Le transfert extérieur/intérieur des polluants atmosphériques : approches statistiques et physiques utiles pour le calcul de l'exposition des populations

Transfer of air pollutants between outside and inside : Statistical and physical approaches useful to calculate population exposure

Alexis COPPALLE*, Pascal BEAUDEAU**, Véronique DELMAS***

Résumé

La connaissance précise et détaillée de la qualité de l'air intérieur est nécessaire pour déterminer l'exposition totale des populations à la pollution atmosphérique. La modélisation des transferts et du confinement permet de répondre à ce besoin. Toutefois, la quantification de l'exposition d'un grand nombre de personnes ne peut être réalisée qu'au moyen de modèles simples et opérationnels, qui utilisent deux notions importantes, le coefficient de pénétration (CP) défini par le rapport entre la concentration intérieure et la concentration extérieure, et le taux de renouvellement de l'air, Tra (h^{-1}), qui est le volume d'air échangé par unité de temps rapporté au volume du local. Il sera montré comment on peut déterminer ces deux paramètres, soit par la mesure, soit en utilisant un modèle physique, ou bien à l'aide d'un modèle statistique. Pour illustrer et critiquer chacune de ces méthodes, des résultats issus d'une étude réalisée dans une école et dans un logement de la ville du Havre sont présentés. Ils montrent que les deux approches sont en général équivalentes. Par contre, ils montrent que l'on doit remettre en cause la notion de coefficient de pénétration telle qu'elle est utilisée par les hygiénistes et qui repose sur l'hypothèse d'équilibre instantané entre l'extérieur et l'intérieur.

Abstract

Indoor air quality must be known accurately to determine the total exposure of people to the atmospheric pollution. Transfer of pollutants between outside and inside and their confinements can be modelled in order to calculate pollutant concentration inside houses and offices. However, the calculation must be carried out for a large number of persons and thus asking for simple and operational models. These are often based on two important notions, the penetration coefficient (CP), which is the ratio of indoor to outdoor pollutant concentration, and the air change per hour, Tra (h^{-1}), with outside. It is shown how to determine both parameters. The penetration coefficient CP is given directly from pollutant observations. The results can be used to fit a statistical model taking into account meteorological parameters. The air change per hour Tra can be determined from observations of tracer gas decrease in the office and it can be also given by using a simple physical model. In the latter approach, the air exchange between outside and inside is a function of the Tra parameter value and it is also function of the intensity of the pollutant sink inside the office. The results of a measurement campaign in a classroom and in a house are used to illustrate both experimental and theoretical approaches. Comparisons between calculated and observed indoor concentrations show the penetration coefficient CP and the air change Tra concepts give results with similar accuracy. On the other side, it is shown that the equilibrium assumption between outside and inside is not correct.

* *UMR 6614 CORIA – INSA de Rouen, Campus du Madrillet, av. de l'Université, BP 8, 76801 Saint-Étienne du Rouvray Cedex France* – coppalle@coria.fr

** *Ville du Havre* – p.beaudeau@invs.sante.fr

*** *Air Normand* – veronique.delmas@airnormand.asso.fr

Introduction

L'analyse des budgets espace-temps des citadins français montre qu'ils passent, dans leur majorité, plus de 80 % de leur temps à l'intérieur des locaux. Cette estimation doit être majorée pour les jeunes enfants, les personnes âgées et les malades [1]. La connaissance précise et détaillée de la qualité de l'air intérieur est donc nécessaire pour déterminer l'exposition totale des populations. Il existe beaucoup de sources intérieures de polluants qui sont nuisibles pour la santé [2, 3]. Il y a les émissions qui sont liées à l'activité des habitants (appareils de combustion, produits d'entretien) mais aussi les émissions des matériaux de construction. Un confinement important entraîne une accumulation de ces polluants à l'intérieur de locaux. À l'inverse lors des épisodes de pollution extérieure, ce même confinement devient une protection et il devient bénéfique. Il est donc important de savoir comment la pollution extérieure influence la qualité de l'air intérieur. Les transferts d'air entre l'extérieur et l'ensemble des zones intérieures sont complexes [4]. Le tirage entre l'extérieur et l'intérieur est assuré par une ventilation naturelle ou mécaniquement contrôlée, et dans ce cas elle est souvent dimensionnée à partir de considérations sur le confort thermique [5], ce qui peut donner une première estimation du confinement du local. Mais ces informations sont insuffisantes car les transferts évoluent dans le temps, soit à cause du vieillissement des locaux, soit à cause des habitudes de vie des occupants. De plus, la concentration de certains polluants varie sous les effets conjugués de la déposition, de l'adsorption ou de la chimie.

Une étude épidémiologique doit en principe être basée sur un grand nombre d'individus. Concernant la qualité de l'air intérieur, cela devrait imposer de connaître dans le détail les caractéristiques de tous les locaux occupés, ce qui est techniquement et financièrement impossible. La modélisation des transferts et du confinement apporte des éléments pour répondre à ce besoin. Toutefois, la quantification de l'exposition d'un grand nombre de personnes ne peut être réalisée qu'au moyen de modèles de transfert simples et opérationnels [6], qui utilisent deux notions importantes, le coefficient de pénétration (CP) défini par le rapport entre la concentration intérieure et la concentration extérieure et le taux de renouvellement de l'air, Tra (h^{-1}).

Dans cet article, il sera montré comment on peut déterminer ces deux paramètres, soit par la mesure, soit en utilisant un modèle physique simple des transferts extérieur/intérieur, ou bien à l'aide des outils statistiques. Pour illustrer et critiquer chacune de ces méthodes, des résultats issus d'une étude réalisée dans une école et dans un logement de la ville du Havre seront présentés [7]. Enfin une discussion montrera le lien qui existe entre les deux paramètres, le coefficient de pénétration CP et le taux de renouvellement de l'air Tra.

La mesure du taux de renouvellement de l'air

Ce paramètre apparaît quand on écrit le bilan d'un polluant dans un local dont la concentration C_{in} varie uniquement sous l'effet des transferts avec l'extérieur

$$\frac{dC_{in}}{dt} = Tra(C_{ex} - C_{in}),$$

C_{ex} étant la concentration extérieure. Tra, le taux de renouvellement de l'air, est donc égal à Tra=Q/V, Q étant le débit de l'air entrant et V le volume de la pièce. Ce modèle physique ne considère qu'une seule zone qui échange avec l'extérieur. Il suppose aussi que la concentration intérieure est homogène. Un modèle plus complet d'advection-diffusion nécessiterait le maillage de l'espace et l'usage d'équations aux dérivées partielles. Cette approche, bien que plus précise dans le calcul des ambiances intérieures, ne fournit pas des résultats directement exploitables pour la quantification des expositions intérieures. Le modèle à une zone permet de réaliser une analyse simplifiée de la ventilation dans un local et il est un bon compromis entre une description plus complète multizones [7-9] et la notion de coefficient de pénétration $CP = C_{in}/C_{ex}$.

Si la concentration extérieure ne varie pas au cours du temps, l'évolution de C_{in} est donnée par

$$Ln(C_{in}(t) - C_{ex}) = Tra\ t + Ln(C_{in}(t = 0) - C_{ex}).$$

La pente de cette droite fournit la valeur de Tra (h^{-1}). N'importe quel gaz passif peut être utilisé pour ajuster cette droite. Le CO_2 est un bon indicateur de la présence des occupants et du confinement des locaux. L'utilisation du CO_2 comme gaz traceur permet donc de quantifier le taux de renouvellement de l'air Tra. L'avantage de cette technique est qu'elle est facile à appliquer et peu coûteuse. Elle a été utilisée dans le cas de l'étude sur le Havre [10]. La figure 1 ci-contre, montre un exemple d'échantillons obtenus dans une salle de classe (pas de temps d'échantillonnage : 15 min). À partir du moment où les occupants sortent, on observe une décroissance exponentielle de la teneur en CO_2. Si une fenêtre est ouverte, cette décroissance sera renforcée. Chaque décroissance permet le calcul de la valeur de Tra pendant cet intervalle de temps.

Avec cette méthode, la détermination de Tra est intermittente. Par exemple, sur l'ensemble de la période d'analyse dans la salle de classe, du 28-2-1999 au 10-3-1999, seulement 29 cas ont été exploitables. De plus, il faut que la décroissance soit définie sur un temps suffisant (de l'ordre de 1 heure environ) sinon la précision est dégradée. L'incertitude est plus grande pour les fortes valeurs de Tra puisque l'intervalle de décroissance est réduit (ordre de grandeur de l'incertitude : >50 % pour Tra >2). Les valeurs de Tra obtenues dans la salle de classe sont reportées sur la figure 2 ci-contre. La valeur moyenne est égale à 0,98 mais la variabilité des résultats est grande, l'écart type valant 0,59. Pour les autres logements

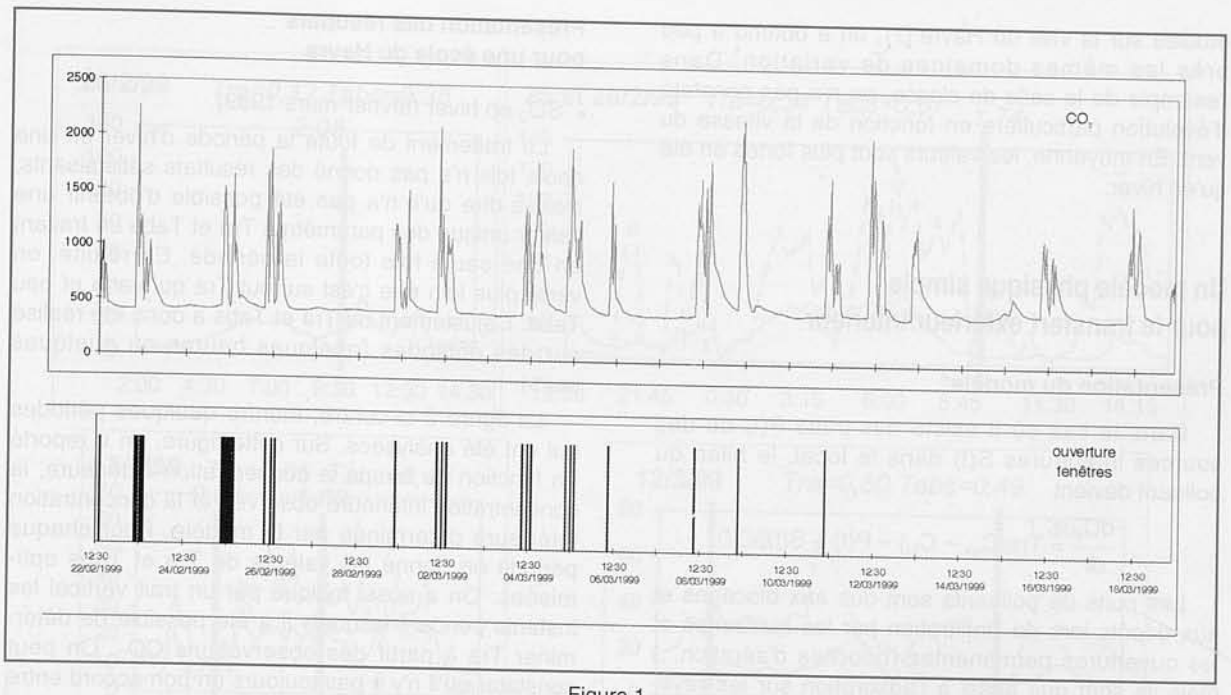

Figure 1.
Chronique du CO_2 observé dans une salle de classe.
CO_2 time series observed in a classroom.

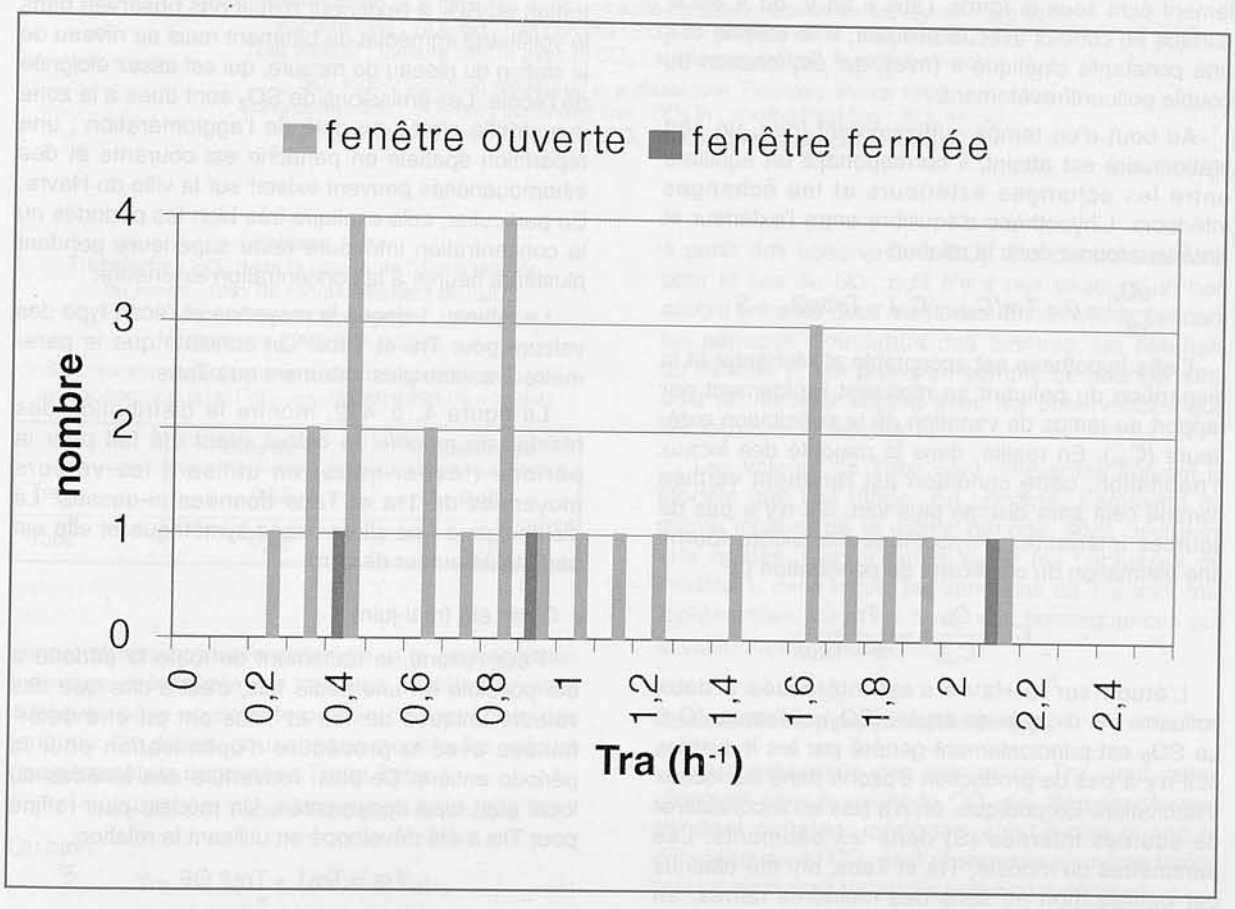

Figure 2.
Distribution des valeurs de Tra obtenues avec le CO_2 dans la salle de classe de l'école pendant la campagne d'hiver.
Tra distribution values obtained with CO_2 in a classroom during winter.

étudiés sur la ville du Havre [7], on a obtenu à peu près les mêmes domaines de variation. Dans l'exemple de la salle de classe, on n'a pas constaté d'évolution particulière en fonction de la vitesse du vent. En moyenne, les valeurs sont plus fortes en été qu'en hiver.

Un modèle physique simple pour le transfert extérieur/intérieur

Présentation du modèle

Dans le cas où il existe des puits P(t) ou des sources intérieures S(t) dans le local, le bilan du polluant devient

$$\frac{dC_{in}}{dt} = Tra(C_{ex} - C_{in}) - P(t) + S(t),$$

Les puits de polluants sont dus aux blocages et aux dépôts lors de l'infiltration par les huisseries et les ouvertures permanentes (bouches d'aération...) mais ils sont dus aussi à l'adsorption sur les revêtements des murs. Ces phénomènes sont pris globalement en compte grâce à une cinétique d'ordre 1, c'est-à-dire que la quantité adsorbée par unité de temps est proportionnelle à la concentration. On a alors $\Sigma P = Tabs\ C_{in}$. Le paramètre Tabs est généralement écrit sous la forme Tabs = kA/V, où A est la surface en contact avec le polluant, V le volume et k une constante cinétique k (m/s), qui est fonction du couple polluant/revêtement.

Au bout d'un temps suffisamment long, un état stationnaire est atteint, il correspond à un équilibre entre les échanges extérieurs et les échanges intérieurs. L'hypothèse d'équilibre entre l'extérieur et l'intérieur fournit donc la relation

$$\frac{dC_{in}}{dt} = 0 = Tra(C_{ext} - C_{in}) - TabsC_{in} + S$$

Cette hypothèse est acceptable si l'échange et la disparition du polluant se réalisent rapidement par rapport au temps de variation de la sollicitation extérieure (C_{ex}). En réalité, dans la majorité des locaux d'habitation, cette condition est rarement vérifiée comme cela sera discuté plus loin. S'il n'y a pas de sources intérieures, l'hypothèse d'équilibre fournit une estimation du coefficient de pénétration CP :

$$CP = \frac{C_{in}}{C_{ext}} = \frac{Tra}{Tra + Tabs}$$

L'étude sur le Havre s'est intéressée à deux polluants : le dioxyde de soufre (SO_2) et l'ozone (O_3). Le SO_2 est principalement généré par les industries et il n'y a pas de production d'ozone dans les locaux d'habitation. En pratique, on n'a pas eu à considérer de sources internes (S) dans les bâtiments. Les paramètres du modèle, Tra et Tabs, ont été obtenus par optimisation au sens des moindres carrés, en minimisant la fonction erreur entre les concentrations observées et calculées. Il est à noter que Tra est indépendant du polluant, tandis que Tabs l'est.

Présentation des résultats pour une école du Havre

- SO_2 en hiver (février-mars 1999)

Le traitement de toute la période d'hiver en une seule fois n'a pas donné des résultats satisfaisants, c'est-à-dire qu'il n'a pas été possible d'obtenir une valeur unique des paramètres Tra et Tabs en traitant en une seule fois toute la période. En réalité, on verra plus loin que c'est surtout Tra qui varie et peu Tabs. L'ajustement de Tra et Tabs a donc été réalisé sur des épisodes (quelques heures ou quelques jours).

La figure 3 ci-contre, montre quelques périodes qui ont été analysées. Sur cette figure, on a reporté en fonction du temps la concentration extérieure, la concentration intérieure observée et la concentration intérieure déterminée par le modèle. Pour chaque période on donne les valeurs de Tra et Tabs optimisées. On a aussi indiqué par un trait vertical les instants pendant lesquels il a été possible de déterminer Tra à partir des observations CO_2. On peut constater qu'il n'y a pas toujours un bon accord entre les résultats des deux méthodes.

Dans l'ensemble, le modèle physique détermine assez bien la concentration intérieure. Toutefois pour les heures de la nuit du 26-2, l'écart est assez important. Ceci pourrait être expliqué par le fait que la concentration en SO_2 à l'extérieur n'était pas observée dans le voisinage immédiat du bâtiment mais au niveau de la station du réseau de mesure, qui est assez éloignée de l'école. Les émissions de SO_2 sont dues à la zone industrielle située au-delà de l'agglomération ; une répartition spatiale en panache est courante et des inhomogénéités peuvent exister sur la ville du Havre. En particulier, cela explique très bien les périodes où la concentration intérieure reste supérieure pendant plusieurs heures à la concentration extérieure.

Le tableau 1 donne la moyenne et l'écart type des valeurs pour Tra et Tabs. On constate que le paramètre Tra varie plus fortement que Tabs.

La figure 4, p. 412, montre la distribution des résidus du modèle, le calcul ayant été fait pour la période (février-mars) en utilisant les valeurs moyennes de Tra et Tabs données ci-dessus. La distribution a une allure assez symétrique et elle est peu étalée autour de zéro.

- O_3 en été (mai-juin)

Pour l'ozone, le traitement de toute la période a été possible en une seule fois, c'est-à-dire que des valeurs uniques de Tra et Tabs ont pu être déterminées avec la procédure d'optimisation pour la période entière. De plus, l'ouverture des fenêtres du local était bien documentée. Un modèle plus raffiné pour Tra a été développé en utilisant la relation

$$Tra = Tra1 + Tra2\ OF$$

où OF = 0 ou 1 pour une fenêtre respectivement fermée ou ouverte. La figure 5, p. 412, montre en fonction du temps la concentration extérieure, la

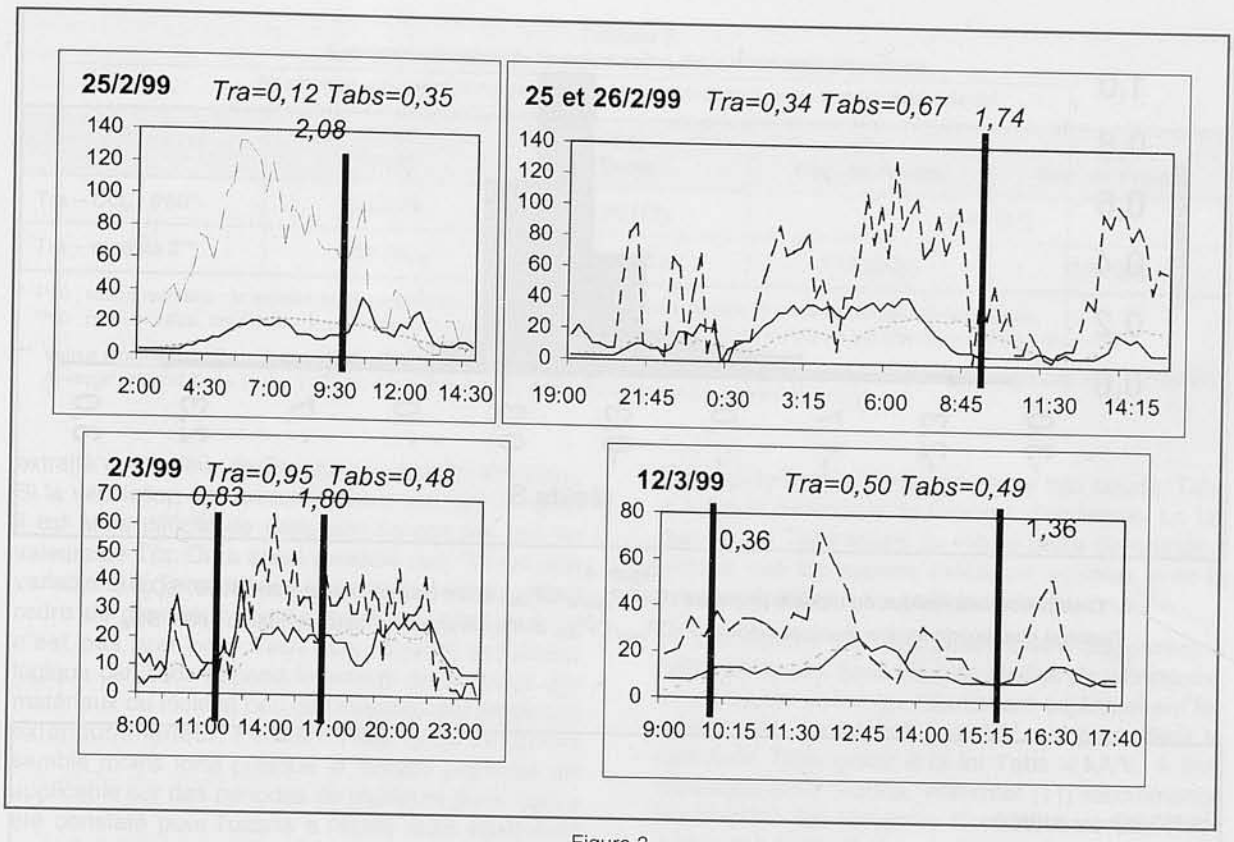

Figure 3.
Pollution intérieure en SO_2 mesurée dans une salle de classe, école Herriot, février-mars 1999.
Pointillé long : SO_2 ext ; trait continu : SO_2 int ; pointillé court : SO_2 modèle.
Trait vertical : mesure de Tra avec le CO_2 ; au-dessus du trait, la valeur associée.

SO_2 indoor pollution measured in a classroom, February-March 1999.
Long dotted line : SO_2 out ; continued line : SO_2 in ; short dotted line : SO_2 model.
Vertical lines : Tra measured with CO_2 ; above lines are reported values.

Tableau 1.
Transfert de SO_2 dans la classe de l'école Herriot du Havre : taux de renouvellement de l'air et coefficient d'absorption, février-mars 1999 (N = 2 264).

SO_2 transfer in a classroom : air change rate per hour and absorption rate, February-March 1999 (N = 2 264).

	Moyenne	Écart type
Tra	0,52	0,48
Tabs	0,46	0,16

concentration intérieure observée et la concentration intérieure déterminée par les deux modèles, c'est-à-dire avec prise en compte ou non de l'ouverture des fenêtres. On donne, pour chaque modèle, les valeurs des paramètres optimisées Tra et Tabs.

Tra = 3,83 et Tabs = 6,60 pour le modèle 1

Ou bien

Tra = 0,83 + 1,49*OF et Tabs
= 1,64 pour le modèle 2

On a aussi indiqué par un trait vertical les instants pendant lesquels il a été possible de déterminer Tra à partir des observations CO_2. On constate comme pour le cas du SO_2 qu'il n'y a pas toujours un bon accord entre les deux méthodes. En revanche, pendant les périodes d'ouverture des fenêtres, les résultats du modèle 2, qui prend en compte ce changement, sont en meilleur accord avec les observations que les résultats du modèle 1.

Les valeurs de Tabs sont différentes suivant le modèle que l'on utilise. En principe, s'agissant du même local et de la même période, elles devraient être égales. Ceci s'explique par les faiblesses du modèle 1, dans lequel les variations de Tra sont mal représentées, ce qui a aussi des conséquences sur la valeur optimisée de Tabs.

Comparaison avec la méthode CO_2

La comparaison des valeurs de Tra avec celles obtenues avec la méthode CO_2 n'a été possible que pendant certaines périodes, c'est-à-dire quand la décroissance du CO_2 était observable en même temps que se produisait un pic de pollution extérieure.

De par son principe, la méthode avec le CO_2 représente une valeur de Tra échantillonnée sur une période plus courte que celle pendant laquelle est

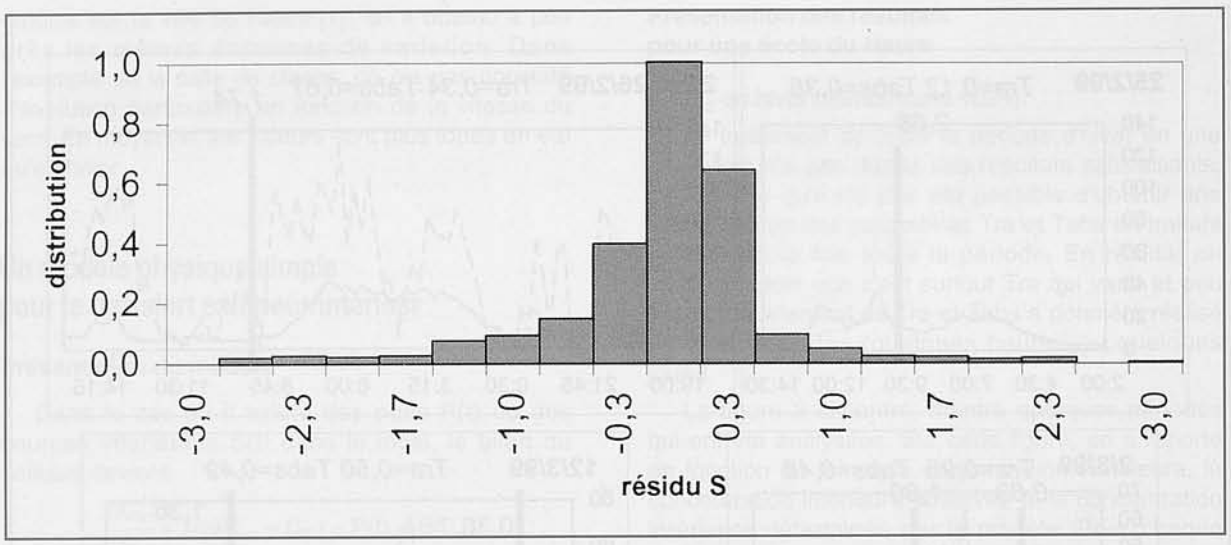

Figure 4.
Distribution des résidus du modèle physique : $S=CP_{estimé}-CP_{obs}$, école Herriot, février-mars 1999, SO_2.
Residue distribution for the physical model : $S=CP_{mod}-CP_{obs}$, in the classroom, February-March 1999, SO_2.

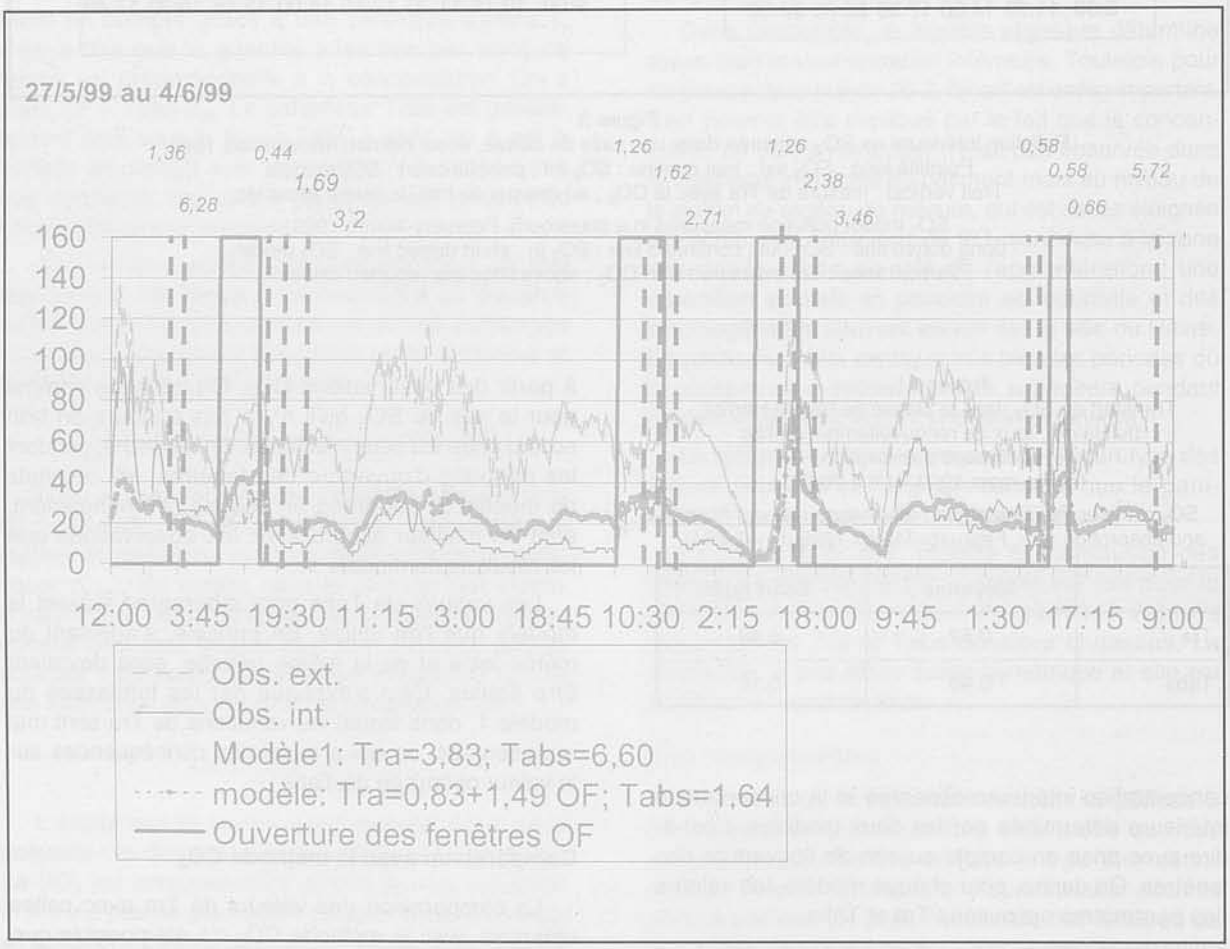

Figure 5.
École Herriot, juin 1999, pénétration de l'ozone.
Pointillé long : O_3 ext ; trait continu : O_3 int ; pointillé court : modèles.
Trait vertical : mesure de Tra avec le CO_2 ; au-dessus du trait, la valeur associée.
O_3 indoor pollution measured in a classroom, June 1999.
Long dotted line : O_3 out ; continued line : O_3 in ; short dotted line : O_3 model.
Vertical lines : Tra measured with CO_2 ; above lines are reported values.

Tableau 2.
Estimation du taux de transfert selon deux méthodes physiques.
Air change rate per hour given by direct observation and by the physical model.

	Hiver École	Été École	Été Rés. de France	Été Rés. de France
Tra – CO_2 : P50*	0,50 (29)	0,70 (17)	0,60 (51)	
Tra – modèle 2**	0,52 (SO_2)	1,04 (O_3)	1,15 (SO_2)	0,32 (O_3)

* P50 : valeur médiane ; le nombre entre parenthèses représente le nombre d'épisodes ou la méthode a pu être appliquée.
P50 : median value, the number in parentheses is the number of episodes during which the tracer gas decrease could be observed.

** Valeur moyenne de Tra = Tra1 + OF*Tra2 (modèle 2) sauf pour l'épisode d'hiver à l'école (moyenne sur les valeurs obtenues avec le modèle1).
Average value of Tra = Tra1 + OF*Tra2 (model 2), except during the winter episode in the classroom.

extraite une valeur de Tra avec le modèle physique. Si la ventilation des locaux en hiver est très variable, il est alors difficile de comparer au cas par cas les valeurs de Tra. On a aussi constaté que Tra est plus variable que Tabs. L'écart type de Tra est du même ordre de grandeur que la moyenne, alors que ce n'est pas vrai pour Tabs. Ce résultat est assez logique car Tabs dépend fortement de la nature des matériaux du local et peu de l'intensité des échanges extérieur/intérieur. Pendant l'été, cette variabilité semble moins forte puisque le modèle physique est applicable sur des périodes de plusieurs jours, ceci a été constaté pour l'ozone à l'école mais également pour d'autres logements.

En général, les valeurs moyennes obtenues par les deux approches sont assez concordantes, comme on peut le voir dans le tableau 2 pour l'école Herriot. Mais pour d'autres habitations, la comparaison n'a pas été aussi satisfaisante, comme le montre le cas du logement de la « Résidence de France ».

Comparaison des résultats obtenus à partir du SO_2 et de l'ozone

L'avantage du modèle physique est qu'il permet d'estimer simultanément Tra et Tabs, ce dernier paramètre représentant l'intensité des puits. Le tableau 3 rassemble les valeurs moyennes de Tra et Tabs qui ont pu être extraites avec le modèle 2 pour l'école et le logement.

On constate que Tra est du même ordre de grandeur que Tabs. Or Tra, qui est égal à Q/V, est le nombre de fois par heure où le volume de la pièce est échangé avec l'extérieur. Ce paramètre est l'inverse d'un temps caractéristique d'échange. Une grande valeur de Tra indique que les échanges se font rapidement et dans des temps très courts. Tabs a aussi la dimension de l'inverse d'un temps. Le fait que Tra et Tabs soient du même ordre de grandeur indique que les apports extérieurs agissent avec la même rapidité que les phénomènes de « puits ».

Les valeurs de Tabs peuvent être comparées à celles obtenues dans d'autres études de laboratoire, en particulier celles qui fournissent explicitement les valeurs des paramètres k et A/V, qui permettent le calcul de Tabs grâce à la loi Tabs = kA/V. À titre d'exemple pour l'ozone, Weschler [11] recommande la valeur $k = 3,6\ 10^{-4}$ (m/s). Comme dans cette étude $A/V = 2,9$ (m^2/m^3), on obtient Tabs = 3,8, valeur supérieure à celles présentées dans le tableau 3. Avec les informations disponibles, il n'est pas possible de conclure. Des études du Centre scientifique et technique du bâtiment (CSTB) [2] montrent qu'il est difficile de généraliser des observations obtenues sur un revêtement particulier à d'autres matériaux.

Dans un modèle physique à une zone, le local est supposé échanger avec un unique environnement. Ce qui est assez grossier car il y a des échanges avec l'extérieur mais aussi avec d'autres parties du bâtiment où il n'y a pas forcément la même pollution ni la même intensité d'échange [4-5]. Dans le modèle à une zone, toutes les variations de concentration en polluant observées dans le local doivent être représentées par seulement deux paramètres Tra et Tabs. La dynamique du système réel admet certainement d'autres degrés de liberté. Ceci est d'ailleurs corroboré par les résultats de la méthode d'optimisation. Le couple de valeurs (Tra,Tabs), qui minimise l'erreur, n'est pas unique. Notons que l'approche simplifiée du modèle à une zone est peut-être plus justifiée dans

Tableau 3.
Taux de transfert et taux d'absorption estimés dans le modèle physique prenant en compte l'ouverture des fenêtres.
Air change and absorption rates given by the physical model which takes into account the window opening.

	SO_2 hiver École	SO_2 été Rés. de France	O_3 été École	O_3 été Rés. de France
Tra	0,52	1,15	1,04	0,32
Tabs	0,46	2,79	1,64	0,82

les logements modernes. En effet, la ventilation est souvent mécaniquement contrôlée et les mouvements d'air se font préférentiellement des salles de vie (salon, salle à manger, chambres) vers la cuisine ou la salle de bains [4-5]. Ces pièces apportent peu de pollution dans les salles de vie.

Un modèle statistique de la pénétration des polluants dans les bâtiments

Modèle et algorithme de calcul

La figure 6 montre la distribution conjointe $[SO_2]_{ex}/[SO_2]_{in}$ dans le cas de l'école et en hiver. $[SO_2]_{ex}$ et $[SO_2]_{in}$ sont des processus autorégressifs d'ordre un (AR1) très typiques avec des coefficients d'autocorrélation partielle (PAC) d'ordre 1 égaux à 0,90 et 0,96 respectivement et des PAC d'ordre 2 et plus ne différant pas significativement de 0. On observe aussi une rémanence plus forte de $[SO_2]_{in}$ que $[SO_2]_{ex}$, due au confinement. La fonction de corrélation croisée entre deux variables liées dans le temps donne une idée de la latence entre le stimulus et la réponse. Dans le cas de variables très autocorrélées (les concentrations en polluant, par exemple), il est utile de différencier avant croisement. Le corrélogramme (Figure 7, ci-contre) montre que la pénétration du SO_2 accuse une latence moyenne de 15 min avec des variations allant de 0 et 30 min selon les conditions d'aération de la salle de classe. Dans la mesure où le délai varie, le processus conjoint ($[SO_2]_{in}$, $[SO_2]_{out}$) ne peut être considéré comme strictement stationnaire.

Dans l'étude du Havre, c'est le coefficient de pénétration $CP = C_{in}/C_{ex}$ ($C = O_3$ ou SO_2) qui a été choisi comme variable cible, pour plusieurs raisons :

- la variable $[C]_{in}$ est hautement autocorrélée (par exemple, le coefficient de régression linéaire entre $[C]_{in}(t)$ et $[C]_{in}(t-1)$ est proche de 1, ce qui peut poser un problème de stabilité des valeurs des coefficients à ajuster, sauf à différencier. Comparativement, l'autocorrélation de CP est moins élévée avec un coefficient autorégressif d'ordre 1 avoisinant 0,5 ;
- sans être assimilable à une gaussienne, la distribution de CP se rapproche plus d'une gaussienne que celle de $[C]_{in}$. Le recours au critère des moindres carrés pour l'ajustement du modèle est donc plus acceptable ;
- le choix de CP permet enfin la comparaison avec les données de la littérature, cet indicateur y étant d'un usage courant.

Le modèle statistique est un modèle de régression linéaire multiple :

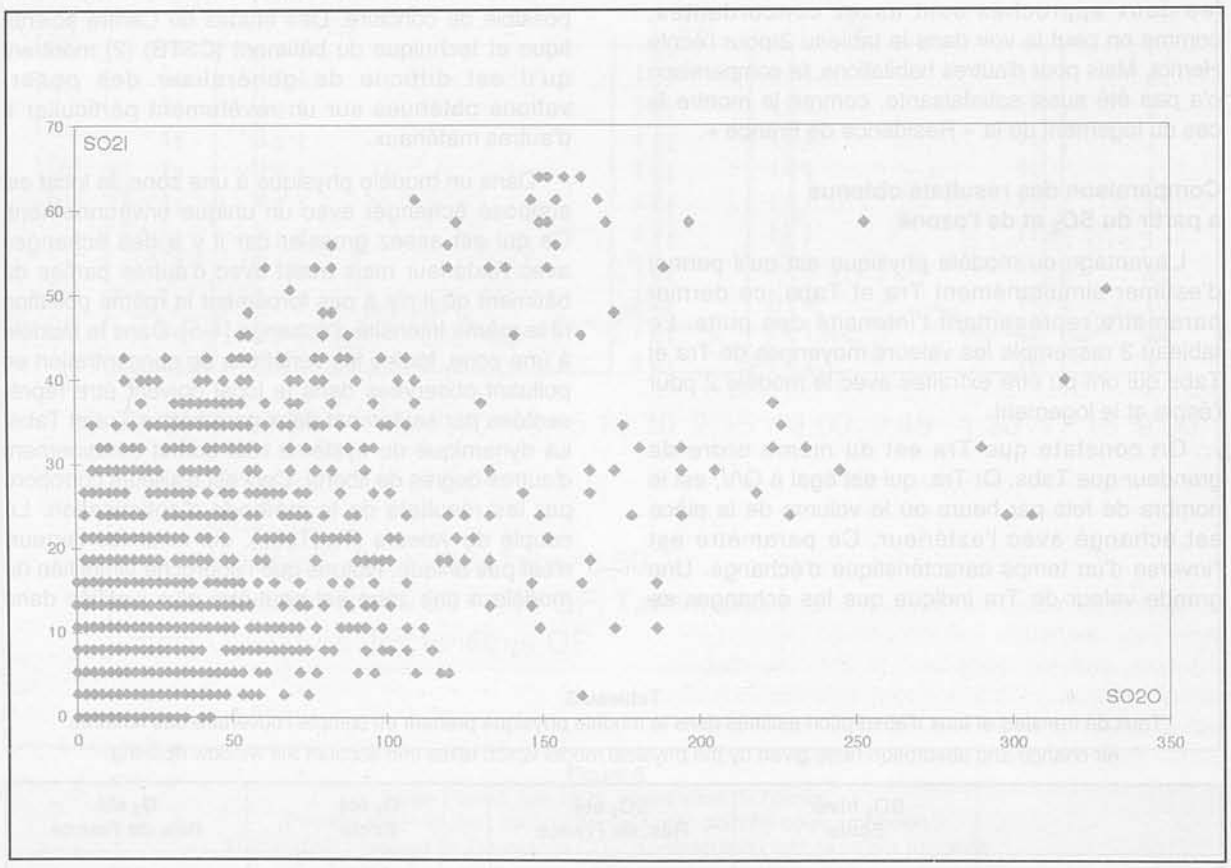

Figure 6.
Distribution conjointe $[SO_2]_{ex}/[SO_2]_{in}$ (2 334 points), école Herriot, février-mars 1999.
Plot of SO_2in as a function of SO_2out (2 334 points), Herriot school in February-March 1999.

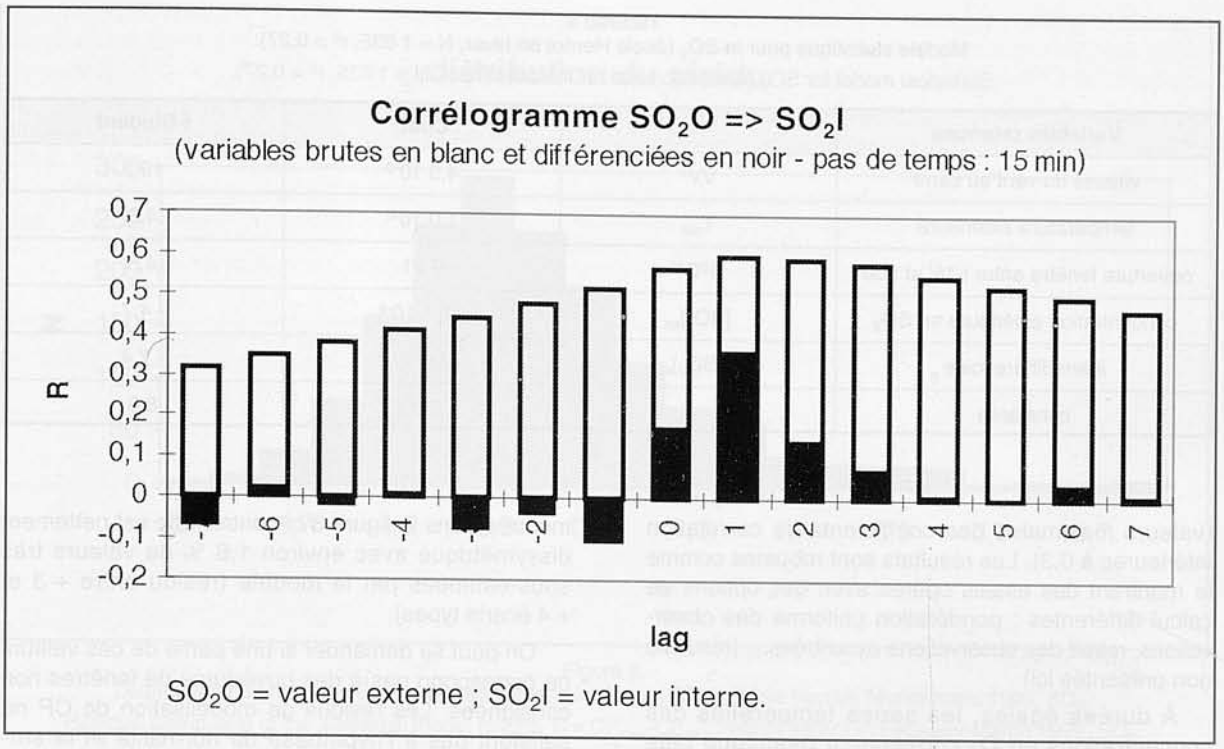

Figure 7.
École Herriot, février-mars 1999, SO_2.
Herriot school in February-March 1999.

$$CP = a_1VAR1 + a_2VAR2 + ... + RES$$

où VAR symbolise les covariables pertinentes retenues dans le modèle et RES le résidu de modélisation. Les coefficients a_i sont des valeurs optimisées selon le critère des moindres carrés. L'intégration des variables se fait pas à pas, selon la procédure REGRESSION de SPSS™.

Les observations servant à l'ajustement du modèle sont pondérées en fonction de la fiabilité et de la précision des mesures constitutives de CP. Si les concentrations extérieures sont inférieures à 2 fois la limite de détection (LD_{SO2} = 3 µg m^{-3} LD_{O3} = 4 µg m^{-3}), l'observation n'est pas prise en compte (w = 0). Si 0,1<CPobs<0,9 et si les concentrations intérieures sont strictement supérieures à la limite de détection, alors l'observation compte double (w = 2). Dans les autres cas, le poids de l'observation n'est pas modifié (w = 1).

Le choix des covariables candidates s'est appuyé sur les considérations suivantes :

• *disponibilité des variables.* Les variables inobservables en routine telles que les concentrations intérieures en polluants (SO_2, O_3 et CO_2), ou, en généralisation, l'orientation du bâtiment par rapport au vent, sont écartées de l'ensemble des variables candidates. Le modèle peut ainsi être étendu à l'ensemble des logements ;

• *plausibilité physique.* La température extérieure influence à la fois les habitudes d'aération et l'écoulement de l'air (effet de tirage). L'effet du passé des concentrations (démontré dans la modélisation physique) est pris en compte à travers la valeur différenciée de la concentration extérieure, retenue comme covariable du modèle. Le terme quadratique du vent est plus efficace que la variable d'origine, ce qui est conforme aux phénomènes physiques sous-jacents. La recherche de la plausibilité physique trouve cependant sa limite dans l'expression du modèle qui reste additive (OF et VV^2, par exemple) alors que la pénétration des polluants apparaît plutôt comme le produit d'un terme représentant la perméabilité intrinsèque du bâtiment (constante, OF) par un terme représentant la capacité de l'atmosphère à engendrer un échange (VV^2, T_{out}...). Cette dernière expression ne conduit pas à un gain dans la qualité de l'ajustement. Le tableau 4, p. 416, donne les variables retenues et les coefficients du modèle.

Les variables sensibles du modèle sont l'ouverture des fenêtres et la vitesse du vent au carré. Dans l'exemple de l'école Herriot en hiver, le fait d'ouvrir les fenêtres multiplie par 2 la valeur de CP de base. Si le vent forcit du percentile 10 % de la distribution de sa vitesse (VV = 1,4 m s^{-1}) jusqu'au percentile 90 % (VV = 8,8 m s^{-1}), alors la valeur de CP augmente de 0,35.

Qualité du modèle

Une analyse a montré que les covariables incorporées dans le modèle sont peu corrélées entre elles

Tableau 4.
Modèle statistique pour le SO_2 (école Herriot en hiver, N = 1 635, r^2 = 0,27).
Statistical model for SO_2 (winter episode for the classroom, N = 1 635, r^2 = 0,27).

Variables retenues		Coef.	t-Student
vitesse du vent au carré	VV^2	$4{,}5\ 10^{-3}$	19,2
température extérieure	T_{out}	$1{,}0\ 10^{-2}$	4,6
ouverture fenêtre entre t-15' et t-30'	B^2OF	0,21	4,5
concentration extérieure en SO_2	$[SO_2]_{ex}$	$-\ 8{,}1\ 10^{-4}$	- 4,7
idem différenciée	$D[SO_2]_{ex}$	$-\ 2{,}9\ 10^{-3}$	- 7,4
constante		0,20	8,8

(valeurs maximales des coefficients de corrélation inférieures à 0,3). Les résultats sont robustes comme le montrent des essais opérés avec des options de calcul différentes : pondération uniforme des observations, retrait des observations excentrées... (résultats non présentés ici).

À durées égales, les séries temporelles des concentrations en O_3 contiennent beaucoup plus d'informations utilisables pour la modélisation des transferts de polluant que les séries temporelles de SO_2, car la fréquence des concentrations significatives de SO_2 est faible (Tableau 5). Les valeurs de CP supérieures à 1 indiquent la persistance d'une pollution intérieure à un niveau supérieur à celui de la pollution extérieure. Cette situation est plus rare pour O_3 que pour SO_2. Cette rémanence est aussi une source de perturbation dans le développement du modèle statistique.

Les limites du modèle sont peut-être dues à l'oubli de certaines variables significatives ou à des relations CP/covariables non linéarisables. À ce sujet, l'emploi des modèles neuronaux est à envisager et devrait améliorer la prédiction. La distribution des résidus est montrée dans la figure 8 ci-contre. Elle est nettement dissymétrique avec environ 1,6 % de valeurs très sous-estimées par le modèle (résidu entre + 3 et + 4 écarts types).

On peut se demander si une partie de ces valeurs ne correspond pas à des ouvertures de fenêtres non consignées. Les résidus de modélisation de CP ne satisfont pas à l'hypothèse de normalité et la surdispersion reste importante (les probabilités données par le test de Kolmogorov-Smirnov sont de l'ordre de 10^{-3}). Gérer cette surdispersion a procédé de l'élimination des observations les plus dispersées plutôt que de la recherche d'un critère plus robuste que celui des moindres carrés. En effet, les écarts semblent plus attribuables à des situations mal documentées (courants d'air, présence de fumeurs...) qu'à des problèmes de définition du modèle.

Tableau 5.
Qualité du modèle de CP ; r^2 est la part de variance expliquée par le modèle, freq|w = 0 est la fréquence des observations non prises en compte dans l'ajustement du modèle du fait de concentrations non détectables.
Accuracy of the CP statistical model ; r^2 is part of the variance given by the model, freq|w = 0 is the frequency of the observations not taken into account in the optimisation process of the statistical model parameters, due to undetectable concentrations.

	N	freq|w = 0	r^2
École **SO_2 hiver**	2 234	27 %	0,27
RF **SO_2 hiver**	1 341	44 %	0,04
École **SO_2 été**	1 336	42 %	0,47
RF **SO_2 été**	1 533	51 %	0,26
École **O_3 été**	1 336	3 %	0,49
RF **O_3 été**	1 533	4 %	0,22

Discussion

Pour analyser le confinement des polluants dans les locaux, trois approches complémentaires peuvent être utilisées : une méthode expérimentale qui fournit la valeur du taux (Tra) de renouvellement d'air, une modélisation physique et une modélisation statistique des chronologies de la pollution intérieure.

La mesure du confinement avec un traceur est fiable. Avec suffisamment de moyens, la mesure est précise. Mais elle est très intermittente et souvent les conditions d'observation sont particulières, comme c'est le cas avec le CO_2. De plus, elle n'apporte pas de connaissances sur l'intensité des puits de polluants dans le local. Les informations recueillies sont partielles et elles ne sont pas directement exploitables dans les analyses de l'exposition des populations.

La modélisation physique ou l'approche statistique fournissent des résultats plus facilement exploitables. La comparaison de la figure 4, p. 412, avec la figure 8 ci-contre, montre un exemple (école Herriot, SO_2 hiver) pour lequel la modélisation physique (avec un couple unique de valeurs Tra et Tabs) est légèrement plus performante que

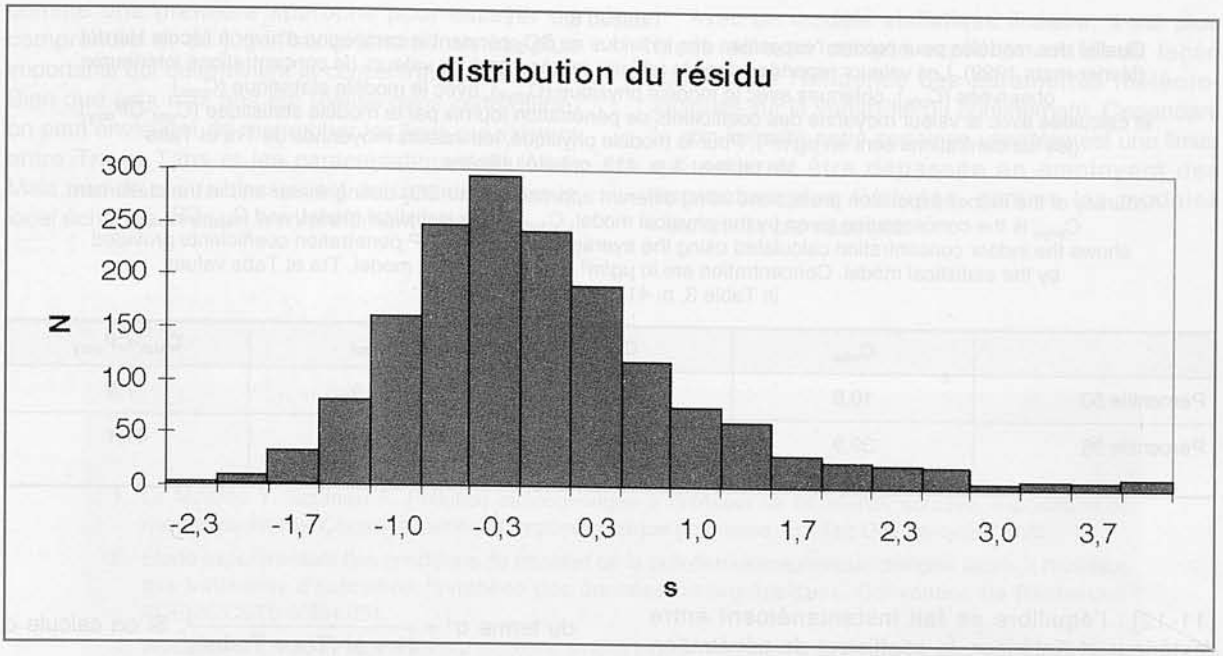

Figure 8.
Distribution des résidus du modèle statistique $S = CP_{estimé}-CP_{obs}$, école Herriot, février-mars 1999, SO_2.
Residue distribution of the statistical model results, $S = CP_{mod}-CP_{obs}$, Herriot school in February-March 1999, SO_2.

l'approche statistique. Mais les deux approches sont en général équivalentes. Chacune d'elles a des avantages et des inconvénients. Par exemple, avec l'approche statistique, il est aisé de faire apparaître explicitement et de façon robuste l'influence des paramètres météorologiques ou celle liée aux habitudes de vie des occupants (ouverture des fenêtres) sur la variabilité du confinement. L'avantage de l'approche physique est qu'il est possible d'estimer les deux paramètres qui caractérisent l'essentiel des phénomènes agissant sur les polluants, le transfert extérieur/intérieur et les puits. Le modèle proposé repose sur un couple unique de valeur de Tra et Tabs, où Tra peut être une fonction de la variable indiquant l'ouverture des fenêtres. Bien qu'il soit assez rudimentaire, il apporte des informations utiles. En particulier, on s'aperçoit que les effets des puits pour le SO_2 et l'ozone sont aussi importants que les transferts. Un modèle complet devient rapidement compliqué, voire hypertrophié si on veut qu'il serre la réalité. Son développement est conditionné par la collecte d'autres variables et d'autres enregistrements sur une longue période. Chaque bâtiment possédant sa propre architecture, la généralisation d'un modèle complet à un parc de logement d'une agglomération devient cependant impossible.

L'approche de l'exposition réelle pose la question suivante : quelle doit être la précision souhaitée au niveau de la quantification du confinement ? La réponse est fonction du résultat attendu dans les études épidémiologiques. Par exemple, il n'est pas certain que la variabilité horaire du confinement soit toujours nécessaire, en particulier pour les polluants agissant sur le long terme. Il est plus difficile de modéliser les fortes expositions que les valeurs moyennes, donc la variabilité à court terme des expositions est mal représentée par les deux approches physique ou statistique, car celles-ci ne permettent pas de capter les événements rares. Le tableau 6, p. 418, montre les valeurs de l'exposition intérieure obtenues avec le modèle physique ou le modèle statistique pour le SO_2 et à l'école Herriot. Le percentile 50 représente une exposition médiane alors que le percentile 90 fournit une estimation des expositions les plus fortes donc une description des événements les plus rares. Comme cela a été constaté sur les figures 4, p. 412 et 8, le modèle statistique a tendance, pour cette période d'observation, à sous-estimer l'exposition intérieure moyenne. En revanche, les expositions extrêmes, au sens du percentile 95, sont mieux déterminées par cette approche.

Il faut souligner que la démarche présentée ici n'est pas une validation complète de l'approche physique ou statistique, car on a analysé les performances des modèles uniquement sur les résultats expérimentaux qui ont servi à déterminer leurs paramètres. La validation absolue serait réalisée par comparaison avec d'autres données expérimentales. Dans cette analyse, il s'agissait de présenter comment on peut déterminer Tra ou CP à partir d'un jeu de données observées et de montrer les performances relatives des différentes approches décrites ci-dessus.

Les résultats présentés dans cette étude montrent que l'on doit remettre en cause la notion de coefficient de pénétration telle qu'elle est utilisée par les hygiénistes et qui repose sur les hypothèses suivantes

Tableau 6.
Qualité des modèles pour prédire l'exposition des individus au SO_2 pendant la campagne d'hiver à l'école Herriot (février-mars 1999). Les valeurs reportées dans le tableau représentent les valeurs de concentrations intérieures observées (C_{obs}), obtenues avec le modèle physique (C_{phys}), avec le modèle statistique (C_{stat}) et calculées avec la valeur moyenne des coefficients de pénétration fournis par le modèle statistique (C_{stat}-CP_{moy}). (les concentrations sont en µg/m³). Pour le modèle physique, les valeurs moyennes de Tra et Tabs du tableau 3, p. 413, ont été utilisées.

Accuracy of the indoor exposition predictions using different approaches, for SO_2 during winter and in the classroom. C_{phys} is the concentration given by the physical model, C_{stat} by the statistical model, and C_{stat}-CP_{moy} shows the indoor concentration calculated using the average value of the CP penetration coefficients provided by the statistical model. Concentration are in µg/m³. For the physical model, Tra et Tabs values in Table 3, p. 413, have been used.

	C_{obs}	C_{phys}	C_{stat}	C_{stat}-CP_{moy}
Percentile 50	10,6	11,3	6,9	7,6
Percentile 95	39,9	49,3	40,7	41,4

[11-12] : l'équilibre se fait instantanément entre l'extérieur et l'intérieur, le coefficient de pénétration peut être fourni par la relation $CP = \frac{Tra}{Tra + Tabs}$ et il varie peu. Il est souvent proposé des coefficients moyens calculés sur une période donnée. L'usage de mesures cumulées produites par exemple par des « tubes à diffusion » condamne de fait à ce type de représentation. La variabilité des résultats présentés pour CP montre cependant la faiblesse des hypothèses sous-jacentes. L'ensemble des observations réalisées dans cette étude a montré que l'ordre de grandeur du taux de renouvellement de l'air Tra est d'environ 0,5 h^{-1}. Or le temps caractéristique des variations de la pollution extérieure est en général de 1/2 heure, donc du même ordre de grandeur que Tra. Lors des pics de pollution, il y a donc toujours un déphasage entre la pollution intérieure et celle qui existe à l'extérieur. L'étude statistique a aussi confirmé l'existence de ce déphasage d'environ 15 min. En pratique, la valeur de CP ne doit pas être calculée à l'aide de la relation $CP = \frac{Tra}{Tra + Tabs}$. Il est préférable d'extraire une valeur directement du modèle statistique de CP, plus robuste.

Il est possible d'établir la relation explicite qui existe entre le coefficient de pénétration CP, les paramètres Tra et Tab et les concentrations extérieures en polluant C_{ex}. Elle peut être obtenue à partir de l'équation de base du modèle à une zone, en considérant le cas ou il n'y a pas de sources intérieures. À l'aide d'une intégration avec un pas de temps Δt, on obtient

$$CP^t = \frac{C_{in}^t}{C_{ex}^t} = \sum_{i=0}^{t} \frac{\Delta t\, Tra}{(1 + \Delta t\,(Tra + Tabs))^{i+1}} \frac{C_{ex}^{t-i\Delta t}}{C_{ex}^t},$$

ou C_{in}^t est la concentration intérieure à l'instant t, $C_{ex}^{t-i\Delta t}$ les concentrations extérieures échantillonnées avec le pas de temps Δt. La contribution des termes du passé $C_{ex}^{t-i\Delta t}$ en fonction du temps écoulé $i\Delta t$ suit celle du terme $q^{-i} = \frac{1}{(1 + \Delta t\,(Tra + Trabs))^i}$. Si on calcule q avec des valeurs plausibles de Tra et Tabs, et en prenant un seuil de contribution égal à 10 % (par rapport à la pollution extérieure à t), on trouve que la mémoire de la pollution extérieure peut être conservée pendant deux heures. Il peut donc être nécessaire de considérer plusieurs valeurs de $C_{ex}^{t-i\Delta t}$ dans le passé pour calculer correctement CP(t) ou $C_{in}(t)$.

Conclusion

À partir de l'analyse des transferts de polluants intérieur/extérieur sur plusieurs locaux de la ville du Havre, il a été constaté que les échanges sont fortement fonction de l'occupation des locaux et des ouvertures de fenêtres. La variabilité, plus importante pour le SO_2 que pour l'ozone, montre que le contrôle des ouvertures semble encore plus crucial pour modéliser la pénétration du SO_2. S'agissant in fine d'estimer l'exposition des occupants, il est donc indispensable de déterminer les conditions d'aération des locaux d'habitations, même si cela apporte des complications au niveau des mesures.

Pour ce qui est du taux de renouvellement de l'air Tra, il a été possible de comparer les résultats fournis par la méthode des variations du CO_2 avec ceux d'un modèle physique simple à une zone. Ils sont assez concordants en moyenne.

Il est possible de tenir compte de l'ouverture des fenêtres avec le modèle physique, ce qui améliore sensiblement les prédictions. Le modèle physique permet aussi d'estimer une valeur globale des puits pour le polluant considéré. On s'aperçoit que l'action de ces puits sur la concentration intérieure est aussi forte que l'effet des transferts extérieur/intérieur pour le SO_2 et l'O_3.

Concernant le calcul de la pollution intérieure, le modèle physique à une zone donne des résultats assez satisfaisants. Il a l'avantage d'incorporer quelques notions physiques. Il peut être considéré

comme une première approche pour essayer de comprendre et de juger les phénomènes les plus importants qui déterminent la concentration intérieure. Bien que cela n'ait pas été réalisé dans cette étude, on peut envisager de rechercher les liens qui existent entre Tra et Tabs et les caractéristiques du local. Mais une de ses faiblesses est de considérer que le local échange avec un environnement unique.

Avec un modèle statistique linéaire, il est plus facile de tenir compte explicitement et de façon robuste de l'influence des paramètres météorologiques sur la variabilité du confinement. Cependant la non-linéarité entre certaines variables est une limite qui pourrait être dépassée en employant des approches plus évoluées, comme les modèles neuronaux par exemple.

Références

1. Le Moullec Y, Squinazi F. Pollution atmosphérique à l'intérieur de bâtiments, sources, expositions et risques sanitaires, Conseil supérieur d'hygiène publique de France. Ed. Tec Doc Lavoisier 1996.
2. Étude expérimentale des conditions de transfert de la pollution atmosphérique d'origine locale à l'intérieur des bâtiments d'habitation. Synthèse des données bibliographiques. Convention de Recherche ADEME/CSTB 98.04.051.
3. Weschler CJ, Shields HC. Potential reactions among indoor pollutants. Atmos Environ 1997 ; 31 : 3487-95.
4. Fleury B, Gadilhe A. Étude des transferts d'air dans un appartement, Rapport final à la Convention AFME 9.04.0036, Mai 1990.
5. Pollution de l'air, Techniques de l'Ingénieur C 3 860, Ventilation des locaux, Techniques de l'Ingénieur C 3 861.
6. Exposure Assessment, COST 613/2, report series on air pollution epidemiology, EUR 14345 EN. ISBN 2-87263-073-2.
7. Blondeau P, Haghighat F, Spérandio M. Prédiction et évaluation de la qualité de l'air intérieur dans les bâtiments. Journées techniques ADEME « Ventilation des bâtiments, état des lieux et prospective » 25-26 octobre 1995 : 243-55.
8. Villenave JG, Millet JR, Riberon J. Theoretical basis for assessment of air quality and heat losses for domestic ventilation systems in France. 14th AIVC Conference on Energy Impact of Ventilation and Air infiltration, Copenhagen, September 1993.
9. Shair F, Heitner K. Theoretical model for relating indoor pollutant concentrations to those outside, Environmental Science & Technology 1974 ; 8 : 444-51.
10. Beaudeau P et al. Exposition des Havrais à la pollution atmosphérique (SO_2 et O_3) sur la base des mesures du réseau de surveillance et du budget espace-temps-activité de la population, Rapport d'étude Ville du Havre, Air Normand, CORIA et InVS, 2001.
11. Weschler CJ, Shields HC, Nail DV. Indoor Ozone Exposures, JAPCA 1989 ; 39 : 1562-8.
12. Sexton K, Letz R, Spengler JD. Estimating Human Exposure to Nitrogen Dioxide : An Indoor/outdoor Modelling Approach, Environ Res 1983 ; 32 : 151-66.