



**INERIS**  
maîtriser le risque  
pour un développement durable



## Laboratoire Central de Surveillance de la Qualité de l’Air

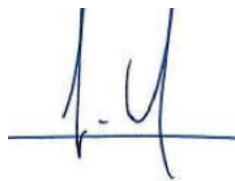
### BILAN DES TRAVAUX 2017 DU PROGRAMME CARA

---

Olivier FAVEZ, Alexandre ALBINET, Tanguy AMODEO, Florian COUVIDAT  
(INERIS)

Laurent ALLEMAN (IMT Lille-Douai)

Jean-Eudes PETIT (Atmo Grand-Est)

|         | Rédaction                                                                           | Vérification                                                                         | Approbation                                                                           |
|---------|-------------------------------------------------------------------------------------|--------------------------------------------------------------------------------------|---------------------------------------------------------------------------------------|
| NOM     | Olivier FAVEZ                                                                       | Caroline MARCHAND                                                                    | Marc DURIF                                                                            |
| Qualité | Ingénieur de l’Unité ASUR<br><br>Direction des Risques<br>Chroniques                | Responsable de l’Unité ASUR<br><br>Direction des Risques<br>Chroniques               | Responsable du Pôle CARA<br><br>Direction des Risques<br>Chroniques                   |
| Visa    |  |  |  |



## LE LABORATOIRE CENTRAL DE SURVEILLANCE DE LA QUALITÉ DE L'AIR

---

Le Laboratoire Central de Surveillance de la Qualité de l'Air est constitué des laboratoires de l'IMT Lille Douai, de l'INERIS et du LNE. Il mène depuis 1991 des études et des recherches à la demande du Ministère chargé de l'environnement, et en concertation avec les Associations Agréées de Surveillance de la Qualité de l'Air (AASQA). Ces travaux en matière de pollution atmosphérique ont été financés par la Direction Générale de l'Énergie et du Climat (bureau de la qualité de l'air) du Ministère chargé de l'Environnement. Ils sont réalisés avec le souci constant d'améliorer le dispositif de surveillance de la qualité de l'air en France en apportant un appui scientifique et technique au ministère et aux AASQA.

L'objectif principal du LCSQA est de participer à l'amélioration de la qualité des mesures effectuées dans l'air ambiant, depuis le prélèvement des échantillons jusqu'au traitement des données issues des mesures. Cette action est menée dans le cadre des réglementations nationales et européennes mais aussi dans un cadre plus prospectif destiné à fournir aux AASQA de nouveaux outils permettant d'anticiper les évolutions futures.

## TABLE DES MATIERES

---

|                                                                                                                 |           |
|-----------------------------------------------------------------------------------------------------------------|-----------|
| <b>RESUME .....</b>                                                                                             | <b>7</b>  |
| <b>REMERCIEMENTS ET COLLABORATIONS.....</b>                                                                     | <b>8</b>  |
| <b>1. INTRODUCTION .....</b>                                                                                    | <b>9</b>  |
| <b>2. CARACTERISATION CHIMIQUE DES EPISODES DE POLLUTION PARTICULAIRE.....</b>                                  | <b>11</b> |
| 2.1 Analyse de l'épisode de pollution de début décembre 2016 .....                                              | 11        |
| 2.2 Episode de mi-janvier 2017 .....                                                                            | 14        |
| 2.3 Caractérisation chimique des dépassements de valeurs limites PM <sub>10</sub> dans la zone<br>caraïbe ..... | 15        |
| <b>3. COMPARAISONS MESURES / MODELE (PREV'AIR) .....</b>                                                        | <b>16</b> |
| <b>4. ESTIMATION DES SOURCES DE PM A L'AIDE D'OUTILS STATISTIQUES.....</b>                                      | <b>18</b> |
| <b>5. METHODOLOGIES D'ESTIMATION DES SOURCES EN TEMPS REEL .....</b>                                            | <b>24</b> |
| <b>6. REFERENCES .....</b>                                                                                      | <b>27</b> |



Le présent rapport synthétise les principaux travaux 2017 du programme CARA (« CARActérisation chimique des particules ») du dispositif national de surveillance de la qualité de l'air. Fonctionnant en étroite collaboration avec les AASQA volontaires et des laboratoires universitaires, ce programme permet notamment de documenter la nature et les origines des épisodes de pollution particulaire de grande échelle spatiale à l'aide d'un dispositif de prélèvements sur filtres et de mesures automatiques unique en Europe. Les actions réalisées en 2017 ont indiqué le rôle majeur joué par les émissions locales de combustion (chauffage et transport routier) dans la survenue d'épisodes de pollution aux PM<sub>10</sub> en décembre 2016 et janvier 2017.

Les résultats simulés par CHIMERE dans la configuration de PREV'AIR pour les épisodes de décembre 2016 ont pu être comparés aux mesures in situ de composition chimique. Cette comparaison mesures/modèle indique des résultats globalement satisfaisants pour la simulation des aérosols inorganiques secondaires, avec néanmoins des tendances à la surestimation du sulfate et à la sous-estimation du nitrate sur la période étudiée. En revanche, une forte sous-estimation de matière organique provenant de la combustion de biomasse est également observée, confirmant la nécessité d'améliorer la modélisation de la fraction carbonée des particules (notamment via une meilleure paramétrisation des émissions).

Par ailleurs, l'exploitation avec Atmo Grand-Est d'un jeu de données correspondant à des prélèvements sur filtres en 2015-2016 a permis d'identifier et de quantifier les sources de particules en fond urbain à Metz. Pour ce faire, les résultats issus d'un modèle statistique (*Positive Matrix Factorization*) ont été couplés aux informations de vent et de rétro-trajectoires de masses d'air. Alors que les émissions primaires par le trafic automobile représentent près de 20% des PM<sub>10</sub> en moyenne annuelle, la combustion de biomasse constitue la source la plus intense en hiver (34%). Ces deux sources présentent un caractère local marqué, suggérant que des actions ciblées à l'échelle de la métropole messine pourraient y avoir un impact significatif pour l'amélioration de la qualité de l'air. Parallèlement, les espèces secondaires, comme le nitrate et le sulfate d'ammonium, montrent un caractère plus régional/transporté, et souligne le besoin d'une meilleure connaissance sur les origines de leur précurseur gazeux, comme l'ammoniac.

Un travail d'optimisation méthodologique a également été réalisé en 2017 afin de tester une nouvelle approche de traitement de données pour l'estimation de la matière organique liée aux émissions par le chauffage au bois à partir des mesures AE33. Cette approche se base sur les propriétés optiques de la fraction organique des PM absorbant le rayonnement lumineux dans le proche ultraviolet (« Brown Carbon », BrC). Les résultats obtenus indiquent une très bonne homogénéité spatiale du facteur de conversion entre ces mesures d'absorption par le BrC et les concentrations de PM issue de la combustion de biomasse (et estimées à partir des mesures de levoglucosan). Il semble ainsi envisageable de proposer une valeur moyenne (0,5) pour ce facteur de conversion sur l'ensemble des sites de fond urbain du dispositif national équipés d'un AE33. Il convient maintenant de tester la robustesse de cette méthodologie alternative sur un panel le plus large possible de jeux de données et de stations de mesure en collaboration avec les AASQA le souhaitant.

## REMERCIEMENTS ET COLLABORATIONS

---

Les résultats des travaux présentés dans ce rapport sont le fruit de nombreuses collaborations menées avec les AASQA volontaires (en particulier pour 2017 : Atmo Hauts-de-France, Atmo Grand-Est, Atmo Normandie, Air Pays de la Loire, Atmo Nouvelle-Aquitaine, Atmo Auvergne Rhône-Alpes et Atmo PACA), le Laboratoire des Sciences du Climat et de l'Environnement (LSCE, CNRS-CEA-Université Paris Saclay), et l'Institut des Géosciences de l'Environnement (IGE, CNRS-Université Grenoble-Alpes).

## 1. INTRODUCTION

---

Le programme CARA, « caractérisation chimique des particules », a été mis en place en 2008, en réponse au besoin de compréhension et d'information sur l'origine des épisodes de pollution particulaire mis en évidence par les pics de PM<sub>10</sub> du printemps 2007. Créé et géré par le LCSQA, ce dispositif aujourd'hui pérenne, fonctionne en étroite collaboration avec les AASQA volontaires et, ponctuellement, avec des laboratoires universitaires [1]. Il a pour principaux objectifs de :

- Déterminer les principales sources de PM tant en « situation normale » que lors des épisodes de pollution, afin d'aider à l'élaboration de plans d'actions adaptés.
- Apporter un appui technique et scientifique aux AASQA dans la mise en œuvre de campagnes de spéciation chimique des PM (dont mesures automatiques).
- Elaborer des guides méthodologiques et protocoles d'assurance et contrôle qualité pour différentes techniques d'intérêt pour la spéciation chimique des PM et les études de sources.
- Réaliser un retour d'expérience et assurer une veille scientifique sur les méthodologies et projets visant l'amélioration des connaissances.
- Réaliser des exercices de Comparaisons Inter-Laboratoires (CIL) pour la mesure des espèces chimiques (majeures et traces).
- Optimiser les modèles de chimie-transport via des exercices de comparaison des mesures aux sorties de modèles, afin de permettre une meilleure anticipation des épisodes de pollution particulaire.

Ce programme repose historiquement sur l'analyse chimique au laboratoire (INERIS, IMT Lille-Douai ou laboratoires universitaires) de filtres collectés en plusieurs points du dispositif national. Ces prélèvements sont réalisés par les AASQA volontaires, principalement en PM<sub>10</sub> et sur sites de fond urbain. Ils sont effectués de façon quasi-continue (typiquement, en alternance avec les filtres pour la surveillance réglementaire des HAP) tout au long de l'année, mais ne sont analysés qu'en fonction de leur intérêt (« situations d'urgence », ou utilisation dans le cadre d'une étude ou d'un programme de recherche). Néanmoins, l'utilisation exclusive de prélèvements sur filtres et l'analyse différée ne permettait pas de bien répondre au besoin grandissant d'une détermination en temps quasi-réel de la composition chimique des PM. Le développement d'analyseurs automatiques dimensionnés pour la surveillance opérationnelle (en particulier l'Aethalomètre multi-longueur d'onde AE33 et l'Aerosol Chemical Speciation Monitor : ACSM) permet aujourd'hui de compléter ce dispositif « sur filtres ». En effet, suite aux travaux de veille technologiques et de recherche menés par l'INERIS en collaboration avec le Laboratoire des Sciences du Climat et de l'Environnement (LSCE) au SIRTa [2-3], le programme CARA dispose depuis plus de 6 ans de données de spéciation chimique des particules submicroniques en Ile de France. Sur la base de ces travaux, le LCSQA a également pu accompagner les AASQA dans l'implantation d'analyseurs automatiques au sein du dispositif national [3-5], qui dispose aujourd'hui d'un réseau opérationnel d'observation en temps réel de la composition chimique des particules unique en Europe.

Depuis 2015, les actions relatives au suivi et à l'optimisation de l'utilisation des analyseurs automatiques de la composition chimique des PM sont intégrées à la thématique « assurance qualité » du programme des travaux du LCSQA. Ces actions sont donc décrites en dehors du cadre du présent rapport (e.g., [\[6\]](#)), qui se focalise sur les actions réalisées en 2017 pour l'amélioration des connaissances sur la nature des PM. Il traite plus spécifiquement de la caractérisation chimique des épisodes de pollution de Décembre 2016 et janvier 2017, de résultats obtenus pour un exercice de comparaison mesures/modèle, et des méthodologies d'estimation de sources de PM.

## 2. CARACTERISATION CHIMIQUE DES EPISODES DE POLLUTION PARTICULAIRE

### 2.1 Analyse de l'épisode de pollution de début décembre 2016

En début d'année 2017, le LCSQA a réalisé une étude spécifique concernant les épisodes de pollution ayant touché la métropole au cours des trois premières semaines de décembre 2016 [7]. Cet épisode a été remarquable à la fois par son intensité, sa durée et son étendue géographique, les concentrations moyennes journalières de  $PM_{10}$  dépassant le seuil d'information-recommandation ( $50 \mu g/m^3$ ), voire le seuil d'alerte ( $80 \mu g/m^3$ ) pendant plusieurs jours consécutifs sur plusieurs régions. Les jours de pollution les plus intenses ont été les 1<sup>er</sup>, 2, 6 et 7 décembre. D'autres dépassements de ce seuil sont survenus en dehors de ces jours de pollution mais plus localement (Figure 1). Les régions les plus touchées ont été l'Île-de-France et Auvergne-Rhône Alpes. Mais la Normandie, Nouvelle-Aquitaine, Grand-Est, Bourgogne-Franche-Comté, Centre-Val de Loire et les Hauts-de-France n'ont pas été épargnés.

Cette situation a conduit à une forte mobilisation des pouvoirs publics avec la mise en œuvre de mesures visant à réduire les émissions dans plus d'une dizaine de régions tout au long du mois et parfois pendant plusieurs jours consécutifs, notamment dans la période s'étendant du 1<sup>er</sup> au 11 décembre. La circulation alternée a été déclenchée entre le 6 et le 9 décembre à Paris et le 9 décembre à Lyon.

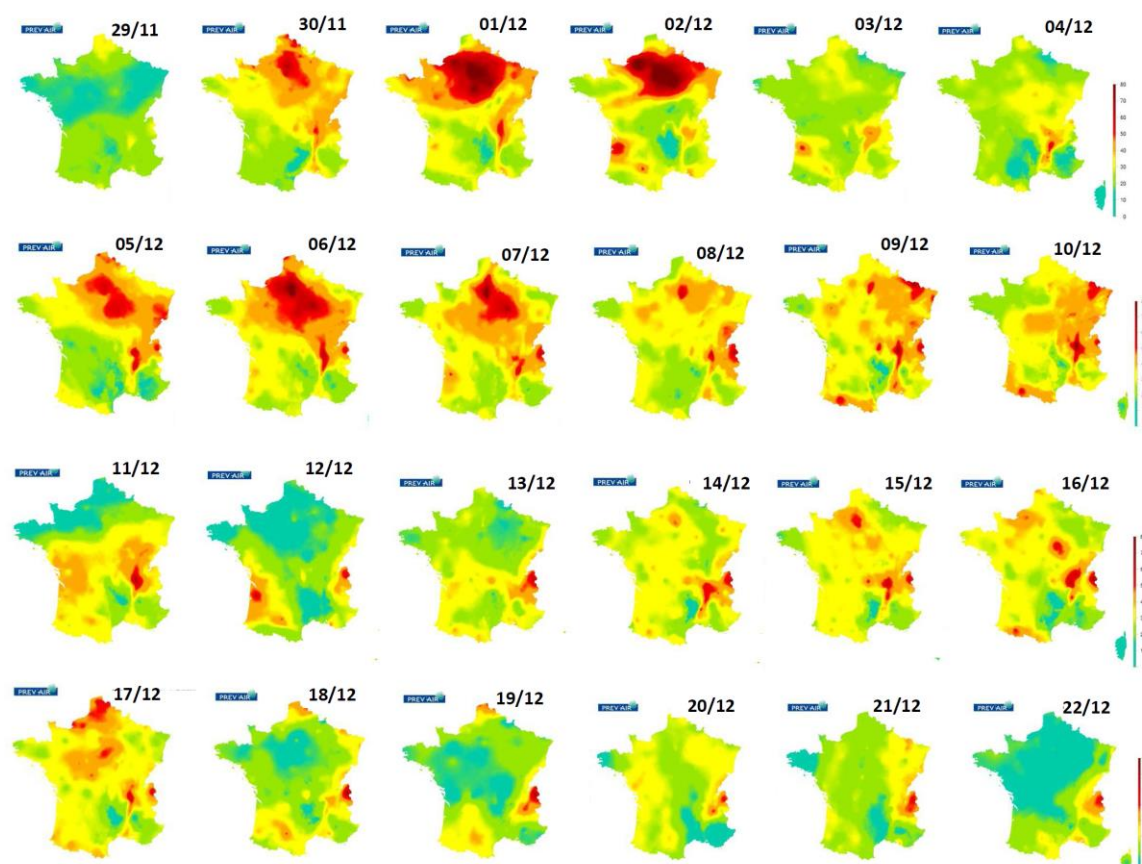


Figure 1: Cartes PREV'AIR analysées des moyennes journalières  $PM_{10}$  du 29/11 au 22/12/2016 (simulations Chimère dans lesquelles les données d'observation sont assimilées).

L'évolution des concentrations au cours de la période a fluctué en fonction des conditions météorologiques qui étaient particulièrement froides et stables du fait de la présence d'un anticyclone. Le premier jour (30 novembre) montre nettement l'influence de sources urbaines locales à Paris, Lyon et dans le Nord. Les deux jours suivants, l'absence de vent a permis l'accroissement des niveaux de concentrations dans les régions périphériques, donnant ainsi à l'épisode son ampleur nationale. Après une brève accalmie du fait d'un léger flux de nord-est résultant du décalage de l'anticyclone vers le nord des Iles Britanniques, le même phénomène s'est produit trois jours plus tard (à partir du 5 décembre), touchant particulièrement l'ensemble de la façade autour du 10 décembre. Des concentrations élevées ont ensuite été observées localement (notamment en Auvergne-Rhône-Alpes, Ile-de-France, Nouvelle-Aquitaine, Normandie et Hauts-de-France) jusqu'au 19 décembre. Enfin, à partir de cette date et jusqu'au 25 décembre, seule la zone Rhône-Alpes a connu d'importants dépassements de valeurs limites fixées pour les PM<sub>10</sub>.

L'analyse de ces épisodes de pollution a été basée sur les données obtenues à l'aide d'analyseurs automatiques de la composition chimique des PM (présentés au travers de 3 notes techniques diffusées au cours des épisodes [8]) ainsi que sur les résultats obtenus par analyse chimique de filtres prélevés entre le 29 novembre et le 18 décembre 2016. Les résultats issus de ces analyses chimiques sur filtres ont confirmé ceux issus des mesures automatiques (Figure 2), convergeant vers une influence majeure de la matière organique sur les niveaux de particules mesurés en décembre 2016.

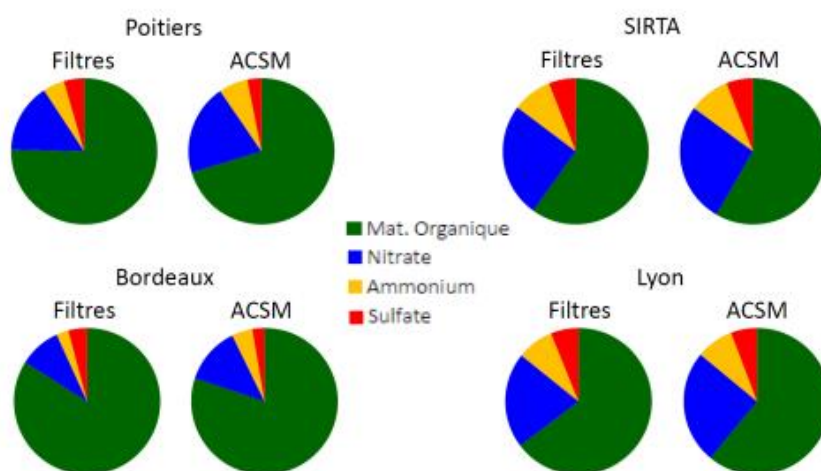


Figure 2 : Comparaison des répartitions relatives entre matière organique, nitrate, ammonium et sulfate obtenues par mesures différées (filtres PM<sub>10</sub> pour Poitiers, Bordeaux et Lyon, et filtres PM<sub>2.5</sub> pour SIRTa) et par mesures ACSM (PM<sub>1</sub>).

Malgré le caractère global des conditions météorologiques, des spécificités locales expliquent de fortes variations de niveaux de concentrations mesurés d'une station de mesure à l'autre, comme illustré par la Figure 3.

La prédominance de la matière organique s'explique en premier lieu par l'importance des émissions de combustion de biomasse pour le chauffage domestique (Figure 4).

Bien que moins fréquents que les épisodes de pollution printaniers l'occurrence de ce type d'épisodes hivernaux a déjà été observée au cours des années précédentes, notamment au début du mois de décembre 2013 [3].

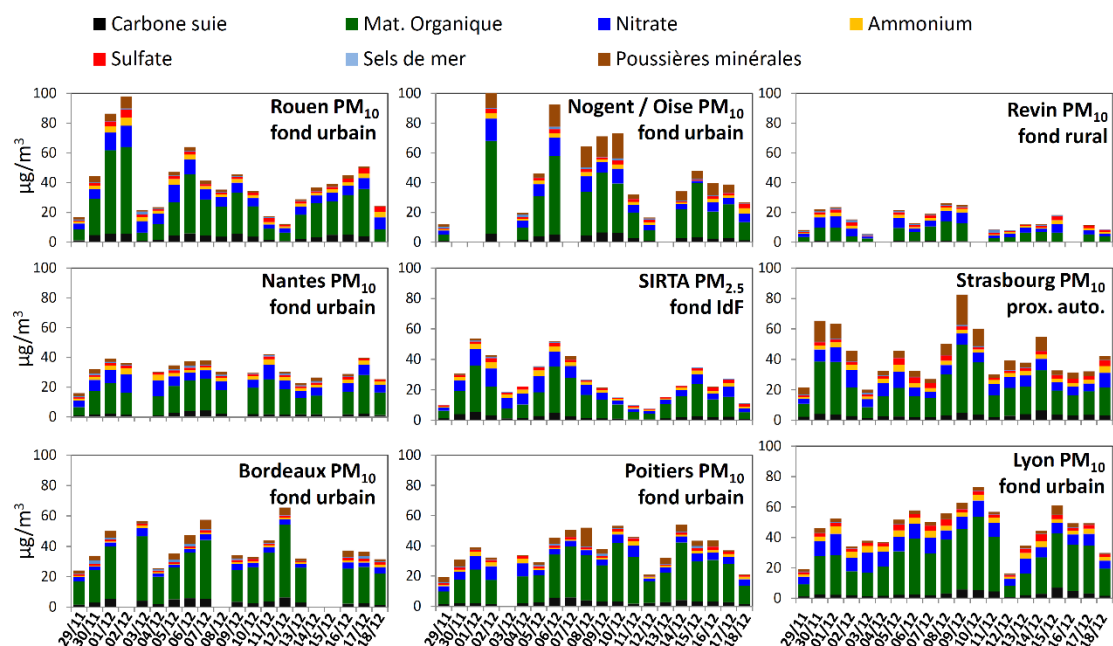


Figure 3 : Moyennes journalières des espèces chimiques majeures mesurées sur filtres pour 8 sites du dispositif CARA et au SIRTa entre le 29 novembre et le 18 décembre 2016.

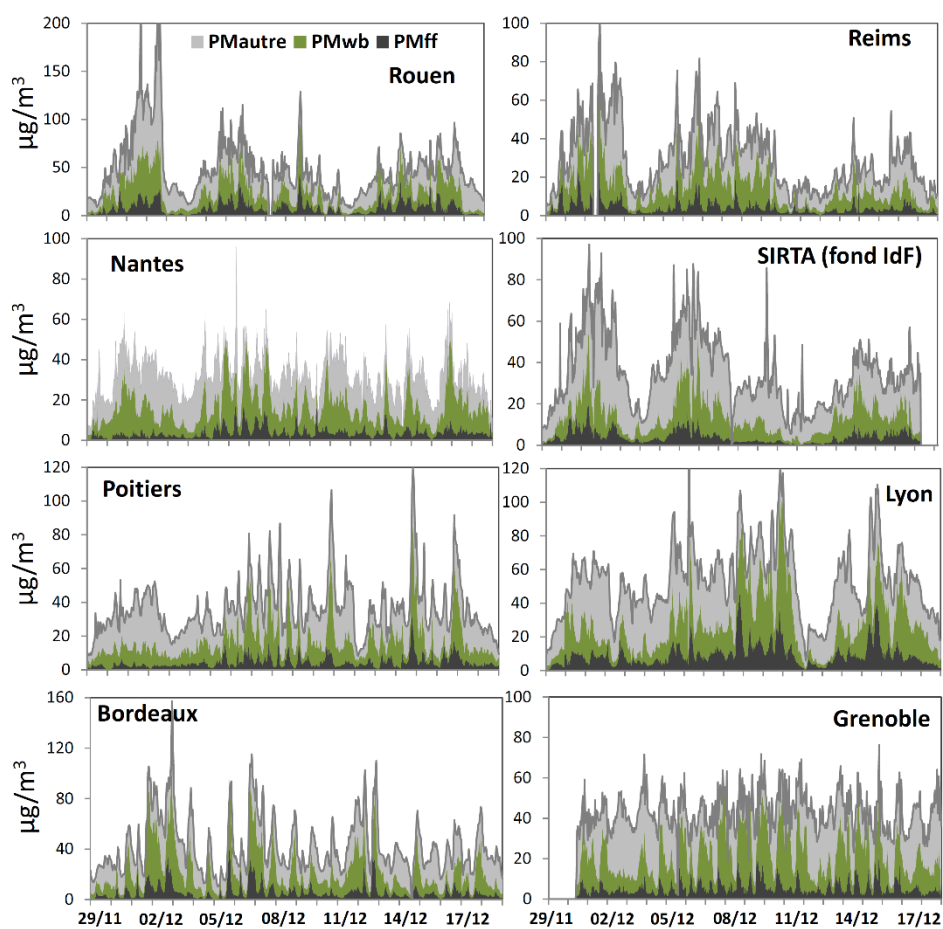


Figure 4 : Suivi temporel des concentrations  $PM_{10}$  et estimations des contributions des fractions issues des émissions primaires liées à la combustion d'hydrocarbures ( $PM_{ff}$ ) et de biomasse ( $PM_{wb}$ ) sur différents sites de fond (péri-)urbain entre le 29/11 et le 18/12. (courbes empilées).

## 2.2 Episode de mi-janvier 2017

Début 2017, un important épisode de pollution particulaire a d'abord touché la pointe nord de la France et le bassin méditerranéen (17-18 janvier), puis s'est généralisé à la quasi-totalité de la métropole du 20 au 23 janvier. Comme pour l'épisode de début décembre 2016, les données obtenues par les analyseurs automatiques de la composition chimique des particules (AE33 et ACSM) ont pu être exploités en temps réel [9].

Cet épisode de pollution s'est avéré fortement influencé par l'accumulation des polluants à grande échelle. Il présentait des caractéristiques globalement similaires à celles des épisodes de pollution de décembre 2016 (prédominance des sources de combustion, dont transport routier et chauffage résidentiel au bois), avec néanmoins une (plus) forte contribution des aérosols secondaires issus des transformations chimiques (notamment dans le Nord, le bassin parisien et la zone Rhône-Alpes).

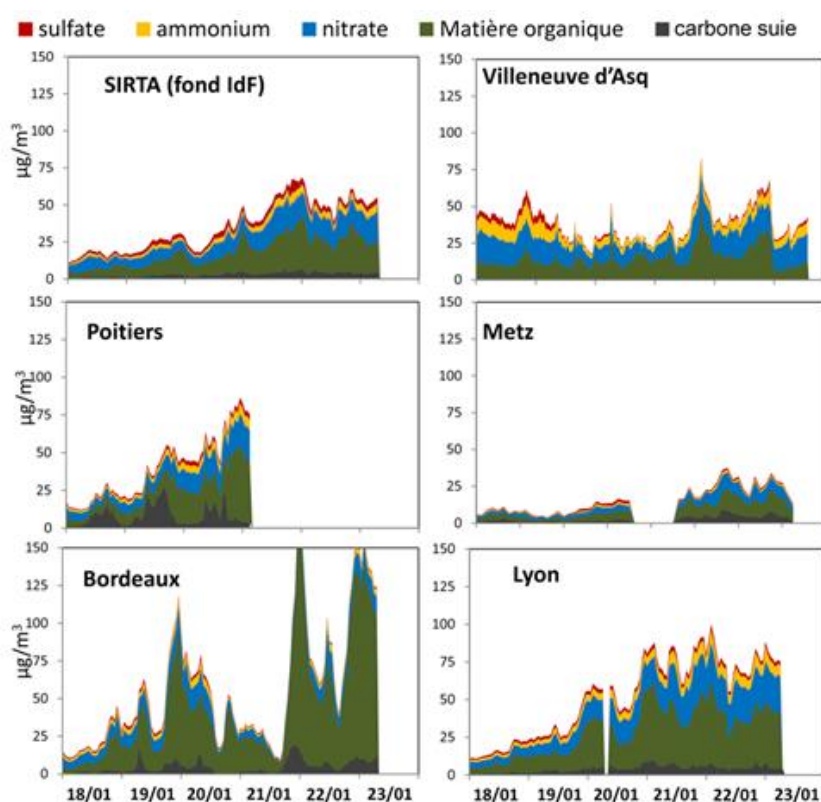
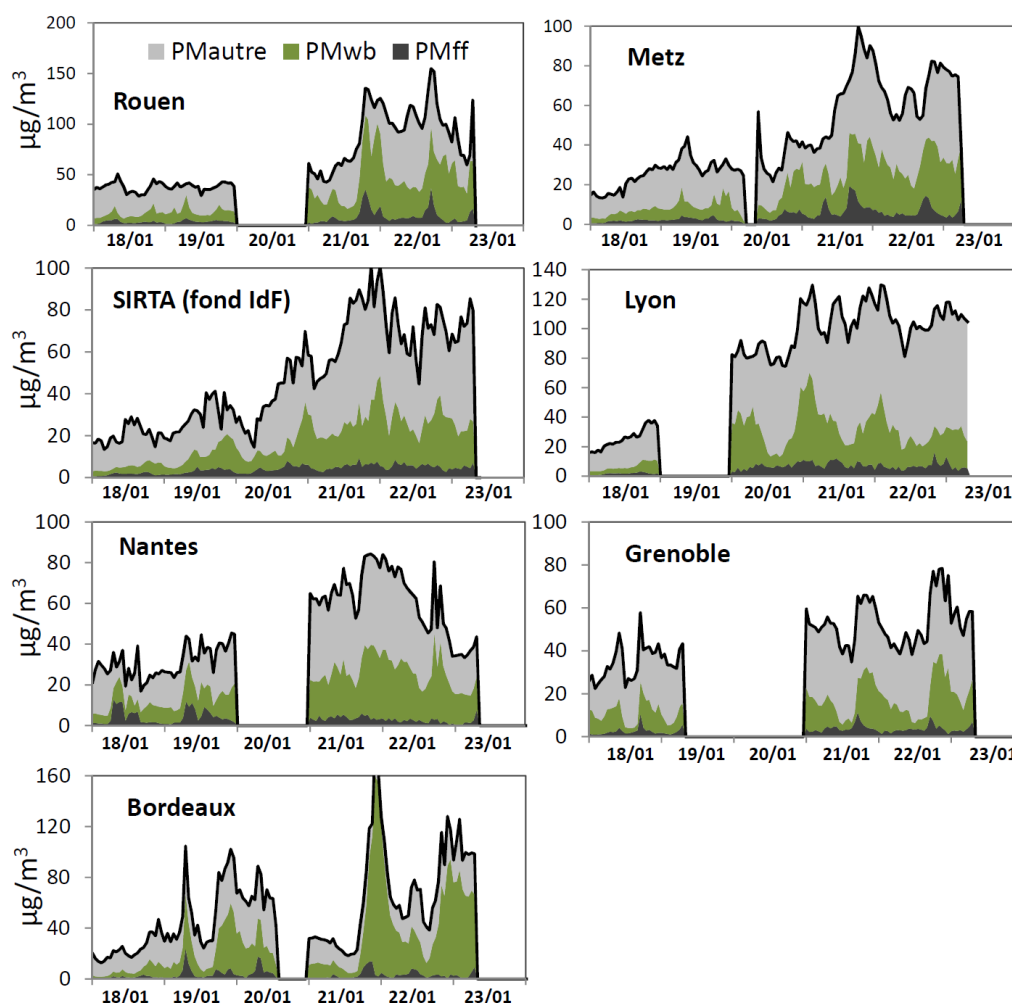


Figure 5 : Variations temporelles des espèces chimiques majeures des particules fines sur 6 sites de fond (péri-)urbain. Mesures ACSM et AE33. (Courbes empilées).

L'influence significative des processus locaux sur les concentrations mesurées au niveau de chaque station a pu être mise en évidence, du fait de l'importance des aérosols carbonés (Figure 5), et en particulier la matière organique dans les particules fines, représentant par exemple 50% des PM<sub>10</sub> sur le plateau de Saclay et plus de 75% des PM<sub>10</sub> à Bordeaux. Comme pour les épisodes de décembre 2016, cette prépondérance de la matière organique s'explique en premier lieu par l'importance des émissions de combustion de biomasse (Figure 6).



**Figure 6 :** Suivi temporel des concentrations  $PM_{10}$  et estimations des fractions issues des émissions primaires liées à la combustion d'hydrocarbures (PMff) et de biomasse (PMwb) sur différents sites de fond (péri-)urbain. (Courbes empilées) du 18 au 23 janvier 2017.

## 2.3 Caractérisation chimique des dépassements de valeurs limites $PM_{10}$ dans la zone caraïbe

Cette action, initialement prévue sur la période 2017-2018, vise à améliorer la compréhension de l'origine des épisodes de dépassements PM en zone Caraïbe au cours des dernières années. En lien avec le programme CARA, elle inclut des campagnes de prélèvements et d'analyses chimiques de filtres, visant notamment à mettre en œuvre en Martinique la méthodologie européenne pour l'estimation de l'impact des poussières sahariennes. La campagne de mesure en Martinique devait débuter au premier trimestre 2017. Néanmoins, elle a dû être décalée par manque de disponibilité des personnels de l'AASQA. L'installation du dispositif de mesures nécessaire à cette campagne a finalement été réalisée en octobre 2017. En parallèle, des campagnes de prélèvements sur filtres ont également été organisées avec Gwad'air et ORA Guyane. Une première série d'analyses (comprenant les mesures de concentrations de métaux et métalloïdes par l'IMT Lille-Douai) des filtres prélevés par les trois AASQA concernées sera réalisée au premier semestre 2018.

### 3. COMPARAISONS MESURES / MODELE (PREV'AIR)

Afin d'optimiser les capacités de prévision du système PREV'AIR pour les concentrations de PM, il est nécessaire d'évaluer les performances de CHIMERE pour la simulation de la composition chimique des particules. En 2017, les résultats simulés par CHIMERE dans la configuration de PREV'AIR ont été comparés aux mesures du programme CARA (sulfate, nitrate, ammonium, carbone élémentaire et aérosol organique) lors de l'épisode de pollution de début décembre 2016 [10].

Les résultats de cette comparaison sont synthétisés dans le Tableau 1 ci-dessous.

**Tableau 1 : Statistiques de la comparaison des moyennes journalières entre modèle et les différents types de mesures pour les épisodes de pollution de début décembre 2016. \* RMSE : erreur quadratique moyenne.**

| Composé         | Matrice           | Type de mesures | Nombre de stations | Moyenne modèle<br>$\mu\text{g}/\text{m}^3$ | Moyenne mesure<br>$\mu\text{g}/\text{m}^3$ | RMSE*<br>$\mu\text{g}/\text{m}^3$ |
|-----------------|-------------------|-----------------|--------------------|--------------------------------------------|--------------------------------------------|-----------------------------------|
| SO <sub>4</sub> | PM <sub>10</sub>  | Filtres         | 10                 | 2,1                                        | 1,9                                        | 1,6                               |
|                 | PM <sub>2,5</sub> | Filtres         | 1                  | 1,5                                        | 1,5                                        | 0,6                               |
|                 | PM <sub>1</sub>   | Automatiques    | 6                  | 1,9                                        | 1,3                                        | 1,5                               |
| NO <sub>3</sub> | PM <sub>10</sub>  | Filtres         | 10                 | 6,7                                        | 6,4                                        | 3,2                               |
|                 | PM <sub>2,5</sub> | Filtres         | 1                  | 6,7                                        | 6,1                                        | 3,6                               |
|                 | PM <sub>1</sub>   | Automatiques    | 6                  | 5,2                                        | 6,1                                        | 3,2                               |
| NH <sub>4</sub> | PM <sub>10</sub>  | Filtres         | 10                 | 3,0                                        | 2,3                                        | 1,5                               |
|                 | PM <sub>2,5</sub> | Filtres         | 1                  | 2,5                                        | 2,2                                        | 1,1                               |
|                 | PM <sub>1</sub>   | Automatiques    | 6                  | 2,5                                        | 2,0                                        | 1,4                               |
| EC              | PM <sub>10</sub>  | Filtres         | 10                 | 2,7                                        | 2,8                                        | 2,7                               |
|                 | PM <sub>2,5</sub> | Filtres         | 1                  | 1,5                                        | 2,0                                        | 1,0                               |
| OM              | PM <sub>10</sub>  | Filtres         | 10                 | 4,2                                        | 21,6                                       | 20,5                              |
|                 | PM <sub>25</sub>  | Filtres         | 1                  | 2,9                                        | 13,2                                       | 12,7                              |
|                 | PM <sub>1</sub>   | Automatiques    | 6                  | 3,5                                        | 17,4                                       | 17,5                              |

On note tout d'abord une légère surestimation des concentrations de sulfate (SO<sub>4</sub>) par le modèle. Ce phénomène est notamment caractérisé par la simulation de quelques pics journaliers intenses, pouvant atteindre 10  $\mu\text{g}/\text{m}^3$  alors que les maxima observés par la mesure ne dépassent pas les 6  $\mu\text{g}/\text{m}^3$ . Cette surestimation pourrait être due à plusieurs facteurs :

- une mauvaise représentation des émissions de SO<sub>2</sub> dans le modèle : une mauvaise représentation du panache de plusieurs grands sites industriels ainsi que la hauteur d'injection des émissions peuvent expliquer localement des concentrations significatives simulées par le modèle ;
- un taux de H<sub>2</sub>SO<sub>4</sub> primaire (fixé à 1% quel que soit le secteur d'activité) dans les émissions de soufre oxydé (SO<sub>2</sub>+H<sub>2</sub>SO<sub>4</sub>) trop important ;
- une chimie d'oxydation du SO<sub>2</sub> trop rapide. Cette cinétique est fortement dépendante du contenu en eau liquide ainsi que du pH des nuages, paramètres particulièrement délicats à estimer ;
- une sous-estimation des dépôts humides de SO<sub>x</sub>, comme récemment mis en avant par une campagne EURODELTA d'intercomparaison de modèles.

Pour le nitrate ( $\text{NO}_3$ ), l'évaluation quantitative a été interprétée uniquement sur la base des mesures automatiques afin d'éviter l'influence de possibles artefacts de prélèvements négatifs sur filtres (dû à des phénomènes de revolatilisation). Comme indiqué par le Tableau 1, les comparaisons indiquent alors une légère sous-estimation globale des concentrations de nitrate par le modèle. A noter que CHIMERE, dans la configuration utilisée pour PREVAIR, ne prend pas en compte la condensation d'acide nitrique ( $\text{HNO}_3$ ) sur les poussières désertiques et/ou sur les sels marins. Bien que le diamètre de ces particules soit principalement supérieur à  $1\text{ }\mu\text{m}$ , ces processus peuvent affecter la formation de nitrate dans les particules fines en influençant sur les concentrations de  $\text{HNO}_3$  disponibles pour la formation de nitrate d'ammonium.

Pour l'ammonium ( $\text{NH}_4$ ), les concentrations sont légèrement surestimées par le modèle, vraisemblablement en lien avec la simulation de pics de sulfate (d'ammonium) trop intenses, comme discuté ci-dessus.

Les concentrations de carbone élémentaire (EC) sont globalement bien simulées, avec néanmoins de fortes différences pouvant être observées d'un jour à l'autre et/ou d'un site à l'autre (comme illustré par une erreur quadratique moyenne du même ordre que les niveaux de concentrations simulés, Tableau 1). EC étant un composé primaire et passif, ces résultats sont probablement dus à des problèmes liés à une mauvaise spatialisation et temporalisation des émissions primaires de particules mais aussi à une mauvaise paramétrisation de la composition chimique de ces émissions. En effet, les émissions de carbone élémentaire sont obtenues en séparant les émissions primaires de particules en plusieurs composés. Le modèle suppose que 17% des émissions du secteur résidentiel et 19% des émissions du trafic sont des émissions de carbone élémentaire. Or, d'après les rapportages réalisés dans le cadre du programme EMEP<sup>1</sup>, seul 10% des émissions du secteur résidentiel et 46% des émissions du trafic routier sont des émissions de EC. Il est donc probable que les émissions de EC par le trafic routier soient fortement sous-estimées tandis que les émissions de EC par le secteur résidentiel sont certainement surestimées ici.

Enfin, cet exercice de comparaison mesures/modèle indique une très forte sous-estimation des concentrations d'aérosols organiques (OM) par le modèle. Cette sous-estimation peut s'expliquer partiellement par une mauvaise spéciation des émissions de particule du secteur résidentiel dominé par les émissions du chauffage au bois. En effet, l'aérosol organique devrait constituer la quasi-totalité des particules primaires dans l'inventaire d'émissions pour le secteur résidentiel (e.g., 90% pour les aérosols émis par la combustion de bois tendre) alors qu'une petite moitié seulement des émissions du secteur résidentiel sont généralement considérées comme étant de l'aérosol organique. Par ailleurs, de récentes études suggèrent une forte sous-estimation (d'un facteur 3 en moyenne sur l'Europe [11]) dans les inventaires des émissions liées au chauffage au bois. Une autre source d'erreur peut également provenir du fait que CHIMERE, dans la configuration de PREV'AIR, ne prend pas en compte le caractère semi-volatile des composés organiques qui se partagent entre la phase gazeuse et la phase particulaire en fonction de la température et de la masse d'aérosol organique. Une meilleure prise en compte de ces phénomènes fait l'objet de différents travaux de recherche, qui pourront permettre d'optimiser le système Prev'Air à relativement court terme (2-3 ans).

---

<sup>1</sup> The European Monitoring and Evaluation Programme (<http://www.emep.int/>), pour la coopération internationale sur la pollution atmosphérique transfrontière en application du protocole de Göteborg (1999).

## 4. ESTIMATION DES SOURCES DE PM A L'AIDE D'OUTILS STATISTIQUES

Dans la continuité des travaux réalisés depuis 2012, des outils statistiques de traitement de données ("modèles récepteurs") sont mis en œuvre afin de quantifier l'impact des principales sources primaires de PM sur différents sites du programme CARA. Pour ce faire, des analyses chimiques de prélèvements sur filtres collectés par les AASQA sont réalisées par le LCSQA (INERIS et IMT LD) et/ou des laboratoires universitaires (e.g., LSCE, IGE).

En 2017, cette action incluait notamment l'analyse des résultats obtenus en étroite collaboration avec Atmo Grand-Est pour le site urbain de *Metz-Borny*. Des prélèvements journaliers, un jour sur trois, par préleveur haut débit DA-80 (30 m<sup>3</sup>/h) ont été réalisés par l'AASQA du 14/04/2015 au 01/01/2017. Ces prélèvements ont ensuite été soumis à analyse chimique, tel que décrit par le Tableau 2.

Tableau 2 : Liste des composés analysés pour l'étude des sources de PM sur la station de *Metz-Borny*

| Composés analysés                                                                                                                                                                                                                                                                                        | Instrumentation                |
|----------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------|--------------------------------|
| OC / EC                                                                                                                                                                                                                                                                                                  | Sunset Analyzer (LSCE)         |
| Acide MéthylSulfonique (MSA), Oxalate, Cl <sup>-</sup> , NO <sub>3</sub> <sup>-</sup> , SO <sub>4</sub> <sup>2-</sup> , Na <sup>+</sup> , NH <sub>4</sub> <sup>+</sup> , K <sup>+</sup> , Mg <sup>2+</sup> , Ca <sup>2+</sup> , Levoglucosan, Arabitol, Mannosan, Mannitol, Mannose, Galactosan, Glucose | Chromatographie ionique (LSCE) |
| Ag, As, Ba, Bi, Cd, Ce, Co, Cs, Cu, La, Li, Mn, Mo, Ni, Pb, Rb, Sb, Sc, Se, Sn, Sr, Th, Tl, U, V, Zn                                                                                                                                                                                                     | ICP – MS (IMT LD)              |
| Al, Fe, Ti                                                                                                                                                                                                                                                                                               | ICP – AES (IMT LD)             |

Une analyse de type *Positive Matrix Factorization* (PMF) [12] a ensuite pu être réalisée sur ce jeu de données de composition chimique. La solution optimale de l'analyse PMF a été obtenue pour 8 facteurs. Quatre facteurs, ou sources, anthropiques ont été identifiées : 2 sources primaires (trafic et combustion de biomasse) et 2 facteurs secondaires (nitrate d'ammonium et sulfate d'ammonium). Les quatre autres sources sont associées à des émissions naturelles (poussières terrigènes, biogénique primaire, sels de mer anthropisés et biogénique marin secondaire). La figure 7 illustre leurs variations temporelles ainsi que les moyennes mensuelles et saisonnières correspondantes.

En moyenne annuelle, la combustion de biomasse contribue à environ 14% des concentrations de PM<sub>10</sub>. Sa saisonnalité est très marquée, avec des concentrations quasi-nulles en été, alors que ce facteur représente la source majoritaire de pollution en hiver (1/3 des PM<sub>10</sub> en moyenne hivernale). Il est également intéressant de noter que la contribution journalière de la combustion de biomasse (essentiellement chauffage au bois) a atteint jusqu'à 60% des PM<sub>10</sub> en décembre 2016, confirmant à nouveau les résultats obtenus pour l'analyse des épisodes de pollution sur cette période (section 2). Les émissions primaires liées au trafic routier contribuent quant à elles à un peu moins de 18% des PM<sub>10</sub> en moyenne annuelle, avec une saisonnalité peu marquée malgré des concentrations relativement plus élevées en automne.

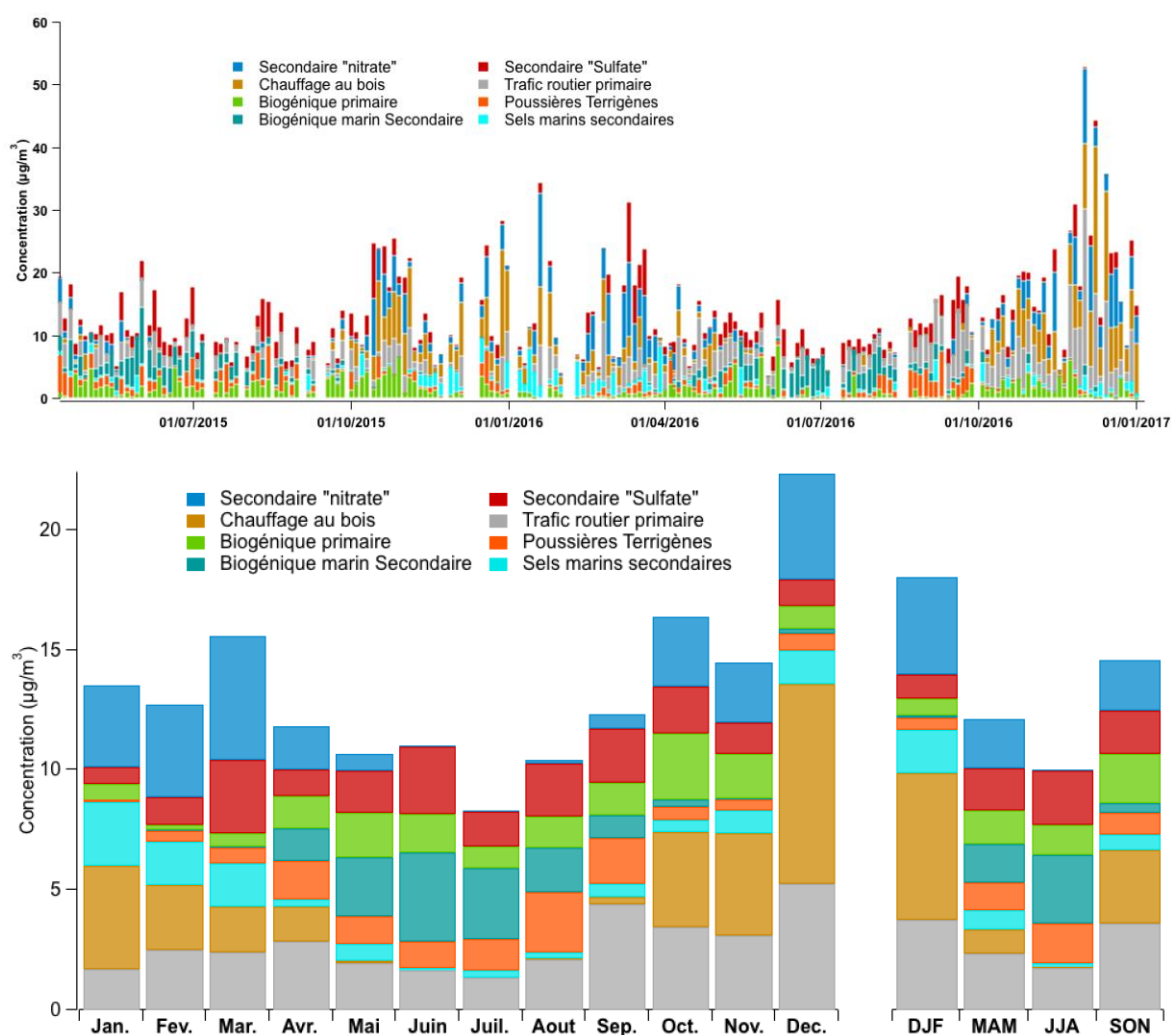


Figure 7 : (haut) Variations temporelles des huit facteurs identifiés par PMF ; (bas) Moyennes mensuelles et saisonnières pour ces mêmes facteurs.

Les deux autres sources anthropiques sont caractérisées par la présence de nitrate, de sulfate et d'ammonium, qui leur confère donc un caractère secondaire marqué. La faible volatilité du sulfate d'ammonium lui confère une temporalité peu sujette aux variations saisonnières des conditions atmosphériques (e.g. température, humidité), et présente des concentrations mensuelles de l'ordre de  $1\text{-}2\ \mu\text{g}/\text{m}^3$  toute l'année, pour une contribution moyenne aux  $\text{PM}_{10}$  d'environ 14%. Ce facteur est généralement considéré comme « fond régional » ou peut être associé à du transport à longue distance. A l'inverse, le facteur associé au nitrate d'ammonium présente une forte saisonnalité, avec les concentrations les plus élevées en hiver et printemps, notamment du fait de son caractère semi-volatile.

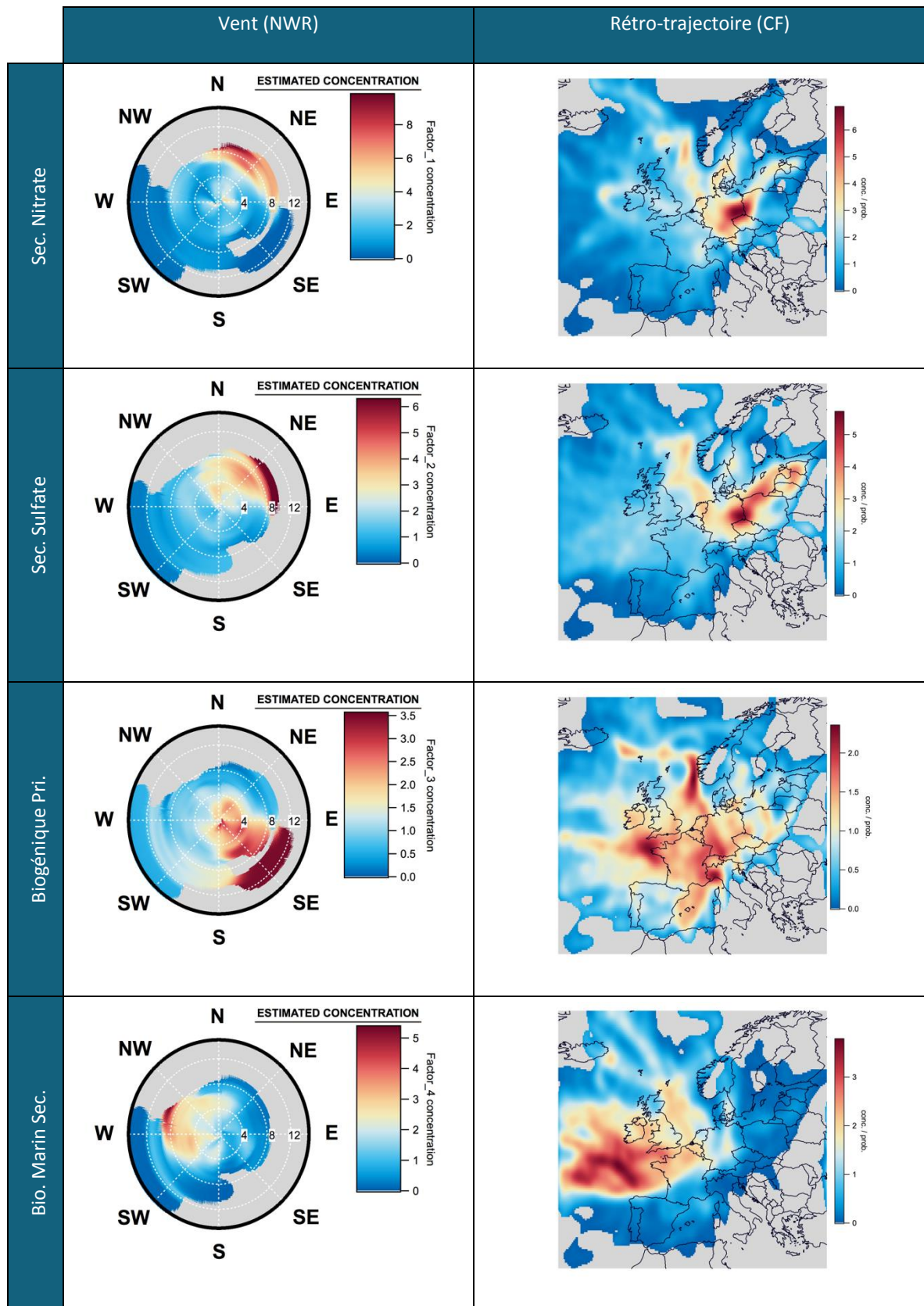
Pour les sources naturelles (environ 40% des  $\text{PM}_{10}$  à l'échelle annuelle), la distance au littoral côtier (de l'ordre de 400km au minimum) explique la présence des émissions marines sous la forme d'un facteur « sels marins secondaires ». Par comparaison à la composition de l'eau de mer, ce dernier est appauvri en chlore et enrichi en sulfate, nitrate et matière organique.

Ce phénomène s'explique par le remplacement du chlore par d'autres espèces lors du transport de masse d'air, à travers des réactions acido-basiques avec des polluants anthropiques (tel par exemple que l'acide nitrique selon la réaction suivante :  $\text{NaCl}_{(p)} + \text{HNO}_{3(g)} \rightarrow \text{HCl}_{(g)} + \text{NaNO}_{3(p)}$ ). Ce facteur contribue à environ 8% des  $\text{PM}_{10}$  en moyenne annuelle. L'autre facteur liée aux émissions marines correspond aux particules issues d'émissions de l'activité biologique marine, comme le phytoplancton. Ce facteur contribue à ici environ 12% des  $\text{PM}_{10}$ , en moyenne annuelle, et présente des maxima de concentration au cours de l'été (en raison notamment de la saisonnalité des cycles d'émission des précurseurs biogéniques). Par ailleurs, un facteur « biogénique primaire », caractérisé par la présence de polyols (composés traceurs notamment des spores fongiques), contribue à environ 12% des  $\text{PM}_{10}$  à l'échelle annuelle, avec des maxima de concentrations en automne. Enfin, le facteur « poussières terrigènes », riche en éléments métalliques, contribue pour environ 8% des  $\text{PM}_{10}$  en moyenne annuelle, avec des concentrations significatives au printemps et en été.

L'analyse des directions et vitesses de vent ainsi que des rétro-trajectoires de masse d'air a permis d'étudier les origines géographiques les plus probables pour l'ensemble des facteurs mis en évidence par l'analyse PMF. Cette analyse a été réalisée à l'aide de l'outil ZeFir [13]. Tout d'abord, les concentrations journalières obtenues pour chaque facteur ont été couplées avec les données de vent selon la méthodologie de *Non-parametric Wind Regression* (NWR). Une augmentation des concentrations clairement liée à la diminution des vitesses de vent indique une origine globalement locale du facteur de source pris en compte. Comme illustré par la Figure 8, c'est ici le cas des deux principales sources primaires anthropiques identifiées (i.e., trafic routier et chauffage au bois).

Pour les six autres facteurs, des contributions plus lointaines sont à envisager. L'utilisation de la méthodologie de *Concentration-Weighted Trajectory* (CWT) a permis d'associer la valeur des concentrations journalières de ces facteurs aux coordonnées de rétro-trajectoires des masses d'air influençant le site de prélèvement. Il est à noter que l'influence du dépôt humide en cours du transport (i.e., lessivage des particules par la pluie) a été pris en compte en ignorant les rétro-trajectoires associées à des précipitations supérieures à 1mm/h, alors que l'impact de phénomènes « hors couche limite » a été minimisé en tronquant les rétro-trajectoires présentant des altitudes supérieures à 2000m au-dessus du niveau de la mer.

Pour les deux sources secondaires inorganiques, l'analyse CWT met en lumière un *hotspot* d'émission en Europe centrale (Est de l'Allemagne, Pologne et République Tchèque). Ce résultat est cohérent avec la distribution géographique des émissions de dioxyde de soufre en Europe, notamment au travers de la production d'énergie au charbon. Cependant, la méthodologie utilisée ici ne prend pas en compte la chimie de formation de ces composés secondaires. Ainsi, même s'il reste plausible que la majorité des deux facteurs soit transportée depuis l'étranger, la production de nitrate d'ammonium au niveau régional l'est également, étant donnée l'importance des émissions françaises de  $\text{NO}_x$ , et de  $\text{NH}_3$ . Les sources marines sont quant à elles clairement associées à des fortes vitesses de vent, compris dans un secteur Ouest-Nord-Ouest / Sud-Ouest, confirmant leurs origines maritimes ou océaniques. Enfin, pour les poussières terrigènes et les particules biogéniques primaires, si l'analyse de vent montre une spécificité vers le Sud-Est, celle des rétro-trajectoires est beaucoup moins claire, suggérant des origines géographiques relativement diffuses.



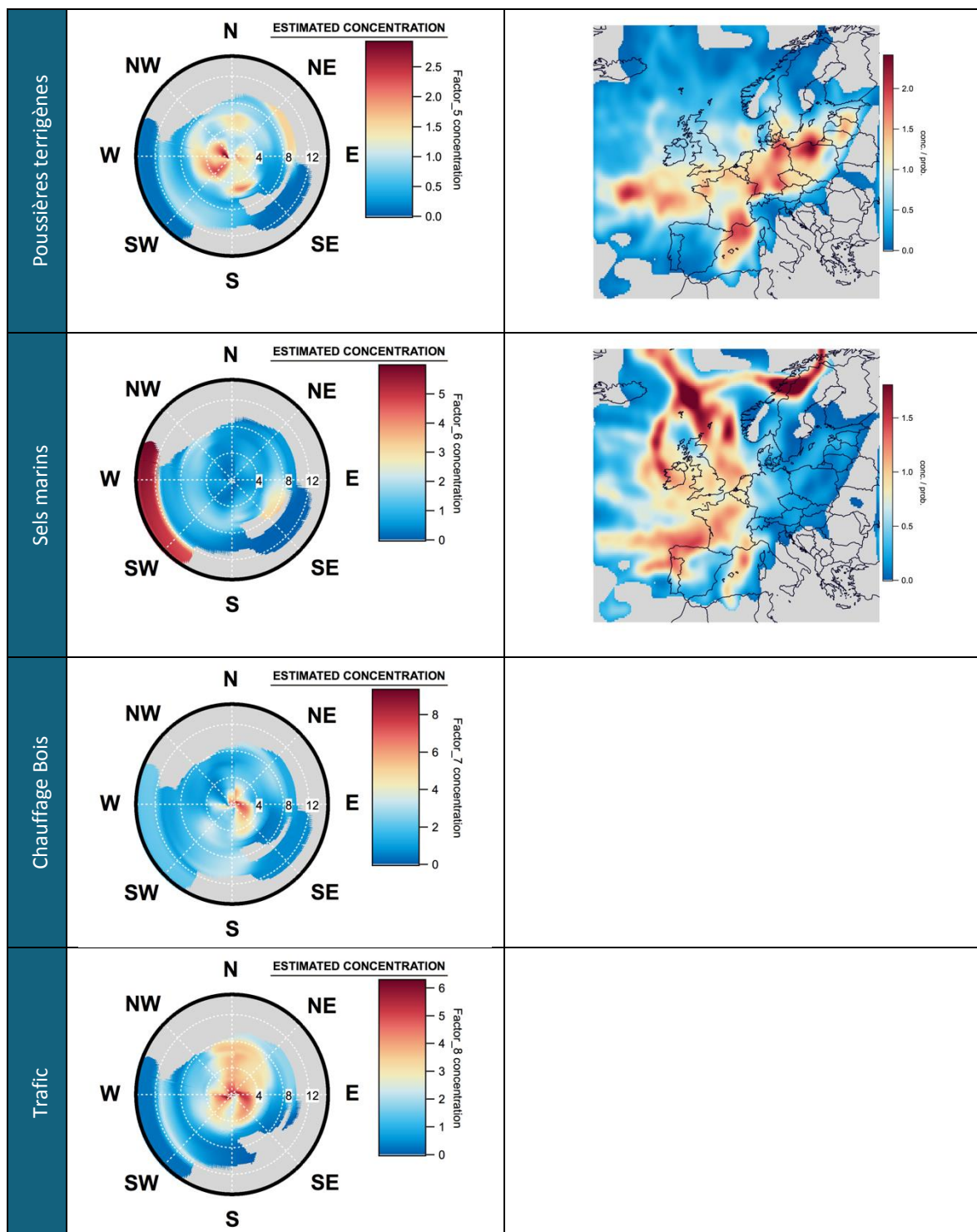


Figure 8 : Origines géographiques des sources à Metz. A gauche : analyse NWR (l'axe tangentiel représente la direction de vent, l'axe radial la vitesse de vent, et le code couleur la concentration du facteur de source) ; à droite : analyse CWT (code couleur représentant la concentration du facteur de source).

Enfin, la Figure 9 présente les contributions de l'ensemble des facteurs de sources en fonction des concentrations de  $PM_{10}$ . Les plus faibles concentrations de  $PM_{10}$  ( $<10 \mu g/m^3$ ) sont largement dominées par les sources naturelles (69%), alors que les sources anthropiques deviennent prédominantes pour les classes de concentrations supérieures à  $10 \mu g/m^3$ .

En particulier, les contributions des deux principales sources anthropiques primaires, trafic routier et chauffage au bois, augmentent avec les concentrations en  $PM_{10}$ , pour représenter les sources majoritaires de  $PM_{10}$  au-delà de  $25 \mu g/m^3$ .

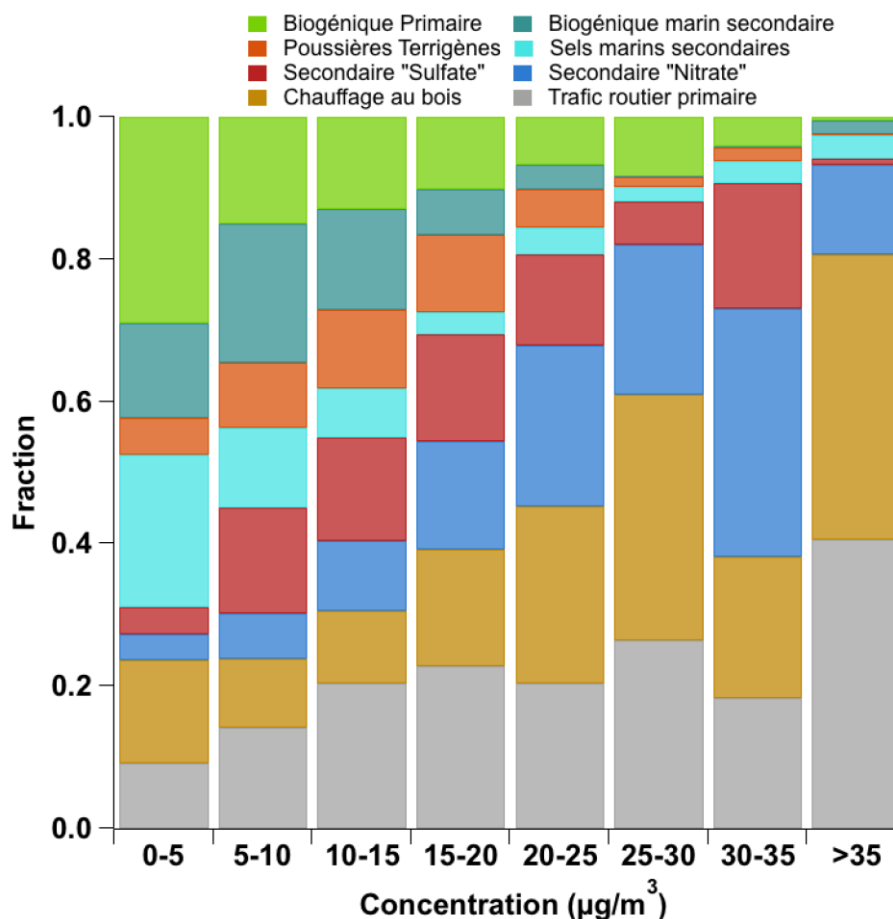


Figure 9 : Contribution des différentes sources par classes de concentrations en  $PM_{10}$  au cours de la période étudiée (avril 2015 – janvier 2017).

Ces résultats sont particulièrement importants dans le cadre de la mise en place de mesures d'amélioration de la qualité de l'air à Metz, d'autant que ce genre d'exercice n'avait jamais été effectué pour la zone Lorraine auparavant. De même, le maintien des accompagnements d'Atmo Hauts-de-France pour l'évaluation du PPA de la communauté de l'agglomération creilloise, et d'Atmo AuRA pour le suivi de l'impact de la mise en œuvre du "fonds air bois" à Grenoble, ont été poursuivis en 2017. L'analyse statistique des jeux de données incluant les résultats de composition chimique des filtres prélevés en 2017 sur les stations *Nogent sur Oise* et *Grenoble les Frênes*, sera réalisé courant 2018 en collaboration avec les AASQA concernées.

## 5. METHODOLOGIES D'ESTIMATION DES SOURCES EN TEMPS REEL

L'objectif de cette action consiste à tester, voire développer, des méthodologies simples mais rapides d'estimation des sources à partir des mesures automatiques de composition chimique des particules disponibles en AASQA (i.e., selon parc instrumental existant : ACSM et AE33). Pour l'AE33, une première approche, notamment mise en œuvre lors de l'hiver 2016-17 pour la compréhension en temps réel de l'origine des épisodes de pollution, est aujourd'hui opérationnelle et utilisée par les AASQA (cf. section 2). Cette méthodologie est basée sur la distinction entre les deux principales fractions du Black Carbon (BC) que l'on peut relier à la combustion d'hydrocarbures (BC<sub>ff</sub>) et à la combustion de biomasse (BC<sub>wb</sub>). Ces fractions peuvent ensuite être utilisées pour estimer (à l'aide d'un facteur multiplicatif et avec une précision de l'ordre de  $\pm 50\%$ ) les concentrations de PM<sub>10</sub> attribuables aux deux familles de sources (notées respectivement PM<sub>ff</sub> et PM<sub>wb</sub>), telles que :

$$\begin{aligned} \text{PM}_{\text{ff}} &= a \times \text{BC}_{\text{ff}} \\ \text{et } \text{PM}_{\text{wb}} &= b \times \text{BC}_{\text{wb}} \end{aligned}$$

où PM<sub>ff</sub> et PM<sub>wb</sub> représentent la concentration massique de particules PM<sub>10</sub> issues respectivement de la combustion d'hydrocarbures et de la combustion de biomasse. Outre le BC, PM<sub>ff</sub> et PM<sub>wb</sub> sont constituées principalement d'aérosols organiques primaires. Les coefficients *a* et *b* sont issus (i) de la littérature scientifique pour la contribution fossile, et (ii) d'études LCSQA précédentes pour la contribution biomasse (Tableau 3) [14]. A noter que les émissions primaires liées à l'échappement automobile sont comprises ici au sein de la fraction liée à la combustion d'hydrocarbures (PM<sub>ff</sub>), mais que ces estimations n'intègrent pas les émissions hors-échappement, i.e., particules issues de l'abrasion de la chaussée, des pneus, des freins, ... Ces estimations ne tiennent pas non plus compte de l'influence de l'échappement automobile sur la formation d'aérosols secondaires à partir des émissions de précurseurs gazeux (i.e., NO<sub>x</sub>, issus à 60% du transport au niveau national), dont l'influence sur les PM<sub>10</sub> est impossible à évaluer à partir de mesures en temps réel.

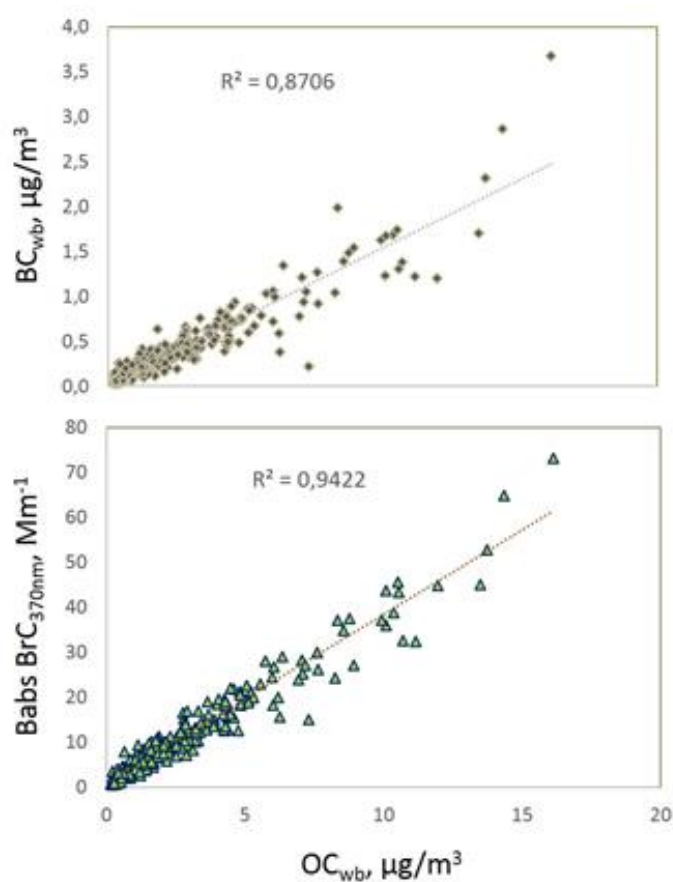
Tableau 3 : Facteurs de conversion

|           | PM <sub>biomasse</sub> / BC <sub>wb</sub> | PM <sub>biomasse</sub> / Babs BrC <sub>370nm</sub> |
|-----------|-------------------------------------------|----------------------------------------------------|
| Reims     | 13,0                                      | 0,54                                               |
| Rouen     | 12,7                                      | 0,47                                               |
| Nantes    | 15,2                                      | 0,50                                               |
| Lyon      | 13,4                                      | 0,53                                               |
| Grenoble  | 11,1                                      | 0,47                                               |
| Marseille | 16,0                                      | 0,52                                               |
| Poitiers  | 15,3                                      | 0,55                                               |
| Bordeaux  | 14,2                                      | 0,51                                               |

Un nouveau travail d'investigation des données a également été réalisé en 2017 afin de tester une méthodologie alternative pour l'estimation de la matière organique liée aux émissions par le chauffage au bois à partir des mesures AE33 [15].

Ce travail a porté sur les jeux de données recueillis pour la campagne hivernale 2014-2015 [16], en étudiant la correspondance entre les estimations issues de l'analyse du lévoglucosan (composé organique traceur de combustion de biomasse) échantillonné sur filtre et celles issues des mesures AE33 dans le proche UV (mesures de l'absorption à 370nm par les particules). En effet, ces dernières sont influencées non seulement par le Black Carbon mais également par des composés organiques de structure similaire à celle des HAP (BrC, brown carbon). L'absorption dans le domaine de l'infrarouge (i.e. mesures autour de 900nm pour l'AE33) n'étant influencée que par le Black Carbon, il est possible d'en déduire la part de l'absorption liée au Black Carbon, puis au BrC, dans le proche UV.

Cette étude tend à montrer une meilleure linéarité entre les estimations réalisées à partir des mesures sur filtres et les mesures d'absorption par le BrC (Babs BrC<sub>370nm</sub>), qu'avec les mesures de BC<sub>wb</sub> (Figure 10).



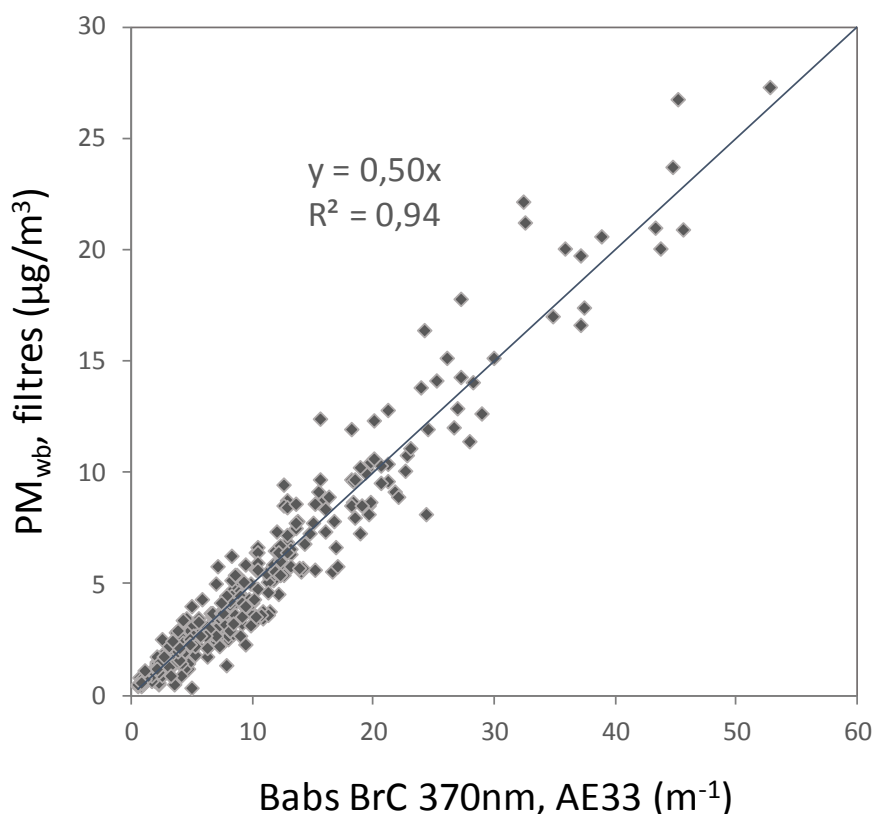
**Figure 10 :** Corrélation entre les concentrations de carbone organique liées à la combustion de biomasse (OC<sub>wb</sub>, estimées à partir des mesures de levoglucosan sur filtre) et les paramètre BC<sub>wb</sub> et Babs BrC issues des mesures AE33 lors de la campagne hivernale 2014-2015 (cf. Tableau 3 pour liste des sites étudiés)

Il en résulte, pour la méthode alternative étudiée ici, une plus faible dispersion des facteurs de conversion  $b^*$  (Tableau 3), déterminés pour chacun des sites étudiés tels que :

$$PM_{wb} = b^* \times \text{Babs BrC}_{370nm}$$

Ainsi, il semble envisageable de proposer une valeur moyenne de 0,5 (Figure 11) pour ce facteur de conversion ( $b^*$ ) sur l'ensemble des sites de fond urbain du dispositif national équipés d'un AE33. En d'autres termes, la valeur de la pente de corrélation entre  $PM_{wb}$  et  $Babs(BrC_{370nm})$  semble globalement constante d'un site à l'autre, alors que celle de la pente de corrélation entre  $PM_{wb}$  et  $BC_{ff}$  peut varier en fonction du site de mesure [16].

Il convient maintenant de confirmer la robustesse de cette méthodologie alternative sur un panel le plus large possible de jeux de données et de stations de mesure en collaboration avec les AASQA le souhaitant.



**Figure 11** : Corrélation entre les concentrations de PM liées à la combustion de biomasse ( $PM_{wb}$ ), estimées à partir des mesures de levoglucosan sur filtre, et le coefficient d'absorption calculé à partir des données AE33 pour le Brown Carbon à 370 nm ( $Babs\ BrC\ 370\ nm$ ) lors de la campagne hivernale 2014-2015 (cf. Tableau 3 pour liste des sites).

## 6. REFERENCES

---

- [1] Description du programme CARA du dispositif national de surveillance de la qualité de l'air. Note LCSQA 2014. <http://www.lcsqa.org/rapport/2014/ineris/description-programme-cara-dispositif-national-surveillance-qualite-air>
- [2] Méthodologies de détermination de la composition chimique des particules submicroniques en temps réel. Note LCSQA 2011. <http://www.lcsqa.org/rapport/2011/ineris/note-methodologies-determination-composition-chimique-particules-submicroniques->
- [3] Synthèse des travaux 2013 du programme CARA. Rapport LCSQA 2013. <http://www.lcsqa.org/rapport/2013/ineris/synthese-travaux-2013-programme-cara>
- [4] Périmètre de mise en œuvre d'Aerosol Chemical Speciation Monitors (ACSM) pour la mesure automatique de la composition chimique des PM au sein du dispositif national de surveillance de la qualité de l'air. Note LCSQA 2013. <http://www.lcsqa.org/rapport/2013/ineris/perimetre-mise-oeuvre-aerosol-chemical-speciation-monitors-acsm-mesure-automatiq>
- [5] Point d'étape sur l'implantation des ACSM en AASQA pour les besoins nationaux. Note LCSQA 2016. <http://www.lcsqa.org/rapport/2016/ineris/point-etape-implantation-acsm-aasqa-besoins-nationaux>
- [6] Campagne d'étalonnage des ACSM 2017 : application d'une nouvelle méthode d'étalonnage et comparaison des mesures. Rapport LCSQA 2017. Ref. INERIS: DRC-18-167619-04889A.
- [7] Episodes de pollution particulaire de début décembre 2016 : éléments de compréhension à partir des mesures de composition chimique. Rapport LCSQA 2017. <https://www.lcsqa.org/fr/rapport/2017/ineris/episodes-pollution-particulaire-debut-decembre-2016-elements-comprehension-parti>
- [8] Episodes de pollution particulaire de début décembre 2016 : éléments de compréhension à partir des mesures automatiques. Note LCSQA du 13 décembre 2016. <http://www.lcsqa.org/rapport/2016/ineris/episodes-pollution-particulaire-debut-decembre-2016-elements-comprehension-par-0>
- [9] Episodes de pollution particulaire de mi-janvier 2017 : éléments de compréhension à partir des mesures automatiques. Note LCSQA du 24 janvier 2017. [https://www.lcsqa.org/system/files/lcsqa2017-cara\\_note1\\_episode\\_pollu\\_mi\\_janv\\_2017.pdf](https://www.lcsqa.org/system/files/lcsqa2017-cara_note1_episode_pollu_mi_janv_2017.pdf)
- [10] Evaluation de la composition chimique simulée par CHIMERE pour l'épisode de pollution de décembre 2016. Rapport LCSQA 2017. Ref. INERIS: DRC-18-167619-02508A.
- [11] Particulate emissions from residential wood combustion in Europe – revised estimates and an evaluation. Denier van der Gon et al. Atmos. Chem. Phys., 15, 6503-6519, 2015
- [12] Programmes de recherche expérimentaux pour l'étude des sources de PM en air ambiant. Rapport LCSQA 2016. [https://www.lcsqa.org/system/files/rapport/lcsqa2016-veille\\_biblio\\_etude\\_des\\_sources\\_cara\\_2016.pdf](https://www.lcsqa.org/system/files/rapport/lcsqa2016-veille_biblio_etude_des_sources_cara_2016.pdf)
- [13] A user-friendly tool for comprehensive evaluation of the geographical origins of atmospheric pollution: Wind and trajectory analyses. Petit et al. Environmental Modelling & Software, 88, 183-187, 2017.
- [14] Bilan des travaux 2014-2015 du programme CARA. Rapport LCSQA 2015. <http://www.lcsqa.org/rapport/2013/ineris/synthese-travaux-2013-programme-cara>

[15] Estimation des concentrations de PM liées à la combustion de biomasse à partir des mesures d'absorption par le *Brown Carbon* (BrC). Note LCSQA 2018 (programme 2017). Ref. INERIS : DRC-18-167619-02994A.

[16] Impact de la combustion de biomasse sur les concentrations de PM10 (programme CARA - hiver 2014-2015). Rapport LCSQA 2015. <http://www.lcsqa.org/rapport/2015/ineris/impact-combustion-biomasse-concentrations-pm10-programme-cara-hiver-2014-2015>





**direction et secrétariat du LCSQA**

INERIS - parc technologique Alata - BP 2 - F60550 Verneuil-en-Halatte  
tél. 03 44 55 64 04 - [www.lcsqa.org](http://www.lcsqa.org)