

DÉVELOPPEMENT D'UNE APPROCHE PHYSIQUE DE CALIBRATION DE CAPTEURS PM PORTABLES POUR L'EVALUATION DE L'EXPOSITION INDIVIDUELLE

R. Massoud^{*1}, S. Crumeyrolle², E. Bourrianne², L. Dauchet³, V. Riffault⁴ et B. Hanoune¹

¹Univ. Lille, CNRS, UMR 8522 – PC2A – Physicochimie des Processus de Combustion et de l'Atmosphère, F-59000 Lille, France

²Univ. Lille, CNRS, UMR 8518 – LOA – Laboratoire d'Optique Atmosphérique, F-59000 Lille, France

³Univ. Lille, Inserm, CHU Lille, Institut Pasteur de Lille, U1167 - RID-AGE - Facteurs de risques et déterminants moléculaires des maladies liées au vieillissement, F-59000 Lille, France

⁴IMT Nord Europe, Institut Mines-Télécom, Centre for Energy and Environment, Université de Lille, F-59000 Lille, France

*Courriel de l'orateur : romie.massoud@univ-lille.fr

TITLE

Development of a Physical-based Calibration Approach of Portable PM Sensors for Personal Exposure Monitoring Applications

ABSTRACT

This work proposes a physical approach incorporating particle hygroscopicity for the calibration of portable PM sensors. The method is based on an estimation of the hygroscopicity factor (κ) over time, using the sensor's particle size distributions. Applying this correction at a high temporal resolution improves sensor performance (R^2 , RMSE, and MAE compared to the reference) more effectively than a correction with a constant κ . These results show that the method performs well in varying conditions over time, and is adapted for the use of the sensors to study personal exposure.

RESUME

Ce travail propose une approche physique tenant compte de l'hygroscopicité des particules pour la calibration de capteurs de PM portables. La méthode repose sur une estimation du facteur de degré d'hygroscopicité (κ) dans le temps, à partir des distributions en taille des particules issues du capteur. L'application de cette correction à des données à haute résolution temporelle améliore la performance du capteur (R^2 , RMSE et MAE en comparaison à la référence) plus efficacement qu'une correction avec un κ constant. Ces résultats montrent que la méthode fonctionne bien dans des conditions variables dans le temps et est adaptée à l'utilisation des capteurs pour l'étude de l'exposition individuelle.

KEYWORDS: PM, low-cost sensors, calibration, hygroscopicity / **MOTS-CLÉS :** PM, capteurs à moindre coût, calibration, hygroscopicité

1. INTRODUCTION

Selon l'Organisation Mondiale de la Santé, la pollution de l'air intérieur et extérieur est une cause importante de maladies et mortalités respiratoire et cardiovasculaire : elle est associée à environ 7 millions de décès prématurés chaque année à l'échelle mondiale. Pour cela, la pollution de l'air représente un enjeu de santé publique majeur, qui est au cœur de nombreuses études épidémiologiques visant à mieux comprendre et limiter ses impacts sur la santé. Cependant, la plupart de ces études se base sur des stations de mesures fixes ou de modélisations à proximité de l'adresse d'habitation pour estimer les expositions individuelles aux polluants atmosphériques : cela ne permet pas de prendre en compte la variabilité spatio-temporelle de la pollution à fine échelle, ni la diversité des micro-environnements fréquentés par les individus. Par conséquent, les résultats de ces études ne mesurent que très partiellement l'exposition à l'échelle individuelle, limitant l'estimation des risques sanitaires. Pour pallier ces limites, il est possible de recourir à l'utilisation de capteurs portables miniaturisés, capables de suivre en continu l'exposition réelle des individus. En raison de leurs performances généralement plus limitées que les appareils de référence, et de leur utilisation dans des conditions environnementales variées et variables, la calibration de ces capteurs est une étape essentielle pour une exploitation correcte des mesures.

Les mesures des capteurs optiques à moindre coût sont effectuées en conditions ambiantes, contrairement aux instruments de référence dont les mesures sont réalisées en conditions sèches (humidité relative < 40%) grâce à un système de conditionnement de l'air. Contrairement aux conditions sèches, des conditions humides impactent fortement le comportement des particules : en fonction de leur composition chimique, certaines particules ont plus ou moins tendance à adsorber l'eau à leur surface, entraînant une augmentation de leur taille et par conséquent une augmentation de leur capacité à diffuser la lumière. Ce caractère hygroscopique des particules peut être déterminé à travers le paramètre hygroscopique κ (Petters et Kreidenweiss, 2007) qui est dépendant de la composition chimique des PM. En milieu urbain, les principales espèces hygroscopiques contribuant aux valeurs de κ sont les sulfates et nitrates, avec des κ proches de 0.7 (Petters et Kreidenweiss, 2007), ainsi que les composés organiques, avec des κ relativement faibles, d'environ 0.15

(Cerully *et al.*, 2015). Ces composés présentent une sélectivité en taille, avec les composés organiques dans les fractions plus fines (< 0.1 µm et ~0.35 µm) et les sulfates et nitrates dans les fractions plus grossières (~0.5 µm) (Drewnick *et al.*, 2004). De ce fait, différentes fractions granulométriques présentent des compositions chimiques et donc des caractères hygroscopiques distincts.

Pour corriger les mesures optiques, tels que les capteurs optiques à moindre coût, on calcule l'intensification de la diffusion de la lumière par les particules en conditions humides, quantifiée en tant que facteur $f(RH)$ (équation (1) avec σ_{dry} : coefficient de diffusion en conditions sèches et $\sigma_{wet}(RH)$: coefficient de diffusion à une humidité relative définie, en conditions humides).

$$f(RH) = \frac{\sigma_{wet}(RH)}{\sigma_{dry}} \quad (1)$$

A partir de la théorie de *k*-Köhler (Köhler, 1936), ce facteur $f(RH)$ peut être calculé à l'aide d'une équation qui intègre l'humidité relative et le paramètre hygroscopique κ . Ainsi, $f(RH)$ est utilisé dans la correction des mesures de PM qui prend en compte l'hygroscopité (Malings *et al.*, 2019). Cependant, la méthode retrouvée dans la littérature se base sur un κ fixe dans le temps, couramment déterminé à l'aide d'un VAM (Volume Average Method, permettant de calculer un κ moyen d'un mélange de composés en combinant les valeurs de κ spécifiques de chaque composé selon leurs fractions volumiques respectives). Mais une valeur fixe de κ n'est pas suffisante : notamment, des variations dans la composition chimique des PM peuvent se produire sur des échelles de temps courtes. Ainsi, une approche de calibration a été développée à l'aide de mesures de référence : elle permet d'estimer des valeurs de κ dynamiques dans le temps à partir des distributions en taille des particules issues des capteurs, celles-ci constituant un indicateur indirect de la composition des PM. Cela permet d'avoir une méthode de calibration mieux adaptée pour une application à des données d'exposition individuelle à haute résolution temporelle et collectées dans des environnements avec différentes compositions de PM.

2. MATERIEL ET METHODE

Les capteurs portables utilisés dans le cadre de ce travail (Figure 1.a) sont des instruments à moindre coût (~200 €) développés par le PC2A et le LOA. Ils comprennent un capteur optique (HK-A5) qui permet de mesurer les concentrations en nombre des particules (en #/cm³) sur six classes de taille (diamètre, en µm : ≥ 0.3, ≥ 0.5, ≥ 1, ≥ 2.5, ≥ 5 et ≥ 10) et les concentrations en masse (PM₁, PM_{2.5} et PM₁₀, en µg/m³), ainsi qu'un module GPS, des capteurs de pression, température et humidité relative de l'air, un module Bluetooth Low Energy, une carte MicroSD (enregistrement local des données), une batterie rechargeable (autonomie de ~12 heures), et une carte microcontrôleur Teensy. Leur résolution temporelle est configurée à une mesure par seconde. Pour leur calibration, ils sont installés sur la plateforme ATOLL (ATmospheric Observations in liLLe, <https://www.actris.fr/plateformes/494-2/>) (Figure 1.b), gérée par le LOA et qui regroupe un ensemble d'instruments dédiés à la mesure et la surveillance de différentes variables atmosphériques. Parmi ceux-ci, le FIDAS 200 (Palas GmbH) est utilisé pour la calibration des PM₁, PM_{2.5} et PM₁₀ mesurées par les capteurs portables. La résolution temporelle du FIDAS est d'une mesure par minute : pour correspondre à ce pas de temps, les données des capteurs sont agrégées sur des intervalles d'une minute lors de leur traitement.

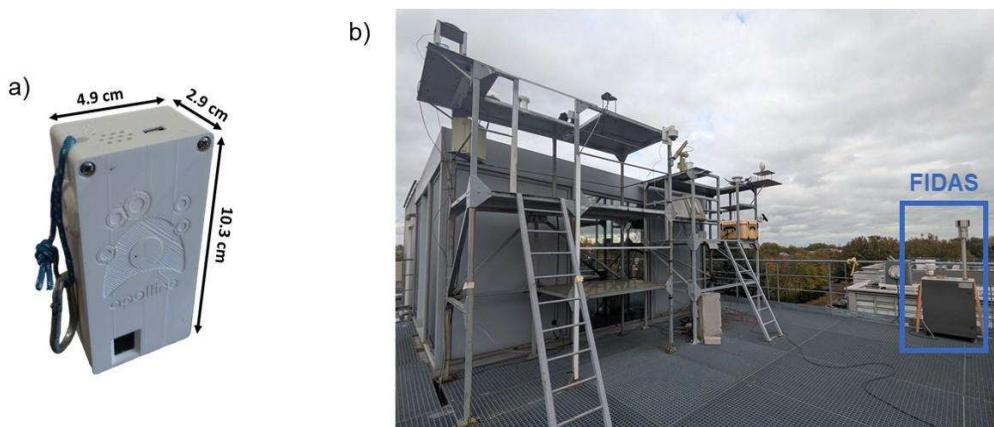


Figure 1. a) Aperçu du capteur portable ; b) Plateforme ATOLL, incluant l'instrument de référence FIDAS.

La méthode de calibration développée a été appliquée à 9 capteurs sur différentes périodes de calibration entre mars et juin 2025. De plus, elle a été validée par comparaison avec l'application de la correction réalisée par Malings *et al.* (2019) à l'aide de la valeur de κ constante (0.33525) qu'ils utilisent. La méthode nécessite un jeu de données de construction (ou de calibration), ainsi qu'un jeu de données de validation (ou d'évaluation), puisqu'elle comprend un modèle de régression. Ainsi, pour chaque point de donnée de construction, des valeurs de $f(RH)$ sont calculées pour une gamme définie de valeurs de κ , à partir de l'équation utilisée par Malings *et al.* (2019) en y incluant la valeur de RH mesurée par le capteur :

$$f(RH) = 1 + \kappa \frac{a_w(RH)}{1-a_w(RH)} \quad (2)$$

Avec $a_w(RH)$ l'activité de l'eau calculée pour la valeur de RH correspondante.

Pour chaque valeur de $f(RH)$ calculée, la valeur de PM brute du capteur est corrigée en la divisant par $f(RH)$:

$$PM_{corrigé} = \frac{PM_{brut}}{f(RH)} \quad (3)$$

La valeur de κ dont la correction aboutit au rapport $PM_{corrigé} / PM_{référence}$ le plus proche de 1 est retenue, étant considérée comme la valeur la plus performante pour la correction de ce point de donnée. Les valeurs de κ retenues pour chaque point de donnée sont ensuite utilisées pour construire le modèle de régression linéaire multiple dont l'équation est la suivante :

$$\kappa = a_1 * N_{0.3-0.5} + a_2 * N_{0.5-1} + a_3 * N_{1-2.5} + a_4 * N_{2.5-5} + a_5 * N_{5-10} + a_0 \quad (4)$$

Avec N_{d1-d2} les concentrations en nombre de particules dont le diamètre (d) est compris entre d_1 et $d_2 \mu\text{m}$, a_1 à a_5 les coefficients de régression, et a_0 l'ordonnée à l'origine. Ainsi, les valeurs de κ retenues et de N_{d1-d2} des données de construction sont intégrées dans l'équation (4) pour obtenir les coefficients a_0 à a_5 . Afin de valider le modèle, ces coefficients obtenus sont ensuite utilisés, en plus des valeurs de N_{d1-d2} des données de validation, pour estimer à l'aide de l'équation (4) des valeurs de κ pour chaque point de donnée de validation.

Enfin, les valeurs de $f(RH)$ sont calculées pour chaque point de donnée à l'aide de l'équation (2) en y intégrant les valeurs de κ estimées, et sont utilisées pour corriger les valeurs brutes de PM des données de validation à partir de l'équation (3).

3. RESULTATS ET DISCUSSION

A titre d'exemple, les résultats présentés ci-dessous concernent la fraction $PM_{2.5}$ d'un capteur (APO029), représentant quelques jours (15 au 18 juin 2025) de données de validation issues d'une période de calibration réalisée en juin 2025. La Figure 2.a montre les mesures brutes de $PM_{2.5}$ issues du capteur APO029 en fonction des mesures du FIDAS, avec une régression de $y = 2.06x - 6.31$ dont la droite s'écarte de la ligne 1:1. La Figure 2.b montre les mesures de $PM_{2.5}$ du capteur, corrigées avec la valeur κ constante, en fonction des mesures du FIDAS, avec une régression de $y = 0.73x - 1.00$ dont la droite diverge faiblement de la ligne 1:1. La Figure 2.c montre les mesures de $PM_{2.5}$ du capteur, corrigées avec le κ dynamique, en fonction des mesures du FIDAS, avec une régression de $y = 0.86x - 0.59$ dont la droite s'aligne mieux avec la ligne 1:1.

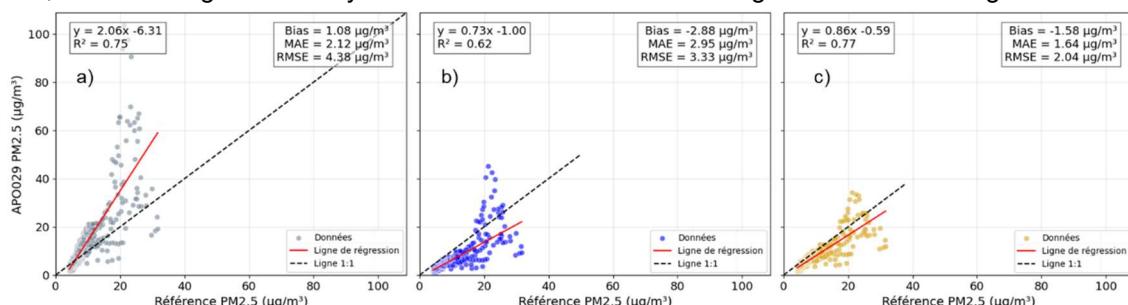


Figure 2. Régressions linéaires entre les mesures de $PM_{2.5}$ de référence et celles a) brutes ; b) corrigées avec $\kappa = 0.33525$; et c) corrigées avec les valeurs κ dynamiques estimées, du capteur APO029 (axe des ordonnées) pour les données de validation.

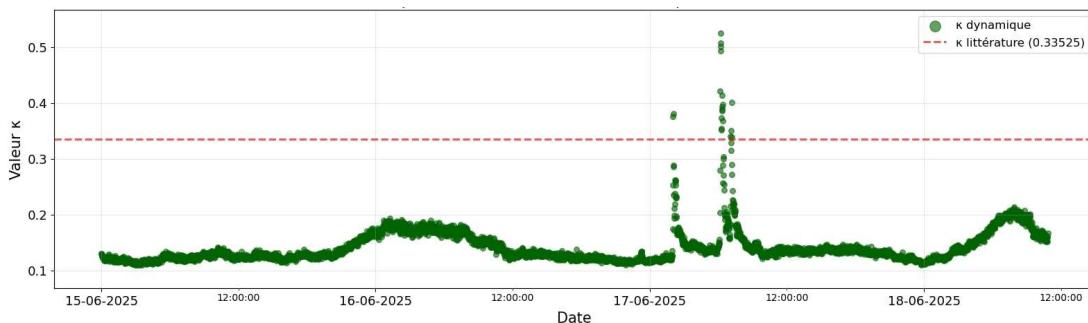


Figure 3. Série temporelle des valeurs de κ estimées pour les mesures de $PM_{2.5}$ de validation du capteur APO029. Pour comparaison, la ligne pointillée horizontale en rouge représente la valeur de κ constante.

La Figure 3 illustre la variabilité temporelle des valeurs de κ estimées pour les mesures de $PM_{2.5}$ du capteur APO029 durant la période de validation. On observe que κ fluctue considérablement au cours du temps, avec une gamme de valeurs allant de 0.1 à environ 0.53. Cela permet de prendre en compte la variabilité temporelle à court terme du caractère hygroscopique des particules, réduisant ainsi les sous- ou sur-corrections qui surviendraient sur certaines périodes en utilisant un κ constant.

En comparant les deux méthodes de correction, celle utilisant un κ dynamique aboutit globalement à de meilleurs résultats : la correction avec κ dynamique aboutit au meilleur R^2 . De plus, elle réduit l'erreur absolue moyenne (MAE) à 1.64 $\mu\text{g}/\text{m}^3$ et l'erreur quadratique moyenne (RMSE) à 2.04 $\mu\text{g}/\text{m}^3$, soit une diminution d'environ 40% par rapport à la correction utilisant $\kappa = 0.33525$ (Figure 2). De plus, la pente de régression obtenue avec la correction κ dynamique est plus proche de 1 que celle de la correction avec $\kappa = 0.33525$ (Figure 2). Ces résultats (Figure 2) sont représentatifs de la tendance observée pour d'autres fractions de PM, capteurs et périodes de calibration : globalement, la correction avec κ dynamique améliore les métriques R^2 , RMSE et MAE par rapport aux données brutes et à la correction avec une valeur κ constante. De plus, le biais moyen des données corrigées avec les valeurs κ dynamiques est variable : dans certains cas, il est amélioré par rapport à celui des données brutes. Dans d'autres, soit un biais négatif est induit (comme dans la Figure 2), soit le biais négatif déjà présent devient plus important. Cependant, il reste majoritairement inférieur (Figure 2) et parfois similaire à celui induit par la correction avec un κ constant. Cela montre que dans les cas où le κ constant était trop élevé et entraînait une sur-correction des données, cet effet était parfois moins marqué avec le κ dynamique. De plus, afin de tester la robustesse temporelle de cette méthode, elle a été appliquée à un capteur dont les données de construction et de validation étaient respectivement issues de deux semaines en mars (7 au 24) et en mai (1^{er} au 15) de l'année 2025, soit deux périodes temporellement indépendantes. La correction avec le κ dynamique avait amélioré certaines métriques (MAE, RMSE, équation de régression) plus efficacement qu'avec un κ constant, mais le R^2 des données brutes était déjà élevé (0.92) et n'a pas été amélioré, limitant l'évaluation de la robustesse temporelle.

Enfin, la correction avec un κ constant n'était pas adaptée à toutes les périodes de calibration : dans certains cas, elle n'aboutissait pas à une amélioration des métriques de performance en comparaison aux données brutes. Par contraste, la correction avec un κ dynamique a toujours permis une amélioration, comparable entre différentes périodes.

4. CONCLUSION

Ce travail a présenté une nouvelle approche de calibration de capteurs portables de PM, qui utilise les distributions en taille des particules issues de capteurs portables afin d'estimer des valeurs dynamiques de κ . Les résultats mettent en évidence la capacité de cette méthode à : 1) améliorer la qualité des mesures, et cela pour des données à haute résolution temporelle de plusieurs capteurs et périodes de temps, et 2) tenir compte de la variabilité temporelle des caractéristiques des PM sur des échelles de temps courtes, contrairement à une valeur constante de κ . Elle permettra ainsi une calibration des capteurs adaptée à leur utilisation dans le contexte de l'étude de l'exposition individuelle. Des futurs travaux viseront à valider la robustesse temporelle de la méthode et son applicabilité sur un plus grand nombre de capteurs et périodes de calibration.

5. REMERCIEMENTS ET REFERENCES

Ces travaux s'inscrivent dans le projet LabEx CaPPA financé par l'Agence nationale de la recherche française sous le contrat « ANR 11 LABX 0005 01 » et sont effectués dans le cadre du projet CDP AREA financé par L'Etat Français au titre du programme France-2030 et l'Initiative d'Excellence de l'Université de Lille. Ces travaux font partie également du projet de recherche CPER ECRIN financé par le Ministère de l'Enseignement Supérieur et de la Recherche, le Conseil Régional des Hauts-de-France, et le Fonds Européen de Développement Régional. L'auteur principal souhaite remercier en particulier la Région Hauts-de-France et le projet LabEx CaPPA pour le financement de son doctorat.

Cerully, K. M., Bougiatioti, A., et al (2015). On the link between hygroscopicity, volatility, and oxidation state of ambient and water-soluble aerosols in the southeastern United States. *Atmospheric Chemistry and Physics*, 15(15), 8679-8694.

Drewnick, F., Jayne, J. T., Canagaratna, M., Worsnop, D. R., & Demerjian, K. L. (2004). Measurement of ambient aerosol composition during the PMTACS-NY 2001 using an aerosol mass spectrometer. part II: Chemically speciated mass distributions special issue of aerosol science and technology on findings from the fine particulate matter supersites program. *Aerosol Science and Technology*, 38(S1), 104-117.

Köhler, H. (1936). The nucleus in and the growth of hygroscopic droplets. *Transactions of the Faraday Society*, 32, 1152-1161.

Malings, C., Tanzer, R., Hauriyliuk, A., Saha, P. K., Robinson, A. L., Presto, A. A. & Subramanian, R. (2019). Fine particle mass monitoring with low-cost sensors: Corrections and long-term performance evaluation. *Aerosol Science and Technology*, 54(2), 160-174.

Petters, M. D., & Kreidenweis, S. M. (2007). A single parameter representation of hygroscopic growth and cloud condensation nucleus activity. *Atmospheric Chemistry and Physics*, 7(8), 1961-1971.