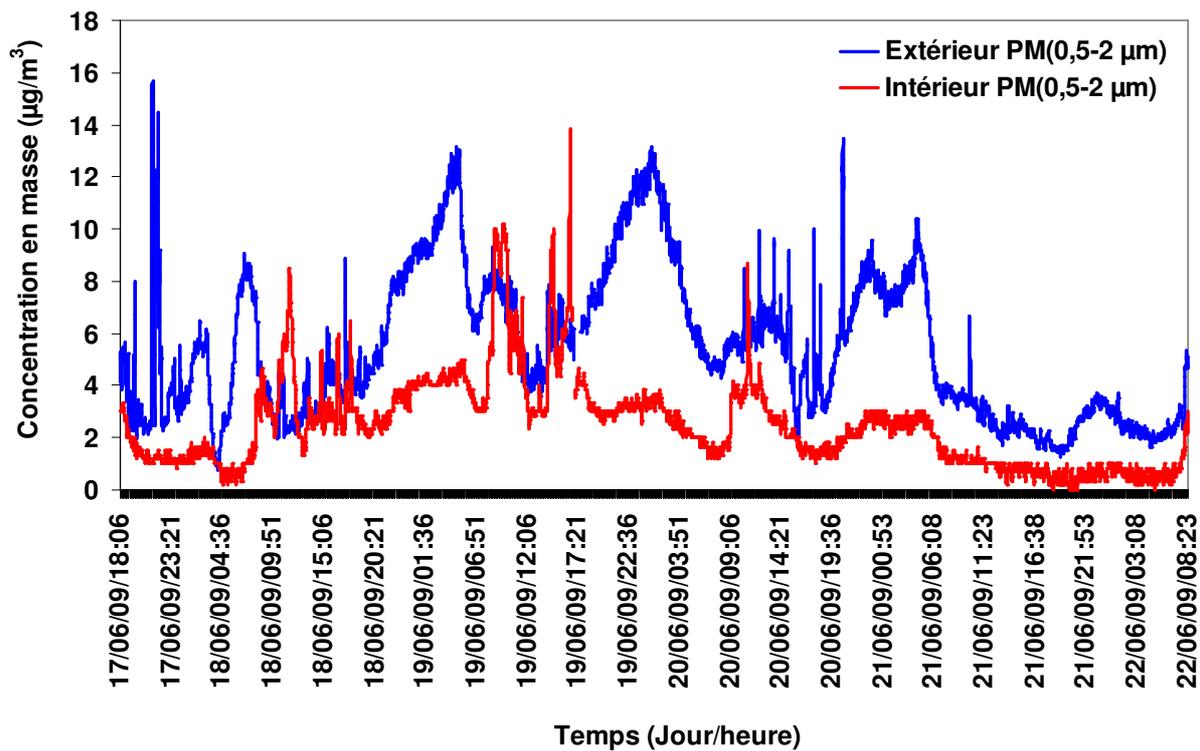
X

Annexe 16 : La variation de concentration en masse ($\mu\text{g}/\text{m}^3$) des $\text{PM}_{0,5-2}$ et PM_{2-10} (μm) en air intérieur et extérieur des écoles.

A l'école d'Arras

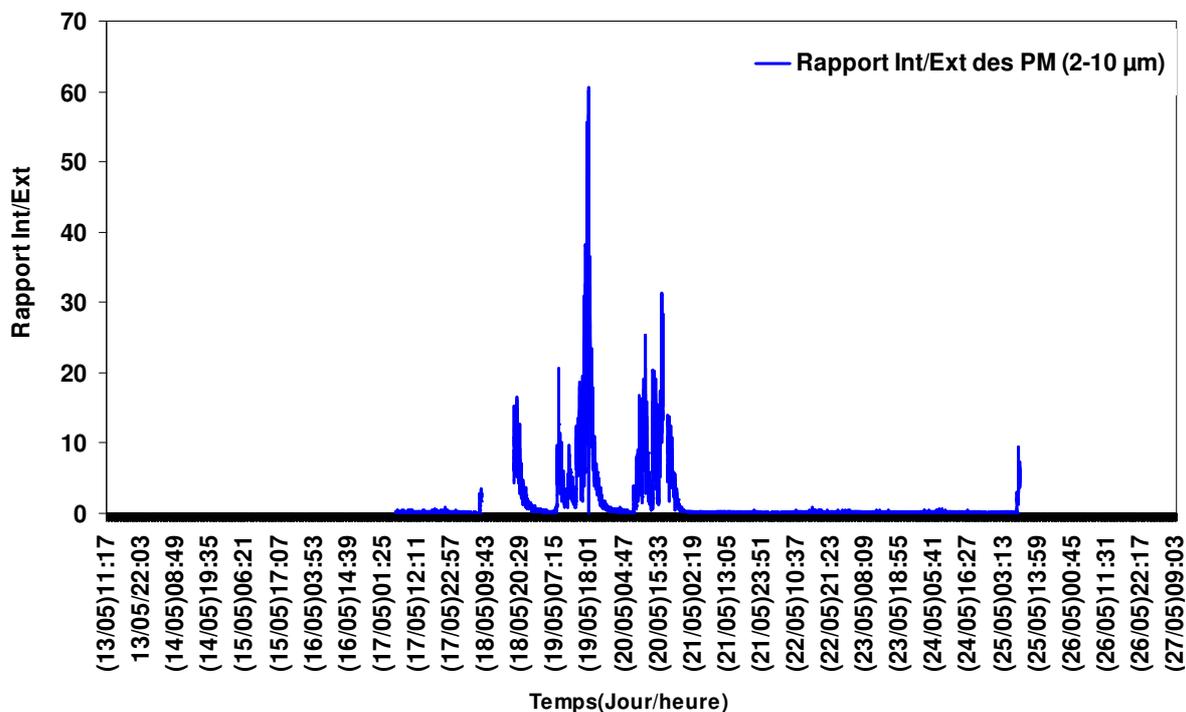
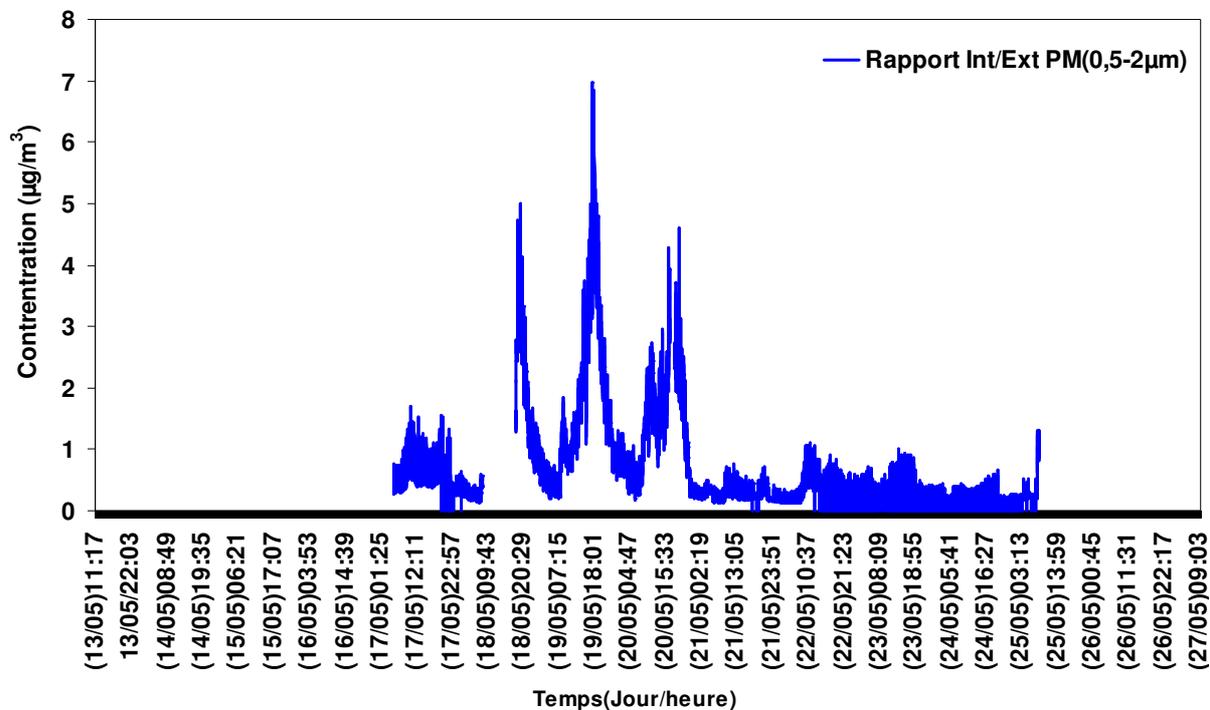


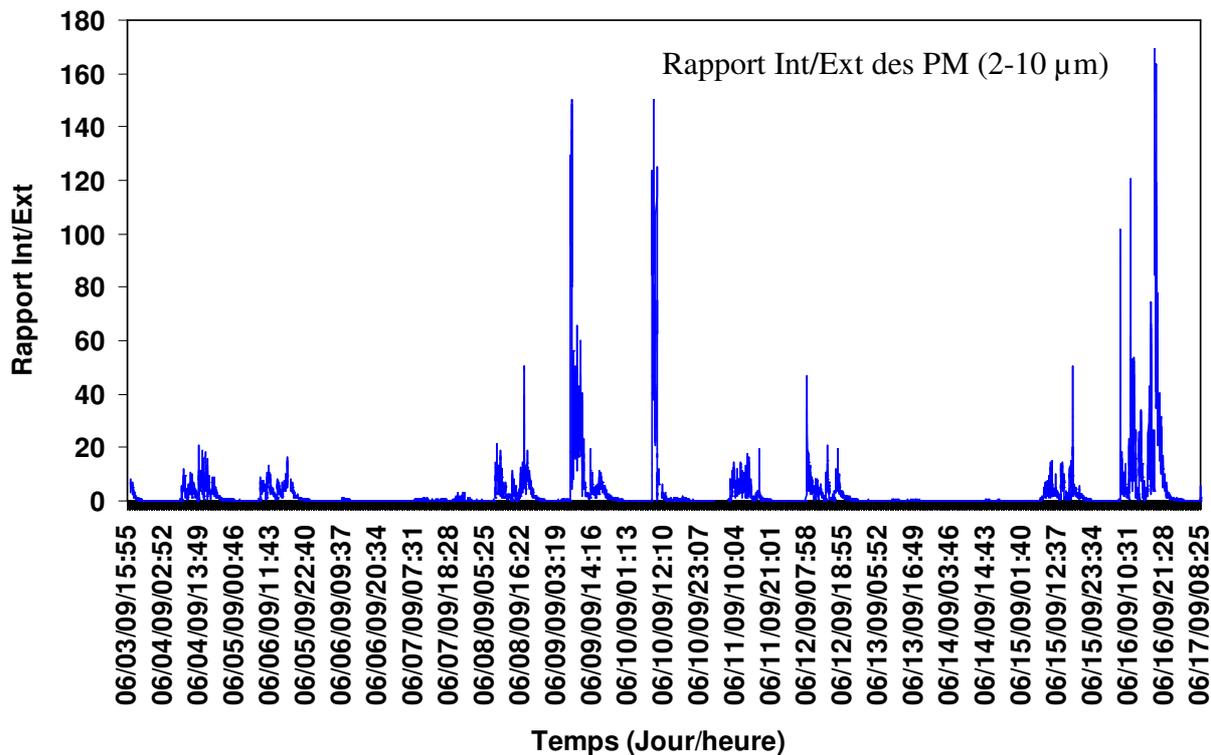
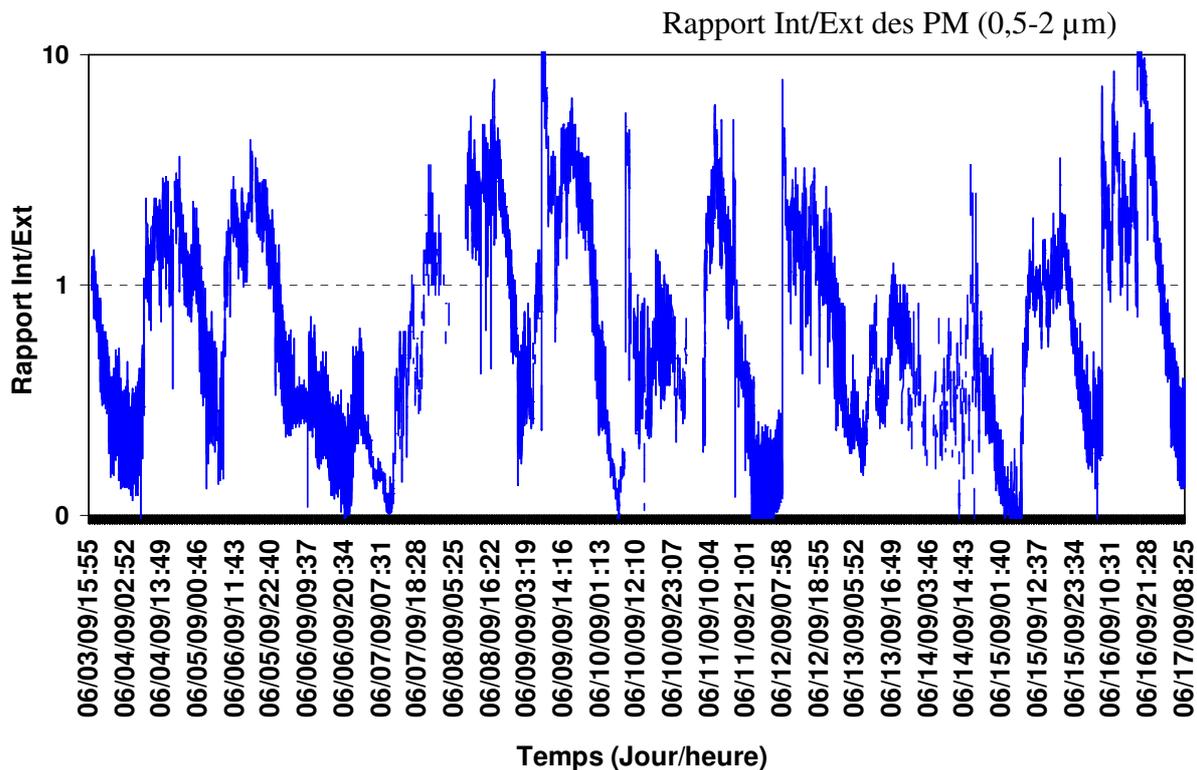
A l'école de Lièvres



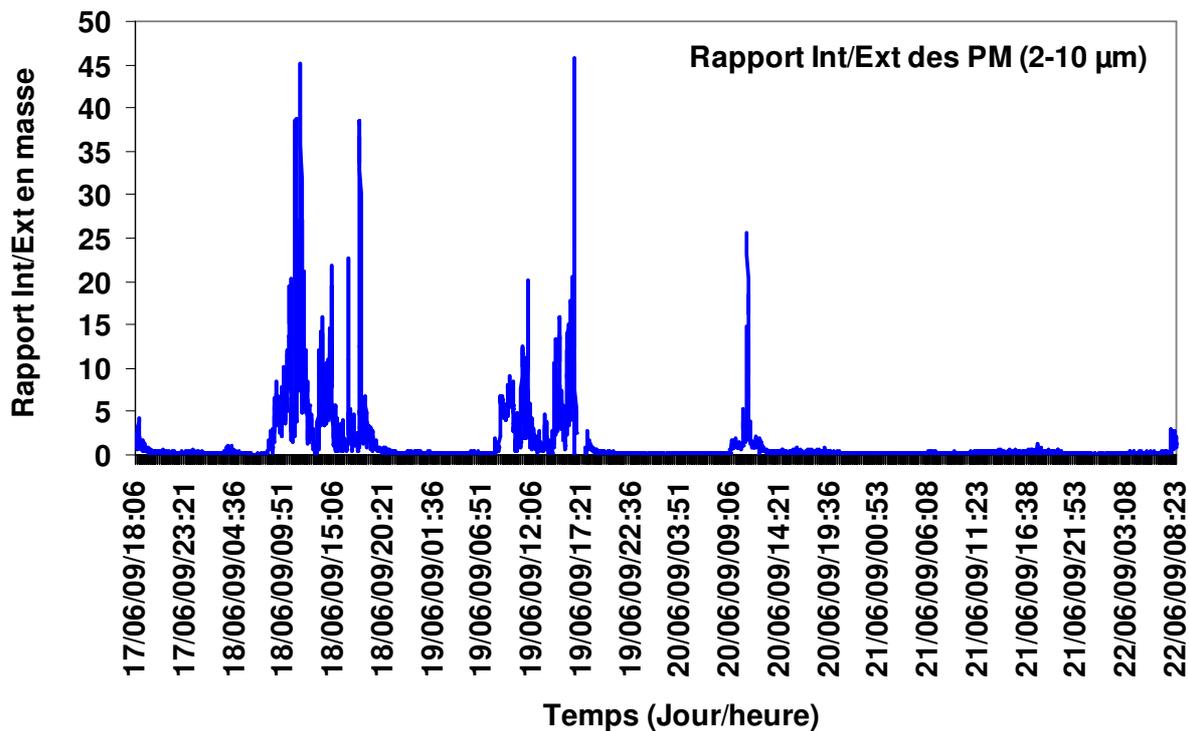
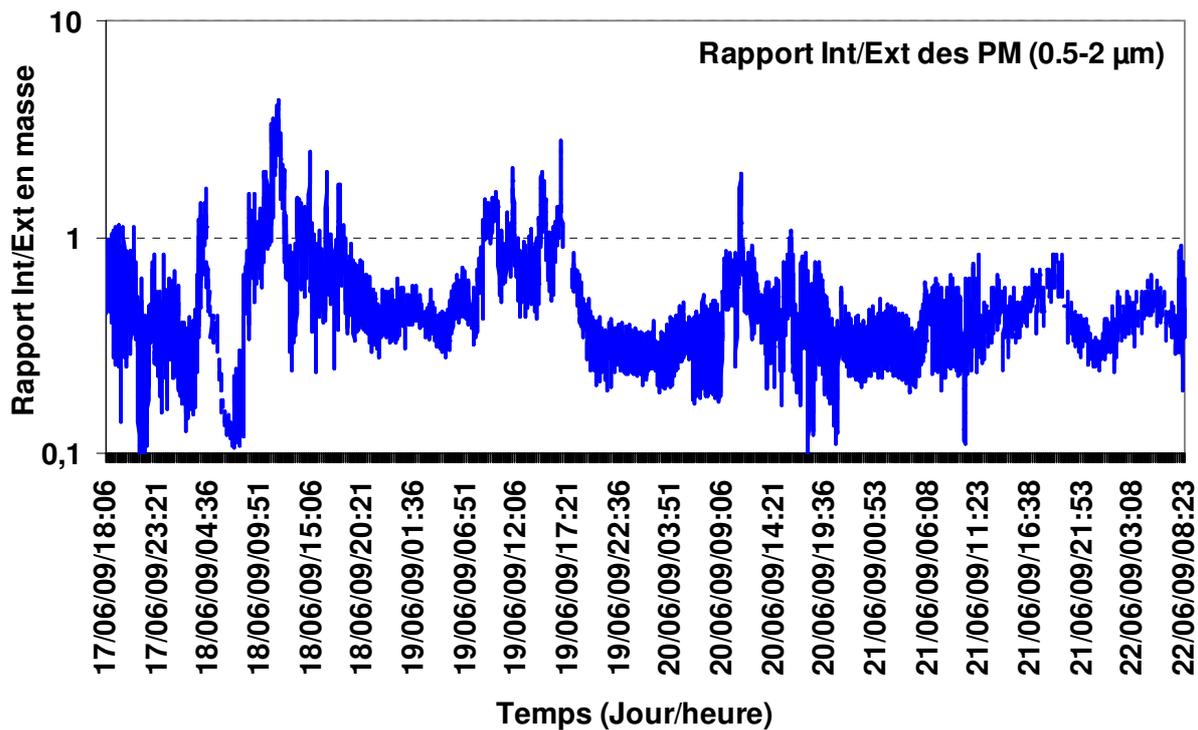
Annexe 17 : Rapports intérieur/extérieur de concentration en masse des particules PM_{0,5-2} et PM₂₋₁₀ (µm) au cours deux semaines.

A l'école d'Arras



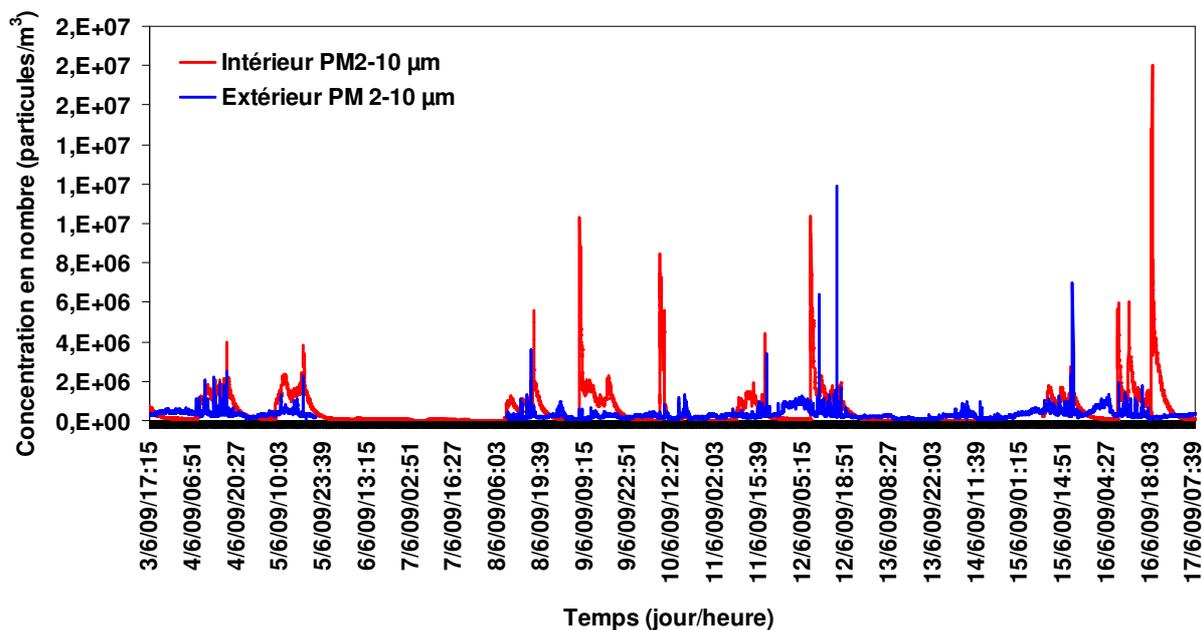
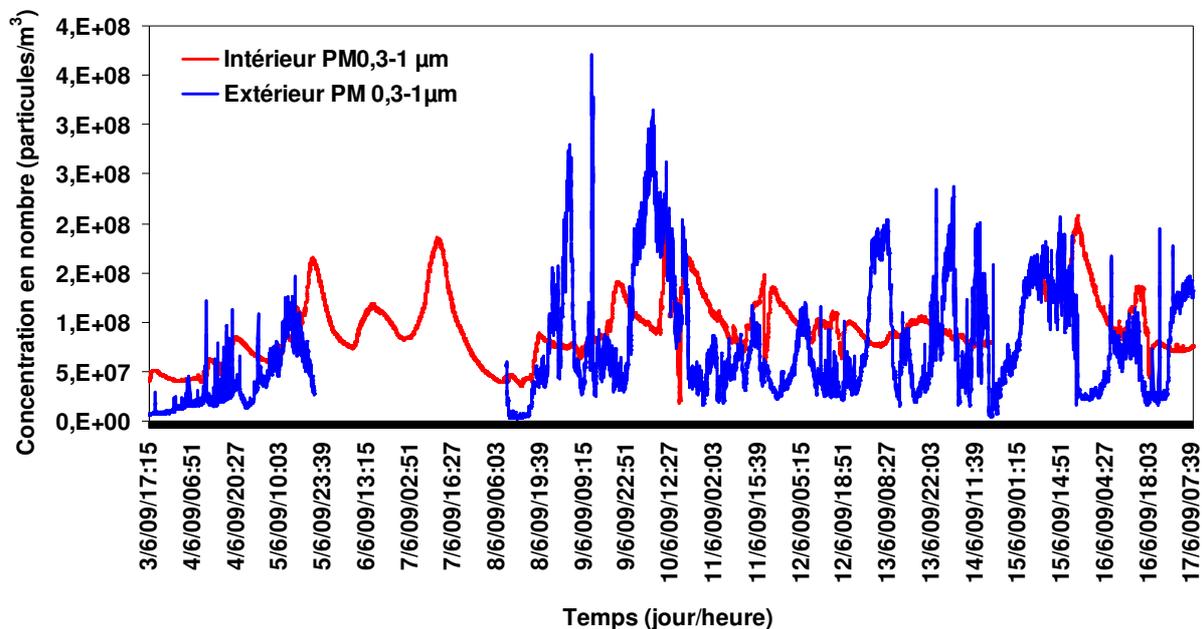


A l'école de Liettres

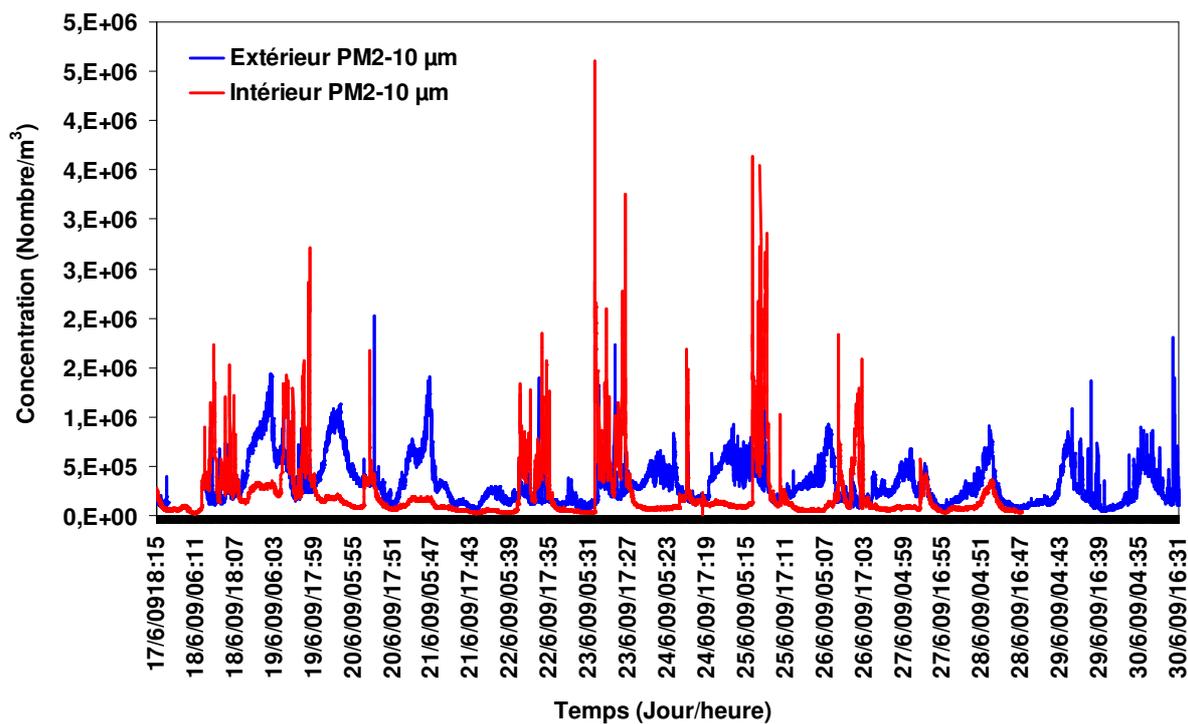
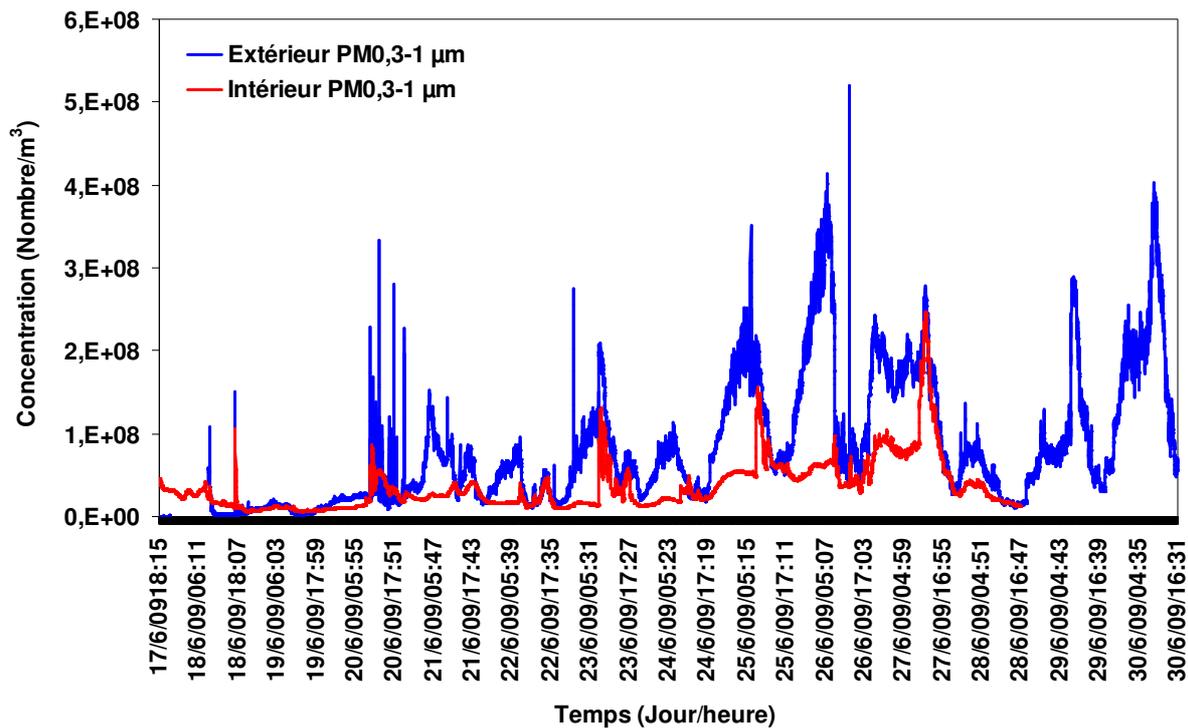


Annexe 18 : Variation de concentration en nombre des particules PM_{0,3-1} et PM₂₋₁₀ (µm) à école de Saint Pol sur Mer et à Liettres.

A l'école de Saint Pol sur Mer



A l'école de Liettres



Annexe 19 : Concentration en masse (ng/m³) moyenne hebdomadaire (sur 2 semaines consécutives) des éléments majeurs et traces dans les PM10 dans les classes des écoles.

Les résultats obtenus durant la période en absence d'élèves

Ecoles Eléments	Arras (ng/m ³)		St Pol (ng/m ³)		Liettres (ng/m ³)	
	S1	S2	S1	S2	S1	S2
Al	80,6	52,3	17,9	114	15,9	25,8
Ag	0,05	0,02	0,09	0,07	0,01	0,02
As	0,47	0,45	0,11	0,65	0,20	0,47
Ba	2,22	0,93	2,08	5,35	0,71	1,12
Bi	0,06	0,03	0,04	0,16	0,01	0,03
Ca	391	123	323	791	95,4	55,0
Cd	0,04	0,01	0,11	0,29	0,00	0,00
Co	0,13	0,08	0,17	0,42	0,08	0,08
Cr	1,68	0,55	0,00	0,00	0,15	0,64
Cu	3,12	1,41	3,12	2,68	0,69	1,19
Fe	134	49,3	82,5	282	28,0	50,6
K	24,8	6,06	50,2	59,7	29,2	55,6
La	0,05	0,05	0,11	0,31	0,08	0,16
Mg	13,4	16,7	25,3	36,1	34,4	9,10
Mn	2,86	1,44	3,40	9,29	0,82	1,96
Mo	2,33	0,80	0,25	0,37	0,09	0,15
Na	41,5	24,4	85,2	75,9	111	65,0
Ni	1,31	0,91	1,06	4,70	1,22	2,57
Pb	2,79	2,40	4,32	5,61	1,75	3,46
Sb	0,37	0,41	0,18	0,43	0,18	0,36
Se	0,22	0,16	0,19	0,19	0,01	0,35
Sr	1,14	0,53	1,19	2,23	0,60	0,33
Ti	10,6	9,00	8,80	25,3	3,25	3,17
V	1,14	1,89	4,65	12,2	3,86	5,78
Zn	8,26	5,19	9,75	17,1	2,48	5,92

S1 et S2 sont respectivement les concentrations en masse des éléments de la semaine 1 et 2

Annexe 20 : Concentration (ng/μg) élémentaires moyennes dans les PM₁₀ extérieures des écoles

Période Ecoles Eléments	Présence des élèves						Absence des élèves					
	Arras		St Pol/Mer		Liettres		Arras		St Pol/Mer		Liettres	
	S1	S2	S1	S2	S1	S2	S1	S2	S1	S2	S1	S2
Al	5,96	5,25	0,05	10,8	4,45	7,73	14,1	9,18	0,02	6,60	2,63	6,10
Ag	0,00	0,002	0,02	0,004	0,00	0,00	0,00	0,003	0,00	0,004	0,00	0,00
As	0,01	0,009	0,02	0,069	0,01	0,01	0,01	0,023	0,01	0,036	0,01	0,02
Ba	0,23	0,22	0,17	0,28	0,14	0,16	0,26	0,25	0,18	0,16	0,15	0,11
Bi	0,01	0,004	0,00	0,007	0,00	0,00	0,01	0,005	0,00	0,005	0,00	0,00
Ca	34,7	41,3	22,4	60,0	37,4	34,9	10,4	19,1	12,6	11,4	6,42	6,75
Cd	0,00	0,000	0,01	0,012	0,00	0,01	0,00	0,004	0,00	0,006	0,00	0,00
Co	0,01	0,026	0,02	0,027	0,02	0,02	0,01	0,013	0,01	0,012	0,01	0,01
Cr	0,14	0,091	0,00	0,020	0,08	0,11	0,39	0,27	0,07	0,10	0,11	0,24
Cu	0,33	0,22	0,18	0,21	0,09	0,16	0,34	0,31	0,15	0,17	0,09	0,12
Fe	7,82	6,31	17,8	53,3	4,70	10,7	17,8	16,1	16,3	26	7,10	7,81
K	2,80	0,43	2,21	4,90	2,89	5,68	4,91	5,51	3,23	3,13	4,02	4,89
La	0,01	0,013	0,02	0,033	0,01	0,01	0,01	0,012	0,01	0,023	0,01	0,01
Mg	3,77	3,07	9,50	5,34	2,73	1,44	2,36	5,58	5,28	3,85	5,42	1,38
Mn	0,23	0,242	0,75	2,575	0,23	0,35	0,20	0,326	0,57	1,54	0,15	0,25
Mo	0,02	0,020	0,01	0,027	0,00	0,01	0,07	0,032	0,01	0,016	0,01	0,01
Na	11,0	5,58	15,7	7,08	5,56	0,00	7,09	17,1	13,9	9,84	18,5	2,14
Ni	0,10	0,051	0,05	0,15	0,06	0,09	0,17	0,21	0,11	0,17	0,09	0,19
Pb	0,22	0,17	0,16	0,37	0,11	0,29	2,41	1,19	1,06	1,25	0,49	0,39
Sb	0,04	0,034	0,01	0,028	0,01	0,03	0,03	0,060	0,02	0,023	0,02	0,02
Se	0,00	0,000	0,03	0,019	0,00	0,01	0,01	0,022	0,02	0,010	0,02	0,02
Sr	0,12	0,15	0,09	0,15	0,10	0,09	0,04	0,091	0,07	0,058	0,06	0,04
Ti	0,97	0,81	0,99	1,57	0,69	0,79	2,14	1,59	1,09	1,12	0,80	0,50
V	0,09	0,081	0,22	0,38	0,09	0,16	0,06	0,18	0,28	0,59	0,22	0,30
Zn	0,90	0,98	0,54	1,12	0,34	1,13	1,64	1,30	1,03	0,93	0,49	0,39

S1 et S2 sont respectivement les concentrations élémentaires (ng/μg) de la semaine 1 et 2

**Annexe 21 : Pourcentages élémentaires moyens hebdomadaires (%) de différentes fractions
particulaires dans les PM₁₀ à l'extérieur des écoles.**

Période Ecoles	Période d'occupation						En absence des élèves					
	Arras		Saint Pol/Mer		Liettres		Arras		Saint Pol/Mer		Liettres	
Fractions	PM _{1/10}	PM _{2,5/10}	PM _{1/10}	PM _{2,5/10}	PM _{1/10}	PM _{2,5/10}	PM _{1/10}	PM _{2,5/10}	PM _{1/10}	PM _{2,5/10}	PM _{1/10}	PM _{2,5/10}
Ag	38,72	72,66	73,87	88,11	55,98	76,79	49,97	76,38	59,08	88,36	71,68	89,83
As	51,74	80,55	69,34	88,32	79,80	90,76	55,03	84,34	78,68	91,20	76,61	93,09
Ba	18,03	73,11	16,81	51,35	32,92	75,21	13,75	67,42	19,53	62,14	4,80	65,69
Bi	62,58	83,65	62,84	84,11	53,81	81,83	74,61	74,92	63,40	87,22	57,04	84,82
Cd	43,40	78,00	68,15	86,40	65,24	84,76	50,57	81,67	75,29	91,03	81,79	96,53
Co	24,73	73,81	45,96	68,59	49,43	68,49	34,01	72,56	55,27	79,79	50,55	77,47
Cr	24,74	77,72	32,92	54,75	35,05	60,56	27,46	73,68	39,18	74,17	25,42	82,64
Cu	25,32	71,21	41,31	68,67	38,72	68,46	22,57	72,26	30,38	66,46	24,22	70,90
La	16,69	73,82	25,26	74,93	31,39	73,82	37,71	48,71	12,63	61,01	20,85	81,60
Mn	27,14	72,81	29,08	56,06	38,55	64,56	26,15	73,27	24,95	60,57	26,34	64,14
Mo	18,57	75,74	44,52	67,38	41,05	65,76	32,31	71,94	51,76	79,58	32,14	82,27
Ni	29,37	80,59	52,66	73,38	55,75	73,80	49,46	80,03	65,89	87,58	65,60	91,62
Pb	44,88	79,55	64,92	82,90	69,05	86,19	51,87	82,69	79,21	92,00	86,69	96,04
Sb	33,04	73,64	49,46	75,02	57,00	81,88	43,17	77,02	48,16	77,24	64,94	86,67
Se	44,70	82,26	82,42	94,04	93,07	96,70	60,57	86,93	85,90	95,95	73,70	96,97
Sr	19,50	70,10	19,90	52,55	40,08	66,30	17,57	71,41	16,58	54,68	14,05	60,60
Ti	29,28	70,15	78,30	90,23	49,59	68,67	43,63	74,42	83,34	93,42	26,66	64,86
V	28,81	73,19	44,84	68,87	85,47	92,95	28,60	75,36	52,03	84,79	90,33	96,92
Zn	22,81	71,16	23,49	49,12	57,71	86,02	28,89	75,40	13,38	52,29	58,99	91,07
Al	8,41	68,33	26,65	53,17	40,17	63,47	5,20	69,93	16,07	45,48	23,00	68,39
Ca	10,46	66,46	33,01	58,90	45,00	64,94	12,50	67,02	31,21	60,92	13,43	51,56
Fe	35,58	75,49	45,33	65,95	35,30	62,50	19,14	72,45	42,10	68,54	19,93	65,37
K	22,26	70,20	19,51	52,07	54,15	73,12	22,10	68,31	7,31	48,95	41,04	69,88
Mg	24,84	75,20	12,70	50,30	21,16	57,47	24,36	74,66	6,39	49,13	5,37	59,24
Na	7,71	74,02	38,46	61,46	1,80	51,75	14,47	74,41	22,59	57,15	4,63	58,46

Annexe 22 : Les corrélations inter-élémentaires à l'extérieur des écoles.

Corrélation enter-éléments à l'extérieur de l'école d'Arras.

	Ag	Al	As	Ba	Bi	Ca	Cd	Co	Cr	Cu	Fe	K	La	Mg	Mn	Mo	Na	Ni	Pb	Sb	Se	Sr	Ti	V	Zn	
Ag	1,00																									
Al	-0,32	1,00																								
As	-0,53	-0,01	1,00																							
Ba	0,19	0,37	-0,13	1,00																						
Bi	0,00	0,86	-0,06	0,44	1,00																					
Ca	0,41	-0,12	-0,22	0,81	0,06	1,00																				
Cd	0,44	0,00	0,27	0,27	0,23	0,10	1,00																			
Co	0,36	0,05	-0,51	0,69	0,25	0,88	-0,18	1,00																		
Cr	-0,46	0,93	0,14	0,27	0,69	-0,31	0,07	-0,22	1,00																	
Cu	0,04	0,42	0,08	0,20	0,51	0,20	-0,13	0,25	0,18	1,00																
Fe	-0,06	0,95	-0,19	0,33	0,92	-0,08	0,08	0,14	0,81	0,51	1,00															
K	-0,20	0,78	0,14	-0,04	0,65	-0,51	0,36	-0,45	0,83	0,17	0,78	1,00														
La	0,30	-0,01	-0,37	0,67	0,06	0,91	-0,17	0,90	-0,23	0,23	0,04	-0,43	1,00													
Mg	0,22	0,00	-0,31	0,31	-0,15	0,45	0,03	0,32	-0,09	0,19	0,06	-0,01	0,59	1,00												
Mn	0,50	0,27	-0,48	0,60	0,49	0,73	0,06	0,84	-0,04	0,48	0,45	-0,04	0,81	0,52	1,00											
Mo	-0,46	0,92	0,16	0,34	0,84	-0,20	0,08	-0,05	0,90	0,33	0,83	0,72	-0,20	-0,23	0,07	1,00										
Na	0,47	0,10	-0,24	-0,04	0,21	0,00	0,45	-0,04	-0,02	0,33	0,32	0,41	0,04	0,62	0,43	-0,03	1,00									
Ni	-0,54	0,71	0,14	-0,02	0,34	-0,51	0,01	-0,49	0,85	0,11	0,59	0,81	-0,39	0,17	-0,26	0,68	0,21	1,00								
Pb	-0,27	0,97	-0,04	0,20	0,88	-0,29	0,02	-0,06	0,91	0,37	0,95	0,83	-0,18	-0,17	0,19	0,91	0,11	0,67	1,00							
Sb	0,62	0,03	-0,46	0,25	0,26	0,48	0,25	0,55	-0,24	0,26	0,27	0,04	0,59	0,62	0,85	-0,19	0,73	-0,26	0,00	1,00						
Se	-0,70	0,05	0,53	-0,47	-0,33	0,66	-0,03	-0,80	0,32	-0,33	-0,15	0,37	-0,58	0,02	-0,73	0,12	-0,05	0,65	0,03	-0,51	1,00					
Sr	0,55	-0,12	-0,42	0,63	0,16	0,92	0,00	0,94	-0,40	0,34	0,03	-0,48	0,90	0,44	0,88	-0,23	0,18	-0,59	-0,22	0,69	-0,82	1,00				
Ti	-0,26	0,65	0,01	0,10	0,53	-0,02	-0,39	0,13	0,47	0,88	0,67	0,37	0,16	0,22	0,36	0,50	0,21	0,43	0,59	0,13	-0,07	0,10	1,00			
V	0,08	-0,31	-0,08	-0,02	-0,23	-0,15	0,29	-0,22	-0,15	-0,40	-0,32	-0,13	-0,44	-0,21	-0,44	-0,03	-0,01	0,02	-0,26	-0,35	0,12	-0,25	-0,55	1,00		
Zn	-0,36	0,94	-0,06	0,51	0,77	-0,04	0,01	0,10	0,93	0,28	0,85	0,68	0,01	0,00	0,19	0,93	-0,01	0,73	0,88	-0,11	0,07	-0,11	0,50	-0,06	1	

Annexe 22 (suite)

Corrélation corrélations inter-élémentaires à l'extérieur de l'école de Saint Pol sur Mer

	Ag	As	Ba	Cd	Co	Cr	Cu	Mn	Ni	Pb	Sb	Se	Sr	Ti	V	Zn	Bi	La	Mo	Al	Ca	Fe	Mg	K	Na
Ag	1																								
As	-0,53	1																							
Ba	0,19	-0,13	1																						
Cd	0,44	0,27	0,27	1																					
Co	0,36	-0,51	0,69	-0,18	1																				
Cr	-0,46	0,14	0,27	0,07	-0,22	1																			
Cu	0,04	0,08	0,2	-0,13	0,25	0,18	1																		
Mn	0,5	-0,48	0,6	0,06	0,84	-0,04	0,48	1																	
Ni	-0,54	0,14	-0,02	0,01	-0,49	0,85	0,11	-0,26	1																
Pb	-0,27	-0,04	0,2	0,02	-0,06	0,91	0,37	0,19	0,67	1															
Sb	0,62	-0,46	0,25	0,25	0,55	-0,24	0,26	0,85	-0,26	0	1														
Se	-0,7	0,53	-0,47	-0,03	-0,8	0,32	-0,33	-0,73	0,65	0,03	-0,51	1													
Sr	0,55	-0,42	0,63	0	0,94	-0,4	0,34	0,88	-0,59	-0,22	0,69	-0,82	1												
Ti	-0,26	0,01	0,1	-0,39	0,13	0,47	0,88	0,36	0,43	0,59	0,13	-0,07	0,1	1											
V	0,08	-0,08	-0,02	0,29	-0,22	-0,15	-0,4	-0,44	0,02	-0,26	-0,35	0,12	-0,25	-0,55	1										
Zn	-0,36	-0,06	0,51	0,01	0,1	0,93	0,28	0,19	0,73	0,88	-0,11	0,07	-0,11	0,5	-0,06	1									
Bi	0	-0,06	0,44	0,23	0,25	0,69	0,51	0,49	0,34	0,88	0,26	-0,33	0,16	0,53	-0,23	0,77	1								
La	0,3	-0,37	0,67	-0,17	0,9	-0,23	0,23	0,81	-0,39	-0,18	0,59	-0,58	0,9	0,16	-0,44	0,01	0,06	1							
Mo	-0,46	0,16	0,34	0,08	-0,05	0,9	0,33	0,07	0,68	0,91	-0,19	0,12	-0,23	0,5	-0,03	0,93	0,84	-0,2	1						
Al	-0,32	-0,01	0,37	0	0,05	0,93	0,42	0,27	0,71	0,97	0,03	0,05	-0,12	0,65	-0,31	0,94	0,86	-0,01	0,92	1					
Ca	0,41	-0,22	0,81	0,1	0,88	-0,31	0,2	0,73	-0,51	-0,29	0,48	-0,66	0,92	-0,02	-0,15	-0,04	0,06	0,91	-0,2	-0,12	1				
Fe	-0,06	-0,19	0,33	0,08	0,14	0,81	0,51	0,45	0,59	0,95	0,27	-0,15	0,03	0,67	-0,32	0,85	0,92	0,04	0,83	0,95	-0,08	1			
Mg	0,22	-0,31	0,31	0,03	0,32	-0,09	0,19	0,52	0,17	-0,17	0,62	0,02	0,44	0,22	-0,21	0	-0,15	0,59	-0,23	0	0,45	0,06	1		
K	-0,2	0,14	-0,04	0,36	-0,45	0,83	0,17	-0,04	0,81	0,83	0,04	0,37	-0,48	0,37	-0,13	0,68	0,65	-0,43	0,72	0,78	-0,51	0,78	-0,01	1	
Na	0,47	-0,24	-0,04	0,45	-0,04	-0,02	0,33	0,43	0,21	0,11	0,73	-0,05	0,18	0,21	-0,01	-0,01	0,21	0,04	-0,03	0,1	0	0,32	0,62	0,41	1

Annexe 22 (suite)

Corrélation inter-éléments à l'extérieur de l'école de Lièvres.

	<i>Ag</i>	<i>Al</i>	<i>As</i>	<i>Ba</i>	<i>Bi</i>	<i>Ca</i>	<i>Cd</i>	<i>Co</i>	<i>Cr</i>	<i>Cu</i>	<i>Fe</i>	<i>K</i>	<i>La</i>	<i>Mg</i>	<i>Mn</i>	<i>Mo</i>	<i>Na</i>	<i>Ni</i>	<i>Pb</i>	<i>Sb</i>	<i>Se</i>	<i>Sr</i>	<i>Ti</i>	<i>V</i>	<i>Zn</i>	
Ag	1,00																									
Al	0,04	1,00																								
As	0,52	0,00	1,00																							
Ba	0,63	0,13	0,61	1,00																						
Bi	0,62	0,27	0,73	0,57	1,00																					
Ca	-0,14	0,79	-0,16	-0,06	-0,15	1,00																				
Cd	0,66	0,23	0,79	0,62	0,99	-0,15	1,00																			
Co	0,51	0,61	0,18	0,50	0,64	0,13	0,63	1,00																		
Cr	-0,03	0,67	0,08	-0,05	-0,12	0,69	-0,07	0,13	1,00																	
Cu	0,14	0,82	0,02	0,18	0,31	0,38	0,27	0,72	0,64	1,00																
Fe	0,44	0,87	0,14	0,32	0,51	0,54	0,46	0,81	0,42	0,78	1,00															
K	0,18	0,82	0,32	0,03	0,39	0,56	0,38	0,53	0,69	0,74	0,80	1,00														
La	0,05	0,53	0,43	0,36	0,65	0,09	0,64	0,71	0,10	0,54	0,54	0,60	1,00													
Mg	-0,13	0,55	-0,72	-0,13	-0,42	0,52	-0,45	0,36	0,39	0,55	0,45	0,19	-0,06	1,00												
Mn	0,24	0,60	0,46	0,36	0,78	0,06	0,75	0,81	0,19	0,69	0,66	0,67	0,94	-0,04	1,00											
Mo	0,28	0,55	0,52	0,43	0,41	0,26	0,44	0,37	0,71	0,73	0,47	0,59	0,36	0,04	0,52	1,00										
Na	-0,16	-0,03	-0,89	-0,29	-0,60	0,02	-0,63	0,08	-0,10	0,09	-0,02	-0,33	-0,40	0,80	-0,39	-0,41	1,00									
Ni	-0,11	0,74	-0,21	-0,03	-0,12	0,51	-0,13	0,40	0,81	0,89	0,55	0,60	0,24	0,69	0,35	0,68	0,26	1,00								
Pb	0,20	0,45	0,54	0,08	0,68	0,30	0,63	0,21	0,11	0,21	0,50	0,58	0,45	-0,40	0,53	0,32	-0,72	-0,06	1,00							
Sb	0,43	0,17	0,73	0,41	0,95	-0,26	0,94	0,51	-0,13	0,26	0,33	0,33	0,67	-0,54	0,79	0,41	-0,68	-0,13	0,68	1,00						
Se	0,30	0,32	0,81	0,49	0,80	-0,05	0,79	0,34	0,21	0,42	0,35	0,47	0,59	-0,48	0,71	0,75	-0,80	0,16	0,69	0,85	1,00					
Sr	0,41	0,59	0,08	0,38	0,66	0,10	0,61	0,96	-0,03	0,65	0,79	0,46	0,71	0,34	0,80	0,22	0,10	0,30	0,31	0,54	0,31	1,00				
Ti	0,48	0,44	-0,16	0,45	0,04	0,54	0,05	0,45	0,14	0,20	0,57	0,14	-0,06	0,58	-0,05	-0,01	0,38	0,16	-0,06	-0,24	-0,27	0,40	1,00			
V	0,04	0,05	0,74	-0,01	0,48	-0,11	0,48	-0,10	0,19	0,08	0,06	0,49	0,38	-0,70	0,42	0,44	-0,88	-0,06	0,69	0,60	0,75	-0,11	-0,59	1,00		
Zn	0,52	0,51	0,56	0,55	0,94	0,00	0,90	0,81	0,06	0,60	0,69	0,52	0,75	-0,12	0,90	0,55	-0,42	0,20	0,61	0,88	0,79	0,82	0,12	0,35	1,00	

**Annexe 23 : Rapports intérieurs/extérieurs élémentaires de différentes fractions particulières
(calculés à partir de concentrations exprimées en ng/m³).**

Résultats obtenus en présence d'élèves

	St Pol			Arras			Liettres		
	PM ₁	PM _{2,5}	PM ₁₀	PM ₁	PM _{2,5}	PM ₁₀	PM ₁	PM _{2,5}	PM ₁₀
Al	1,72	2,39	1,86	3,67	2,33	2,97	0,98	1,60	1,70
As	1,02	1,01	0,97	2,72	2,32	2,44	0,67	0,77	0,87
Ba	2,62	3,55	3,05	1,07	1,26	1,69	0,70	1,05	1,72
Bi	1,05	1,25	1,35	2,52	2,34	4,23	0,97	1,38	1,69
Ca	2,00	2,34	1,83	2,65	1,97	2,39	1,08	2,07	2,27
Cd	0,73	0,89	0,97	0,98	0,91	1,12	0,60	0,79	0,90
Co	1,26	1,74	1,83	2,06	1,58	1,90	0,98	1,74	1,96
Cr	1,02	1,72	1,88	3,37	1,50	1,92	1,93	2,31	1,88
Cu	1,17	1,47	1,45	1,20	0,96	1,38	1,14	1,52	1,82
Fe	0,77	0,60	0,47	1,54	0,94	1,23	1,10	1,36	1,36
La	0,56	0,89	0,97	1,54	0,86	1,12	0,98	1,16	1,19
Mg	0,98	0,75	0,57	1,36	0,67	0,97	0,76	1,07	1,03
Mn	0,63	0,76	0,61	1,13	0,87	1,13	1,10	1,34	1,39
Mo	1,07	1,05	1,04	2,55	1,43	1,63	1,87	2,26	1,94
Na	1,42	0,62	0,42	1,48	0,44	0,70	1,38	1,08	1,03
Ni	0,86	0,99	1,12	1,95	1,18	1,48	1,13	1,44	1,57
Pb	0,85	1,03	1,08	1,07	1,07	1,64	0,77	0,95	1,06
Sb	1,04	1,06	0,97	1,09	0,82	0,94	0,87	1,01	1,10
Sr	2,58	4,16	3,53	2,81	2,08	2,67	1,02	1,81	2,06
Ti	3,39	5,22	4,26	2,49	2,23	3,03	1,27	1,98	2,40
V	0,67	0,69	0,68	0,73	0,61	1,19	0,86	0,91	0,96
Zn	1,55	2,60	2,74	1,37	1,12	1,44	0,92	1,16	1,39

Annexe 23 (suite).

Résultats obtenus en absence d'élèves.

	St Pol			Arras			Liettres		
	PM ₁	PM _{2,5}	PM ₁₀	PM ₁	PM _{2,5}	PM ₁₀	PM ₁	PM _{2,5}	PM ₁₀
Al	0,74	0,55	0,30	1,11	1,04	0,65	0,56	0,56	0,53
As	0,21	0,22	0,22	1,55	1,37	1,29	0,88	0,81	0,78
Ba	0,29	0,71	0,67	0,70	0,77	0,62	0,74	0,26	0,37
Bi	0,32	0,32	0,31	0,78	0,90	0,69	0,89	0,78	0,72
Ca	1,56	2,26	1,28	1,18	1,59	0,98	0,83	0,77	0,69
Cd	0,57	0,57	0,55	0,56	0,53	0,50	0,81	0,76	0,77
Co	0,27	0,31	0,31	0,67	0,79	0,65	0,86	0,77	0,79
Cr	0,23	0,35	0,39	1,41	0,86	0,88	0,89	0,49	1,03
Cu	0,44	0,49	0,45	0,60	0,49	0,40	0,97	0,61	0,54
Fe	0,55	0,42	0,29	1,45	1,00	0,62	0,92	0,64	0,58
La	0,33	0,37	0,29	0,39	0,38	0,25	0,75	0,76	0,70
Mg	0,86	0,36	0,21	0,29	0,28	0,17	0,95	0,83	0,64
Mn	0,17	0,17	0,14	0,93	0,70	0,51	0,50	0,43	0,37
Mo	0,41	0,49	0,49	1,60	1,60	1,53	1,53	0,94	1,21
Na	1,09	0,35	0,19	0,50	0,27	0,16	1,04	0,70	0,53
Ni	0,29	0,32	0,33	0,70	0,66	0,75	0,88	0,76	0,91
Pb	0,20	0,21	0,21	0,53	0,54	0,53	0,87	0,84	0,82
Sb	0,22	0,23	0,21	0,46	0,42	0,36	0,70	0,65	0,61
Sr	0,27	0,55	0,48	0,86	0,82	0,56	0,85	0,62	0,53
Ti	0,16	0,30	0,30	0,60	0,65	0,47	0,49	0,58	0,49
V	0,22	0,22	0,22	0,59	0,66	0,61	0,90	0,87	0,86
Zn	0,21	0,28	0,29	0,53	0,56	0,50	0,77	0,58	0,58

Annexe 24 : Facteurs d'enrichissement hebdomadaires des PM₁ utilisant le Ni comme élément de référence, en absence des élèves (mesure sur deux semaines consécutives).

Ecoles Eléments	St Pol/Mer		Arras		Liettres	
	S1	S2	S1	S2	S1	S2
Al	1,16	0,42	2,80	1,30	0,48	0,89
As	0,65	0,58	nd	nd	0,25	1,13
Ba	1,14	0,78	0,73	nd	0,33	0,60
Ca	1,32	1,43	3,58	1,21	0,60	0,56
Cd	1,55	0,87	0,57	1,00	0,18	1,09
Co	0,91	0,96	1,16	0,88	0,60	0,66
Cu	1,60	0,64	0,68	0,98	1,02	0,94
Fe	0,56	0,52	4,20	1,87	0,46	1,42
K	1,07	0,58	0,53	0,77	0,68	1,00
Mg	0,95	0,50	0,11	0,62	0,32	0,65
Mn	0,79	0,36	1,52	1,01	0,45	1,47
Mo	1,83	1,49	nd	nd	2,14	1,15
Na	1,28	0,70	0,59	0,78	0,44	nd
Ni	1,00	1,00	1,00	1,00	1,00	1,00
Pb	0,80	0,68	0,59	0,90	0,39	1,18
Sb	0,76	0,58	0,47	0,81	0,48	1,14
Se	0,26	0,43	0,51	0,77	0,67	1,15
Sr	1,32	0,84	1,38	1,01	0,64	0,69
Ti	1,64	nd	1,34	0,68	0,66	1,02
V	0,77	0,89	0,72	0,82	0,35	1,37
Zn	0,92	0,63	0,71	0,77	0,60	1,25

S1, S2 sont respectivement les facteurs d'enrichissements de la semaine 1 et 2.

nd : valeur proche de la limite de détection

Annexe 25 : Facteurs d'enrichissement (par rapport au Pb) des PM1 obtenus en période d'activités scolaires.

Ecoles Eléments	St Pol/Mer		Arras		Liettres	
	S1	S2	S1	S2	S1	S2
Al	4,19	1,35	7,56	2,01	1,24	0,75
As	0,72	1,42	3,39	2,02	0,64	0,96
Ba	3,75	2,63	1,10	nd	0,85	0,51
Ca	4,70	1,63	4,08	1,77	1,55	0,47
Cd	0,86	0,85	0,81	1,12	0,45	0,92
Co	1,83	1,26	1,86	1,92	1,53	0,56
Cu	1,03	1,64	1,18	1,08	1,62	0,80
Fe	1,45	0,84	1,91	1,17	1,17	1,20
K	1,89	1,38	1,71	1,99	1,73	0,84
Mg	1,32	0,96	3,02	0,88	0,83	0,55
Mn	0,82	0,71	1,21	0,96	1,16	1,24
Mo	0,73	1,51	1,71	3,52	5,49	0,97
Na	1,73	1,55	1,22	1,78	1,13	nd
Ni	0,84	1,13	0,77	0,41	0,57	0,85
Pb	1,00	1,00	1,00	1,00	1,00	1,00
Sb	1,31	1,12	0,96	1,08	1,24	0,97
Se	0,94	0,70	0,88	1,23	1,71	0,98
Sr	5,69	2,06	3,63	2,08	1,65	0,59
Ti	3,60	nd	3,40	1,74	1,70	0,87
V	0,60	0,94	0,66	1,05	0,91	1,16
Zn	1,83	1,77	0,59	2,07	1,55	1,06

S1, S2 sont respectivement les facteurs d'enrichissements de la semaine 1 et 2.
nd : valeur proche de la limite de détection

Annexe 26 : Statistique des résultats calculés par le modèle et ceux mesurés à l'école de Saint Pol sur Mer.

PM0,5-2

	En présence et absence confondue		En présence	
	Mesure	Modèle	Mesure	Modèle
Minimum ($\mu\text{g}/\text{m}^3$)	1,0	1,9	3	3,2
Maximum ($\mu\text{g}/\text{m}^3$)	20,0	17,1	19	17,1
Moyenne ($\mu\text{g}/\text{m}^3$)	6,2	7,6	9,3	11,2
P95 ($\mu\text{g}/\text{m}^3$)	15,0	15,0	15,2	15,2
P5 ($\mu\text{g}/\text{m}^3$)	1,0	1,9	5	5,7
Ecart type ($\mu\text{g}/\text{m}^3$)	4,2	4,9	2,7	2,7

PM2-10

	En présence et absence confondue		En présence	
	Mesure	Modèle	Mesure	Modèle
Minimum ($\mu\text{g}/\text{m}^3$)	1,0	1,8	11,0	17,7
Maximum ($\mu\text{g}/\text{m}^3$)	200,0	177,2	200,0	160,0
Moyenne ($\mu\text{g}/\text{m}^3$)	51,8	59,6	97,5	107,0
P95 ($\mu\text{g}/\text{m}^3$)	150,0	150,0	150,0	150,0
P5 ($\mu\text{g}/\text{m}^3$)	1,0	1,8	26,0	27,3
Ecart type ($\mu\text{g}/\text{m}^3$)	56,4	57,4	47,9	34,0

RESUME

Dans cette thèse, nous avons caractérisé chimiquement (métaux, EC, OC) les particules atmosphériques (PM_{10} , $PM_{2,5}$, PM_1), étudié leurs sources et leur devenir puis modélisé leur comportement dynamique dans l'air intérieur de classes d'écoles du Nord Pas de Calais. Les teneurs en PM_{10} dépassent largement et presque systématiquement (moyenne de huit écoles : $97 \pm 28 \mu\text{g}/\text{m}^3$) la valeur de gestion journalière ($50 \mu\text{g}/\text{m}^3$) pour l'air intérieur (recommandations OMS et ANSES). Les seuls éléments métalliques (Al, Ba, Ca, Fe) nettement associés à une source intérieure sont liés à l'utilisation de craie. Bien que l'on retrouve une quantité importante de particules d'origine extérieure dans les classes (trafic automobile, sources industrielles ou naturelles, ...), les activités physiques des élèves sont à l'origine de la majeure partie des teneurs en PM_{10} en suspension dans l'air intérieur. Ce phénomène de remise en suspension n'influence pas significativement la répartition des métaux, majeurs et traces dans les PM_{10} .

La modélisation de l'évolution des teneurs en PM_{10} intérieures est clairement influencée par la présence d'activité dans les classes, nécessitant de prendre en compte les phénomènes de remises en suspension. De même, le comportement des particules est lié à la distribution granulométrique ainsi qu'aux caractéristiques intrinsèques du bâtiment qui contrôlent les échanges d'air avec l'extérieur. Le modèle déterministe développé dans ce travail permet une prédiction simple de l'évolution des concentrations en particules en fonction de leur distribution granulométrique dans les classes d'écoles.

Mots Clés : Air intérieur, particules, composition, métaux, sources, remise en suspension, modélisation.

ABSTRACT

During this thesis, we chemically characterized (metals, EC, OC) then studied the sources and the fate of airborne particles (PM_{10} , $PM_{2,5}$, PM_1) inr. Another part of this work concerns the modelization of their behavior in classrooms of primary schools in the Nord Pas de Calais region. These PM_{10} values largely and almost systematically exceed (average value for eight schools: $97 \pm 28 \mu\text{g}/\text{m}^3$) the daily limit values ($50 \mu\text{g}/\text{m}^3$) for indoor air (WHO and ANSES recommendations). The only elements Al, Ba, Ca and Fe clearly associated to an indoor source are linked to the use of chalk. Although there is a significant amount of particles of outdoor origins found in classrooms (such as traffic, industrial or natural sources), pupils' physical activities represent the major source of airborne PM_{10} in indoor air. The resuspension phenomenon does not influence significantly the elemental (major and traces elements) distribution of the indoor PM_{10} .

The modelization of the evolution of indoor PM_{10} is clearly influenced by the activities of the pupils in classrooms, requiring taking into account the resuspension phenomena. In addition, the behavior of particles is associated to their size distribution as well as the intrinsic characteristics of the building envelope which control the indoor-outdoor air exchange.

The deterministic model developed in this work will allow easily simulating the evolution of particle concentrations according to their size distribution in class-rooms.

Key Words: Indoor air, particles, composition, metals, sources, resuspension, modelisation.