

CAMPAGNE DE MESURE DU DIOXYDE D'AZOTE PAR TUBES PASSIFS

RÉGION DE BRUXELLES-CAPITALE

FÉVRIER 2022

TABLE DES MATIÈRES

Résumé	5
1 Introduction	9
2 Données brutes des échantillonneurs	11
2.1 Filtrage sur le temps d'exposition	11
2.2 Filtrage sur les paires de concentrations	11
2.3 Discussion	12
3 Sites aux stations télémétriques	15
3.1 Choix des stations et périodes d'exposition	15
3.2 Comparaisons échantillonneurs - analyseurs	15
3.3 Correction globale	17
3.4 Corrections spécifiques par site	18
3.5 Validité de la correction globale par les moyennes annuelles	19
4 Ensemble des sites de mesures	23
4.1 Correction globale	23
4.2 Périodes d'exposition	23
4.3 Moyennes annuelles	23
5 Conclusions	29
A Estimation du seuil sur les écarts relatifs	31
B Choix de la régression linéaire	33
C Propagation des erreurs et calcul d'incertitudes	35
D Normalisation des périodes d'exposition	39
E Boîtes à moustaches	43
Bibliographie	45



RÉSUMÉ

La campagne de mesure par tubes passifs du dioxyde d'azote (NO₂) en Région de Bruxelles-Capitale (RBC) dont ce rapport fait l'objet a été le fruit d'une collaboration entre l'association «Les Chercheurs d'air» et Bruxelles Environnement. Dans ce projet, Bruxelles Environnement a joué le rôle de conseiller scientifique pour le choix des sites, pour le protocole d'installation des tubes passifs ainsi que pour l'analyse et l'interprétation des résultats de mesure. Bénéficiant d'un financement de la Fondation Bloomberg, l'asbl «Les Chercheurs d'air» a initié et coordonné la campagne de mesure. Elle s'est en effet chargée de la logistique en ce qui concerne la mise en place et le suivi de la campagne de mesure, notamment du recrutement des citoyens/écoles en étant le point de contact pour les participants.

De manière générale, la mesure par tubes passifs est une méthode de mesure permettant d'obtenir des valeurs de concentrations de polluants (ici, le NO₂) typiquement mensuelles en un grand nombre de sites. Les tubes sont exposés au NO₂ pendant une période d'environ un mois, puis sont renvoyés en laboratoire pour analyse chimique. De nouveaux tubes sont alors installés à la place des anciens.

Des mesures des concentrations de dioxyde d'azote, émis à 61% par le trafic routier en Région bruxelloise en 2019 [Bruxelles Environnement, 2021b], ont été réalisées pendant 12 mois (d'octobre 2020 à octobre 2021), dans 134 sites (Figure 1), dont certains particulièrement pollués. Les tubes passifs ont été installés à front de rue chez 54 citoyens, aux abords d'une université, d'une crèche, de deux maisons de retraite, d'un centre culturel, d'une piscine communale et d'une maison de l'emploi, situés à proximité d'un axe routier principal, ainsi qu'au milieu de la cour de récréation de 67 écoles et d'une autre crèche. Cinq stations du réseau téléométrique de Bruxelles Environnement ont servi de sites de référence. La durée de cette campagne permet de comparer les mesures obtenues aux seuils de référence, à savoir les seuils européens d'une part et les recommandations de l'Organisation Mondiale de la Santé (OMS), d'autre part. Elle permet aussi de tenir compte de l'impact des conditions météorologiques sur les concentrations.

Les résultats sont très intéressants : 132 sites sur 134 (soit 98.5%) respectent bien la valeur limite annuelle européenne de 40 microgrammes par m³ (µg/m³) (Table 1). Seuls deux sites de mesure se situant sur la petite ceinture enregistrent des concentrations dépassant cette valeur limite et s'élevant à 45 et 52 µg/m³ (Figure 2). Des discussions sont cependant en cours pour revoir les normes européennes à la baisse.

Les précédentes valeurs recommandées par l'OMS de 2005 [WHO, 2005] étaient, pour la plupart, également déjà respectées en RBC ou au moins en bonne voie de l'être; ce qui témoigne de l'efficacité des mesures mises en place pour réduire les émissions ainsi que des progrès technologiques. Cependant, le défi s'avère beaucoup plus grand en ce qui concerne les valeurs recommandées par l'OMS en 2021 [WHO, 2021]. La majorité d'entre elles ont été fortement revues à la baisse par rapport aux valeurs de 2005 [WHO, 2005]. Soulignons le fait que les valeurs recommandées par l'OMS sont établies en ne prenant en compte exclusivement que l'impact santé de la pollution de l'air et pas la faisabilité socio-économique du respect des seuils - contrairement aux normes européennes définies dans la directive 2008/50/CE [UE, 2008]. La majorité de ces valeurs de 2021 ne sont respectées en Belgique que dans les sites les moins exposés aux sources de pollution (pour les polluants primaires), tels que les sites de fond rural (comme par exemple la station de Vielsalm). Si l'on compare les résultats de la campagne à la nouvelle valeur annuelle recommandée par l'OMS en 2021, soit 10 µg/m³, tous les points de mesures dépassent celle-ci (Table 1).

Il faut enfin noter que les résultats de cette campagne ont été obtenus dans des conditions particulièrement favorables pour la qualité de l'air, puisque les mesures sanitaires mises en place dans le cadre de la pandémie de COVID-19 ont fortement réduit l'activité et en particulier l'intensité du trafic routier.

La pollution de l'air est un véritable problème de santé publique. Selon le dernier rapport de l'Agence européenne de l'Environnement [European Commission, 2018], celle-ci serait à l'origine d'environ 9.000 décès prématurés par an en Belgique. En 2018, le dioxyde d'azote seul aurait été responsable de 1.200 morts prématurés dans notre pays. La pollution cause également des maladies cardio-vasculaires et respiratoires et représente un coût important pour la société.

Consciente de l'enjeu de santé publique lié à la pollution de l'air, la Région de Bruxelles-Capitale met notam-



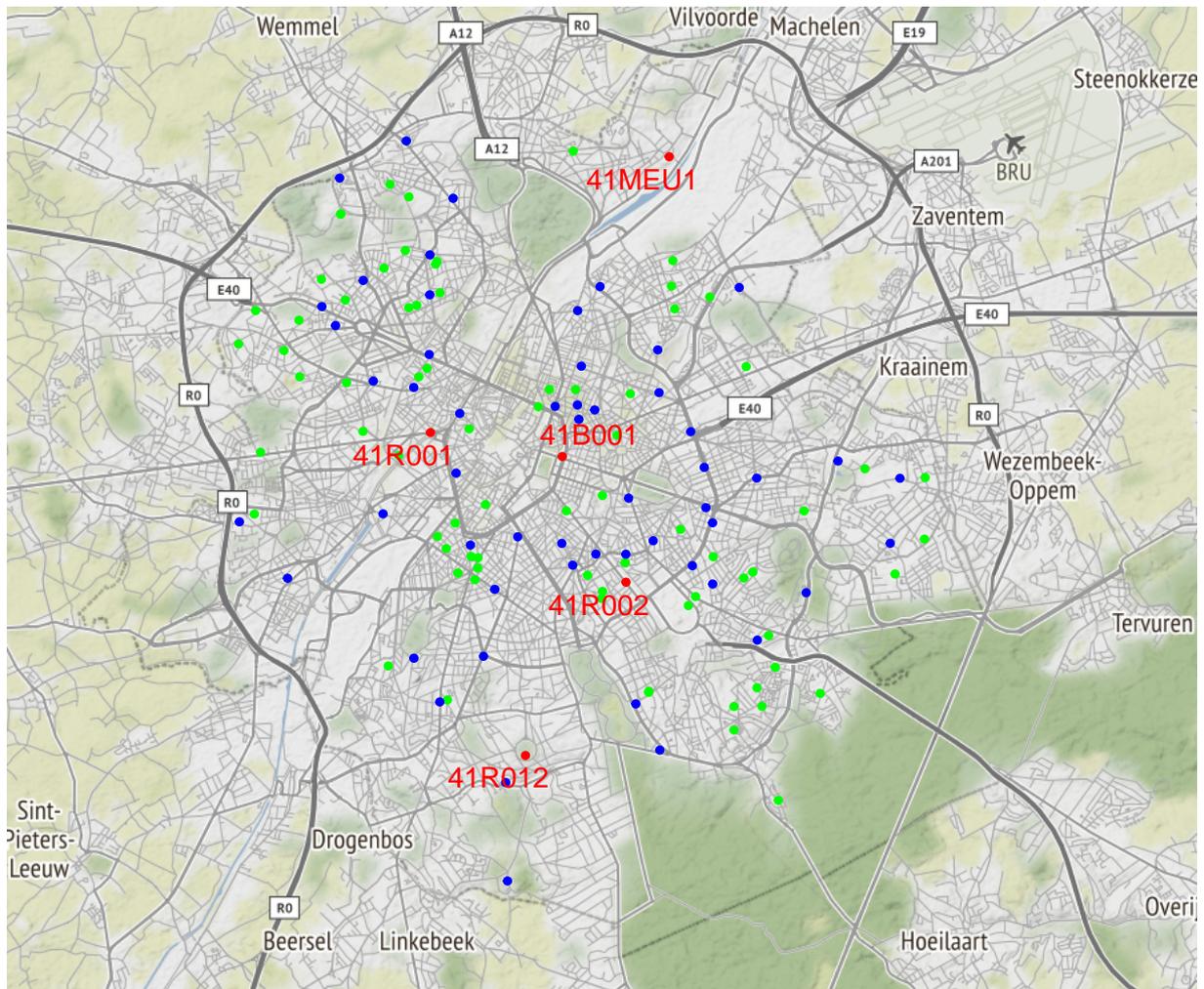


Figure 1 – Distribution géographique des sites d'échantillonnage de la campagne de mesures. Les établissements scolaires sont indiqués par les points verts, les particuliers par les points bleus et les stations télémétriques de Bruxelles Environnement (servant de référence) par les points rouges. Le service de géocodage Google Cloud a été utilisé pour faire le lien entre les adresses postales des sites et leurs coordonnées géographiques.

Table 1 – Nombre de sites de mesures par intervalle de concentration moyenne annuelle pour les établissements scolaires et les particuliers.

Concentration [$\mu\text{g}/\text{m}^3$]	Nombre de sites	
	Ecoles	Particuliers
]10 - 20]	44	9
]20 - 30]	27	32
]30 - 40]	3	17
]40 - 50]	-	1
]50 - 60]	1	-

ment l'accent sur des mesures dans le secteur du transport, que ce soit par le biais de la Zone de Basses Emissions [Bruxelles Environnement, 2018] déjà en place ou de la sortie du diesel et de l'essence, prévues respectivement en 2030 et 2035 [Bruxelles Environnement, 2021c]. Pour respecter la très ambitieuse valeur recommandée par l'OMS, il faudra cependant aller au-delà des mesures prises à l'échelle de la Région bruxelloise : il est en effet indispensable de mettre en œuvre des mesures drastiques au niveau européen, voire au niveau mondial.



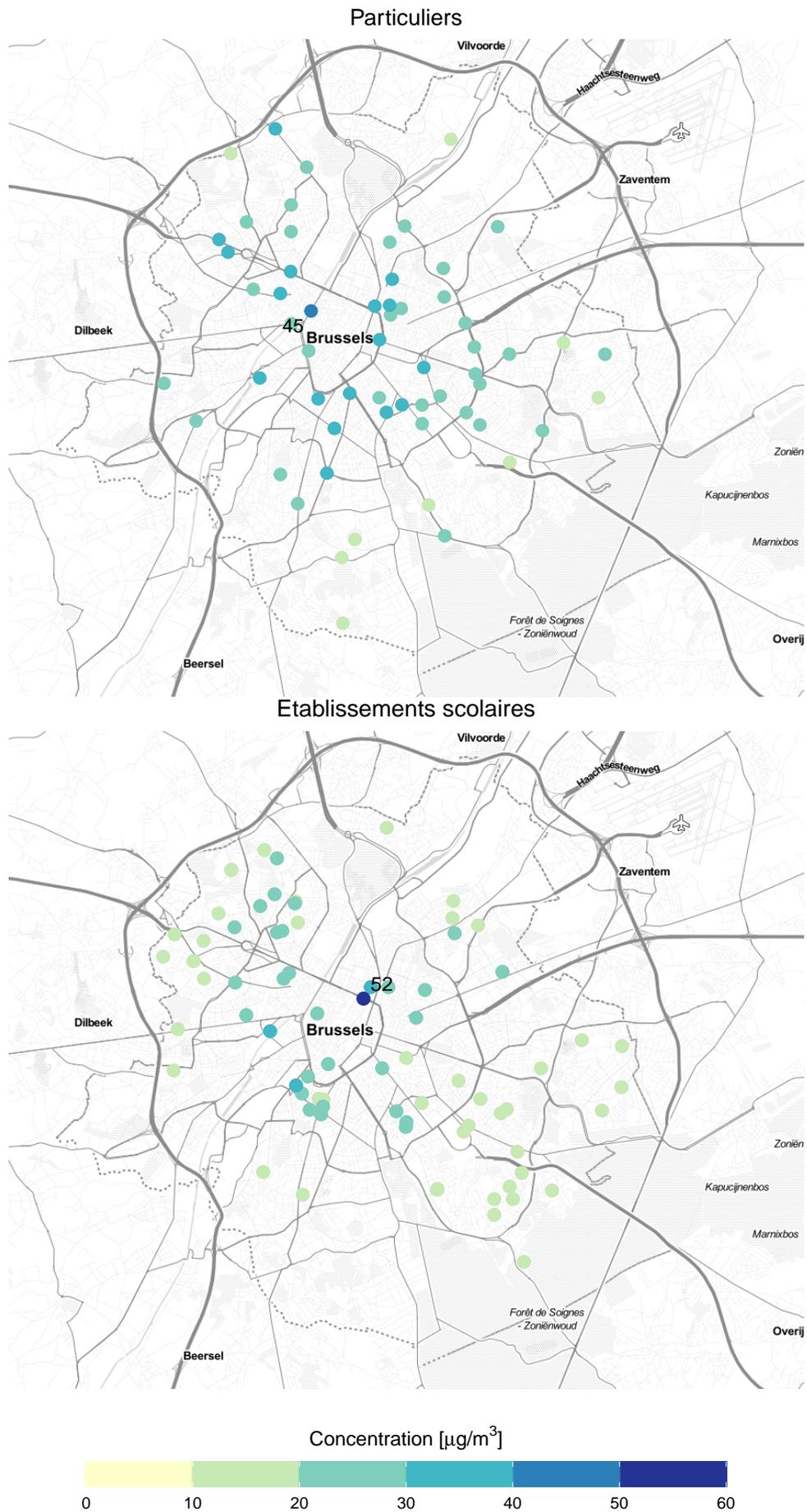


Figure 2 – Distribution géographique des concentrations moyennes annuelles (arrondies à l'unité) estimées à partir de la campagne de mesures pour les particuliers (comportant les 5 sites du réseau téléométrique bruxellois) et les établissements scolaires. Les concentrations ($\mu\text{g}/\text{m}^3$) qui dépassent la norme européenne sont indiquées.



CHAPITRE 1 : INTRODUCTION

Le projet de l'asbl « Les Chercheurs d'Air », très prometteur en termes d'informations sur la qualité de l'air, en particulier le long des axes routiers, est soutenu par Bruxelles Environnement depuis février 2020.

Le polluant étudié est le dioxyde d'azote (NO_2), un gaz émis majoritairement par le trafic routier en Région de Bruxelles-Capitale (RBC). La mesure est effectuée par le biais de tubes passifs, une méthode de mesure simple mais fiable permettant de déployer un grand nombre de points de mesure simultanément. La spécificité unique de ce projet est que la campagne de mesure est réalisée sur une durée de un an. Afin de compenser les erreurs inhérentes à ce type de méthode de mesure, une comparaison de ces tubes est réalisée à cinq stations de référence du réseau de mesure qualité de l'air. Des facteurs de correction sont ainsi déterminés pour corriger les concentrations mesurées par les tubes passifs et ainsi améliorer la précision des mesures.

Une analyse statistique basée sur les observations via les tubes passifs sur une année permet d'évaluer l'exposition réelle de la population à la pollution au dioxyde d'azote, ce qui ne peut se faire de manière précise avec une campagne de mesure plus courte. En effet, afin de déterminer si les concentrations mesurées sont problématiques par rapport à l'exposition à long terme de la population, il faut comparer celles-ci d'une part à la valeur limite annuelle européenne de $40 \mu\text{g}/\text{m}^3$ (directive 2008/50/CE [UE, 2008]) et, d'autre part, à la nouvelle valeur annuelle recommandée par l'OMS de $10 \mu\text{g}/\text{m}^3$ [WHO, 2021]. Les mesures doivent donc être effectuées sur une période d'un an afin de pouvoir être comparées à ces valeurs de référence. Cette durée d'un an permet également d'obtenir une représentativité statistique suffisante des données au vu du rôle primordial que jouent les conditions météorologiques dans l'évolution des concentrations de polluants dans l'air.

L'objectif de ce projet est, entre autres, d'évaluer les concentrations moyennes annuelles de dioxyde d'azote en 134 points de mesure (incluant cinq stations du réseau télémétrique de Bruxelles Environnement) à l'aide de tubes passifs déployés en RBC entre le 30 octobre 2020 et le 30 octobre 2021. L'exposition des 54 citoyens, d'une université, de 67 écoles, de deux crèches, de deux maisons de retraite, d'un centre culturel, d'une piscine communale et d'une maison de l'emploi participant à cette campagne de mesure pourra alors être déterminée au regard des normes européennes et des valeurs recommandées par l'OMS en matière de qualité de l'air. Il est à noter que les tubes passifs des citoyens ont été installés à front de rue (proches d'un axe routier) alors que les tubes passifs des écoles ont été installés dans la cour de récréation.

La Figure 1.1 illustre la distribution géographique des différents types de sites. Les établissements scolaires sont indiqués par les points verts, les particuliers par les points bleus et les stations du réseau télémétrique de Bruxelles Environnement, servant de sites de référence, par les points rouges.

Les tubes passifs ont été installés à front de rue chez 54 citoyens, aux abords d'une université, d'une crèche, de deux maisons de retraite, d'un centre culturel, d'une piscine communale et d'une maison de l'emploi, situés à proximité d'un axe routier principal, ainsi qu'au milieu de la cour de récréation de 67 écoles et d'une autre crèche.

Le présent rapport expose, dans un premier temps, la méthode utilisée pour sélectionner les données statistiquement acceptables pour l'analyse (chapitre 2). Une fois ces données filtrées, l'écart des mesures des tubes passifs avec les mesures de références est évalué afin de déterminer la correction à appliquer aux valeurs des tubes (chapitre 3). L'analyse des résultats est ensuite effectuée (chapitre 4) et les conclusions sont présentées (chapitre 5).



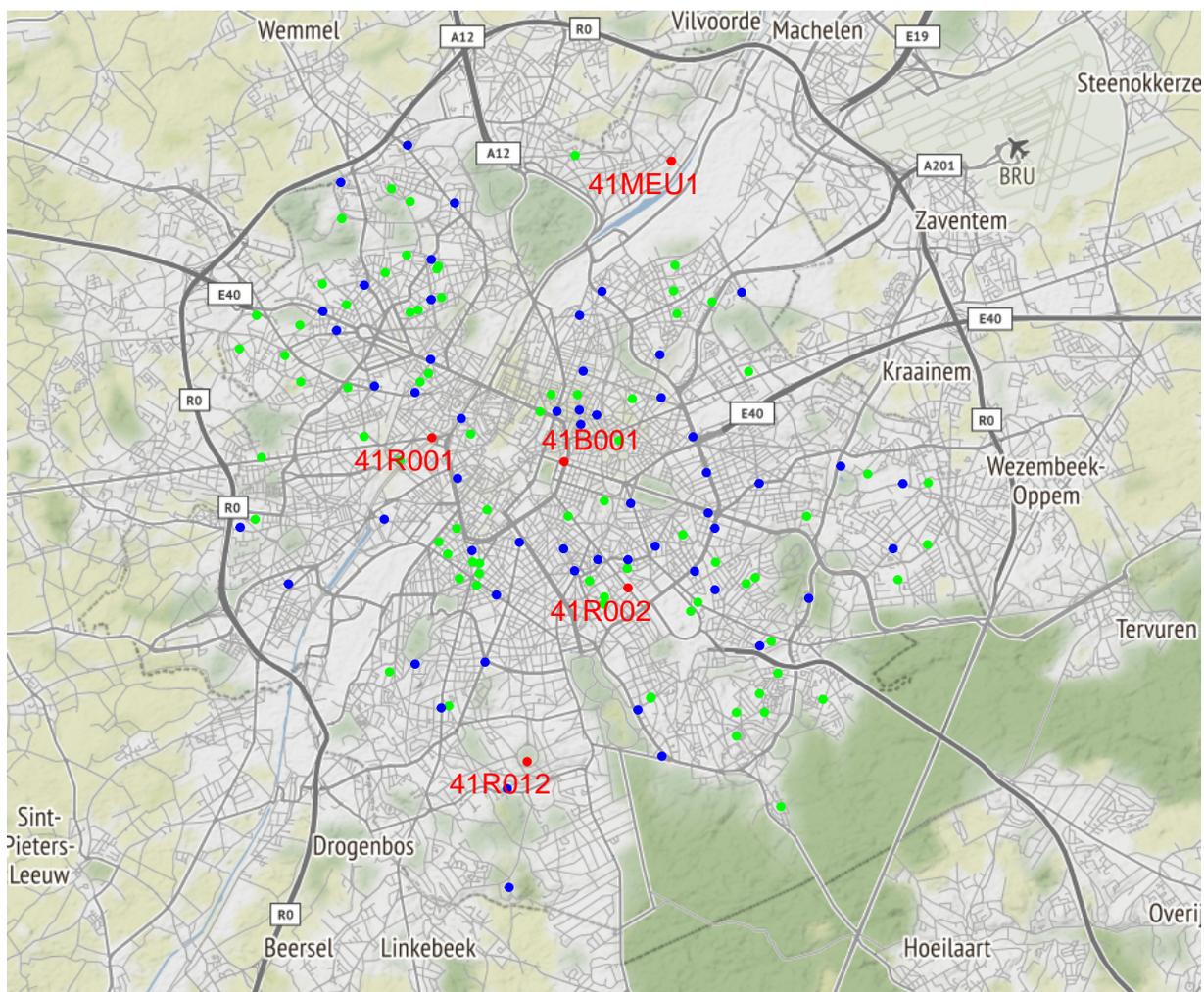


Figure 1.1 – Distribution géographique des sites d'échantillonnage de la campagne de mesures. Les établissements scolaires sont indiqués par les points verts, les particuliers par les points bleus et les stations télémétriques de Bruxelles Environnement (servant de référence) par les points rouges. Le service de géocodage Google Cloud a été utilisé pour faire le lien entre les adresses postales des sites et leurs coordonnées géographiques.

CHAPITRE 2 : DONNÉES BRUTES DES ÉCHANTILLONNEURS

Le laboratoire Passam fournit les estimations des concentrations moyennes de NO₂ sur chaque période d'exposition de leurs tubes passifs¹ en faisant l'hypothèse d'un débit d'échantillonnage de 0.734 ml/min (pour les tubes munis d'un filtre protecteur) sous une atmosphère contrôlée à 9°C [Passam AG, 2020]. Ces concentrations sont ensuite normalisées à une température de 20°C et une pression de 1013 hPa. Ces conditions, telles que prescrites par la directive européenne 2008/50/EC [UE, 2008, European Commission [2018]] permettent une comparaison directe avec d'autres systèmes de mesures, notamment les analyseurs automatiques placés en station. Ces derniers, contrairement aux tubes passifs, utilisent des méthodes de référence qui permettent d'avoir des mesures des concentrations suffisamment précises pour évaluer le respect ou non des normes imposées par la directive. Les résultats des tubes passifs, quant à eux, nécessitent d'être ajustés sur base d'une méthode de référence.

2.1 FILTRAGE SUR LE TEMPS D'EXPOSITION

Une paire de tubes passifs est exposée à chaque site de mesure pour une certaine durée (désignée également par *période d'exposition*) et celle-ci est ensuite remplacée par une nouvelle paire. Le choix d'exposer 2 tubes passifs par site permet, dans une certaine mesure, de détecter des anomalies sur les concentrations estimées de NO₂ mais aussi, en considérant leur moyenne, de diminuer les incertitudes. En effet, le fonctionnement de ces tubes repose sur le principe de capture et d'accumulation du polluant dans un composé cristallin suivi d'une analyse chimique en laboratoire après collecte et acheminement. Un dysfonctionnement ou une contamination quelconque lors de cette chaîne de processus est donc possible. Par conséquent, le fait de disposer de deux estimations indépendantes de concentrations pour chaque site et période d'exposition permet d'invalider les paires pour lesquelles ces estimations divergent de façon trop importante. Dans la suite, les « données brutes » se référeront donc aux estimations obtenues par les paires de tubes (dupliquats) ou à l'un des tubes lorsque l'échantillonnage ou l'analyse de l'un des tubes a fait défaut. Le laboratoire Passam recommande l'utilisation de ses tubes passifs pour une période d'exposition comprise entre 1 et 4 semaines afin d'obtenir une estimation optimale de la concentration moyenne de NO₂ [Passam AG, 2020]. En effet :

- un temps inférieur à une semaine pourrait impliquer une incertitude trop élevée sur les concentrations estimées en raison de leurs faibles valeurs et de la limite de détection de la méthode d'estimation,
- un temps supérieur à quatre semaines pourrait résulter en une estimation tronquée de la concentration moyenne à estimer due à la saturation chimique du tube.

La Figure 2.1 donne la distribution des périodes d'exposition par paires d'échantillonneurs. Les deux lignes verticales rouges indiquent les limites de la durée d'exposition recommandées par Passam (1 et 4 semaines) ce qui correspond à 48.8% de l'ensemble des paires d'échantillonneurs. Le respect de celles-ci résulterait donc à ne pas considérer un nombre important de paires et tout particulièrement certaines aux stations automatiques (proches de la limite supérieure) qui seront cruciales pour proposer une correction robuste sur les mesures effectuées par les tubes passifs.

Néanmoins, comme stipulé dans Hafkenscheid et al. [2009], une durée d'exposition jusqu'à 6 semaines n'augmente pas significativement l'incertitude sur les mesures. En conséquence, nous considérerons par la suite les données brutes qui auront été préalablement filtrées avec une limite inférieure recommandée par Passam et une limite supérieure étendue à 6 semaines désignée par la ligne verticale verte sur la figure. Cet intervalle représente 99.4% de l'ensemble des paires d'échantillonneurs.

2.2 FILTRAGE SUR LES PAIRES DE CONCENTRATIONS

Une paire d'échantillonneurs a été placée sur chaque site de mesure afin de tester la répétabilité des mesures. Cependant, l'intégralité des sites ne disposent pas de paires de tubes qui ont fourni des estimations valides pour toutes les périodes d'échantillonnage de cette campagne. La fraction de paires de tubes n'ayant qu'une

¹dénommés indifféremment « échantillonneurs » dans la suite



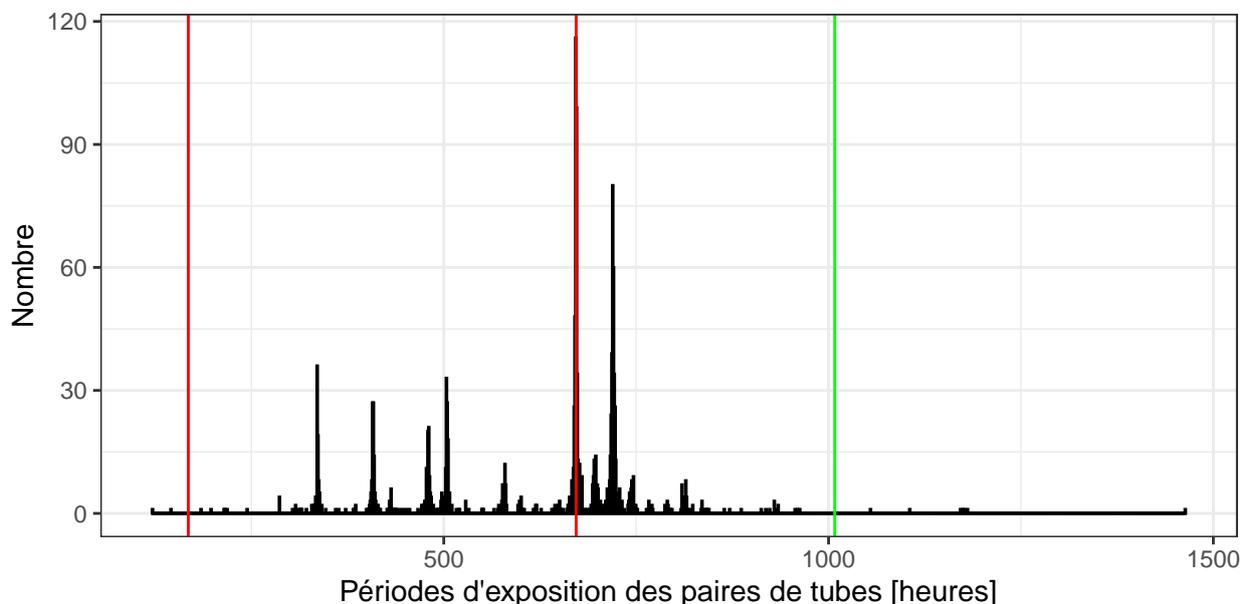


Figure 2.1 – Histogramme des périodes d'exposition des paires de tubes sur toute la campagne de mesures. Les lignes verticales rouges délimitent les périodes d'exposition recommandées par le fabricant des tubes, la ligne verticale verte la limite supérieure considérée dans cette étude, d'après la littérature.

seule concentration valide représente 6.3% sur l'ensemble des paires de tubes ayant au moins une concentration valide.

Au cours de la campagne de mesures, la moyenne des écarts relatifs (ER)², communément désignée par *précision*, des paires d'échantillonneurs est de 2.4% [0.1% - 44.8%]. Celle-ci est donc satisfaisante car inférieure à 5%. Ces ER étant calculés pour un site et une période d'exposition donnés par la relation

$$ER [\%] = \frac{|C - M|}{M} \times 100 \quad (2.1)$$

où C désigne la concentration d'un tube et M la concentration moyenne de la paire de tubes associée [$\mu\text{g}/\text{m}^3$].

Néanmoins, nous devons également analyser la distribution des écarts de valeurs pour chaque paire de tubes. En effet, une différence de concentration trop importante indiquera une anomalie lors de l'exposition et/ou l'analyse de cette paire. Cette distribution est donnée à la Figure 2.2. Nous observons que la majorité des paires ont des concentrations qui diffèrent de moins de 10%. Néanmoins, il existe quelques paires pour lesquelles cet écart peut être de l'ordre de 30%, voire même de 40%. Il est à noter que ces paires de concentrations « aberrantes » ne sont aucunement corrélées par leur position, période d'exposition ou amplitude de valeurs. Suivant l'incertitude sur les concentrations estimées, nous pouvons exclure les paires dont les valeurs sont « incompatibles ». Pour la suite des analyses, nous considérerons un seuil de filtrage à 25% comme argumenté dans l'Annexe A. Ceci représente 99.7% de l'ensemble des paires d'échantillonneurs.

2.3 DISCUSSION

2.3.1 Facteurs procéduraux

Dans ADEME [2002] et Hafkenscheid et al. [2009], il est mentionné que plusieurs laboratoires français ont constaté une surestimation systématique des résultats fournis par les tubes Passam par rapport aux concentrations mesurées par des instruments automatiques. Les investigations qui en ont résulté ont conclu à l'utilisation d'un débit d'échantillonnage erroné par le laboratoire Passam. En effet, les dimensions de certaines versions de leurs tubes (utilisés à l'époque) étaient légèrement différentes de celles utilisées pour les calculs des coefficients de la loi de Fick qui permet d'estimer les concentrations de NO₂. Il était dans ce cas recommandé d'appliquer un coefficient de correction aux données brutes égal au rapport entre le débit erronément utilisé et le débit recalculé pour les dimensions exactes des tubes. Néanmoins, comme cela sera illustré dans la suite par la Figure B.1, nous observerons plutôt l'effet inverse pour cette campagne, à savoir une sous-estimation des concentrations estimées par tubes comparées à celles fournies par les analyseurs automatiques, ce qui tend à nous conforter dans le fait que le laboratoire Passam a corrigé depuis lors son protocole d'analyse.

²également appelés coefficients de variation (CV)



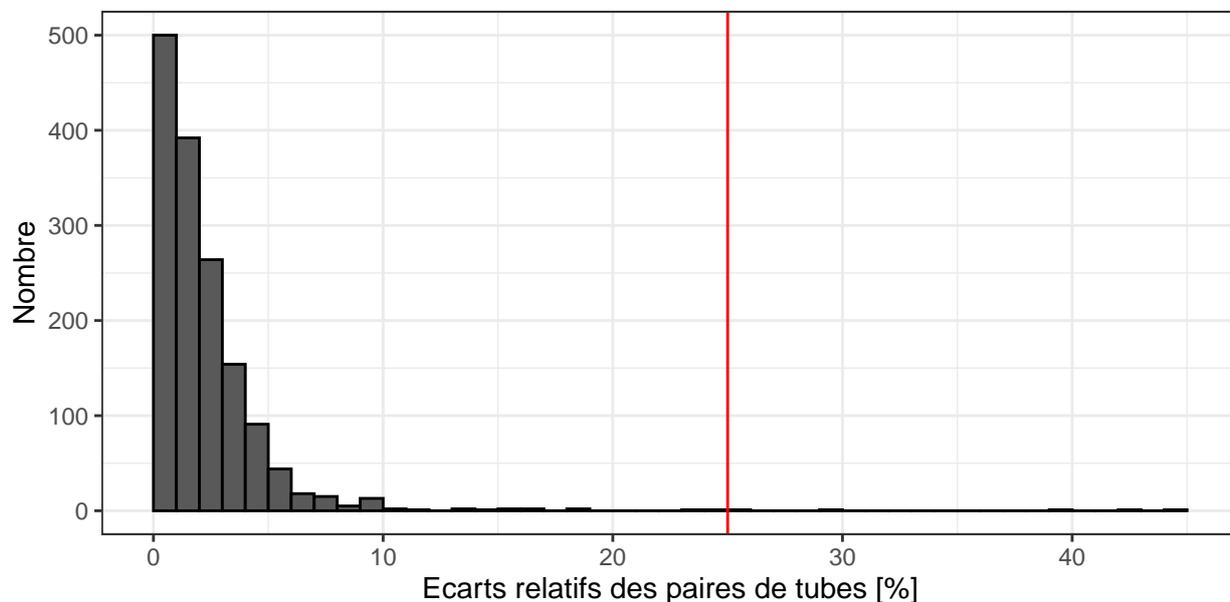


Figure 2.2 – Histogramme des écarts relatifs des paires de tubes. La ligne verticale rouge représente le seuil (25%) au-delà duquel les paires de tubes ne sont plus considérées dans ce qui suit.

2.3.2 Facteurs environnementaux

Hafkenscheid et al. [2009] souligne la faible influence du vent en cas d'utilisation de boîtes de protection spécifiques dans lesquelles sont placés les échantillonneurs, ce qui est le cas pour cette campagne de mesure. D'autre part, les tubes utilisés dans cette campagne sont d'un type plus récent avec filtre protecteur (membrane LANUV). Cette membrane a été spécifiquement développée afin de s'affranchir de toute turbulence à l'entrée des échantillonneurs (Dominik-Sègue and Le Meur [2018]) et donc de rendre les mesures presque totalement indépendantes de la vitesse du vent. Il a également été démontré qu'aucune influence sur les estimations de concentrations ne peut être attribuée à une humidité relative comprise entre 20 et 80% et une température entre 5 et 40°C.

Nous devrions idéalement nous assurer que ces conditions météorologiques ont été satisfaites durant la majorité de cette campagne de mesures. Néanmoins, les variables météorologiques évoquées ne sont échantillonnées sur base semi-horaire que sur un site (station d'Uccle - 41R012) de la Région de Bruxelles-Capitale (RBC). De plus, ce site est caractérisé par un environnement urbain à faible densité de construction et de trafic et se situe également dans un domaine très végétalisé et en hauteur par rapport à ses alentours. Il en résulte une représentabilité réduite de ses mesures de température et d'humidité relative au niveau du sol pour des zones de la RBC à forte densité de bâtis et d'activités (îlot de chaleur au cœur des villes).

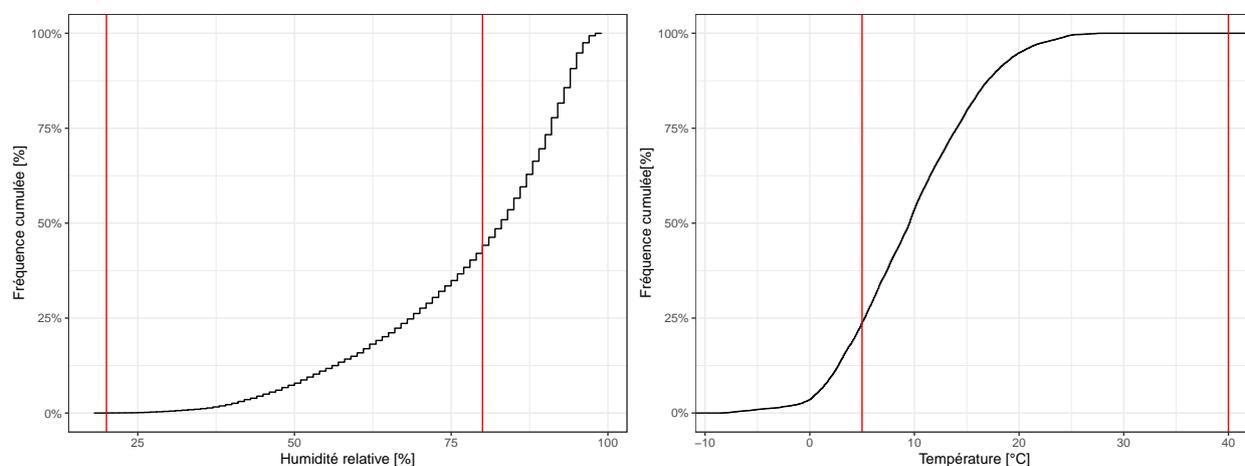


Figure 2.3 – Distribution cumulée de l'humidité relative (gauche) et de la température (droite) sur le site d'Uccle (41R012) durant la campagne de mesures. Les lignes verticales rouges délimitent les intervalles entre 20 et 80% (gauche) et 5 et 40°C (droite).



La Figure 2.3 donne les distributions cumulées³ de l'humidité relative et de la température mesurées durant la campagne d'échantillonnage par tubes passifs sur le site d'Uccle. Nous constatons que durant plus de la moitié du temps, l'humidité relative a été supérieure à 80% (ligne verticale rouge de droite). Il en résulte que cette variable pourrait avoir eu une influence non négligeable sur les mesures des échantillonneurs durant la (moitié de la) campagne. Malheureusement, les corrections disponibles dans la littérature ne sont fournies que pour des tubes démunis de filtre protecteur, c'est qui n'est pas le cas ici.

Concernant la température, nous pouvons observer que celle-ci a été inférieure à 5°C (ligne verticale rouge de gauche) seulement durant un peu moins de 25% de la durée de la campagne. De plus, une infime proportion des valeurs a été inférieure à 0°C. Hafkenscheid et al. [2009] permet de conclure que la température n'aura qu'une influence limitée durant la campagne de mesure et donc qu'aucune correction ne doit être appliquée aux mesures.

³c'est-à-dire pour une valeur donnée de la variable météorologique la proportion en pourcent de l'ensemble des valeurs qui sont inférieures ou égales à celle-ci



CHAPITRE 3 : SITES AUX STATIONS TÉLÉMÉTRIQUES

3.1 CHOIX DES STATIONS ET PÉRIODES D'EXPOSITION

Une paire d'échantillonneurs a été placée près de la prise d'échantillonnage d'air de certaines stations de mesures télémétriques de Bruxelles Environnement équipées d'analyseurs automatiques de NO₂, à savoir 41B001 (Arts-Loi), 41MEU1 (Neder-Oder-Heembeek), 41R001 (Molenbeek-Saint-Jean), 41R002 (Ixelles) et 41R012 (Uccle) comme illustré sur la Figure 1.1. Ces instruments fournissent une mesure indépendante de concentrations qui va servir de référence afin d'évaluer la validité des estimations de concentrations fournies pour les tubes passifs et proposer une correction de ces estimations (« calage des tubes passifs »).

La Table 3.1 liste les périodes d'exposition des échantillonneurs placés sur les sites des stations télémétriques. Nous pouvons remarquer que la 8^{ème} période est significativement plus courte (14 jours) que les autres, sans être toutefois inférieure à la limite basse d'exposition prescrite par Passam (voir Figure 2.1).

Le choix de ces stations comme sites de mesures répondait à la nécessité de représenter les différents types d'environnement rencontrés dans la campagne de mesure en terme d'exposition au trafic routier. Ceux-ci sont explicités dans la Table 3.2. Malheureusement, la diminution de l'activité, et en particulier de l'intensité du trafic routier, liée aux mesures mises en place dans le cadre de la pandémie de COVID-19, ont mis à mal cette démarche. Ceci est illustré à la Figure 3.1 où nous observons, pour les deux types de mesures (tubes passifs et analyseurs automatiques), que ces 5 types d'environnements ne présentent pas clairement de distributions disjointes de leurs concentrations. Tout au plus, sur base des résultats des tubes passifs, nous pourrions agréger ces 5 types en 3 classes caractérisées par les intervalles de concentrations inférieur à 20 µg/m³, compris entre 20 et 30 µg/m³ et supérieur à 30 µg/m³. D'autre part, nous constatons également que les concentrations moyennes des tubes passifs sont majoritairement inférieures à celles données par les analyseurs. Ceci sera confirmé dans ce qui suit.

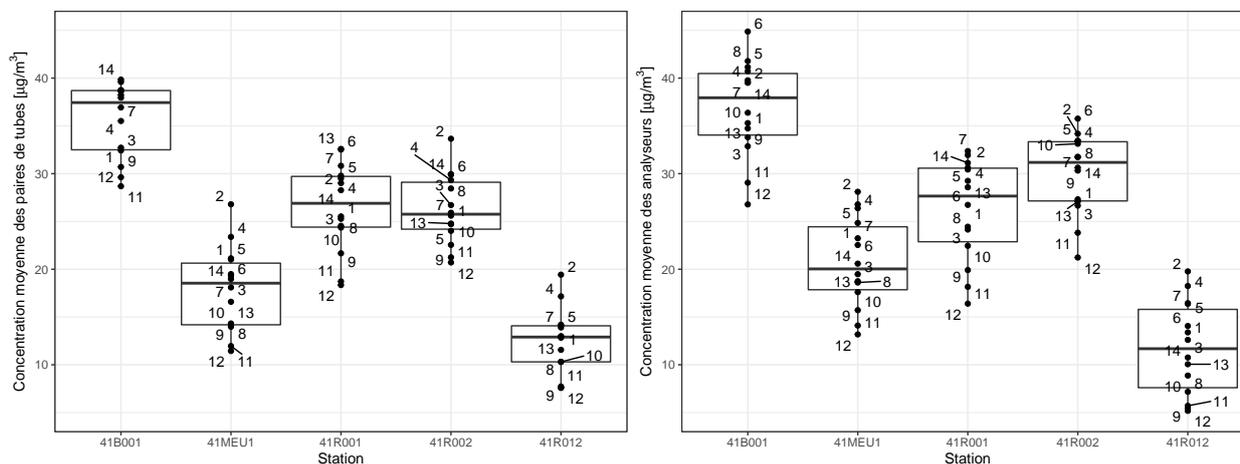


Figure 3.1 – Concentrations moyennes des paires d'échantillonneurs (gauche) et des analyseurs (droite), ainsi que leurs boîtes à moustaches associées, pour chaque station télémétrique en fonction de la période d'exposition. L'explication des « boîtes à moustaches » se trouve en Annexe E.

3.2 COMPARAISONS ÉCHANTILLONNEURS - ANALYSEURS

La Figure 3.2 illustre, pour chaque station où les paires d'échantillonneurs ont été placées, leurs concentrations haute (rouge) et basse (verte) ainsi que la concentration moyenne de référence calculée sur base des mesures horaires effectuées par l'analyseur de la station (noir) en fonction de chaque période d'exposition des tubes (environ un mois sauf pour le mois de mai 2021 qui a été scindé en deux périodes par choix opérationnel). Nous observons durant les 3 premières périodes un bon accord entre la concentration en NO₂ estimée par



Table 3.1 – Périodes d'exposition aux stations télémétriques.

	Période d'exposition		
	Début	Fin	Jours
1	28/10/20	25/11/20	28
2	25/11/20	16/12/20	21
3	16/12/20	06/01/21	21
4	06/01/21	03/02/21	28
5	03/02/21	03/03/21	30
6	03/03/21	31/03/21	28
7	31/03/21	28/04/21	28
8	28/04/21	12/05/21	14
9	12/05/21	02/06/21	21
10	02/06/21	30/06/21	28
11	30/06/21	28/07/21	28
12	28/07/21	25/08/21	28
13	25/08/21	22/09/21	28
14	22/09/21	20/10/21	28

Table 3.2 – Stations par type d'environnement.

Environnement de station	Station
Urbain avec très faible influence du trafic	41R012
Urbain avec faible influence du trafic	41MEU1
Urbain avec influence modérée du trafic	41R001
Urbain avec forte influence du trafic	41R002
Urbain avec très forte influence du trafic	41B001

le biais de tubes passifs et la concentration mesurée par les analyseurs automatiques. Les stations 41R001 et 41R012 étendent cet accord sur les périodes restantes, si ce n'est pour les périodes 9 à 12 où un décrochage a lieu pour 41R012 (voir également la Figure 3.3). Il est ardu de corrélérer ces constatations à l'environnement typique d'exposition des stations (voir Table 3.2), en raison de la diminution de l'intensité du trafic liée aux mesures mises en place dans le cadre la pandémie de COVID-19.

La variation temporelle des rapports entre la concentration moyenne des paires de tubes et la concentration moyenne de référence mesurée à la station en fonction de la période d'exposition est illustrée à la Figure 3.3. Ces rapports sont compris entre environ 0.7 et 1.45. Néanmoins, une analyse par station permet de remarquer que ce rapport :

- a une plus grande variabilité à partir de janvier 2021 pour toutes les stations,
- diminue à partir de janvier 2021 puis augmente à partir de mi-mai 2021 à la station MEU1 (Neder-Over-Heembeek),
- diminue également à partir de janvier 2021 jusqu'à fin juin 2021 à la station 41R002 (Ixelles),
- a une valeur minimum anormalement proche de 0.741 à 41R002 (Ixelles),
- a une valeur maximum anormalement proche de 1.15 en mars 2021 à 41R001 (Molenbeek-Saint-Jean),
- augmente à partir de mai 2021 vers des valeurs anormalement élevées (au-delà de 1.4) qui peuvent être expliquées par des concentrations associées inférieures ou égales à 10 µg/m³ (voir Figure 3.2) à la station 41R012 (Uccle).

La répétabilité (écarts relatifs) de ces paires d'échantillonneurs est de 1.8% [0.1% - 6.1%] et toutes les valeurs individuelles, données à la Figure 3.4, sont inférieures à 5%, excepté les valeurs associées à la station 41R002 pour les mois de février et octobre 2021.

La Figure 3.5 illustre la moyenne des concentrations estimées par paires de tubes par rapport à leur écart relatif en fonction de leur période d'exposition aux sites des stations télémétriques. L'écart relatif des paires de tubes ne semble pas être une variable discriminante entre d'éventuelles classes d'environnement d'exposition. Cependant, les moyennes de concentrations de paires de tubes sont similaires pour une majorité de périodes d'exposition aux stations 41R001 et 41R002. Ceci est également visible dans la Figure 3.6 donnant la moyenne des concentrations estimées par paires de tubes par rapport aux écarts relatifs pour les différentes stations du réseau télémétrique. De plus, pour chaque autre site, les moyennes des concentrations de paires de tubes sont



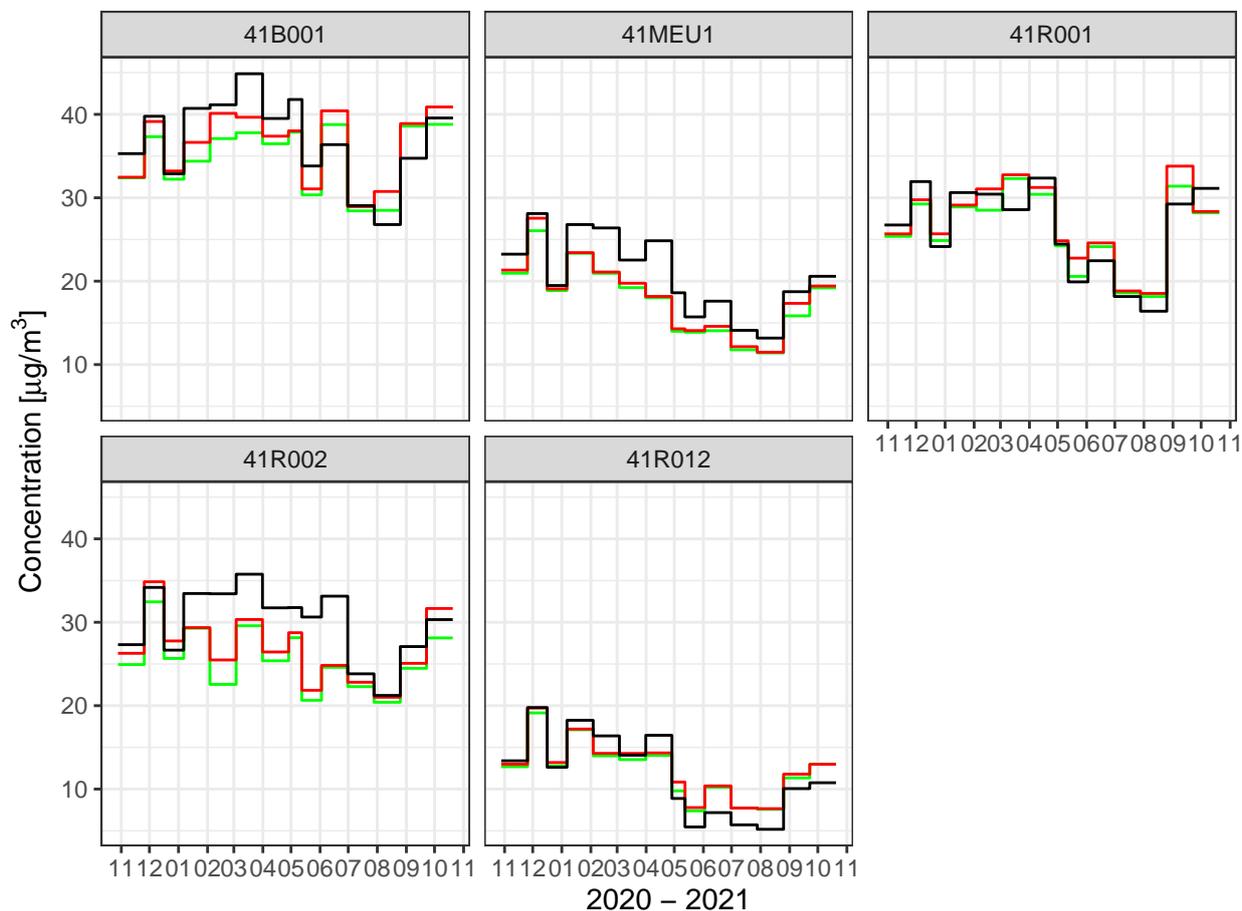


Figure 3.2 – Concentrations des paires d'échantillonneurs (haute en rouge, basse en vert) et moyennes des concentrations horaires des analyseurs automatiques (en noir) en fonction de la période d'exposition pour les différentes stations télémétriques.

majoritairement groupées et distinctes entre site.

Cependant, en raison de la diminution de l'intensité du trafic routier lié aux mesures mises en place dans le cadre de la pandémie de COVID-19, nous ne sommes pas en mesure de proposer une analyse temporelle plus poussée, notamment saisonnière, en tenant compte des vacances scolaires, qui serait pertinente en terme d'agrégation de sites de mesures exposés à des concentrations de NO_2 similaires.

La Figure B.1 illustre la concentration moyenne des analyseurs par rapport aux concentrations estimées par paires de tubes. Nous pouvons observer que les échantillonneurs Passam fournissent des estimations de concentration généralement inférieures aux concentrations mesurées par les analyseurs automatiques. En effet, une majorité de points se situent en-dessous de la droite diagonale rouge représentant l'égalité des concentrations estimées à l'aide des tubes passifs et celles mesurées par des analyseurs. Ceci tend à confirmer qu'une correction due à une révision du débit d'échantillonnage sur les données brutes des tubes, comme mentionnée à la section 2.3 n'est plus nécessaire. Comme nous pouvons nous y attendre, cette figure illustre la claire dépendance entre l'amplitude de variations de concentrations suivant les sites de mesures, que ce soit pour les échantillonneurs ou les analyseurs automatiques.

3.3 CORRECTION GLOBALE

Afin de corriger cette sous-estimation systématique des concentrations des tubes de mesure, cette erreur est évaluée via l'utilisation d'un modèle de régression linéaire entre la concentration moyenne des analyseurs et la concentration moyenne des paires de tubes. Nous avons opté pour cette stratégie, comparée à celle consistant à considérer chaque concentration individuelle de tube pour en déduire le modèle. En effet, comme décrit à la section 2.2, nous nous sommes basés, entre autres, sur l'écart relatif par rapport à la concentration moyenne de chaque paire de tubes pour estimer leur validité. En outre, la concentration moyenne permet également de réduire l'erreur sur le modèle comparée aux concentrations individuelles.

Une discussion sur le choix du type de régression linéaire est donnée à l'Annexe B. Celle-ci nous permet d'obtenir pour cette droite ajustée (sans terme indépendant) une pente de 0.93 avec un intervalle de confiance à

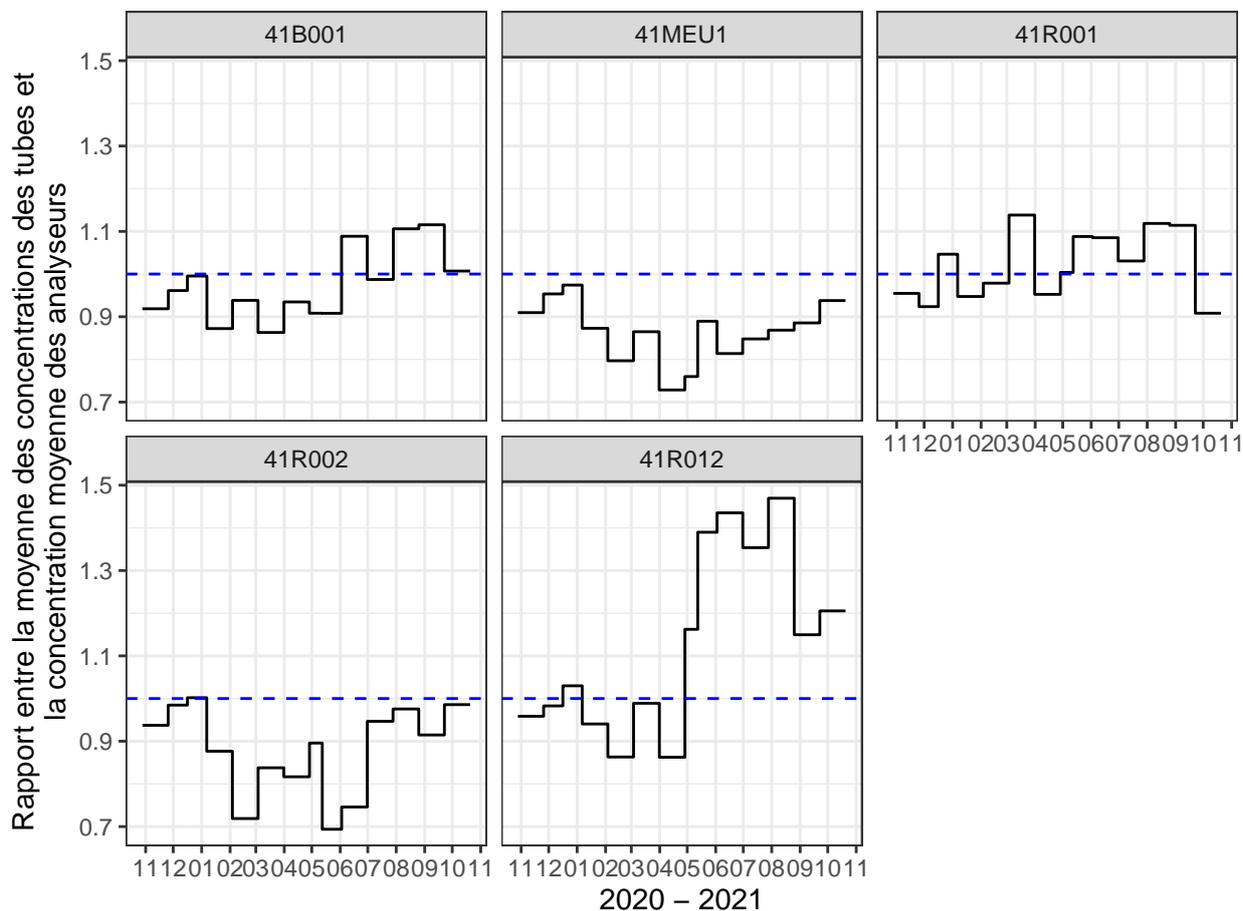


Figure 3.3 – Rapport entre la concentration moyenne des paires de tubes et la moyenne des concentrations horaires des analyseurs en fonction de la période d'exposition pour les différentes stations télémétriques. La ligne bleue en trait discontinu désigne une valeur de 1 pour le rapport.

95% de [0.899 - 0.962] (repéré sur la Figure B.1 en gris). Nous pouvons en conclure que les concentrations estimées par les échantillonneurs présentent en moyenne une erreur systématique relative de -7.5% par rapport aux concentrations mesurées par les analyseurs automatiques.

Sur base de ce modèle, nous proposons donc une correction globale aux estimations de concentrations fournies par les échantillonneurs passifs, à savoir leur appliquer un coefficient multiplicatif de 1.075. Disposant d'un intervalle de confiance à 95% sur ce coefficient, nous pouvons propager l'incertitude de ce facteur de correction avec celle de la concentration moyenne des paires de tubes pour calculer l'incertitude sur les valeurs corrigées (voir Annexe C). Les données corrigées des tubes passifs et celles des analyseurs automatiques sont présentées à la Figure 3.7.

3.4 CORRECTIONS SPÉCIFIQUES PAR SITE

Dans le cadre de cette campagne de mesure, la correction par site n'est pas appropriée car :

- chaque site de station présente au mieux une vingtaine de données sur lesquelles porterait une régression linéaire, ce qui va inévitablement augmenter l'incertitude sur les paramètres inférés, voire même questionner leur significativité,
- l'agrégation des données des sites 41R001 et 41R002, due à leurs concentrations moyennes intriquées, se traduirait par une régression linéaire dont l'incertitude sur les paramètres serait inférieure à celles des autres sites traités séparément,
- il y aurait une discontinuité des corrections entre deux intervalles contigus de concentrations, c'est-à-dire que la correction de deux concentrations voisines mais situées de part et d'autre de la frontière entre leurs intervalles respectifs ne serait pas similaire.

En conséquence, une correction globale des concentrations est appliquée à tous les sites de mesure.



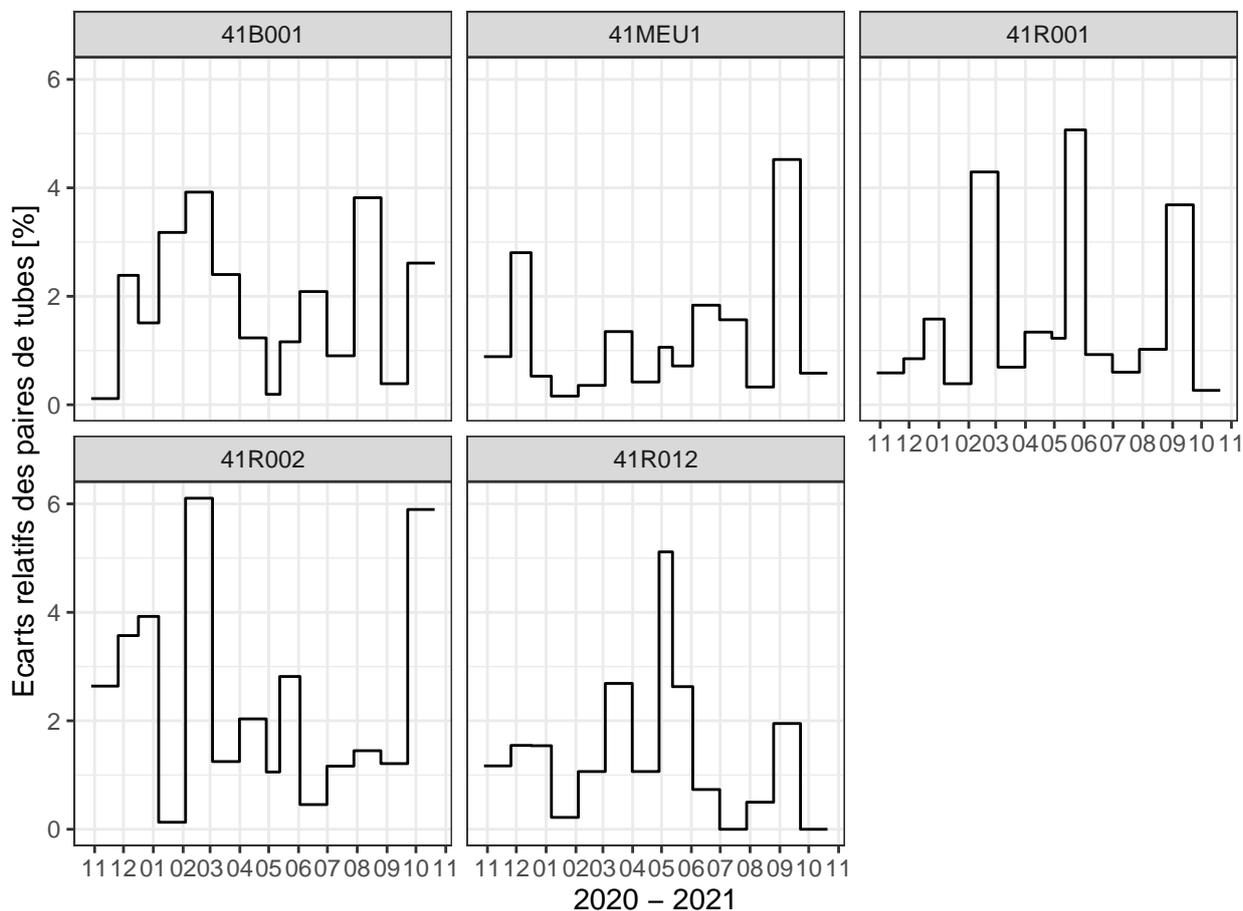


Figure 3.4 – Ecart relatif des paires de tubes en fonction de la période d'exposition pour les différentes stations télémétriques.

3.5 VALIDITÉ DE LA CORRECTION GLOBALE PAR LES MOYENNES ANNUELLES

Pour chaque site s d'échantillonnage (5 stations télémétriques) nous pouvons, sur base des périodes d'exposition cumulées, estimer une moyenne « annuelle »¹ de la concentration de NO_2 . L'estimation de cette moyenne annuelle $\langle \bar{M}_s \rangle$ repose sur le calcul d'une moyenne pondérée des concentrations moyennes corrigées des paires de tubes $\bar{M}_s(t_s)$ dont les coefficients sont proportionnels à la durée de chaque période d'exposition t_s .

Il est évident que plus la durée totale d'échantillonnage est proche de celle d'une année, plus cette estimation sera précise statistiquement². Une discussion détaillée sur le calcul d'incertitude de ces moyennes annuelles est fournie à l'Annexe C.

Nous proposons de vérifier la validité de la correction globale que nous suggérons d'appliquer aux concentrations moyennes des paires de tubes. Pour ce faire, nous allons comparer les moyennes annuelles par rapport aux moyennes des mesures semi-horaires des analyseurs automatiques calculées entre le début de la première et la fin de la dernière période d'exposition des tubes. Etant donné qu'aucun biais systématique significatif entre ces deux variables n'a pu être observé, une régression linéaire passant par l'origine a été considérée. La pente de cette droite ajustée de 1.01 avec un intervalle de confiance à 95% de [0.904 - 1.117] est significative. Ceci se traduit par une surestimation modeste de 1% de la moyenne annuelle estimée par tubes passifs par rapport à celle des analyseurs automatiques. Néanmoins, la largeur de cet intervalle de confiance doit être tempérée par le fait qu'il a été estimé grâce à seulement 5 couples de données.

¹En réalité, il ne s'agit pas *stricto sensu* d'une moyenne annuelle car la durée cumulée des périodes d'exposition n'est pas d'un an exactement.

²L'estimation d'une moyenne (temporelle) sur une année à partir de seulement un mois de données d'échantillonnage sera entachée d'une plus grande incertitude que si l'on dispose de plus de données sur plus d'un mois.

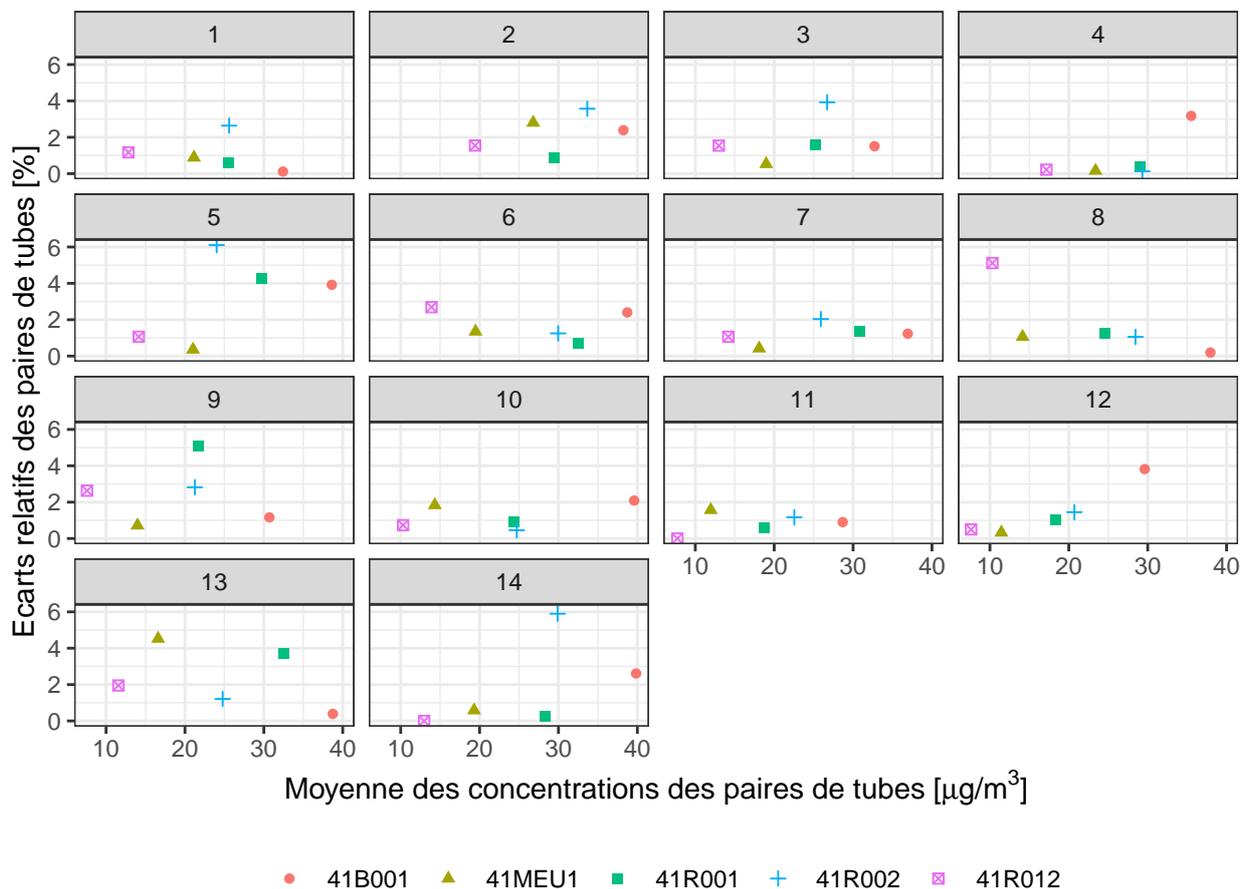


Figure 3.5 – Moyenne des concentrations estimées par paires de tubes par rapport à leur écart relatif en fonction de la période d'exposition pour les différentes stations télémétriques.

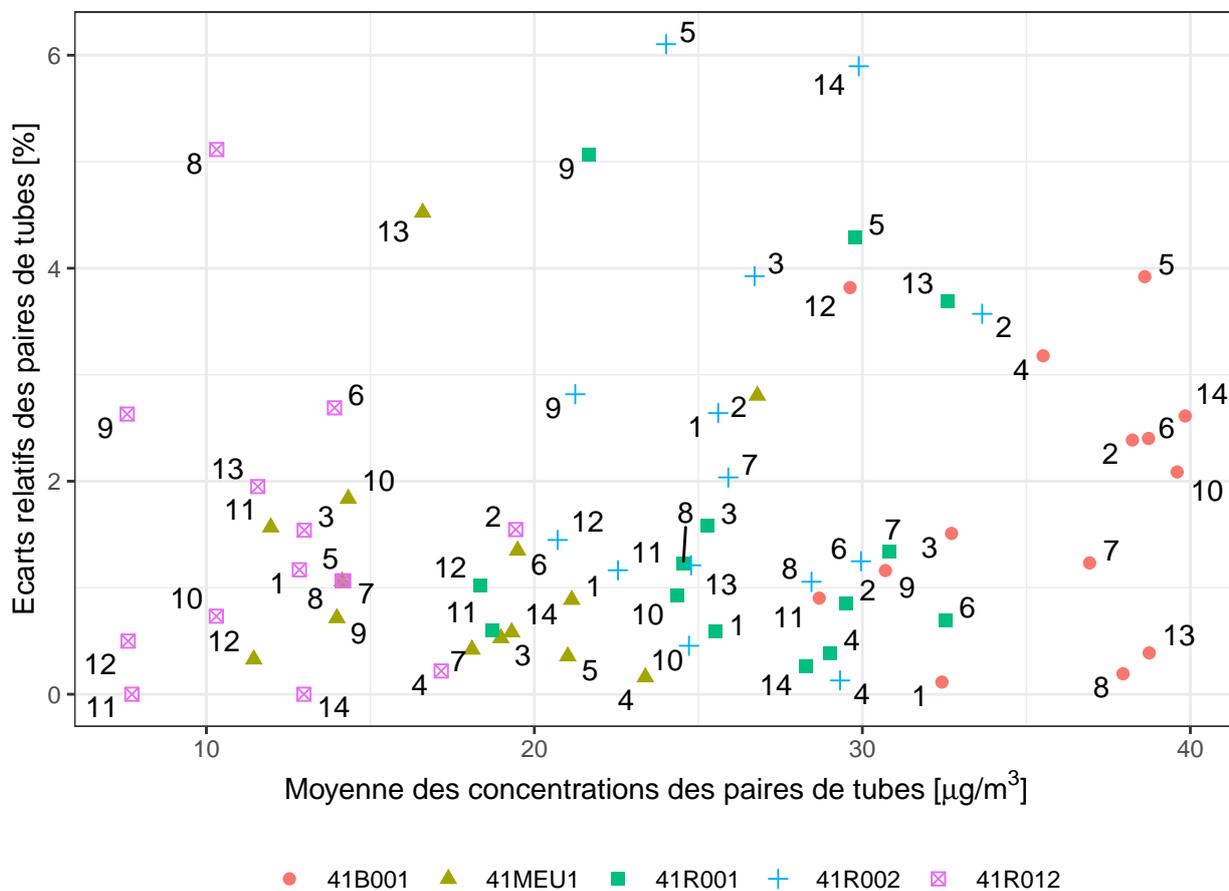


Figure 3.6 – Moyenne des concentrations estimées par paires de tubes par rapport à leur écart relatif en fonction de la période d'exposition pour les différentes stations télémétriques.



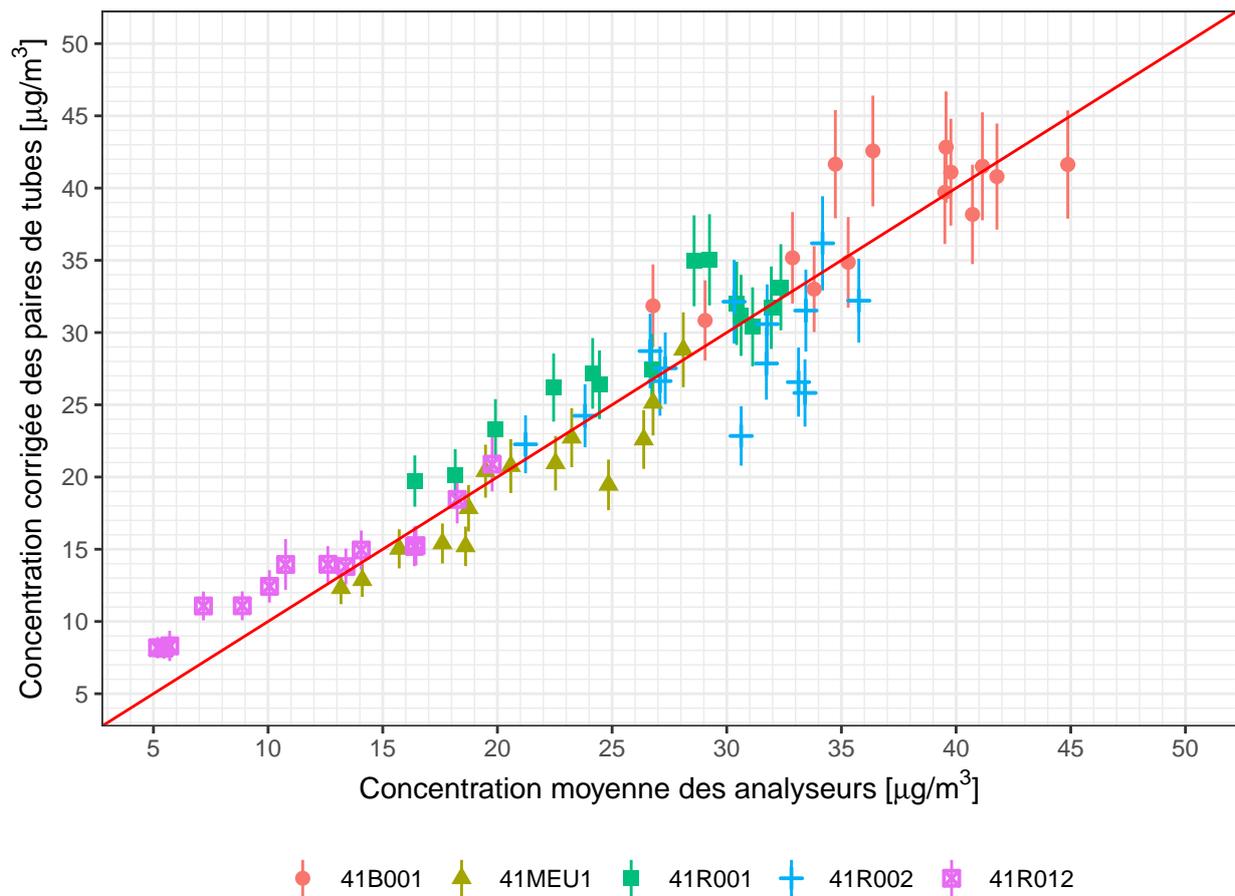


Figure 3.7 – Concentration moyenne des analyseurs par rapport aux concentrations corrigées par paires de tubes. Les barres d'erreur verticales représentent l'incertitude (ou écart-type de l'erreur) sur les concentrations corrigées des paires de tubes.



CHAPITRE 4 : ENSEMBLE DES SITES DE MESURES

4.1 CORRECTION GLOBALE

Nous proposons d'appliquer le facteur de correction estimé dans la section 3.3. De plus, pour chaque concentration moyenne corrigée des paires de tubes, nous sommes en mesure d'estimer son incertitude suivant l'Annexe C.

4.2 PÉRIODES D'EXPOSITION

Nous commençons par étudier la distribution des périodes d'exposition de toutes les paires de tubes. En effet, ces périodes ne sont jamais identiques, mais varient de quelques heures à plusieurs jours entre leur date de début et/ou de fin, car elles ne sont pas déterminées automatiquement, mais par les bénévoles participant à cette campagne de mesures qui choisissent le moment de substitution des paires de tubes.

Pour ce faire, la Figure 4.1 représente la distribution des périodes d'exposition (début de la période en axe des abscisses et fin de la période en axe des ordonnées). Nous observons dans cette figure que la majorité des tubes sont exposés durant des périodes similaires (centroïdes avec densités les plus élevées en jaune). Néanmoins, une certaine dispersion existe autour de ces centroïdes, traduisant la variabilité des moments choisis par les volontaires pour effectuer le remplacement de leurs paires de tubes. De plus, certaines périodes éloignées de ces points à haute densité existent, comme illustré par les distributions marginales de chaque variable.

Une discussion plus détaillée en considérant des périodes d'exposition normalisées (centroïdes dans la figure) est donnée à l'Annexe D. Cependant, il n'en ressort aucune variable discriminatoire supplémentaire qui permettrait d'agréger les données dans un nombre restreint de classes.

4.3 MOYENNES ANNUELLES

Pour chaque site d'échantillonnage, nous pouvons, sur base des périodes d'exposition cumulées, estimer une moyenne « annuelle »¹ de la concentration de NO₂. L'estimation de cette moyenne annuelle $\langle \tilde{M}_s \rangle$ pour le site s repose sur le calcul d'une moyenne pondérée des concentrations moyennes corrigées des paires de tubes $\tilde{M}_s(t_s)$ dont les coefficients sont proportionnels à la durée Δ_{t_s} de chaque période d'exposition t_s , c'est-à-dire

$$\langle \tilde{M}_s \rangle = \sum_{t_s=1}^{N_s} \frac{\Delta_{t_s}}{\sum_{t_s=1}^{N_s} \Delta_{t_s}} \cdot \tilde{M}_s(t_s) \quad (4.1)$$

Il est évident que plus la durée totale d'échantillonnage $\sum_{t_s=1}^{N_s} \Delta_{t_s}$ est proche de la durée totale idéale T_s , plus cette estimation sera représentative (ou précise) statistiquement². Une discussion détaillée sur le calcul d'incertitude sur ces moyennes annuelles est fournie à l'Annexe C. La directive européenne et ses annexes [UE, 2008, 2011, 2015] fixe légalement la saisie minimale de données horaires d'un analyseur automatique pour un site à 85%. Cela permet de s'assurer que la moyenne annuelle est représentative et puisse être comparée à d'autres sites.

Cependant, comme le montre la Figure 4.2, les sites de mesures n'ont pas tous une durée cumulée de leurs périodes d'échantillonnage proche d'une année (365 jours). Nous pouvons valablement nous interroger sur la validité des moyennes « annuelles » estimées dans la suite pour ces sites.

¹En réalité, il ne s'agit pas *stricto sensu* d'une moyenne annuelle car la durée cumulée des périodes d'exposition n'est pas d'un an exactement.

²Cette durée totale idéale est comprise entre la date de début de la première et celle de fin de la dernière période installation des paires de tubes pour le site et doit être proche d'une année si aucune période d'exposition n'a été invalidée au cours de la campagne.



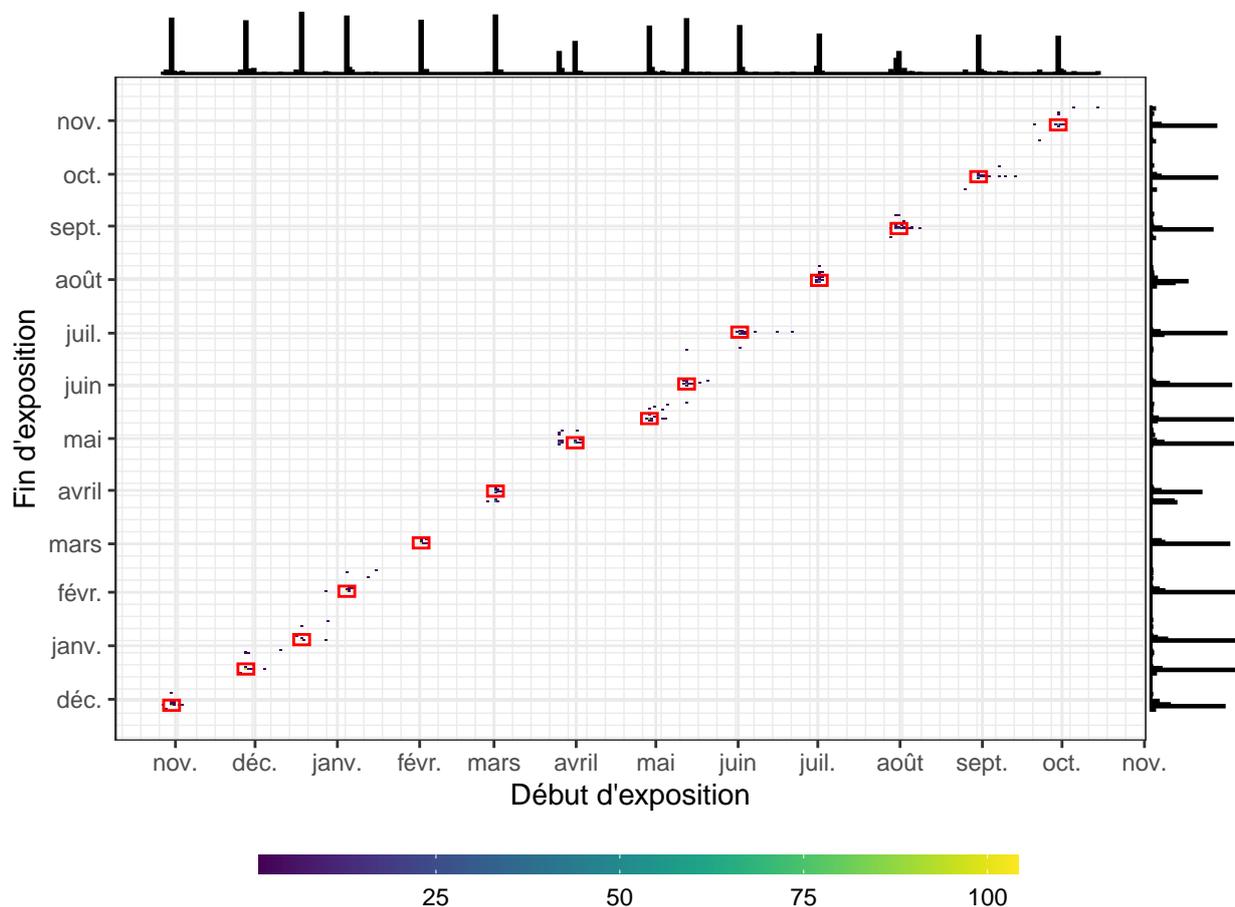


Figure 4.1 – Distribution du début et de la fin des périodes d'exposition des paires de tubes pour tous les sites. En marges de ce graphique sont données les distributions marginales.

4.3.1 Normes et recommandations

Le NO₂ fait l'objet d'une réglementation au niveau européen ainsi que de valeurs recommandées par l'OMS. La mesure du NO₂ s'inscrit dans le contexte de la directive 2008/50/CE [UE, 2008] et de la modification de plusieurs de ses annexes par la directive 2015/1480 [UE, 2015], complétées par le document de guidance de l'IPR [European Commission, 2018] qui facilite l'implémentation de la Décision 2011/850/CE [UE, 2011]. La directive prévoit deux valeurs limites entrées en vigueur le 1/1/2010 :

- une valeur limite horaire de 200 µg/m³ à ne pas dépasser plus de 18 fois par an (18 heures autorisées),
- une valeur limite annuelle de 40 µg/m³.

A côté des normes européennes, basées sur des aspects santé mais devant également être réalisables économiquement pour les Etats membres, l'OMS fournit également une série de valeurs recommandées, non contraignantes légalement et exclusivement basées sur des aspects santé [WHO, 2021]. Spécifiquement, les concentrations de NO₂, récemment revues par l'OMS, sont les suivantes :

- une valeur limite journalière de 25 µg/m³ à ne pas dépasser plus de 3 ou 4 fois par an,
- une valeur limite annuelle de 10 µg/m³.

Dans le cadre de ce projet et de l'échantillonnage réalisé par les tubes passifs, seules les limites et recommandations sur les moyennes annuelles de concentrations de NO₂ sont pertinentes, à savoir une valeur limite³ de 40 µg/m³ et une valeur recommandée par l'OMS de 10 µg/m³.

4.3.2 Analyse statistique

Pour cette analyse statistique, nous séparons les sites suivant que ceux-ci sont localisés au sein d'un établissement scolaire ou chez un particulier ; les stations de mesure de Bruxelles Environnement étant assimilées à ce dernier type. La Table 4.1 donne le nombre de chaque type de sites en fonction de l'intervalle de concentration de leur moyenne annuelle⁴.

³Le respect de ces valeurs doit être vérifié relativement à la valeur estimée arrondie à l'unité la plus proche.

⁴Ces intervalles sont définis comme ouverts à gauche, c'est-à-dire que leur valeur limite inférieure n'est pas comprise dans ceux-ci.



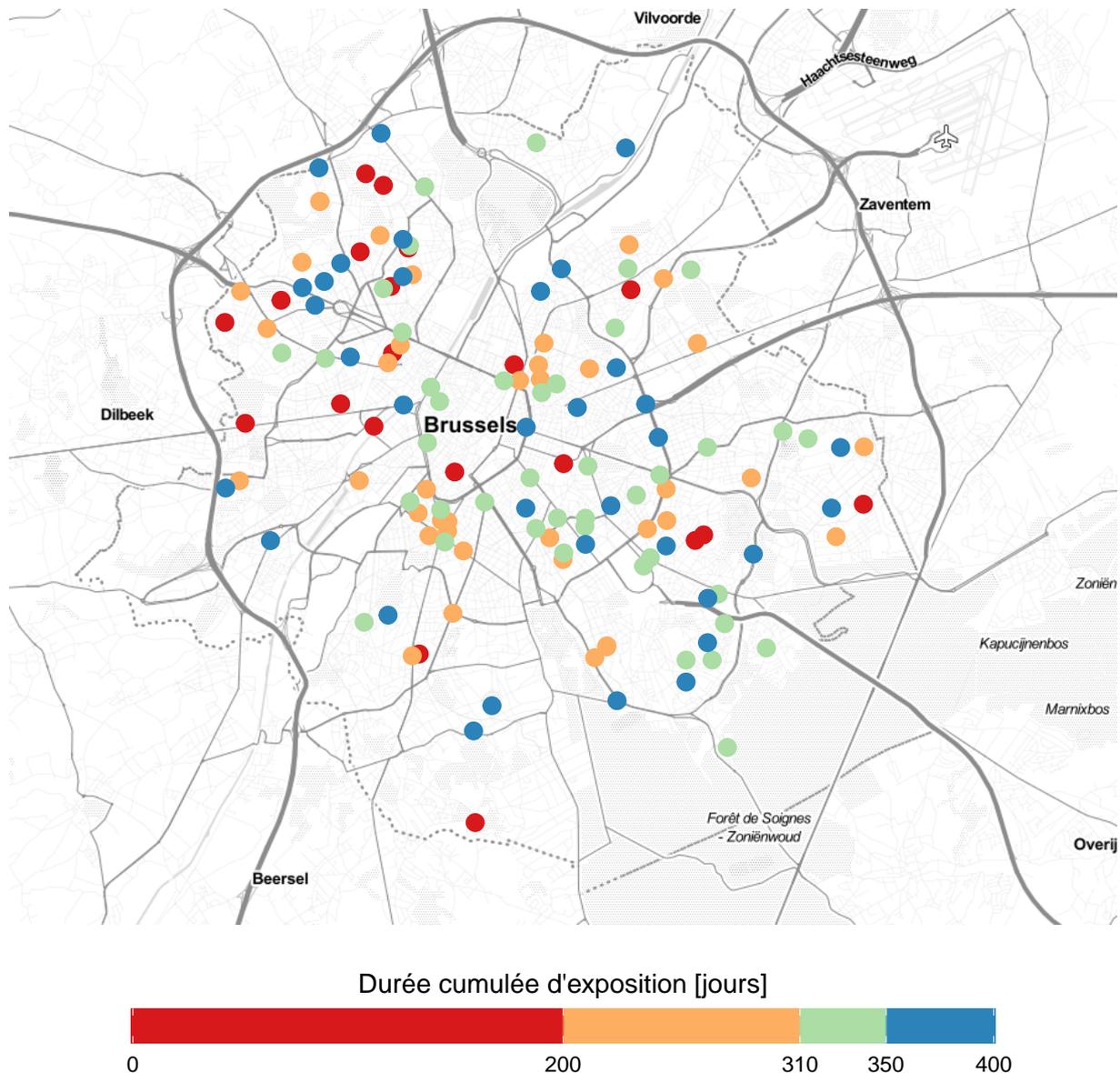


Figure 4.2 – Durée cumulée en jours des périodes d'échantillonnage pour chaque site de mesures. La limite de 310 jours est proche de la saisie minimale de données de 85% (à 6 heures près, 310.25 jours) exigé pour les stations du réseau téléométrique par la directive européenne.

4.3.2.1 Norme européenne

Nous pouvons constater qu'*aucun* établissement scolaire n'est exposé en moyenne annuelle à une concentration de NO₂ supérieure à la valeur limite annuelle (40 µg/m³) fixée par la directive européenne. 3 d'entre eux se situent dans l'intervalle de concentration]30 – 40] µg/m³, le restant étant réparti dans les deux intervalles inférieurs. Concernant les sites de particuliers, seul 2 d'entre eux dépassent la valeur limite européenne de 40 µg/m³. Nous pourrions nous attendre à ce que le site de la station d'Arts-Loi (41B001) soit l'un de ceux-ci, mais avec une valeur de 38.3±3.5 µg/m³, ce dernier se place dans l'intervalle inférieur.

Néanmoins, cette interprétation statistique est incomplète. En effet, nous n'avons jusqu'à présent considéré que les valeurs moyennes des moyennes annuelles estimées. Or chacune est donnée avec une incertitude absolue. Le calcul de propagation des incertitudes qui a permis de les estimer repose sur l'hypothèse que les variables aléatoires sont approximées par des distributions normales. Nous pouvons donc estimer la probabilité que chaque site ait une moyenne annuelle supérieure à la valeur limite de 40 µg/m³. En utilisant la même terminologie du niveau de confiance que dans IPCC [2021], nous pouvons affirmer que, sur les 2 sites de particuliers associées aux plus grandes probabilités :

- il est *virtuellement certain* (probabilité supérieure ou égale à 99%) que la concentration du premier (52 µg/m³) dépasse 40 µg/m³,
- il est *probable* (probabilité supérieure ou égale à 66% mais inférieure à 90%) que la concentration du second (45 µg/m³) dépasse 40 µg/m³.



Table 4.1 – Nombre de sites de mesures par intervalle de concentration moyenne annuelle pour les établissements scolaires et les particuliers.

Concentration [$\mu\text{g}/\text{m}^3$]	Nombre de sites	
	Ecoles	Particuliers
]10 - 20]	44	9
]20 - 30]	27	32
]30 - 40]	3	17
]40 - 50]	-	1
]50 - 60]	1	-

Il est *environ aussi probables que non* (probabilité supérieure ou égale à 33% mais inférieure à 66%) que les concentrations des 2 sites suivants (également de particuliers) soient au-delà de $40 \mu\text{g}/\text{m}^3$. Enfin, pour le 5 sites suivants (le premier étant la station 41B001 et le troisième étant le premier relatif à un établissement scolaire), il est *improbable* (probabilité inférieure à 33%) que leurs concentrations dépassent $40 \mu\text{g}/\text{m}^3$. Concernant tous les autres sites, il est *très improbable* (probabilité inférieure à 10%) que leurs concentrations dépassent $40 \mu\text{g}/\text{m}^3$.

Nous pouvons noter que ces résultats sont en accord avec les constatations de Bruxelles Environnement sur la RBC en 2020 d'après les mesures fournies par son réseau de stations télémétriques [Bruxelles Environnement, 2021a].

4.3.2.2 Recommandation de l'OMS

Comme nous pouvons le remarquer dans la Table 4.1, aucun site de mesure n'a une moyenne annuelle inférieure à $10 \mu\text{g}/\text{m}^3$. En considérant à nouveau une approche probabiliste de cette moyenne et de son incertitude :

- il est *virtuellement certain* que les concentrations de 127 sites dépassent $10 \mu\text{g}/\text{m}^3$,
- un site (établissement scolaire) possède une concentration dépassant *probablement* $10 \mu\text{g}/\text{m}^3$,
- 6 sites (dont 5 établissements scolaires) possèdent des concentrations dépassant *très probablement* (probabilité supérieure ou égale à 90% mais inférieure à 99%) $10 \mu\text{g}/\text{m}^3$.

4.3.3 Distribution géographique

La Figure 4.3 illustre la distribution géographique des moyennes annuelles estimées aux différents sites. Les 2 sites caractérisés par les valeurs les plus élevées et mentionnés précédemment sont clairement situés sur la petite ceinture de la RBC. Enfin, les zones les moins exposées tendent à être localisées en périphérie.



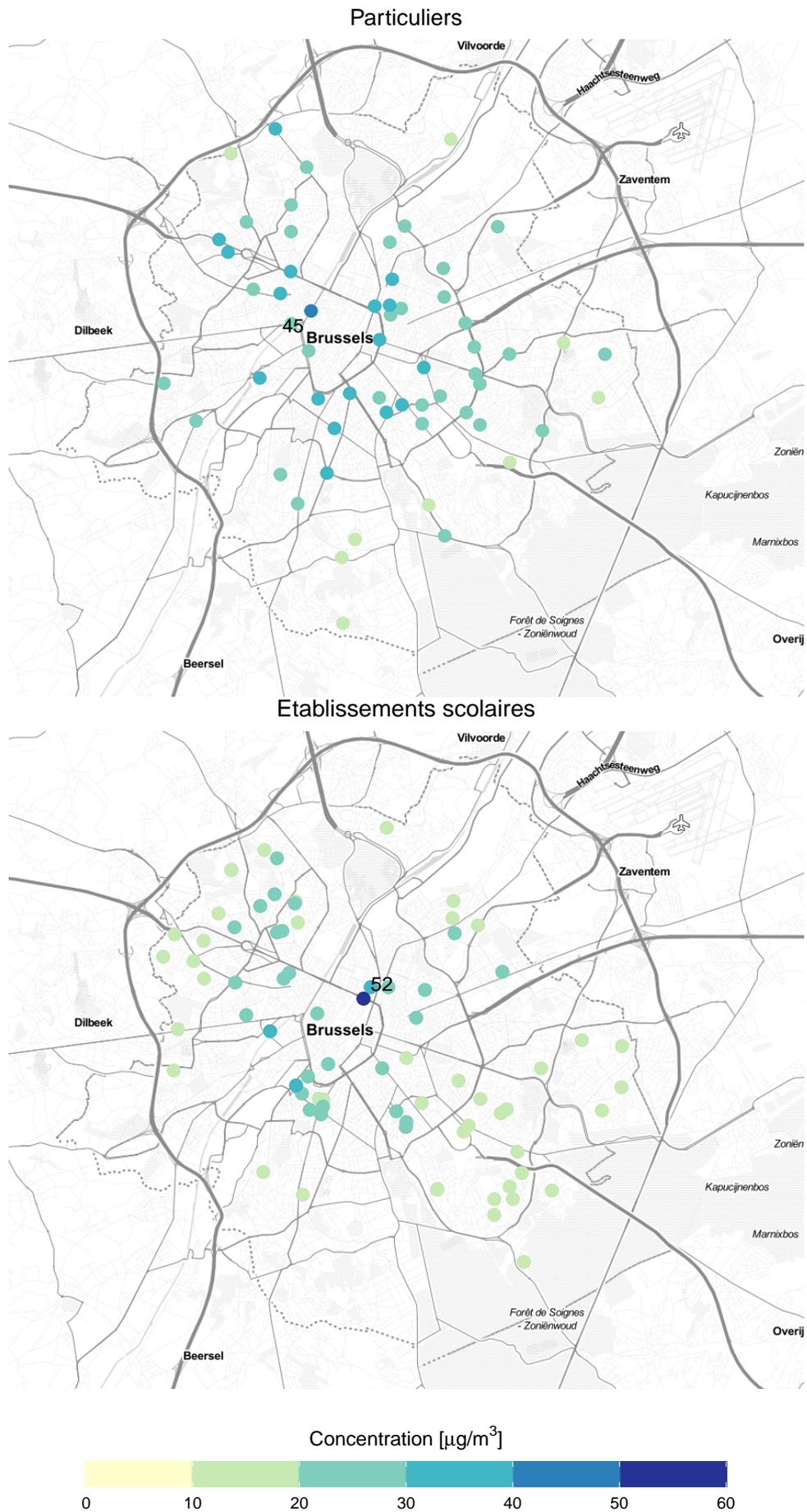


Figure 4.3 – Distribution géographique des concentrations moyennes annuelles (arrondies à l'unité) estimées à partir de la campagne de mesures pour les particuliers (comportant les 5 sites du réseau téléométrique bruxellois) et les établissements scolaires. Les concentrations ($\mu\text{g}/\text{m}^3$) qui dépassent la norme européenne sont indiquées.



CHAPITRE 5 : CONCLUSIONS

La campagne de mesure a eu lieu pendant un an, entre le mois d'octobre 2020 et le mois d'octobre 2021, à 134 points de mesure. Les tubes passifs ont été installés à front de rue chez 54 citoyens, aux abords d'une université, d'une crèche, de deux maisons de retraite, d'un centre culturel, d'une piscine communale et d'une maison de l'emploi, situés à proximité d'un axe routier principal, ainsi qu'au milieu de la cour de récréation de 67 écoles et d'une autre crèche. Les emplacements de mesure sont indiqués à la Figure 1.1. Chaque tube passif est donc resté sur site environ un mois (entre 2 et 4 semaines) avant d'être remplacé par un nouveau tube. L'analyse chimique des tubes a été réalisée par le laboratoire suisse Passam.

Lors de cette étude, les concentrations provenant des tubes passifs ont été comparées avec les concentrations de référence de 5 sites du réseau télémétrique bruxellois, équipés d'instruments de mesure qui fonctionnent en continu et permettent de suivre les concentrations en temps réel. Cette comparaison a permis de confirmer que les tubes passifs fournissent des concentrations fiables qui ne nécessitent qu'un ajustement de 7.5% par rapport aux valeurs de référence.

Au vu de l'impact important des mesures mises en place dans le cadre de la pandémie de COVID-19 sur l'activité, et en particulier sur l'intensité du trafic routier durant la campagne de mesure, la correction a été appliquée de manière uniforme sur toutes les mesures. En effet, la distinction généralement très nette entre les différents types d'environnement des sites de mesure (par exemple, faiblement ou fortement influencés par le trafic routier), a été amenuisée durant cette période de manière importante.

Au regard des normes européennes, 132 sites sur 134, soit 98.5% des sites, respectent la valeur limite annuelle de concentration [UE, 2008]. Seuls deux sites de mesure se situant sur la petite ceinture enregistrent des concentrations dépassant cette valeur limite, comme illustré à la Table 4.1 et à la Figure 4.3.

La valeur limite annuelle européenne pour le NO₂ a en outre été respectée en 2020 et 2021 dans toutes les stations de mesures du réseau télémétrique de référence de la RBC (y compris aux stations d'Arts-Loi et de la rue Belliard).

Les précédentes valeurs recommandées par l'OMS de 2005 étaient, pour la plupart, également déjà respectées en RBC ou au moins en bonne voie de l'être; ce qui témoigne de l'efficacité des mesures mises en place pour réduire les émissions ainsi que des progrès technologiques. Cependant, le défi s'avère beaucoup plus grand en ce qui concerne les valeurs recommandées par l'OMS en 2021 [WHO, 2021]. Pour la plupart, celles-ci ont été fortement revues à la baisse par rapport aux valeurs de 2005 [WHO, 2005]. La majorité de ces valeurs de 2021 ne sont respectées en Belgique que dans les sites les moins exposés aux sources de pollution (pour les polluants primaires), tels que les sites de fond rural (comme par exemple la station de Vielsalm).

À la lumière de la comparaison des concentrations mesurées pendant l'année 2020 aux nouvelles valeurs recommandées par l'OMS, on peut constater que celles-ci sont, en effet, (largement) dépassées pour le dioxyde d'azote. Les résultats de la campagne de mesure par tubes passifs appuient ce constat : tous les points de mesure (écoles et citoyens confondus) dépassent la valeur annuelle recommandée par l'OMS de 10 µg/m³. Soulignons le fait que les valeurs recommandées par l'OMS sont établies en ne prenant en compte exclusivement que l'impact santé de la pollution de l'air et pas la faisabilité socio-économique du respect des seuils - contrairement aux normes européennes définies dans la directive 2008/50/CE [UE, 2008].

Le respect des nouvelles valeurs recommandées par l'OMS nécessitera de poursuivre la réduction des émissions au niveau local, mais également de réduire celles-ci de manière drastique au niveau européen, voire hémisphérique.



ANNEXE A : ESTIMATION DU SEUIL SUR LES ÉCARTS RELATIFS

Nous pouvons exploiter l'incertitude étendue fournie par le laboratoire Passam sur les concentrations estimées par analyse. En effet, celles-ci sont données avec un intervalle de confiance à 95% de $\pm 25\%$, c'est-à-dire $U(C)/C = ku(C)$ avec $k = 2$ et $u(C) = \sigma_C$ étant l'écart-type de la distribution des erreurs. Nous pouvons donc calculer le seuil sur l'écart relatif (ER) des paires d'échantillonneurs au-delà duquel les valeurs sont incompatibles compte tenu de leur intervalle de confiance. Pour ce faire, nous ordonnons les deux concentrations de chaque paire tel que $C_1 \leq C_2$. La limite supérieure L_1 (resp. inférieure L_2) de l'intervalle de confiance à 95% (défini par la valeur de k) de C_1 (resp. C_2) est donnée par l'expression :

$$L_1 = C_1(1 + U(C)/C)$$

$$L_2 = C_2(1 - U(C)/C)$$

En substituant ces deux expressions dans l'équation (2.1) et en tenant compte de la relation supplémentaire $L_1 = L_2$ caractérisant la limite où les deux intervalles de confiance à 95% (pour $k = 2$) ont une aire d'intersection nulle, on obtient pour le seuil des écarts relatifs $ER_{\text{lim}} = U(C)/C$. En conséquence, un seuil de 25% sur les ER nous garantit que les paires ont 95% de chance d'avoir des valeurs compatibles, c'est-à-dire des intervalles qui se recouvrent.



ANNEXE B : CHOIX DE LA RÉGRESSION LINÉAIRE

Nous pouvons choisir un modèle linéaire avec ou sans terme indépendant. Néanmoins, une modélisation de régression linéaire passant par l'origine est plus pertinente physiquement (droite en trait discontinu bleu sur la Figure B.1). En effet, ceci est plus en adéquation avec le principe de mesure du NO₂ par tube passif, à savoir qu'une non-exposition au polluant se traduit par une estimation nulle¹. En outre, ce modèle, ou plutôt la variance de ses erreurs, est homoskédastique comme le montre la statistique réduite du test de White (2.776) qui est significative (p-valeur de 0.25 > 5%) mais également les 2 graphes additionnels sur la figure².

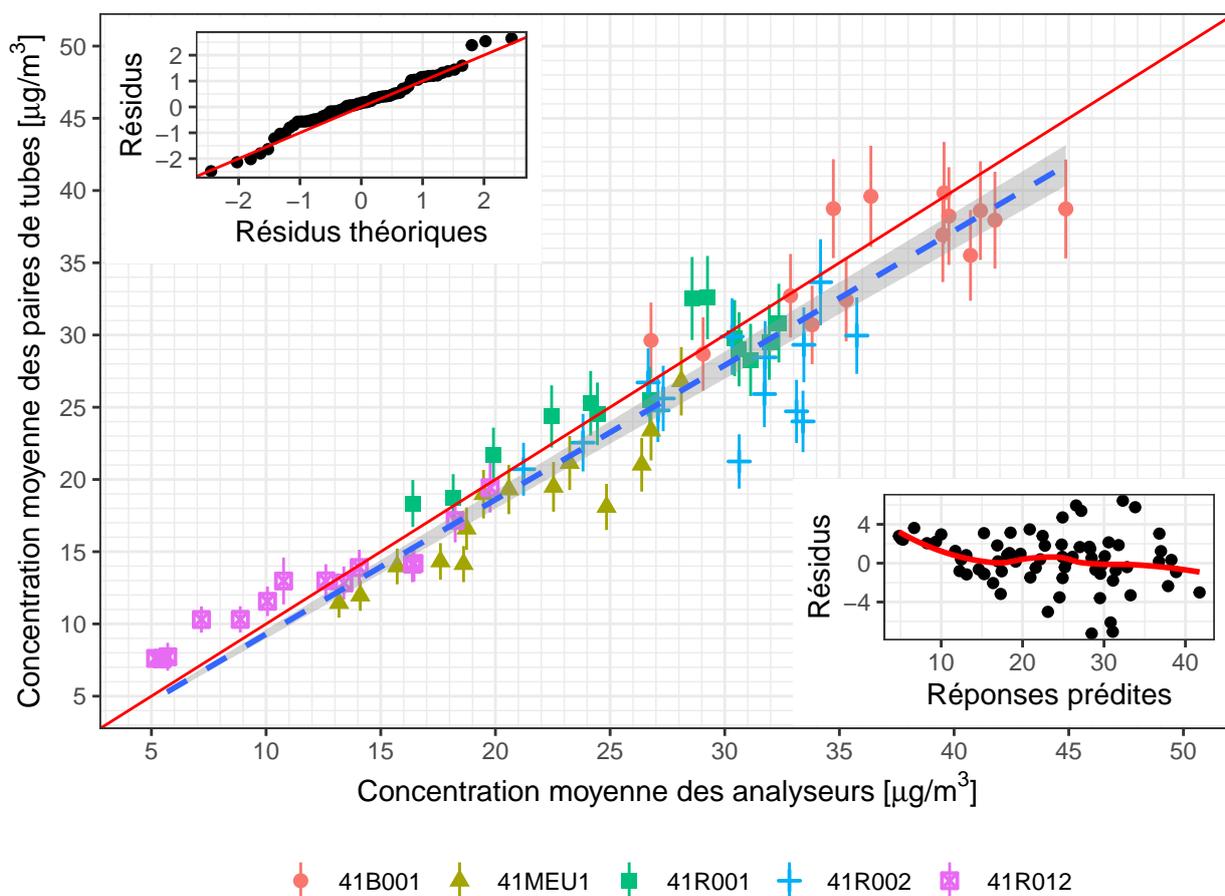


Figure B.1 – Concentration moyenne des analyseurs par rapport aux concentrations estimées par paires de tubes. Les barres d'erreur verticales représentent l'incertitude (ou écart-type de l'erreur) sur les concentrations moyennes des paires de tubes. La régression linéaire est repérée par la droite en trait discontinu bleu et son intervalle de confiance à 95% par la zone grisée de part et d'autre de celle-ci.

¹Ceci est confirmé par le laboratoire Passam qui analyse périodiquement des tubes à blanc.

²Néanmoins, nous avons également vérifié qu'une régression linéaire robuste par technique de *bootstrap* donnait des résultats similaires.



ANNEXE C : PROPAGATION DES ERREURS ET CALCUL D'INCERTITUDES

D'après les analyses effectuées par le laboratoire Passam, les concentrations de ces dernières sont données avec une incertitude (relative) étendue $U(C)/C$ de 25% avec un facteur de recouvrement k de 2, c'est-à-dire un intervalle de confiance de 95%, soit une incertitude relative $u(C)/C$ de 12.5%. Disposant de cette estimation de l'incertitude sur la concentration de chaque tube, nous pouvons calculer l'incertitude sur chaque concentration moyenne ($M_s(t_s)$) des paires de tubes $u(M_s(t_s))$ qui est inférieure à celle des tubes pris isolément d'après Farrance and Frenkel [2012] comme

$$u(M_s(t_s)) = \frac{1}{n_s(t_s)} \sqrt{\sum_{n=1}^{n_s(t_s)} u^2(C_{n,s}(t_s))}$$

où $n_s(t_s)$ est égale au nombre de tubes valides sur le site s d'échantillonnage, $C_{n,s}(t_s)$ la concentration du tube n sur le site s et pour la période d'exposition t_s . En conséquence, cette incertitude sera égale à

$$u(M_s) = \begin{cases} 0.125 \cdot C_{1,s} & \text{pour un tube valide} \\ \frac{0.125}{2} \sqrt{C_{1,s}^2 + C_{2,s}^2} & \text{pour deux tubes valides} \end{cases}$$

en omettant la dépendance en t_s par souci de clarté.

Cette incertitude peut ensuite être prise en compte lors de la modélisation par régression linéaire en faisant l'hypothèse que l'écart-type de l'erreur aléatoire (de moyenne nulle) sur chaque concentration moyenne de paires de tubes est égale à cette incertitude¹.

En utilisant le modèle de régression linéaire sans terme indépendant $M_s = \beta \cdot R_s$, comme discuté dans la section 3.3, nous obtenons une estimation moyenne $\hat{\beta}$ de la variable aléatoire multiplicative β (paramètre de la régression) entre la concentration moyenne des paires de tubes et celles des analyseurs R_s de 0.93 avec une incertitude $u(\hat{\beta})$ de 0.016.

Comme nous cherchons ensuite à corriger les concentrations moyennes M_s de façon à les ajuster (« caler ») sur les mesures de référence effectuées par les analyseurs, nous obtenons les concentrations moyennes corrigées des paires de tubes \tilde{M}_s

$$\tilde{M}_s = \frac{M_s}{\beta}$$

Cette expression est en réalité un quotient de 2 variables (aléatoires) normales. La variable aléatoire \tilde{M}_s qui en résulte est une distribution de Cauchy. Néanmoins, il a été montré dans la littérature (Díaz-Francés and Rubio [2013]) que cette dernière peut être approximée par une distribution normale dont la moyenne est le quotient des moyennes si $\delta = \sigma_\beta / \mu_\beta < 0.1$, ce qui est bien vérifié ici.

En conséquence, nous pouvons, pour chaque concentrations moyenne M_s , estimer une moyenne de la valeur corrigée ainsi que son incertitude $u(\tilde{M}_s)$. D'après les règles de propagation des erreurs (Farrance and Frenkel [2012]), nous obtenons la relation

$$\frac{u(\tilde{M}_s)}{\tilde{M}_s} = \sqrt{\left(\frac{u(M_s)}{M_s}\right)^2 + \left(\frac{u(\beta)}{\beta}\right)^2}$$

pour l'incertitude relative.

Nous pouvons dès lors utiliser ces incertitudes calculées pour les concentrations moyennes corrigées \tilde{M}_s pour estimer l'incertitude de la concentration moyenne annuelle $\langle \tilde{M}_s \rangle$ à chaque site d'exposition des paires de tubes.

¹En d'autres termes, plus la valeur de celle-ci sera grande, moins sa concentration associée aura de poids dans le calcul du modèle régressif.



Si l'on considère que le cumul des périodes d'exposition $\sum \Delta_{t_s}$ à un site donné est d'exactly d'une année, alors l'incertitude sur la concentration moyenne (pondérée) annuelle est donnée par l'expression

$$u(\langle \tilde{M}_s \rangle) = \sqrt{\sum_{t_s=1}^{N_s} \tilde{w}_s^2(t_s) u^2(\tilde{M}_s(t_s))} \quad (C.1)$$

où les $\tilde{w}_s(t_s)$ sont les coefficients de pondération (périodes d'exposition) normalisés, c'est-à-dire dont la somme est égale à 1, utilisés dans le calcul de la concentration moyenne annuelle au site s , c'est-à-dire

$$\tilde{w}_s(t_s) = \frac{\Delta_{t_s}}{\sum_{t_s=1}^{N_s} \Delta_{t_s}} \quad (C.2)$$

où $\sum_{t_s=1}^{N_s} \Delta_{t_s}$ désigne la durée cumulée effective des périodes d'exposition au site s qui est inférieure ou égale à la durée cumulée idéale T_s d'environ une année.

Cependant, tous les sites d'exposition ne disposeront pas, au cours de l'année de la campagne de mesures par tubes passifs, d'un cumul de leurs périodes d'exposition égal à une année. En effet, certaines paires de tubes peuvent être invalidées en raison d'un temps d'exposition trop court ou trop long (section 2.1) et/ou d'un trop grand écart-relatif (section 2.2). En conséquence, l'incertitude sur la concentration moyenne annuelle doit être modifiée en

$$u^2(\langle \tilde{M}_s \rangle) = u_{rs}^2(\langle \tilde{M}_s \rangle) + u_{\text{prop}}^2(\langle \tilde{M}_s \rangle) \quad (C.3)$$

où $u_{\text{prop}}^2(\langle \tilde{M}_s \rangle)$, obtenue par la propagation des incertitudes, est donnée par l'équation (C.1) et $u_{rs}(\langle \tilde{M}_s \rangle)$ désigne l'incertitude de représentabilité additionnelle.

S'il existe dans la littérature des formules permettant d'évaluer cette source d'erreur additionnelle (Gomez-Pelaez et al. [2013]), celles-ci portent exclusivement sur des séries (temporelles) de données *désaisonnalisées*, c'est-à-dire des données pour lesquelles la composante issue de la variabilité sur une année a été soustraite. Ceci n'est pas le cas pour cette campagne de mesures. En conséquence, l'absence d'information (accroissement ou diminution) des éventuelles moyennes manquantes sur certaines périodes d'échantillonnage se traduit par une augmentation significative (mais inconnue) de l'incertitude de représentabilité.

Cependant, afin d'estimer approximativement (ou plutôt de borner supérieurement) cette incertitude de représentabilité, nous proposons d'utiliser les données spécifiques échantillonnées aux stations télémétriques de Bruxelles Environnement. En effet, nous disposons sur ces 5 sites (recouvrant la gamme des concentrations possibles) de toutes les périodes d'exposition des paires de tubes et ce, pour toute la campagne de mesures. Pour chacun de ces sites s , nous disposons de la moyenne annuelle (corrigée) $\langle \tilde{M}_s \rangle$ calculée comme la moyenne pondérée des $\tilde{M}_s(t_s)$ dont les poids sont donnés par la relation (C.2) sur toute la durée de la campagne de mesures (T_s , proche d'une année). Nous pouvons également estimer des moyennes annuelles entachées d'une erreur de représentabilité en tronquant le nombre de périodes d'expositions N_s qui sont considérées dans le calcul de la moyenne pondérée, c'est-à-dire en prenant un sous-ensemble de n_s indices à l'ensemble complet $\{1, \dots, N_s\}$ utilisé dans les sommations des équations (4.1) et (C.2). De plus, pour une valeur fixée n_s , il y a $C_{N_s}^{n_s}$ combinaisons d'indices ou périodes d'exposition permettant de calculer des moyennes annuelles « tronquées ». Chacune de ces combinaisons est associée à une durée cumulée tronquée du temps d'exposition. Il est alors possible de calculer l'erreur entre chaque moyenne annuelle tronquée et la moyenne annuelle $\langle \tilde{M}_s \rangle$ comme illustré par la Figure C.1 gauche. Nous constatons que les durées d'exposition cumulées ont tendance à s'agréger autour de certaines valeurs de durée cumulée. Il est dès lors possible pour chacune de ces valeurs (en négligeant la variabilité intrinsèque des erreurs autour de celles-ci) d'estimer l'incertitude de représentabilité sur la moyenne annuelle $u_{rs}(\langle \tilde{M}_s \rangle)$ qui est simplement la racine carrée de la somme des carrés de ces erreurs divisée par le nombre de termes de cette dernière soustrait de 1 (nombre de degrés de liberté). Cette dernière est illustrée par la Figure C.1 droite.

La dernière étape pour appliquer cette incertitude à tous les sites d'échantillonnage caractérisés par une plus grande diversité dans les durées d'exposition cumulées (et tronquées) consiste à trouver un modèle de régression non-linéaire à partir de ces données de stations. En pratique, celui-ci doit être nul pour T_s . Le modèle de régression polynomiale de degré 3 tenant compte de cette contrainte est représenté par la courbe bleue dans la Figure C.1 droite. Tous ses coefficients de régression sont significatifs².

²Le modèle polynomial de degré 4 n'est pas considéré car ses coefficients de régression sont non significatifs.



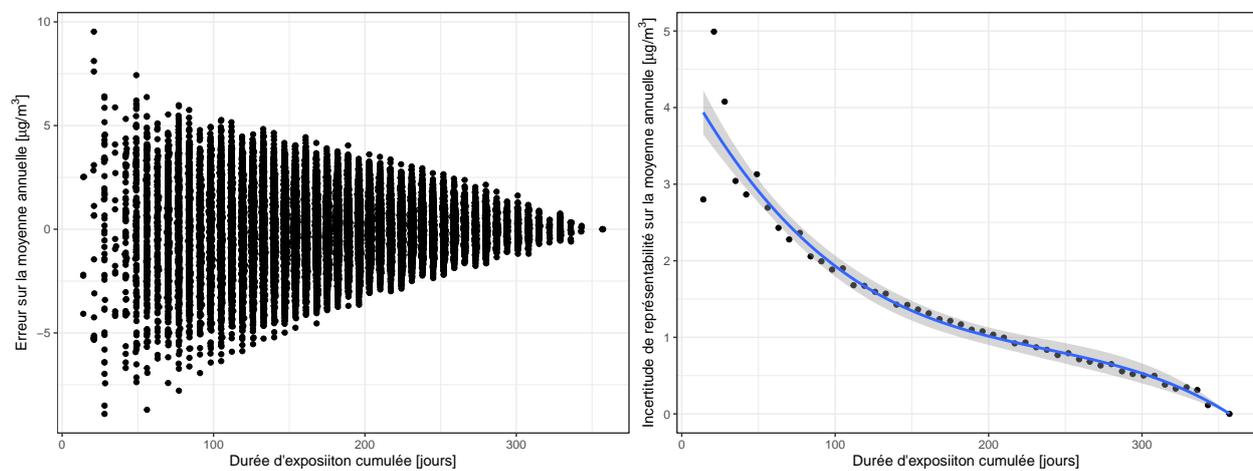


Figure C.1 – Erreur de représentabilité (gauche) et incertitude de représentabilité (droite) sur la moyenne annuelle en fonction de la durée d'exposition cumulée. La courbe bleue à droite représente une régression polynomiale de degré 3 sur les données.

ANNEXE D : NORMALISATION DES PÉRIODES D'EXPOSITION

Comme mentionné au chapitre 4.2 et illustré à la Figure 4.1, il ressort que les périodes d'exposition ne sont jamais identiques. Néanmoins, une majorité d'entre elles sont similaires si l'on accepte une certaine variabilité sur le début et la fin des périodes d'exposition. Celles-ci sont désignées par les centroïdes de forte densité (en jaune sur la figure). Cependant, une minorité sont trop éloignées de ces centroïdes et ne sont donc pas représentatives. En conséquence, nous écarterons leurs données dans ce qui suit. Pour ce faire, nous utiliserons comme critère de validité une différence d'au plus 3 jours (afin d'y inclure les tubes rapportés aux stations de mesures) sur le début et sur la fin de la période d'exposition autour de ces «centroïdes» comme reporté par les rectangles rouges dans la Figure 4.1.

Ce filtrage sur les dates de début et de fin d'exposition diminue notre ensemble de sites de mesures de 1510 à 1326, soit de 12.2%.

Nous nous sommes également intéressés à la dépendance éventuelle entre la période de l'année et le temps d'exposition. La Figure D.1 illustre la distribution des écarts de valeurs pour chaque paire de tubes et des temps d'exposition. Si nous constatons une faible dispersion du temps d'exposition pour chaque période de mesure, il y a clairement un effet dû aux vacances scolaires.

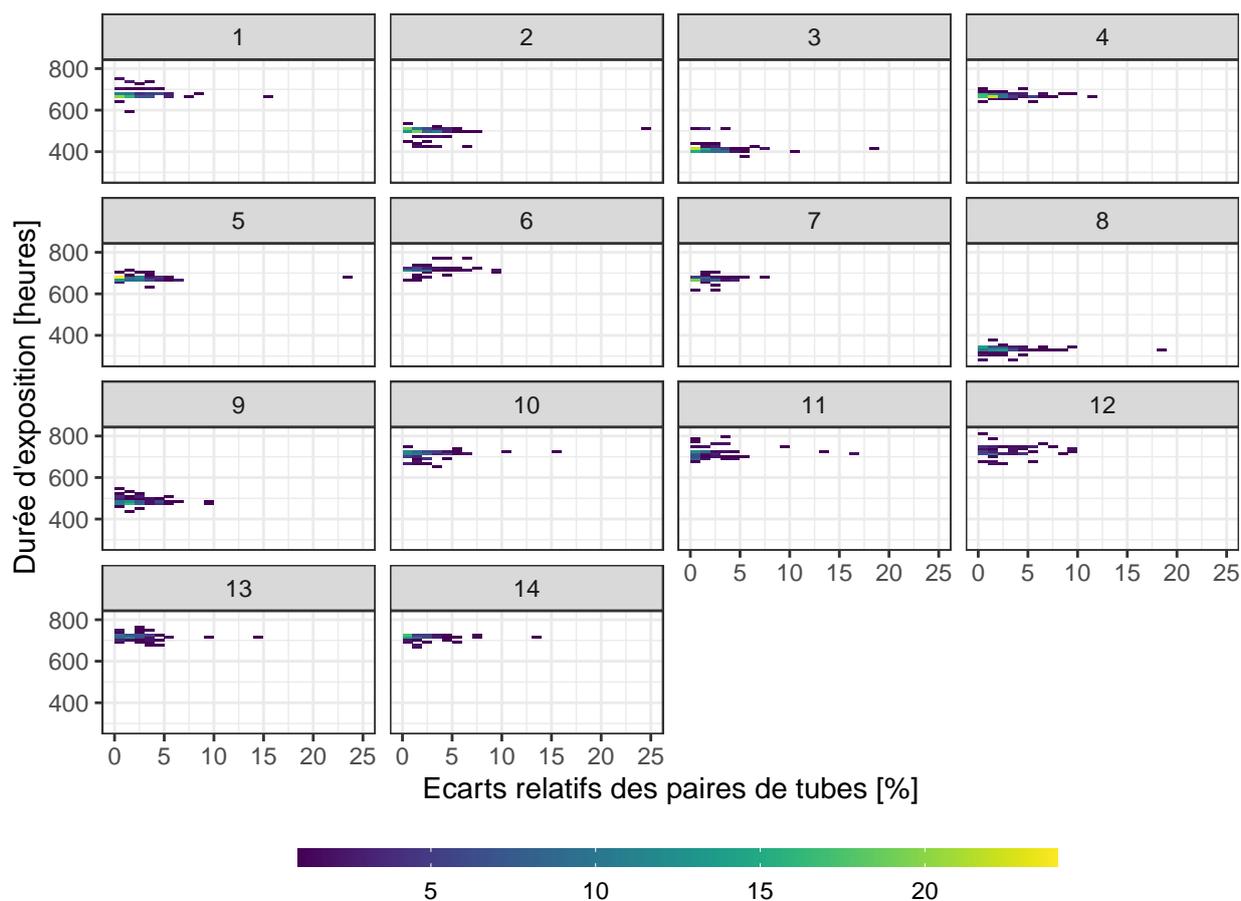


Figure D.1 – Distribution des écarts relatifs des paires de tubes avec leurs durées d'exposition en fonction de la période d'exposition.

La Table D.1 fournit la distribution du nombre de sites valides par période d'échantillonnage normalisée. Nous pouvons observer que le nombre de sites de mesures considérés comme valides est fortement réduit durant les mois de mars (68) et avril (64) et que la durée d'exposition normalisée est sensiblement réduite la deuxième



Table D.1 – Nombre de sites de mesures valides par période d'exposition normalisée

	Période d'exposition		Jours	Sites
	Début	Fin		
1	30/10/20	27/11/20	28	111
2	27/11/20	18/12/20	21	116
3	18/12/20	04/01/21	17	119
4	04/01/21	01/02/21	28	121
5	01/02/21	01/03/21	30	108
6	01/03/21	31/03/21	30	68
7	31/03/21	28/04/21	28	64
8	28/04/21	12/05/21	14	99
9	12/05/21	01/06/21	20	108
10	01/06/21	01/07/21	30	101
11	01/07/21	31/07/21	30	78
12	31/07/21	30/08/21	30	73
13	30/08/21	29/09/21	30	81
14	29/09/21	29/10/21	30	79

moitié de décembre 2020 (17 jours) ainsi que la première moitié de mai 2021 (14 jours).

Afin d'étudier la pertinence de considérer comme variable discriminatoire supplémentaire l'écart de valeurs pour chaque paire de tubes, nous avons représenté à la Figure D.2 pour chaque période de mesure la concentration moyenne en fonction de cet écart pour chaque paire de tubes. Nous y avons également reporté les paires de tubes placées au niveau des stations télémétriques. Nous observons que cette variable supplémentaire ne permet pas de faciliter la classification des points de mesures par rapport aux environnements des stations télémétriques. De plus, l'utilisation de cette variable nous restreindrait aux paires de tubes dont les concentrations sont simultanément valides, ce qui nous forcerait à écarter les points de mesures, bien que peu nombreux, ne correspondant pas à cette contrainte supplémentaire. En conséquence, nous ne considérerons pas cette variable supplémentaire. De plus, cette figure conforte notre décision quant à l'application d'une correction globale pour tous les sites d'échantillonnage.



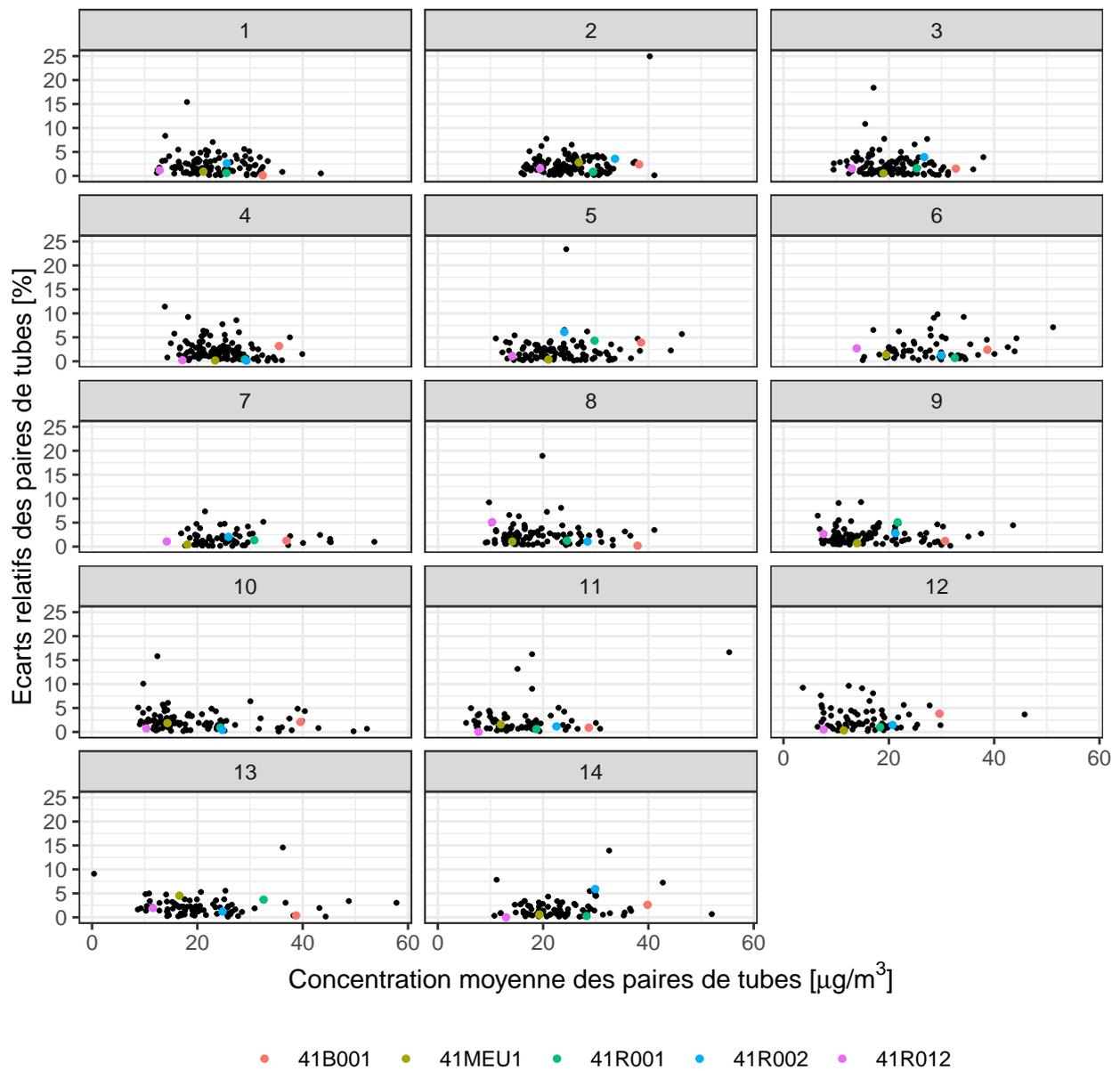


Figure D.2 – Ecarts relatifs des paires de tubes en fonction de leur concentration moyenne pour les différentes périodes d'exposition



ANNEXE E : BOÎTES À MOUSTACHES

Nous utilisons dans ce rapport des « boîtes à moustaches » (*box plots*) pour résumer plusieurs statistiques sur les graphes. Une telle boîte à moustaches est illustrée sur la Figure E.1. De manière générale, leur lecture se fait de la façon suivante :

- le trait vertical supérieur indique le maximum du jeu de données considéré,
- le trait vertical inférieur indique le minimum du jeu de données considéré (ces deux traits verticaux sont les « moustaches »),
- le haut du rectangle central indique le centile 75 (P75) du jeu de données considéré,
- le bas du rectangle central indique le centile 25 (P25) du jeu de données considéré (le haut et le bas du rectangle forment la « boîte »),
- le trait horizontal au sein du rectangle indique la médiane du jeu de données considéré,

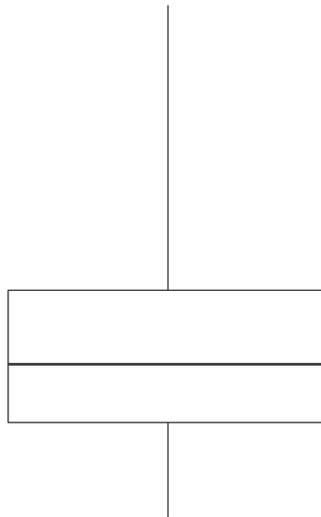


Figure E.1 – Diagramme d'une boîte à moustaches

BIBLIOGRAPHIE

- ADEME. *Echantillonneurs passifs pour le dioxyde d'azote*. ADEME Editions, 2002. URL https://www.lcsqa.org/system/files/media/documents/guide_echantillonneurs_passifs_no2_ademe_lcsqa_2002.pdf.
- Bruxelles Environnement. *Low Emission Zone, Brussels*. <https://lez.brussels/mytax/fr/#>, 2018. Accessed : 2022-01-21.
- Bruxelles Environnement. *La Qualité de l'Air en Région de Bruxelles-Capitale - Rapport Annuel 2020*. 2021a. URL https://document.environnement.brussels/opac_css/electfile/RAP_2020_AirQualityAnnualReport_fr.pdf.
- Bruxelles Environnement. *Inventaires des émissions atmosphériques, Brussels*. <https://environnement.brussels/thematiques/air-climat/qualite-de-lair/les-emissions-de-polluants-qui-affectent-la-qualite-de-lair>, 2021b. Accessed : 2022-01-25.
- Bruxelles Environnement. *Low Emission Mobility, Brussels*. <https://environnement.brussels/thematiques/mobilite/strategie-low-emission-mobility>, 2021c. Accessed : 2022-01-21.
- M. Dominik-Sègue and S. Le Meur. *Evaluation de la qualité de l'air ambiant à proximité du trafic sur le territoire de la Métropole Rouen Normandie*. Atmo Normandie, 2018. URL <http://www.atmonormandie.fr/Publications/Publications-telechargeables/Rapports-etudes/Evaluation-de-la-qualite-de-l-air-ambiant-a-proximite-du-traffic-sur-le-territoire-de-la-Metropole-Rouen-Normandie-en-2017>. Rapport n°2030.001.
- E. Díaz-Francés and F. Rubio. On the existence of a normal approximation to the distribution of the ratio of two independent normal random variables. *Stat Papers*, 54 :309—323, 2013.
- European Commission. *IPR*. 2018. URL https://www.eionet.europa.eu/aqportal/doc/IPR%20guidance_2.0.1_final.pdf.
- I. Farrance and R. Frenkel. Uncertainty of Measurements : A Review of the Rules for Calculating Uncertainty Components through Functional Relationships. *Clin. Biochem. Rev.*, 33 :49–75, may 2012.
- A. Gomez-Pelaez, R. Ramos, V. Gomez-Trueba, P. Novelli, and R. Campo-Hernandez. A statistical approach to quantify uncertainty in carbon monoxide measurements at the Izaña global GAW station : 2008–2011. *Atmos. Meas. Tech.*, 6 :787–799, 2013.
- T. Hafkenscheid, A. Fromage-Mariette, E. Goelen, M. Hangartner, U. Pfeffer, H. Plaisance, F. de Santis, K. Saunders, W. Swaans, Y. Tang, C. van Hoek, and M. Gerboles. *Review of the application of diffusive samplers in the European Union for the monitoring of nitrogen dioxide in ambient air*. JRC Scientific and Technical Reports, 2009. URL https://publications.jrc.ec.europa.eu/repository/bitstream/JRC51106/reqno_jrc51106_eur_23793.pdf%5b1%5d.pdf. ISBN 978-92-79-12052-7.
- IPCC. *Climate Change 2021 : The Physical Science Basis. Contribution of Working Group I to the Sixth Assessment Report of the Intergovernmental Panel on Climate Change*. Cambridge University Press, 2021. V. Masson-Delmotte, P. Zhai, A. Pirani, S.L. Connors, C. Péan, S. Berger, N. Caud, Y. Chen, L. Goldfarb, M.I. Gomis, M. Huang, K. Leitzell, E. Lonnoy, J.B.R. Matthews, T.K. Maycock, T. Waterfield, O. Yelekçi, R. Yu, and B. Zhou (eds.).
- Passam AG. *Diffusion tube for Nitrogen dioxide*. 2020. URL https://www.passam.ch/wp-content/uploads/2020/11/SP01_NO2_Product-Sheet_2020_EN.pdf.
- UE. *Directive 2008/50/CE du Parlement et du Conseil concernant la qualité de l'air ambiant et un air pur pour l'Europe*. 2008. URL <https://eur-lex.europa.eu/legal-content/FR/TXT/PDF/?uri=CELEX:32008L0050&from=fr>.
- UE. *Décision d'exécution de la Commission du 12 décembre 2011 portant modalités d'application des directives 2004/107/CE et 2008/50/CE du Parlement européen et du Conseil concernant l'échange réciproque d'informations et la déclaration concernant l'évaluation de la qualité de l'air ambiant*. 2011. URL <https://eur-lex.europa.eu/legal-content/FR/TXT/?uri=CELEX:32011D0850>.



UE. *Directive (UE) 2015/1480 de la Commission du 28 août 2015 modifiant plusieurs annexes des directives du Parlement européen et du Conseil 2004/107/CE et 2008/50/CE*. 2015. URL <https://eur-lex.europa.eu/legal-content/FR/TXT/?uri=CELEX:32015L1480>.

WHO. *Air quality guidelines – global update 2005*. 2005. URL <https://www.who.int/airpollution/publications/aqg2005/en/>.

WHO. *Ambient (outdoor) air pollution*. 2021. URL [https://www.who.int/news-room/fact-sheets/detail/ambient-\(outdoor\)-air-quality-and-health](https://www.who.int/news-room/fact-sheets/detail/ambient-(outdoor)-air-quality-and-health).

