



Bilan des travaux 2018-2019 du programme CARA

Laboratoire Central de Surveillance de la Qualité de l’Air

BILAN DES TRAVAUX 2018-2019 DU PROGRAMME CARA

**Olivier FAVEZ, Robin AUJAY, Yunjiang ZHANG, Alexandre ALBINET, Frédéric MELEUX, Morgane SALOMON (INERIS)
Laurent ALLEMAN, Véronique RIFFAULT (IMT Lille-Douai)**

	Rédaction	Vérification	Approbation
NOM	Olivier FAVEZ	Caroline MARCHAND	Marc DURIF
Qualité	Ingénieur de l’Unité ASUR Direction des risques chroniques	Responsable de l’Unité ASUR Direction des risques chroniques	Responsable du Pôle CARA Direction des risques 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

RESUME	7
REMERCIEMENTS ET COLLABORATIONS.....	9
1. INTRODUCTION	11
2. CARACTERISATION CHIMIQUE DES EPISODES DE POLLUTION PARTICULAIRE.....	13
3. SOURCES DE PARTICULES EN GUADELOUPE ET EN MARTINIQUE.....	17
4. ANALYSE DES EPISODES D'OZONE DE L'ETE 2019	22
5. ESTIMATION DES SOURCES DE PM SUR LE SITE DE GRENOBLE LES FRENES	30
6. MESURE EN CONTINU ET SUR LE LONG TERME DE LA COMPOSITION CHIMIQUE DES PARTICULES SUBMICRONIQUES AU SIRT.....	33
7. PARTICIPATION A LA REVISION DU GUIDE EUROPEEN POUR L'UTILISATION DES « MODELES RECEPTEURS ».....	38
8. VALORISATION DES TRAVAUX DU PROGRAMME CARA SOUS LA FORME DE PUBLICATIONS SCIENTIFIQUES	40
9. PERSPECTIVES D'EVOLUTION DU DISPOSITIF DE PRELEVEMENTS SUR FILTRES	43
10. REFERENCES	45

Le présent rapport synthétise les principaux travaux 2018 et 2019 du programme CARA (« CARActérisation chimique des particules ») du dispositif national de surveillance de la qualité de l'air. Fonctionnant en étroite collaboration avec les Associations agréées de surveillance de la qualité de l'air (AASQA) volontaires et des laboratoires universitaires, ce programme permet notamment de documenter, depuis une dizaine d'année, la composition chimique et les origines des particules atmosphériques affectant la qualité de l'air. Il intègre également la mise en œuvre d'outils statistiques et/ou de modélisation numérique, visant à l'amélioration des systèmes de prévision ainsi qu'à l'évaluation de possibles mesures de réduction des concentrations en air ambiant. Dans ce cadre, une étude spécifique a également été consacrée à l'ozone, polluant gazeux secondaire en interaction avec la phase particulaire.

Si des dépassements de valeurs limites journalières fixées pour les PM₁₀ sont encore fréquemment observés sur le territoire, notamment en fin d'hiver-début de printemps sous l'effet de l'accumulation des émissions primaires (dont le chauffage résidentiel et le transport routier) et la formation de particules secondaires (nitrate d'ammonium et aérosols organiques secondaires), aucun épisode de longue durée (> 3 jours) et de large échelle spatiale (impliquant simultanément plusieurs régions voisines) n'a été observé en métropole sur la période 2018-2019. En revanche, la survenue de pics de concentration de courte durée en bordure littoral Manche et mer du Nord entre la fin de l'hiver et le début de l'été semble répondre à des processus complexes, qu'il s'agira d'explorer sur la période 2020-2021.

Il est également à noter que 2018 et 2019 ont été marquées par de fortes intrusions de poussières sahariennes en zone Caraïbe ainsi que par d'importants épisodes estivaux de pollution à l'ozone. Pour ce dernier polluant, l'analyse des épisodes de l'été 2019 illustre l'effet bénéfique attendu d'une diminution des émissions des substances précurseurs (oxydes d'azote (NOx) et composés organiques volatils) sur quasiment l'ensemble du territoire, malgré la complexité des processus chimiques mis en jeu (avec de possibles augmentations localisées dans les grandes agglomérations et bassins industriels). Ces résultats confirment l'intérêt de la mise en place de plans de réduction ambitieux des émissions concernant toutes les activités humaines, en particulier en zone urbaine et fortement émettrice de NOx.

Par ailleurs, l'étude sur le long-terme menée depuis 2008 au niveau de la station grenobloise *Les Frênes* (fond urbain) indique une baisse significative des concentrations de PM₁₀, mais également du carbone élémentaire (EC) et des hydrocarbures aromatiques polycycliques (HAP). En revanche, les concentrations hivernales de PM issues de la combustion de biomasse ne présentent pas de tendance significative sur la période 2011-2017, conduisant à une augmentation de leur contribution relative aux PM₁₀. Le chauffage au bois reste donc l'un des principaux leviers d'actions pour l'amélioration de la qualité de l'air à Grenoble, et il apparaît nécessaire de poursuivre cette étude, afin notamment d'aider à la bonne évaluation de l'efficacité des politiques publiques mises en œuvre (dont les « fonds air bois ») en région Auvergne-Rhône-Alpes, comme sur d'autres territoires.

De même, la baisse notable (env. $0,4 \mu\text{g}/\text{m}^3$ / an) des concentrations de matière organique au SIRTa (fond régional, Ile de France) ne peut être que très partiellement attribuée à une diminution des émissions par le chauffage au bois sur la période 2011-2018. Si l'on note une diminution de l'ordre de $80 \text{ ng}/\text{m}^3$ / an de la fraction organique directement imputable à la combustion de biomasse, aucune tendance significative n'est observée à ce stade pour la fraction de carbone suie liée à cette même source ni pour la fraction organique primaire la moins oxydée (issue de la combustion d'hydrocarbures mais également au chauffage au bois). Dans le même temps, on note une diminution très légère (env. $20 \text{ ng}/\text{m}^3$ / an) mais statistiquement significative de la part de carbone suie émise par la combustion d'énergie fossile (incluant les émissions automobiles à l'échappement). Cette tendance pourrait s'accompagner d'une réduction de l'influence de l'ensemble des composés organiques volatils d'origines anthropiques sur la formation d'aérosols organiques secondaires, dont la composante la plus oxydée explique globalement la moitié de la baisse observée des concentrations de matière organique totale.

Enfin, les travaux réalisés en 2018 et 2019 ont également pris la forme de nombreuses collaborations scientifiques avec des acteurs académiques (inter-)nationaux, permettant notamment la révision du guide européen pour l'utilisation d'outils statistiques d'identification et de quantification des sources des polluants atmosphériques, ainsi que la publication dans des revues à comité de lecture d'une dizaine d'articles basés, en totalité ou pour partie, sur des résultats obtenus dans le cadre du programme CARA.

REMERCIEMENTS ET COLLABORATIONS

Les résultats des travaux présentés dans ce rapport sont le fruit de nombreuses collaborations, en particulier, au niveau national, avec les Associations Agréées de Surveillance de la Qualité de l’Air (AASQA), l’Institut des Géosciences de l’Environnement (IGE, CNRS-Université Grenoble-Alpes) et plusieurs laboratoires de l’Institut Pierre Simon Laplace (IPSL, impliquant notamment des chercheurs et techniciens du CNRS, du CEA et de l’université Paris-Saclay). Il nous est impossible de nommer ici l’ensemble des personnels et responsables de ces organismes impliqués dans les travaux du programme CARA sans risquer d’en oublier quelques-uns, mais nous espérons qu’ils sauront tous se reconnaître ici et prendre la part qui leur revient de nos remerciements chaleureux et amplement mérités.

1. INTRODUCTION

Le programme CARA du dispositif national de surveillance de la qualité de l'air 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 PM₁₀ du printemps 2007. Créé et géré par le LCSQA, ce dispositif aujourd'hui pérenne (<https://www.lcsqa.org/fr/le-dispositif-cara>), fonctionne en étroite collaboration avec les AASQA et, ponctuellement, avec des laboratoires universitaires [1]. Il a pour principaux objectifs de :

- Permettre la mise en œuvre de méthodologies de caractérisation chimique des particules atmosphériques adaptées à la surveillance opérationnelle et définir les modalités de contrôle et assurance qualité associés.
- 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 et/ou de mesures d'urgence adaptés.
- Participer à l'optimisation des modèles de chimie-transport (en particulier à l'aide d'exercices de comparaison des produits de sorties de ces modèles aux mesures), conduisant notamment à une meilleure anticipation des épisodes de pollution particulaire.
- Valoriser auprès d'autres acteurs nationaux (e.g., organismes de recherche en santé publique) et/ou internationaux l'expertise et les résultats acquis au sein du dispositif de surveillance national de la qualité de l'air sur ces thématiques.

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 PM₁₀ 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 près de 10 ans de données de spéciation chimique des particules submicroniques en Ile de France en temps réel. 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 métrologiques ne

sont donc pas reprises dans le présent rapport, mais restent directement disponibles sur le site web du LCSQA (e.g., [6]). Ainsi, le présent rapport se focalise sur les principales actions réalisées pour l'amélioration des connaissances sur la composition chimique et les origines des particules atmosphériques.

Contrairement aux années précédentes [7-9], aucun épisode de longue durée (> 3 jours) et de large échelle spatiale (impliquant entièrement et simultanément plusieurs régions) n'a été observé en métropole sur la période 2018-2019. En revanche, ces deux années ont été marquées par de fortes intrusions de poussières sahariennes en zone Caraïbe, faisant l'objet d'une étude spécifique. Pour la première fois, ce bilan des travaux du programme CARA intègre également une étude sur les épisodes estivaux d'ozone, dont l'impact général sur la qualité de s'accroît avec la survenue de fréquentes conditions caniculaires au cours de ces dernières années. Enfin, les derniers chapitres de ce rapport sont consacrés à la présentation des travaux de valorisation de l'expérience et des jeux de données acquis dans le cadre du programme CARA, ainsi qu'aux perspectives d'évolution de ce dernier concernant son volet basé sur des prélèvements sur filtres.

2. CARACTERISATION CHIMIQUE DES EPISODES DE POLLUTION PARTICULAIRE

Grâce à la centralisation des données ACSM et AE33 sur Geod'air, un outil de visualisation en temps quasi-réel de la composition chimique des particules fines observée sur les sites multi-instrumentés du programme CARA a pu être développé en 2018. Cet outil a été mis à la disposition des acteurs du dispositif national de surveillance de la qualité de l'air au cours du premier semestre 2019.¹ Pour exemple, la Figure 1 représente une impression d'écran de la partie supérieure de l'une de ces pages web, extraite le 25 février 2019. Actuellement alimenté de façon « manuelle » (une fois par jour), la nécessaire automatisation des processus de récupération des données à partir de Geod'air doit être réalisée en 2020.

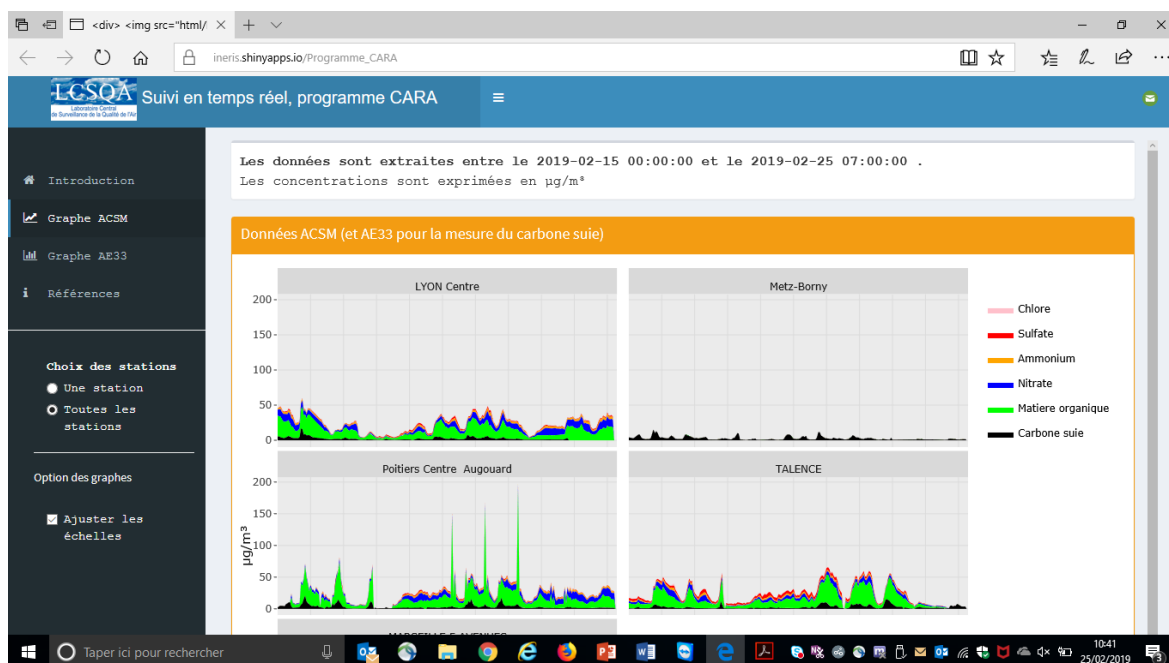


Figure 1 : impression d'écran présentant les données ACSM et AE33 sur différents sites du programme CARA entre le 15 et le 25 février 2019.

Cet outil de visualisation permet notamment d'optimiser les échanges d'informations entre les services d'astreintes des AASQA et le LCSQA pour la compréhension des épisodes de pollution. Ceux-ci apparaissent principalement entre la fin de l'automne et le début du printemps, sous des conditions anticycloniques favorisant l'accumulation des polluants, que les vents de faible intensité dispersent peu. De faibles températures conduisent aussi à un renforcement des émissions induites par le chauffage résidentiel. En outre, en fin d'hiver et au début du printemps, la situation est favorable à la formation de particules secondaires combinée à des sources d'émission primaires encore intenses, notamment lorsque les émissions issues des pratiques agricoles s'ajoutent aux émissions du trafic, de l'industrie ou, selon les conditions, du chauffage résidentiel.

¹ <https://www.lcsqa.org/fr/evenement/2019/gt-classification-des-episodes-de-pollution-aux-particules-28-juin-2019>

En 2018 et 2019, les situations météorologiques de ce type ont été relativement rares et les épisodes de pollution aux particules n'ont souvent duré que 2 ou 3 jours consécutifs maximum. De manière notable, les plus importants ont eu lieu fin février, aussi bien en 2018 qu'en 2019. Pour illustration, la Figure 2 présente les concentrations moyennes de PM₁₀ analysées ainsi que la composition chimique moyenne des particules fines mesurée sur quatre sites du dispositif CARA lors de la journée du 21 février 2018. On constate que plusieurs zones du quart nord-ouest de la France ont été affectées par une masse d'air d'origine continentale (Nord/Nord-Est) chargée en particules. Au sein de ces particules, on note la part importante du nitrate – qui traduit une forte prédominance du nitrate d'ammonium (NH₄NO₃) dans les particules. La survenue d'un épisode anticyclonique (froid et globalement ensoleillé) a ainsi favorisé la condensation en phase particulaire d'importantes quantités de nitrate d'ammonium, sous l'effet de la présence simultanée des nitrates, issus notamment du transport routier, et de l'ammoniac, dont les émissions anthropiques sont très majoritairement liées à des activités agricoles [10].

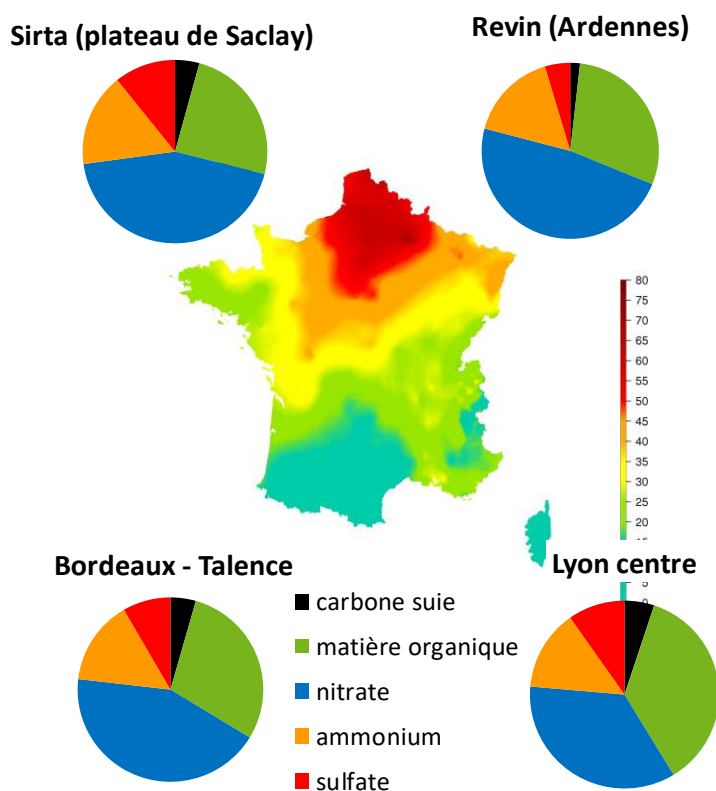


Figure 2 : Carte analysée de la concentration journalière en PM₁₀ (carte Prev'air analysée, à l'aide des données d'observation), et répartition des espèces chimiques majeures des particules fines sur 4 sites du dispositif CARA pour la journée du 21 février 2018

D'autres épisodes ont eu lieu au cours de l'hiver et du printemps 2018, mais sans persistance et sans ampleur géographique importante. C'était par exemple le cas les 12 et 13 avril, lorsqu'une masse d'air chargée en particules fines, et de secteur Nord/Nord-Est, a longé les côtes de la Manche engendrant des dépassements du seuil d'information et recommandation dans les Hauts-de-France et en Normandie (Figure 3, carte de gauche).

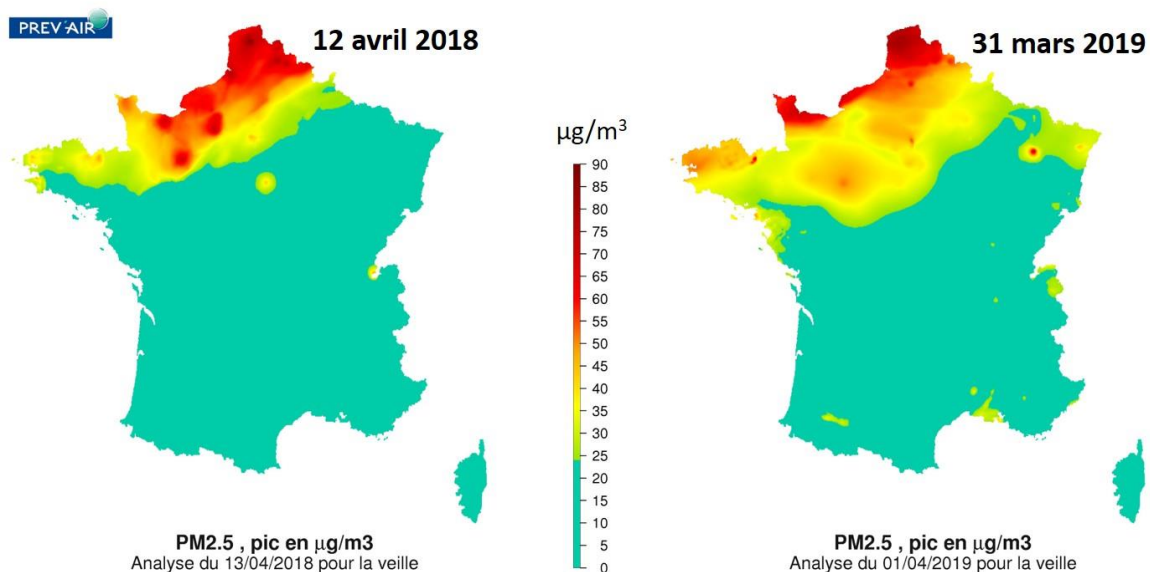


Figure 3 : Cartes analysées des concentrations horaires maximales des $\text{PM}_{2.5}$ le 12 avril 2018 (à gauche) et le 31 mars 2019 (à droite)

L'année 2019 a été relativement similaire à 2018 en termes d'occurrence et de temporalité des dépassements de seuils journaliers pour les PM_{10} sur le territoire métropolitain. En particulier, quelques épisodes de courte durée ont été observés fin février, notamment sur la moitié nord du territoire. Par rapport à l'épisode de février 2018, ces pics de concentrations étaient caractérisés par une proportion relative en nitrate d'ammonium globalement moins importante, et par une plus forte fraction de matière organique (Figures 4 et 5). Ces dernières observations semblent indiquer une plus forte influence des émissions primaires de combustion, dont le chauffage résidentiel au bois, ce qui a été confirmé par des concentrations relativement élevées de BC_{wb} (i.e., part du carbone suie liée à la combustion de biomasse) et de lévoglucosan (marqueur organique de cette même source d'émission).

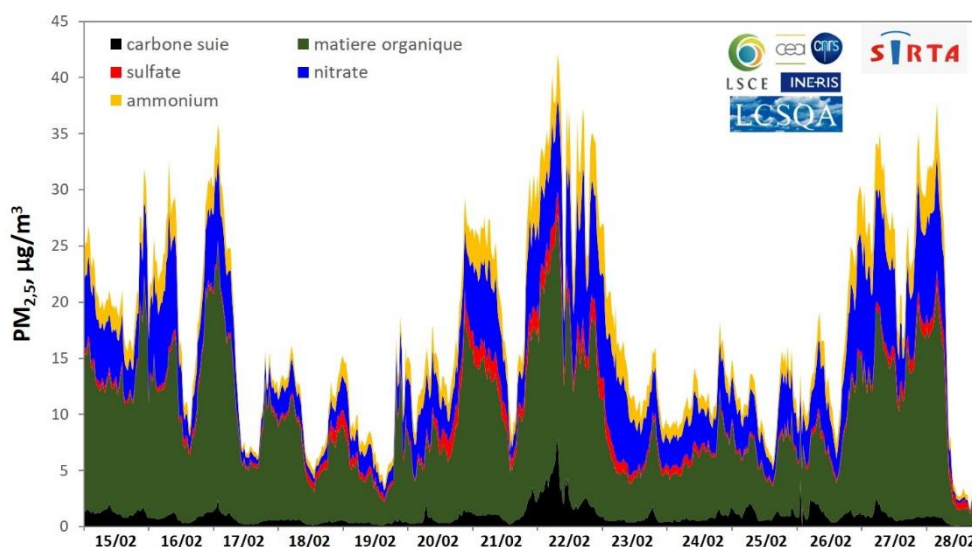


Figure 4 : Mesures ACSM et AE33 au SIRT pour la deuxième quinzaine du mois de février 2019

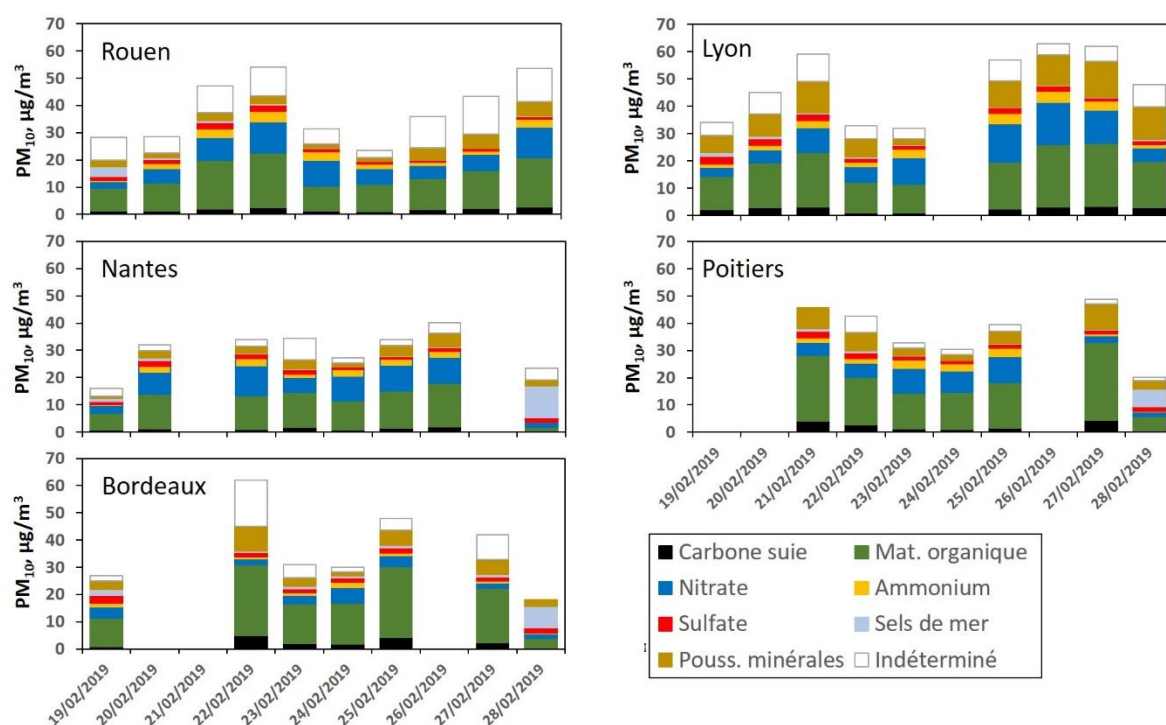


Figure 5 : Composition chimique des PM₁₀ prélevés sur filtres sur différents sites du programme CARA entre le 19 et le 28 février 2019.

Par ailleurs, et toujours comme en 2018, des pics de concentrations de particules ont ensuite été enregistrés ponctuellement en différents points du territoire, en particulier dans les vallées alpines, dans les grandes agglomérations (Paris, Lyon, Marseille, Lille, etc.), en région Grand-Est, et, de façon plus notable, sur la façade littorale du quart nord-ouest de la France (manche et mer du nord). Comme illustré par la Figure 3, c'était notamment le cas pour la journée du 31 mars 2019. La survenue de ce type d'épisodes côtiers printaniers semble s'intensifier ces quelques dernières années. Une étude spécifique - incluant l'utilisation d'outils statistiques de déconvolution des sources - est prévue au premier semestre 2021, en étroite collaboration avec Atmo Haut-de-France et Atmo Normandie, afin de préciser leurs origines et particularités.

3. SOURCES DE PARTICULES EN GUADELOUPE ET EN MARTINIQUE

Malgré la tendance à la baisse des concentrations de particules observée à l'échelle nationale [11-12], les dépassements des valeurs limites fixées pour les PM₁₀ restent récurrents en zone Caraïbe. En Martinique, par exemple, le seuil relatif à la valeur limite journalière (concentrations journalières > 50 µg/m³ plus de 35 jours par an) est dépassé sur une ou plusieurs station(s) de l'AASQA chaque année depuis 2005 (hormis 2008).

La compréhension (et, éventuellement, la maîtrise) de ces dépassements nécessite une bonne connaissance des origines (sources et/ou mécanismes de formation) des particules mesurées en air ambiant. De précédents travaux du programme CARA ont permis de mettre en évidence dès 2010 le rôle joué par les particules naturelles dans la survenue de certains pics de PM₁₀ en Martinique [13]. Parmi ces particules naturelles, des poussières (ou *Brumes*) sahariennes peuvent être générées par les tempêtes de sable au Sahara puis transportées sur de longues distances. Ces événements peuvent affecter sensiblement la qualité de l'air en France métropolitaine (en particulier la Corse et la région PACA), mais également impacter la Guyane (le plus souvent entre décembre et avril) et les Antilles (généralement entre avril et septembre). La Figure 6 illustre la survenue de ce type d'épisode d'import de poussières sahariennes en zone Caraïbes, à partir de travaux de modélisation à l'échelle globale.



En lien avec l'article 12 de l'arrêté du 19 avril 2017 relatif au dispositif national de surveillance de la qualité de l'air, ce dernier doit être en mesure de fournir, en vue du rapportage des données, tout élément permettant d'identifier les origines potentielles de dépassements des valeurs réglementaires. Conformément à l'article 28 de ce même arrêté, lorsque les dépassements des valeurs réglementaires peuvent être dus à des sources naturelles (telles que les éruptions volcaniques, le transport des particules naturelles provenant des régions désertiques, etc.), le LCSQA fournit à la Commission Européenne les éléments justifiant ces dépassements, avec l'appui des AASQA concernées.

Afin de répondre à ces enjeux de rapportage au niveau européen, le programme CARA s'est notamment attaché en 2018 à déterminer la concentration de poussières sahariennes sur des échantillons prélevés en Guadeloupe lors de l'année précédente. En effet, 43 dépassements du seuil journalier fixé pour les PM₁₀ avaient été enregistrés par Gwad'air en 2017 sur la station FR-37007 (Pointe-à-Pitre). La méthodologie européenne pour l'estimation des concentrations de poussières sahariennes prélevées sur filtres [14] a pu être appliquée aux résultats d'analyses chimiques obtenus pour 12 filtres collectés lors de

dépassements du seuil journalier pour la station FR-37007 : du 20 au 23 mai, les 26 et 27 juin, les 26 et 27 septembre, ainsi que du 18 au 21 octobre 2017. Selon les jours étudiés, les concentrations de poussières sahariennes estimées représentent de 70 à 96% des concentrations de PM₁₀ enregistrées sur cette station. Une fois ces estimations retranchées aux concentrations de PM₁₀, chacun des 12 jours ayant pu être étudié ici présente une concentration journalière corrigée inférieure à 50 µg/m³ (Figure 7).

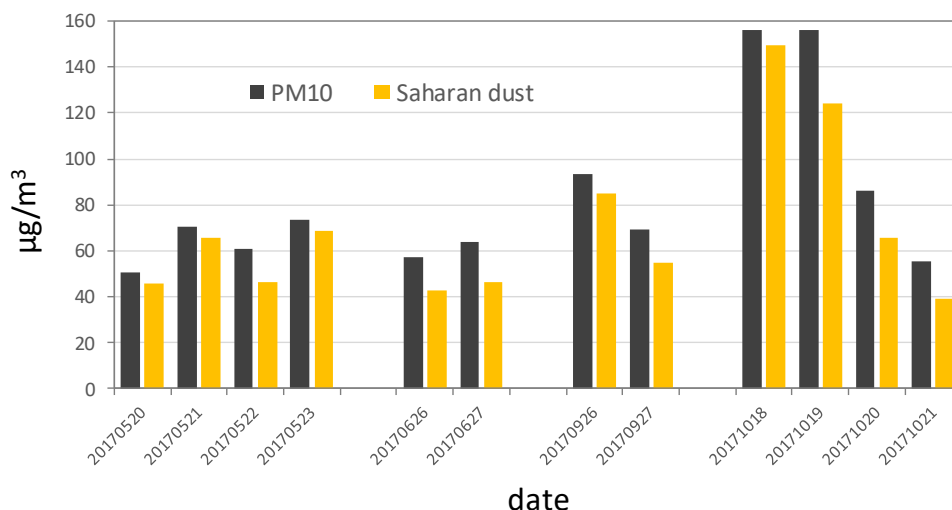


Figure 7 : Concentrations de PM₁₀ mesurées par TEOM-FDMS et de poussières sahariennes estimées après analyses chimiques sur filtres pour 12 jours de dépassements du seuil journalier fixé pour les PM₁₀ à Pointe-à-Pitre en 2017.

Concernant la Martinique, il avait été prévu dès 2012 d'identifier et d'instrumenter une station de mesure représentative des concentrations de fond insulaire afin de permettre l'application de la méthodologie européenne basée sur la mesure automatique et en continu des concentrations de PM₁₀ [14]. Une station répondant à cette exigence a été recherchée par Madinair sur la période 2012-2016, et le site « Brume - Pointe Couchée » (située sur la façade Atlantique, à l'est de l'île) avait finalement été retenu et équipé d'un analyseur automatique de PM. Une fiche action LCSQA 2017-2018 avait ensuite pu être proposée pour la réalisation et l'exploitation d'une large campagne de spéciation chimique sur plusieurs stations de Madinair (dont Brume), afin de valider la pertinence de la mise en œuvre à plus long terme de la méthodologie envisagée. Compte-tenu des aléas de mise en place de la campagne, cette fiche action a été prolongée en 2019.

Les résultats obtenus dans le cadre de cette étude confirment en premier lieu l'influence prépondérante des poussières naturelles (i.e., sels de mer tout au long de l'année, et poussières sahariennes en période estivale) sur les niveaux de PM₁₀ enregistrés en Martinique [15]. En particulier, les poussières sahariennes apparaissent comme le principal contributeur aux dépassements du seuil journalier de 50 µg/m³ sur les stations Renéeville (sous influence trafic) et Lamentin (fond urbain) ne respectant pas la valeur limite annuelle associée à ces dépassements journaliers en 2018 (Tableau 1).

	Brume Pouss. Sahariennes ($\mu\text{g}/\text{m}^3$)	Renéville (FR-39011)		Lamentin (FR-39009)	
		PM ₁₀ ($\mu\text{g}/\text{m}^3$)	PM ₁₀ ($\mu\text{g}/\text{m}^3$) hors pouss. Sah.	PM ₁₀ ($\mu\text{g}/\text{m}^3$)	PM ₁₀ ($\mu\text{g}/\text{m}^3$) hors pouss. Sah.
16/01/2018	27,7	64	36	52	24
13/02/2018	3,7	53	49		
14/02/2018	3,9	53	49		
13/03/2018	11,0	58	47		
14/03/2018	9,5	59	50		
15/03/2018	4,0	54	50		
17/04/2018	31,3	52	21	55	24
01/07/2018	36,3	53	17	56	20
03/07/2018	18,6			52	33
04/07/2018	55,2			78	23
19/07/2018	29,1	55	26	52	23
25/07/2018	42,4	65	23	60	18
26/07/2018	20,7	53	32		
07/08/2018	101,9	120	18	120	18
08/08/2018	91,6	110	18	111	19
09/08/2018	46,7	66	19	58	11
15/09/2018	39,8	54	14	51	11
16/09/2018	47,3	66	19	66	19
19/09/2018	52,2	69	17	86	34
20/09/2018	144,8	167	22	189	44
26/09/2018	65,2	95	30	101	36
28/09/2018	37,9	61	23	65	27
29/09/2018	84,5	90	6	98	14
30/09/2018	63,9	73	9	75	11
01/10/2018	53,4	61	8	61	8
14/11/2018	17,7	53	35	52	34
29/11/2018	6,6	51	44		

Tableau 1 : Estimation des concentrations de PM₁₀ une fois retranchée les contributions de poussières Sahariennes (pouss. Sah.) lors des dépassements journaliers en PM₁₀ enregistrés sur les stations Renéville et Lamentin en Martinique pour lesquels des mesures sur filtres étaient disponibles sur le site de fond régional (Brume) au cours de l'année 2018.

Les résultats obtenus lors de cette étude montrent également l'homogénéité spatiale des fortes concentrations de poussières sahariennes (Figure 8), et permettent de proposer une méthodologie simple d'estimation de ces concentrations à partir des mesures automatiques réalisées sur le site de fond régional de Brume et/ou sur le site de fond péri-urbain de Sainte Luce (FR-39014). Sous réserve d'une vérification simultanée de l'occurrence effective d'un épisode saharien (à l'aide notamment d'observations satellites et/ou de résultats de modélisation), les niveaux de PM₁₀ enregistrés sur ces stations peuvent dorénavant être utilisés pour une estimation systématique des contributions des poussières sahariennes sur l'ensemble des stations de Madinair.

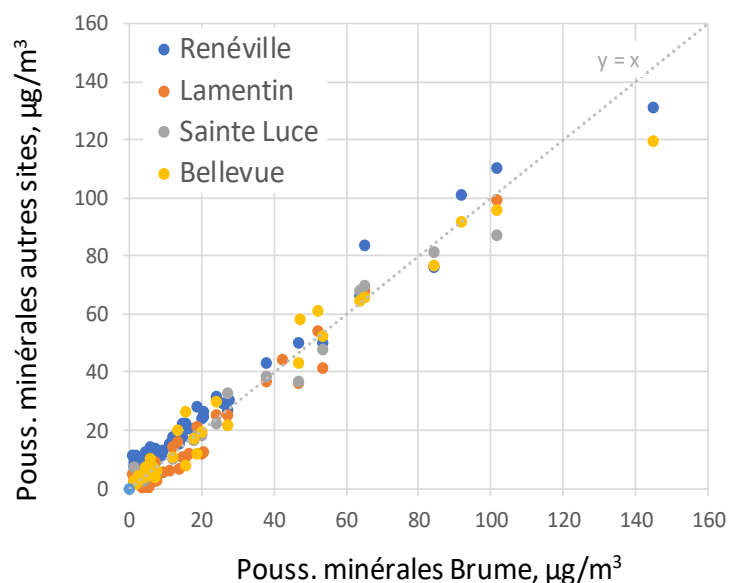


Figure 8 : Comparaison des concentrations journalières de poussières sahariennes estimées pour les filtres des stations Renéville, Lamentin, Sainte-Luce et Bellevue par rapport à celles estimées pour le site de fond régional

Par ailleurs, des mesures automatiques de carbone suie ainsi que l'utilisation de la *Positive Matrix Factorization* pour l'analyse statistique des données de spéciation chimique, ont permis de mettre en évidence le rôle joué par le trafic automobile au sein des particules anthropiques influençant les niveaux de PM_{10} à Renéville et au Lamentin. Outre les particules carbonées émises à l'échappement, les émissions primaires liées à l'abrasion des freins (et/ou des pneus) semblent conséquentes, en particulier à Renéville (Figure 9). De manière notable pour cette station, les émissions véhiculaires correspondent à deux profils chimiques distincts : le premier (appelé « Transport routier 1 ») présentant un ratio EC/OC relativement faible (0,5) et comprenant la quasi-totalité de l'antimoine et de l'étain mesurés sur cette station, l'autre (« Transport routier 2 ») présentant un ratio EC/OC élevé (2,6) et fortement émetteur de chrome. Ces profils suggèrent une éventuelle différenciation entre une famille de véhicules globalement à motorisation essence (assez peu émettrice de carbone suie) et/ou équipés de plaquettes de freins garnis d'éléments metalloïdes, et une autre famille de véhicules à motorisation diesel et/ou équipés de disques de freins en fonte ou acier (contenant notamment du graphite, pouvant être quantifié dans la fraction EC). Ces deux types d'émissions véhiculaires pourraient ainsi être attribués, d'un côté, majoritairement aux véhicules légers, et de l'autre, majoritairement aux poids lourds. Néanmoins, aucun élément de preuve définitif n'a pu être apporté à cette hypothèse au moment de la rédaction du présent rapport. Une meilleure identification et quantification des sources d'émissions liées directement aux activités humaines (incluant également les émissions industrielles) nécessiterait la mise en place de campagnes de mesure spécifiques, faisant appel à l'analyse chimique de marqueurs de source appropriés (notamment au sein de la fraction organique) et/ou à l'utilisation d'un analyseur automatique de métaux.

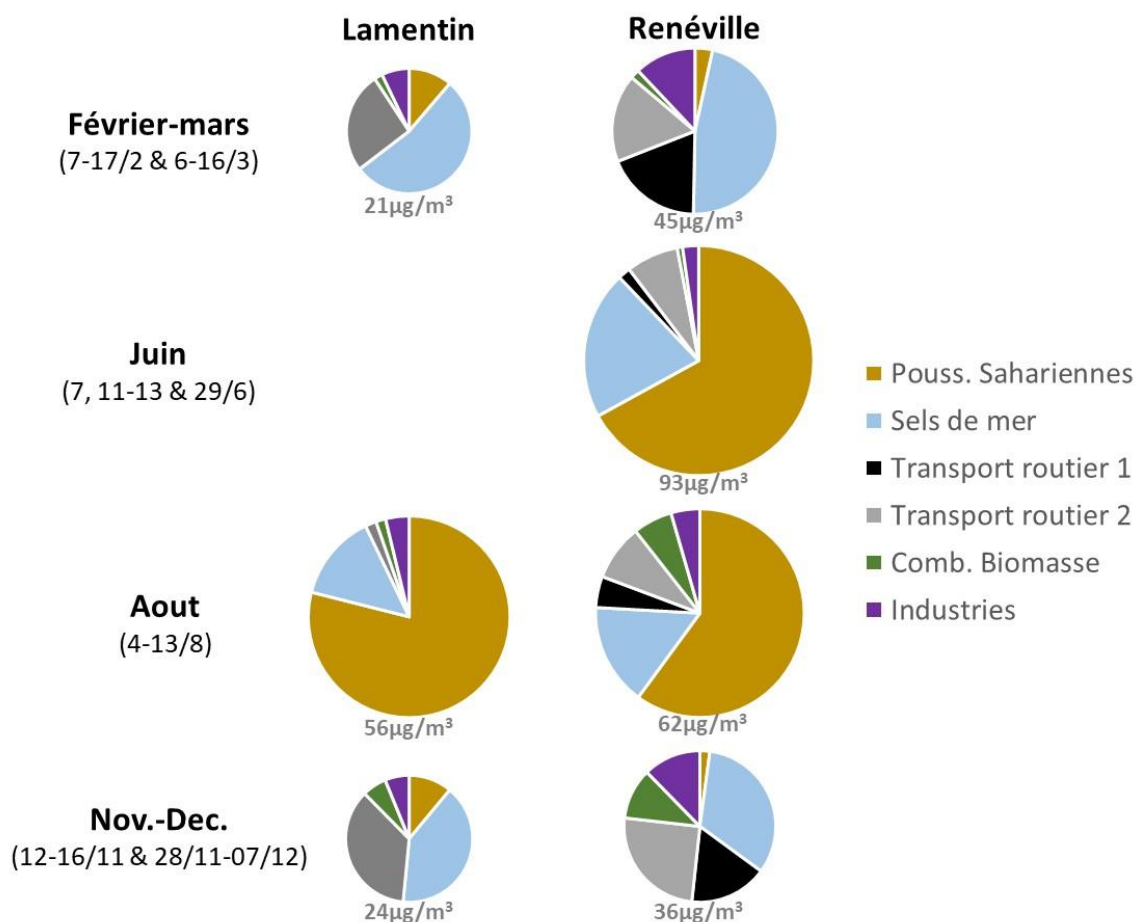


Figure 9 : Contributions relatives des principales sources de PM_{10} à différentes périodes de l'année 2018, telles qu'identifiées par analyse PMF, pour les stations Lamentin et Renéville. Le facteur de source associé au transport routier (représenté en gris foncé pour la station Lamentin) est différencié selon deux sous-facteurs (représentés en gris clair et en noir) pour la station Renéville

L'ensemble des données de spéciation chimique obtenues dans le cadre de cette étude réalisée en collaboration avec Madinair ont été mises à la disposition de l'équipe de modélisateurs du LCSQA afin d'aider à la validation (et, si nécessaire, à l'optimisation) du système de prévision de la qualité de l'air dans les Antilles. Ainsi, un exercice de comparaison mesures / modèles, incluant les concentrations des espèces chimiques majeures présentées dans ce rapport, est prévu au programme de travail du LCSQA en 2020. Enfin, il est également à noter que l'analyse des mesures automatiques de PM réalisées entre 2000 et 2018 n'indique pas de tendance significative (à la hausse, ou à la baisse) et systématique sur les stations de Madinair au cours de cette période [16].

4. ANALYSE DES EPISODES D'OZONE DE L'ETE 2019

En France et en Europe, il n'existe pas de valeur limite à ne pas dépasser pour l'ozone dans l'air ambiant, mais des valeurs cibles et objectifs de qualité visent à en limiter les impacts sur la santé et les écosystèmes. De plus, les textes réglementaires définissent un seuil d'information et de recommandation ($180 \mu\text{g}/\text{m}^3$ en moyenne annuelle) et un seuil d'alerte ($240 \mu\text{g}/\text{m}^3$ en moyenne annuelle) dont les dépassements caractérisent des situations d'épisodes de pollution. L'ozone troposphérique est un polluant secondaire qui se forme à partir des transformations chimiques des oxydes d'azote (NO_x) et des composés organiques volatils (COV) principalement émis par le trafic routier et les activités industrielles, mais aussi, de plus en plus par les activités domestiques. Le couvert végétal peut aussi être une source naturelle de composés organiques volatils plus ou moins importante selon les essences et les conditions météorologiques. La formation de l'ozone est fortement dépendante des conditions météorologiques (températures élevées, rayonnement solaire important) et donc certaines zones géographiques sont plus exposées à de forts niveaux d'ozone que d'autres. En Europe, le Bassin Méditerranéen est la région où les niveaux d'ozone sont les plus élevés. Ces deux dernières années ayant été marquées par des épisodes de pollution à l'ozone plus importants que les années précédentes, une analyse de ce type d'épisodes est proposée dans ce chapitre pour l'été 2019.

Au cours de l'été 2019, les conditions météorologiques caniculaires qui ont sévi sur une grande partie de l'Europe, ont conduit à la formation de plusieurs épisodes de pollution à l'ozone en France. Au cours de ces épisodes, la France aura été exposée à des concentrations supérieures au seuil d'information et recommandation pendant 26 jours : 252 dépassements du seuil de $180 \mu\text{g}/\text{m}^3$ en moyenne horaire ont été enregistrés dans la plupart des régions métropolitaines (Figure 10), en particulier dans le sud et l'est de la France. Quelques dépassements du seuil d'alerte (8) ont également été observés lors de la première situation d'épisode intervenue fin juin.

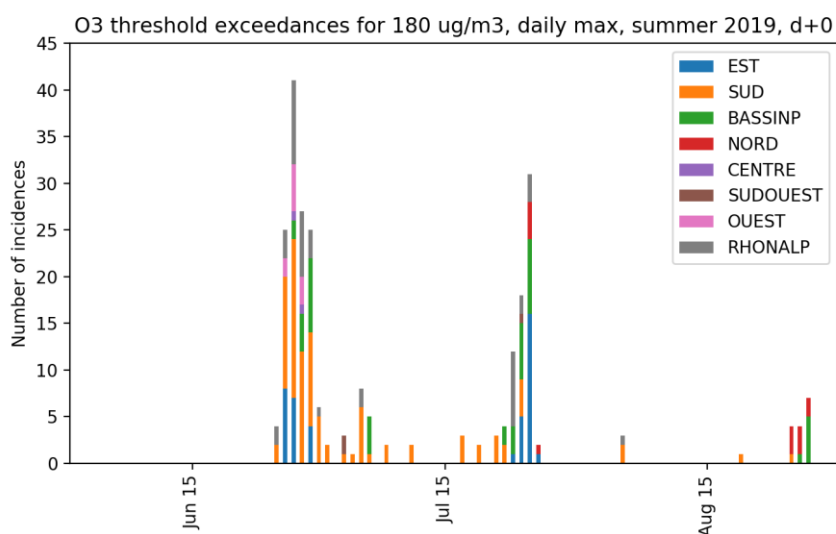


Figure 10 : Chronologie des dépassements du seuil d'information et recommandation entre le 1^{er} juin et le 21 août 2019, avec leur distribution géographique en couleur correspondant aux macros régions du territoire.

L'été a donc été caractérisé par deux épisodes d'ampleur importante, le premier entre le 20 juin et le 9 juillet, le second entre le 20 et le 28 juillet. Du 22 et 28 août, un épisode de moindre importance a également été observé dans le Nord du pays.

L'évolution journalière des concentrations d'ozone de la Figure 11 montre la prédominance durant le premier épisode des concentrations élevées dépassant le seuil d'information et de recommandation en Ile de France, Auvergne-Rhône-Alpes, Grand-Est, Normandie, et Provence-Alpes-Côte-d'Azur. Les cartes illustrent la complexité de ces phénomènes qui combinent le caractère de grande échelle (souvent au-delà du pays) de la pollution à l'ozone et des effets de panaches plus localisés. Cet épisode est remarquable par le fait qu'il s'est développé relativement tôt dans l'été (fin juin) par rapport à ce qui était observé au cours des 20 années précédentes [11-12]. Il rappelle également que l'ozone demeure un problème sensible de pollution atmosphérique en France (et plus généralement en Europe).

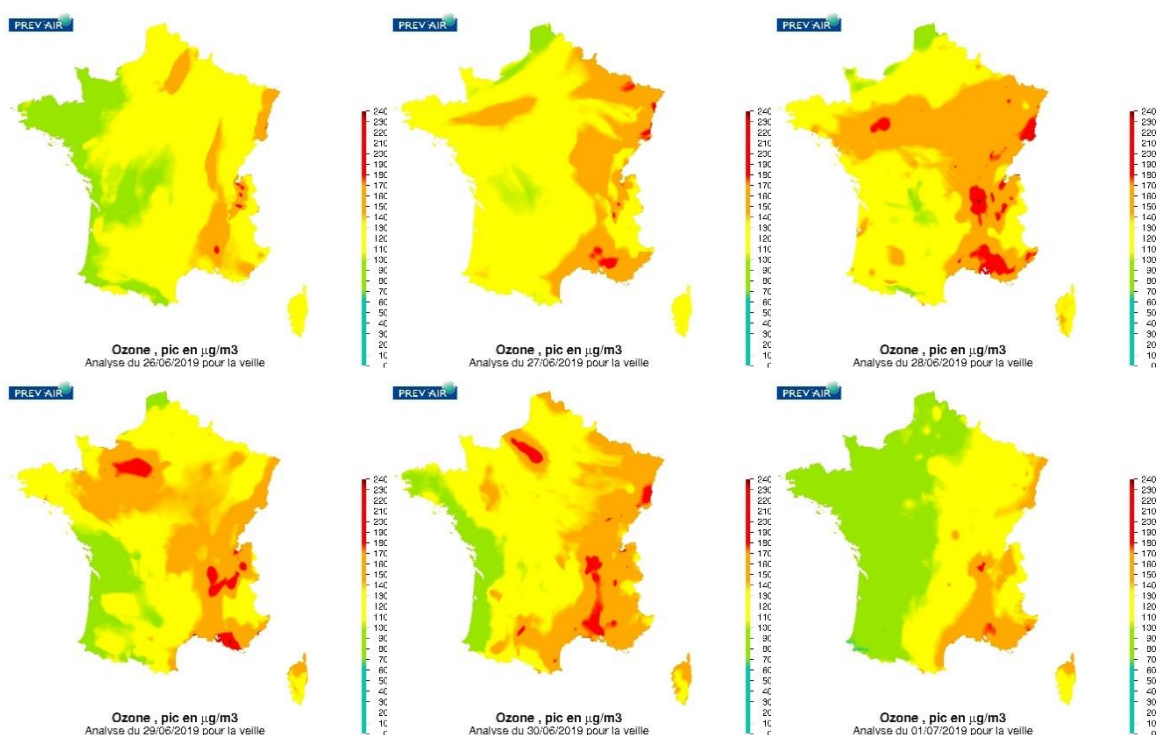


Figure 11 : Cartographies des concentrations maximums journalières d'ozone en $\mu\text{g}/\text{m}^3$ du 25 juin au 30 juin 2019.

Comme pour l'épisode de juin, lors du deuxième épisode (Figure 12), les régions du Sud et de l'Est ont été plus particulièrement concernées par des forts niveaux de concentrations, mais les dépassements du seuil d'information et recommandation se sont généralisés à une grande partie du pays lors des journées du 24, 25 et 26 juillet.

Pour ces deux épisodes, il est intéressant de noter que la fin d'épisode s'est amorcée à la faveur de l'évolution des conditions météorologiques et de l'arrivée de perturbations par l'Ouest.

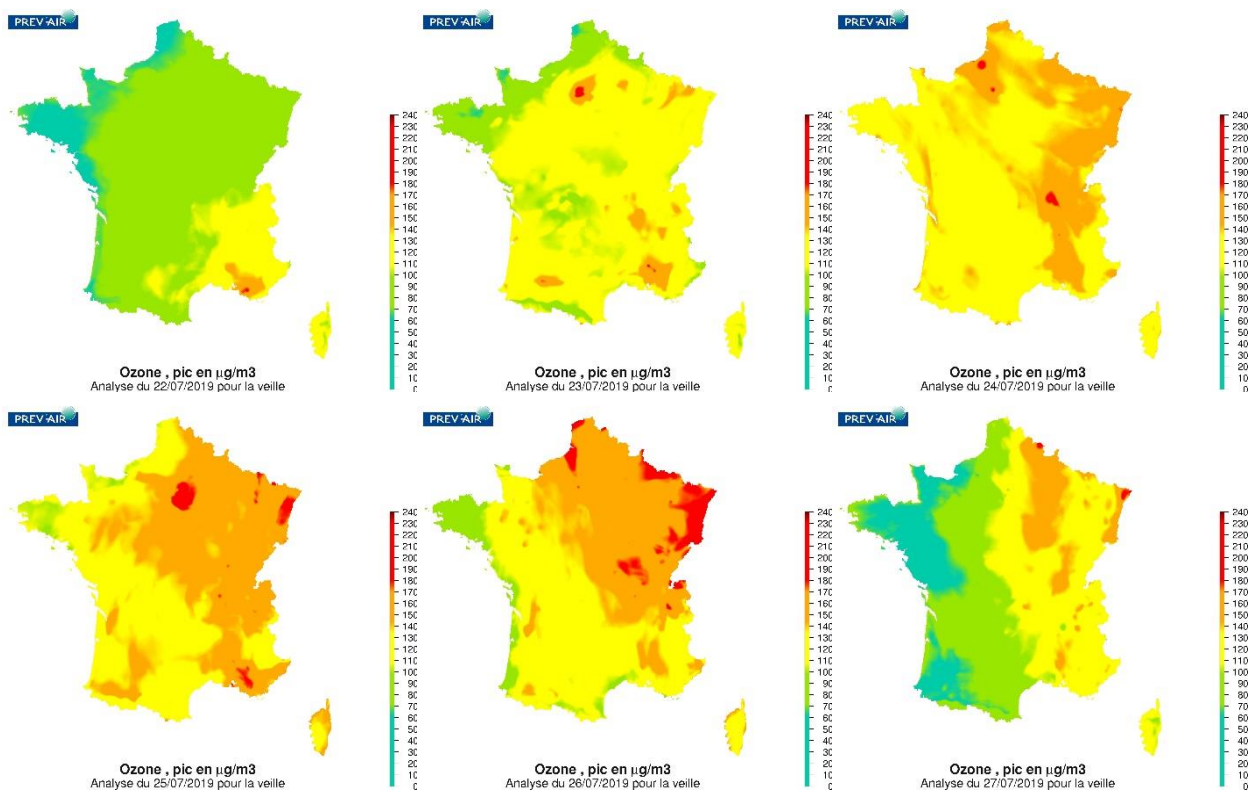


Figure 12 : Cartographies des concentrations maximums journalières d’ozone en $\mu\text{g}/\text{m}^3$ du 21 juillet au 26 juillet 2019.

Afin de caractériser le rôle et la contribution des différents secteurs d’activité pour expliquer ces hauts niveaux de concentrations d’ozone, la réponse des modèles de qualité de l’air mis en œuvre dans Prev’air (CHIMERE et MOCAGE) à différents scénarios de réduction d’émissions a été analysée sur la période s’étendant entre le 25 et le 29 juin (i.e. considérant qu’aucune réduction d’émission n’a été mise en œuvre en amont de cette période).

Trois scénarios théoriques (théoriques car ne représentant pas de réduction réaliste correspondant à des mesures politiques de réduction des émissions) ont été définis en se focalisant sur les deux principaux secteurs émetteurs des précurseurs de l’ozone :

- 30% de réduction des émissions liées au trafic routier ;
- 30% de réduction des activités industrielles ;
- Réduction conjointe de 30% des émissions du trafic et des activités industrielles.

Les figures suivantes illustrent l’impact de ces scénarios sur les niveaux d’ozone par la cartographie des différences entre concentrations correspondant au scénario de référence (situation actuelle) et aux scénarios de réduction d’émissions sectorielles.

De manière générale pour le modèle CHIMERE, ces scénarios conduisent à une réduction des concentrations d’ozone lors des journées les plus polluées de cet épisode, à savoir du 27 au 29 juin. Néanmoins, le scénario « réduction des émissions du trafic » (Figure 13) montre un comportement particulier sur les grandes agglomérations comme Paris et Lyon pour lesquelles la réduction des émissions engendre un accroissement des concentrations d’ozone. Cette évolution résulte d’un phénomène bien connu, la diminution de la titration (phénomène principalement nocturne de destruction d’ozone par les oxydes d’azote dans les zones fortement émettrices alors qu’ils favorisent la production le jour) imputable à la

baisse de disponibilité des oxydes d'azote dans ce scénario par rapport aux émissions de référence.

A noter que c'est aussi la diminution de la titration qui est responsable de la hausse des concentrations dans une autre zone fortement émettrice d'oxydes d'azote qu'est le Bénélux et les Hauts de France (Figure 13). Ce constat doit cependant être nuancé par le fait que pour cet épisode, la hausse des concentrations d'ozone concerne une région où celles-ci ne sont initialement pas élevées entre les 27 et 29 Juin (Figure 11). Dans les zones où les émissions d'oxydes d'azotes sont moins importantes, et notamment les zones rurales, le scénario « réduction des émissions du trafic » a un impact très bénéfique avec des réductions de concentrations d'ozone avoisinant $10 \mu\text{g}/\text{m}^3$.

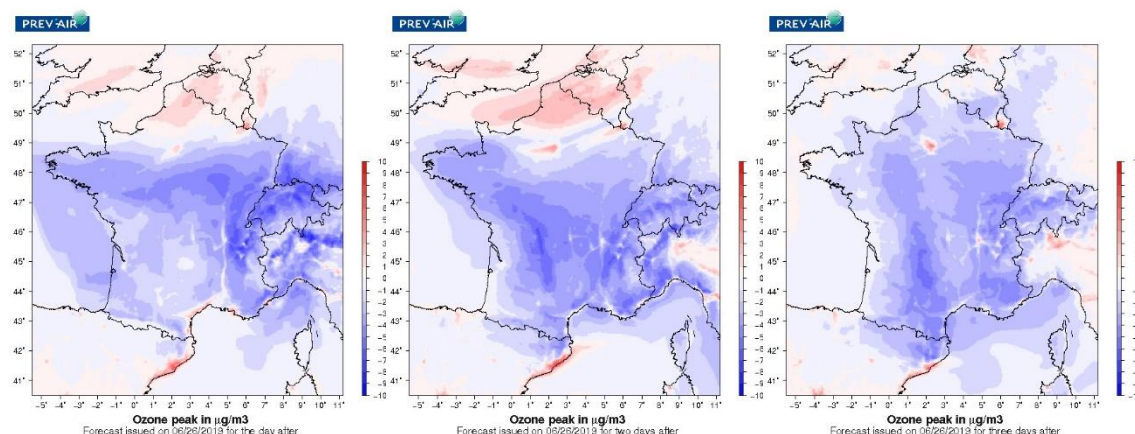


Figure 13 : Impact de la réduction des émissions du trafic à partir du 25 juin sur les maximums journaliers des concentrations d'ozone à la surface entre le 27 juin et le 29 juin. Résultats du modèle CHIMERE à 4km de résolution.

Toujours selon le modèle CHIMERE, la réduction des émissions industrielles a un impact plus limité sur les concentrations de fond rurales que le scénario « réduction des émissions du trafic » (Figure 14). Les réductions de concentrations d'ozone sont de l'ordre de 4-5 $\mu\text{g}/\text{m}^3$ dans le meilleur des cas. L'augmentation d'ozone imputable à la titration est encore visible sur les Hauts de France et le Benelux, régions industrialisées, mais n'apparaît plus sur les zones urbaines où les émissions industrielles sont moindres.

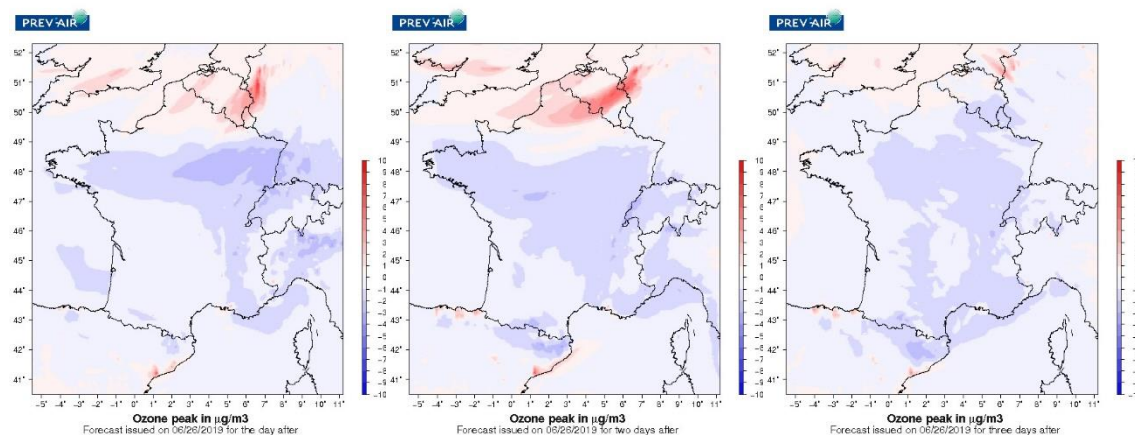


Figure 14 : Impact de la réduction des émissions des activités industrielles sur les maximums journaliers des concentrations d'ozone à la surface entre le 27 juin et le 29 juin. Résultats du modèle CHIMERE à 4km de résolution.

Les effets d'une réduction combinée des émissions des deux secteurs d'activité (trafic et industriel) sont partout exacerbés, selon le modèle CHIMERE (Figure 15) :

- les effets de diminution des concentrations sont accentués sur une majeure partie du pays montrant l'intérêt d'agir sur tous les secteurs
- l'augmentation des concentrations dans quelques grandes agglomérations s'en trouve renforcé.

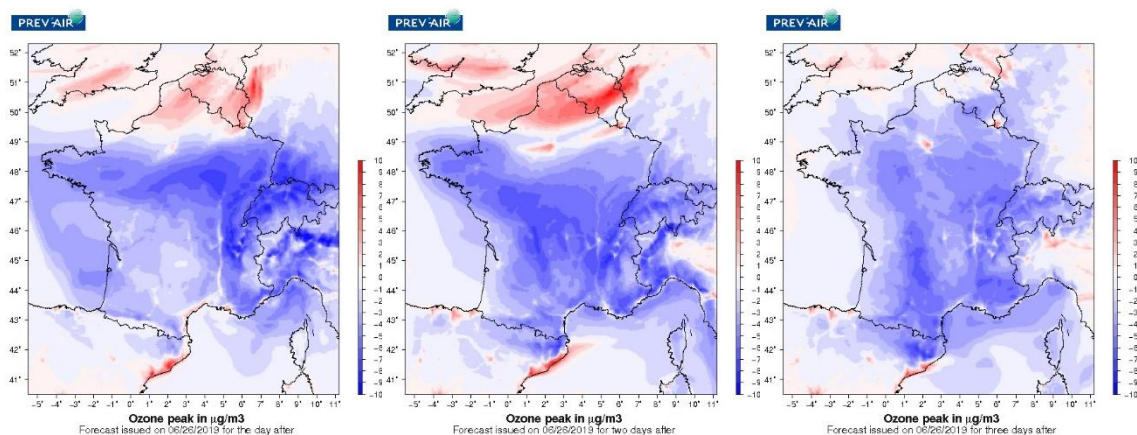


Figure 15 : Impact de la réduction conjointe des émissions du trafic et des activités industrielles sur les maximums journaliers des concentrations d'ozone à la surface entre le 27 juin et le 29 juin. Résultats du modèle CHIMERE à 4km de résolution.

Afin d'évaluer la robustesse de ce diagnostic, des simulations similaires ont été réalisées par Météo-France (CNRM) avec le modèle MOCAGE qui participe aussi à la plateforme Prev'Air (Figure 16). Les impacts bénéfiques des réductions d'émissions sont assez similaires sur une grande partie du territoire. On observe encore le bénéfice le plus important avec le scénario trafic par rapport à celui de l'industrie. Toutefois, la hausse des concentrations d'ozone sur les agglomérations de Paris et Lyon n'apparaît pas du fait de la résolution horizontale : 10km pour MOCAGE contre 4km pour CHIMERE. Une résolution de 10km ne permet pas de résoudre les processus de titration sur les zones localisées fortement émettrices d'oxydes d'azote mais on constate toutefois que MOCAGE retranscrit bien ce processus de titration sur des zones plus étendues comme le Bénélux.

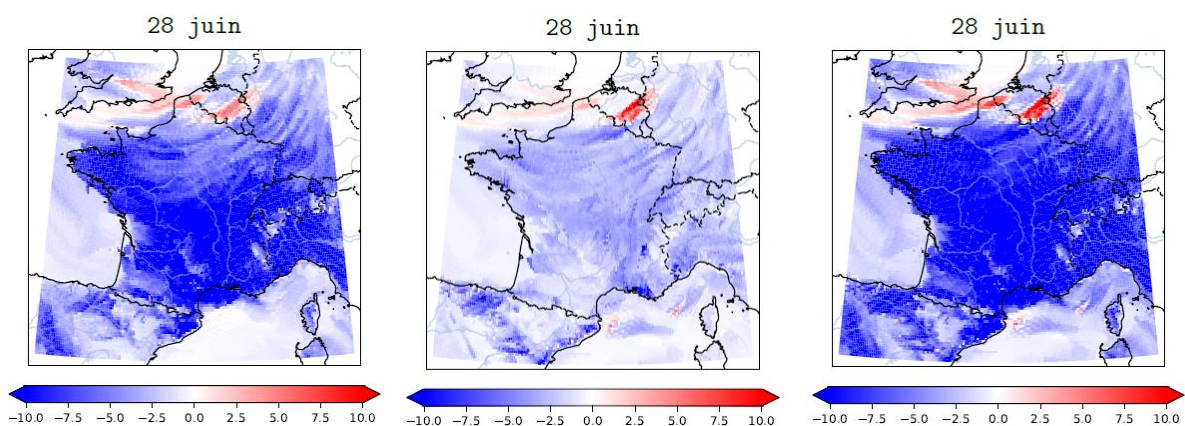


Figure 16 : Impacts de la réduction des émissions du trafic (à gauche), des activités industrielles (au centre) et conjointes du trafic et des activités industrielles (à droite) estimés par MOCAGE à 10km de résolution sur les maximums journaliers des concentrations d'ozone à la surface le 28 juin

Les résultats précédents (présentés sur les Figures 13 à 16) reposent sur des simulations CHIMERE ou MOCAGE effectuées spécifiquement pour les besoins d'interprétation a posteriori des épisodes. De telles simulations de sensibilité en haute-résolution ne sont malheureusement pas effectuées de manière systématique et quotidienne, mais l'Ineris a développé dans le cadre du Copernicus Atmosphere Monitoring Service de la Commission Européenne de nouveaux outils permettant une analyse de premier niveau en temps réel. En effet, depuis juillet 2018, Air Control Toolbox (ACT)² est un modèle en ligne qui fournit quotidiennement des prévisions de l'impact sur la qualité de l'air de scénarios de réduction d'émissions sectorielles définis par l'utilisateur lui-même. ACT repose sur un méta-modèle (ou émulateur) du modèle de qualité de l'air CHIMERE et un algorithme d'apprentissage basé sur une ensemble de scénarios calculés quotidiennement avec le modèle CHIMERE. Substituer CHIMERE par un meta-modèle permet de disposer rapidement, en ligne, des résultats de simulation correspondant aux réductions d'émissions définies par l'utilisateur lui-même via l'interface de l'outil. Il est conçu pour prendre en compte la complexité et la non-linéarité des processus atmosphériques, et les incertitudes associées aux résultats qu'il produit sont inférieures à 2% pour 95% des jours et des points de grille.

En revanche, pour optimiser les temps de calcul, la résolution spatiale des simulations d'apprentissage est relativement faible : 25km sur l'ensemble de l'Europe, alors que les scénarios présentés dans le paragraphe précédent ont une résolution de 4km (CHIMERE) ou 10km (MOCAGE). Cet émulateur peut être utilisé pour simuler l'impact d'une baisse de 30% d'émission du trafic et/ou des activités industrielles. Un exemple est donné en Figure 17 pour la journée du 28/6/2019, donc à comparer aux panneaux médians des Figures 13 à 16. Les résultats sont très proches en ce qui concerne l'amplitude et la distribution spatiale de la pollution de fond. L'exception notable concerne les agglomérations (Paris, Lyon) où les effets de la limitation du processus de titration (et donc d'augmentation d'ozone) est beaucoup moins visible du fait de la plus faible résolution horizontale.

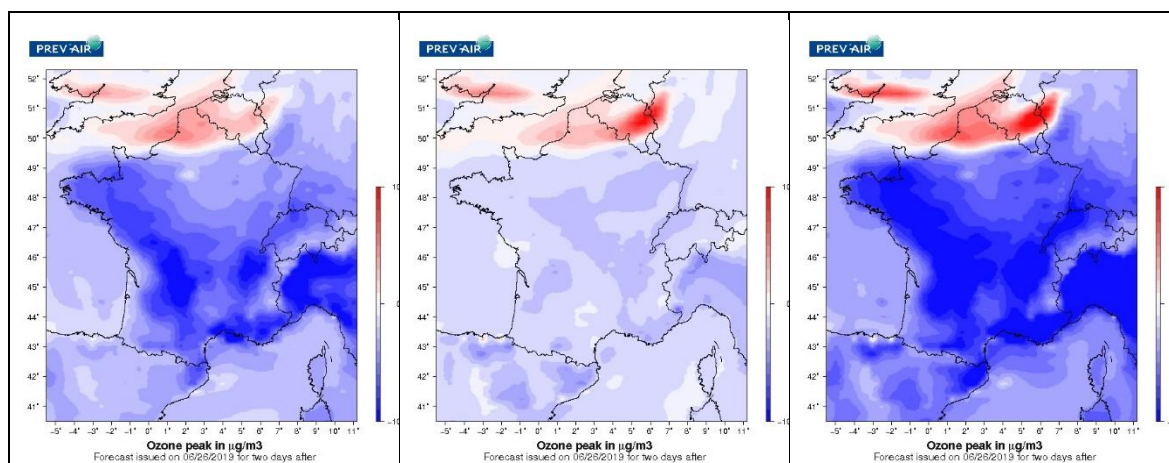


Figure 17 : Impact d'une baisse de 30% des émission du trafic (gauche), des activités industrielles (milieu), et des deux secteurs conjointement (droite) pour la journée du 28/6/2019, résultats tirés du méta-modèle CAMS Air Control Toolbox à 25km de résolution.

² https://policy.atmosphere.copernicus.eu/CAMS_ACT.php

De la même façon, ACT a permis d'analyser l'impact des sources déterminantes pour l'épisode du mois de juillet 2019 (Figure 12). Les résultats produits par ACT illustrent l'impact, pour le 25 juillet, de réductions de 30% des émissions liées au trafic routier et/ou à l'industrie, notamment sur les zones présentant des concentrations élevées comme Normandie, Auvergne-Rhône-Alpes et Grand-Est (Figure 18). Les réductions industrielles seules ont un impact plus faible sur la diminution d'ozone.

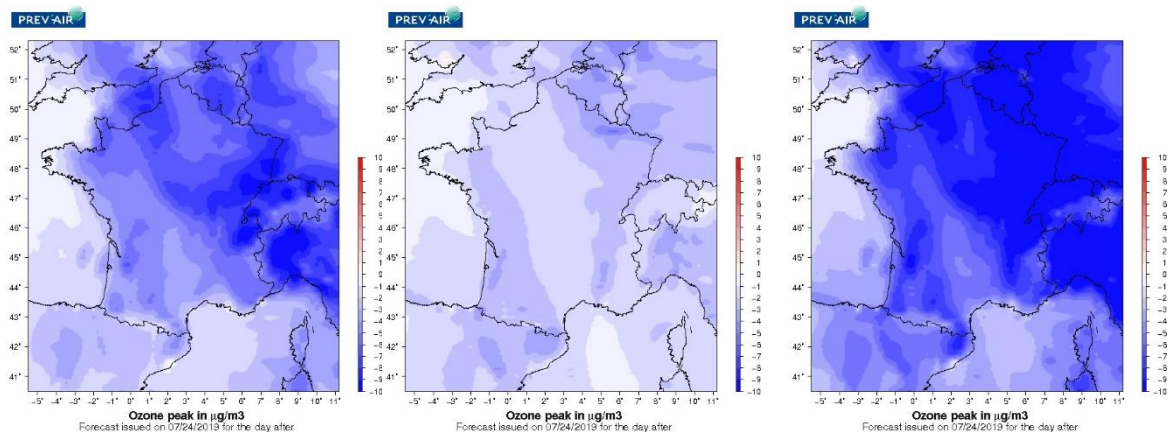


Figure 18 : Impact d'une baisse de 30% des émissions de trafic (gauche), des activités industrielles (milieu), et des deux secteurs conjointement (droite) pour la journée du 25/7/2019, résultats tirés du méta-modèle CAMS Air Control Toolbox à 25km de résolution.

L'un des principaux intérêts de l'outil ACT concerne la rapidité du temps de calcul qui permet d'explorer n'importe quelle combinaison de baisse d'émissions³. C'est la grande force de ce méta-modèle qui, en prenant en compte les non-linéarités, peut être appliqué pour des scénarios atteignant 100% de baisse ou de hausse d'activité pour les quatre principaux secteurs d'activités : agriculture, trafic, résidentiel et industrie.

On peut donc explorer l'impact sur le pic journalier d'ozone d'une réduction d'émission de 0 à 100% pour le trafic et les activités industrielles tel que représenté sur la Figure 19.

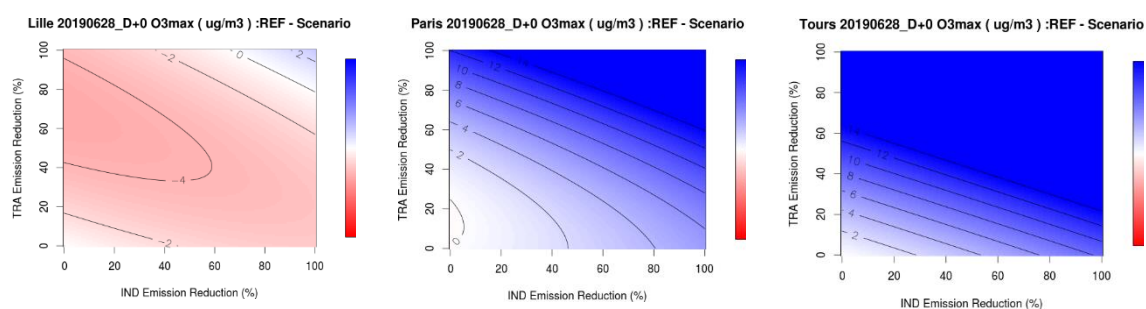


Figure 19 : Isocontours de réduction du pic journalier d'ozone (rouge/négatif pour une baisse des concentrations) pour la journée du 28/6/2019 à Lille, Paris et Tours en fonction de la baisse d'émission (de 0 à 100% de baisse) appliquée au secteur industriel (abscisses) ou trafic (ordonnées). Résultats tirés du méta-modèle CAMS Air Control Toolbox.

Cette figure concerne la situation au 28 juin 2019, et est analogue aux isoplèthes de production d'ozone bien connues des chimistes de l'atmosphère. On constate la présence de « régimes chimiques » bien distincts à Lille, Paris ou encore Tours. A Lille, une augmentation des concentrations d'ozone sera constatée quel que soit le niveau de réduction des émissions trafic ou industrielles, à l'exception du cas où 100% des émissions

³ 4 secteurs où les émissions peuvent être ajustées sont proposés à l'utilisateur : l'industrie, le trafic routier, le chauffage résidentiel et l'agriculture.

sont supprimées. Il faut bien insister sur le fait que l'on n'est pas en situation d'épisode le 28/6/2019 sur les Hauts-de-France (Figure 10), par conséquent, malgré la hausse des concentrations liée aux réductions d'émission, celles-ci restent en deçà du seuil réglementaire.

A Paris, en l'absence d'action sur le secteur industriel, on constate le faible impact d'une réduction des émissions du trafic tant que cette réduction ne dépasse pas les 50%. Mais à supposer que l'on agisse aussi sur l'industrie, on constatera un bénéfice dès 10% de baisse des émissions du trafic. La situation est moins complexe à Tours où l'on verra un bénéfice pour des réductions beaucoup plus faibles des émissions, avec des interactions moins importantes entre les secteurs trafic et industriels. Pour rappel, dans l'ensemble de ce travail, les scénarios sont supposés s'appliquer à toute l'Europe, donc les impacts constatés à Lille, Paris, ou Tours, bénéficient de mesures mises en œuvre sur un domaine géographique beaucoup plus grand que les agglomérations citées.

Les résultats décrits dans cette analyse des épisodes de l'été 2019 illustrent un effet bénéfique de la diminution des émissions des substances précurseurs (oxyde, d'azote, composés organiques volatils) sur quasiment l'ensemble des concentrations d'ozone du territoire. Ils mettent aussi en évidence la complexité des processus chimiques mis en jeu avec des augmentations localisées des concentrations d'ozone dans les zones où les émissions d'oxydes d'azote sont les plus élevées (grandes agglomérations, bassins industriels). En réalité, pour les épisodes étudiés, ils n'ont pas eu de conséquences sur le respect du seuil d'information et de recommandation.

L'ensemble de ces résultats indiquent l'intérêt de synergies de réductions d'émissions concernant toutes les activités humaines mais ils mettent aussi en garde sur la complexité de la réponse de l'ozone aux baisses d'émissions en zone urbaine et fortement émettrice de NOx. En particulier, cela montre le besoin d'objectiver l'efficacité réelle des mesures locales de réduction des émissions impactant uniquement le trafic routier, telles que la circulation différenciée dans les grandes villes. Selon la localisation géographique, les conditions météorologiques et l'intensité des autres sources, ces mesures pourraient être contre-productives en centre-ville mais efficaces en périphérie et dans les zones rurales, participant ainsi à une diminution des niveaux d'ozone de fond. La problématique de l'ozone illustre par nature le besoin de concertation aux différentes échelles de gouvernance (ville/pays) et de complémentarité d'actions entre les secteurs émetteurs afin de concevoir les stratégies de gestion les plus efficaces et pertinentes.

5. ESTIMATION DES SOURCES DE PM SUR LE SITE DE GRENOBLE LES FRENES

Dans le cadre du programme CARA, un suivi de la composition chimique des PM₁₀ est effectué depuis 2008 sur la station de fond urbain *Grenoble-Les Frênes*. Cette étude est réalisée à partir de prélèvements sur filtres, en étroite collaboration avec ATMO Auvergne - Rhône-Alpes (Atmo AuRA), l'Institut des Géosciences de l'Environnement (IGE), et le Laboratoire de Chimie Moléculaire et Environnement (LCME). L'un des principaux objectifs de ce suivi est de déterminer l'influence de la combustion de la biomasse sur les niveaux de PM, cette source étant considérée comme l'une des activités anthropiques les plus polluantes, en particulier en vallée alpine. Un objectif complémentaire est d'évaluer le lien entre l'évolution des concentrations en PM biomasse avec celle des concentrations en Hydrocarbures Aromatiques Polycycliques (HAP). Un point d'étape réalisé en 2018 a permis d'analyser les évolutions temporelles des concentrations de lévoglucosan, en tant que traceur des PM issues de la combustion biomasse (PM_{biomasse}), des fractions carbonées (carbone élémentaire et carbone organique) ainsi que des HAP au cours des dix dernières années [17].

Les prélèvements ont été réalisés depuis 2008 par le personnel d'Atmo AuRA, sur des filtres en fibre de quartz au moyen de préleveurs haut débit (Digitel DA-80, 30 m³ h⁻¹) à une fréquence d'un prélèvement tous les 3 jours et la durée de prélèvement était de 24 h (de minuit à minuit). Les analyses chimiques de EC/OC, du lévoglucosan et de ses isomères ont été réalisés par l'IGE et par le LCME :

- EC/OC : par méthode thermo-optique à transmission, à l'aide d'un analyseur de type Sunset Lab. (Sunset Inc.) selon le protocole européen EUSAAR-2 et conformément à la norme NF EN 16909 [18] ;
- Lévoglucosan et ses isomères (galactosan et mannosan) par chromatographie liquide à haute performance couplée à un détecteur ampérométrique (HPLC-PAD, Dionex DX 500 puis Thermo Fischer ICS 5000+) et par chromatographie liquide couplée à un spectromètre de masse (LC-MS) pour les données de novembre 2009 à Février 2010 [19].

Les données des HAP sont issues de la surveillance réglementaire, incluant 7 HAP qui ont été quantifiés selon les normes et spécification technique NF EN 15549 [20] et XP/CEN TS 16645 [21] (Benzo[a]pyrène (B[a]P), Benzo[a]anthracène (B[a]A), Benzo[j]fluoranthène (B[j]F), Benzo[b]fluoranthène (B[b]F), Benzo[k]fluoranthène (B[k]F), Dibenzo[a,h]anthracène (D[a,h]A) et l'Indéno[1,2,3-cd]pyrène (Ind)).

Les résultats obtenus indiquent une baisse significative des concentrations de PM₁₀, mais également du carbone élémentaire (EC) et des HAP. En revanche, les concentrations de PM issues de la combustion de biomasse n'ont pas significativement évolué. Leur contribution relative aux PM₁₀ a donc sensiblement augmenté (Figure 20). La contribution moyenne hivernale de PM_{biomasse} est ainsi passée d'environ 20% autour de 2010 à 30-35% des PM₁₀ au cours des derniers hivers, comme confirmé par l'analyse de tendance (Figure 21).

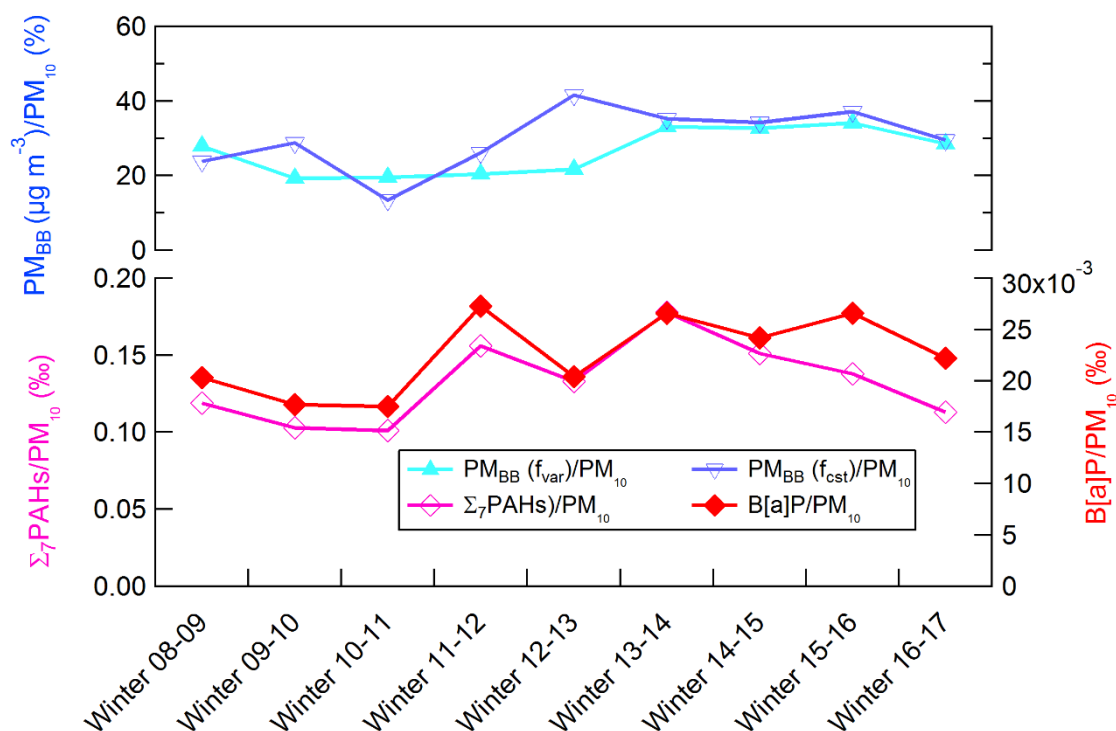


Figure 20 : Evolution temporelle des contributions moyennes hivernales aux PM₁₀ de PM_{biomasse} (notées PM_{BB} et calculées selon deux méthodologies distinctes, cf. [17]), ainsi que de Σ₇HAP et du B[a]P à Grenoble entre l'hiver 2008-2009 et l'hiver 2016-2017.

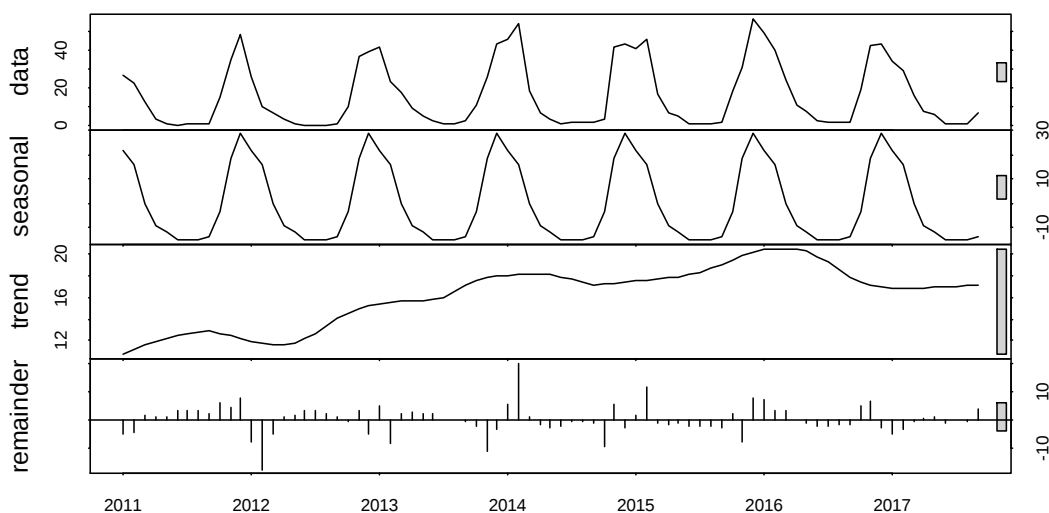


Figure 21 : Décomposition de la contribution de PM_{biomasse} aux PM₁₀ (%) à Grenoble pour la période 2008-2017.

Par ailleurs, entre l'hiver 2008-2009 et l'hiver 2016-2017, les évolutions temporelles de contribution du B[a]P et de Σ₇HAP aux PM₁₀ sont respectivement de l'ordre de 0,02 à 0,03‰ et 0,10‰ à 0,18‰. Une phase d'augmentation des contributions est observée entre l'hiver 2010-2011 et l'hiver 2013-2014 avec un point bas lors de l'hiver 2012-2013 (Figure 21). Depuis l'hiver 2013-2014, les contributions semblent relativement stables.

Les sources principales de HAP dans l'air ambiant sont dues à la combustion de biomasse mais aussi au transport routier, à la combustion de gaz ou aux sources industrielles. Compte-tenu de la baisse des concentrations en EC et PM₁₀ et de la hausse de la contribution de biomasse aux PM₁₀, il peut être suggéré que la part des HAP issue des émissions autres que la combustion de biomasse (trafic, industries...) a diminué mais qu'elle a été compensée par la part issue de la combustion de biomasse.

L'ensemble de ces résultats indique que le chauffage au bois reste l'un des principaux leviers d'actions pour l'amélioration de la qualité de l'air à Grenoble, et il apparaît nécessaire de poursuivre ce type d'étude à moyen terme, afin notamment d'aider à la bonne évaluation de l'efficacité des politiques publiques mises en œuvre (dont les « fonds air bois ») en région Auvergne - Rhône-Alpes, comme sur d'autres territoires.

6. MESURE EN CONTINU ET SUR LE LONG TERME DE LA COMPOSITION CHIMIQUE DES PARTICULES SUBMICRONIQUES AU SIRTÀ

Comme rappelé en introduction, le LCSQA/Ineris collabore étroitement avec le Laboratoire des Sciences du Climat et de l'Environnement (LSCE) pour la mise en œuvre de mesures *in situ* des propriétés physico-chimiques des particules atmosphériques au SIRTÀ (<https://sirta.ipsl.fr/>). Cet observatoire - localisé sur le plateau de Saclay (Essonne) et représentatif de la qualité de l'air en région Ile-de-France (fond péri-urbain) - constitue l'une des principales stations multi-instrumentées de l'infrastructure de recherche européenne ACTRIS (www.actris.eu), et de sa composante nationale ACTRIS-France (www.actris.fr). En outre, il est pleinement intégré au dispositif expérimental du programme CARA pour une meilleure compréhension des sources et processus de la pollution particulaire (e.g., [22-23]). Au cours des 10 dernières années, le suivi sur le long terme des mesures automatiques de la composition chimique des aérosols submicroniques y a notamment été réalisé dans le cadre des thèses de doctorat de Jean-Eudes Petit et de Yunjiang Zhang [24-25]. Ce chapitre synthétise les résultats obtenus à l'aide des mesures ACSM et AE33 pour la période comprise entre fin 2011 et début 2018.

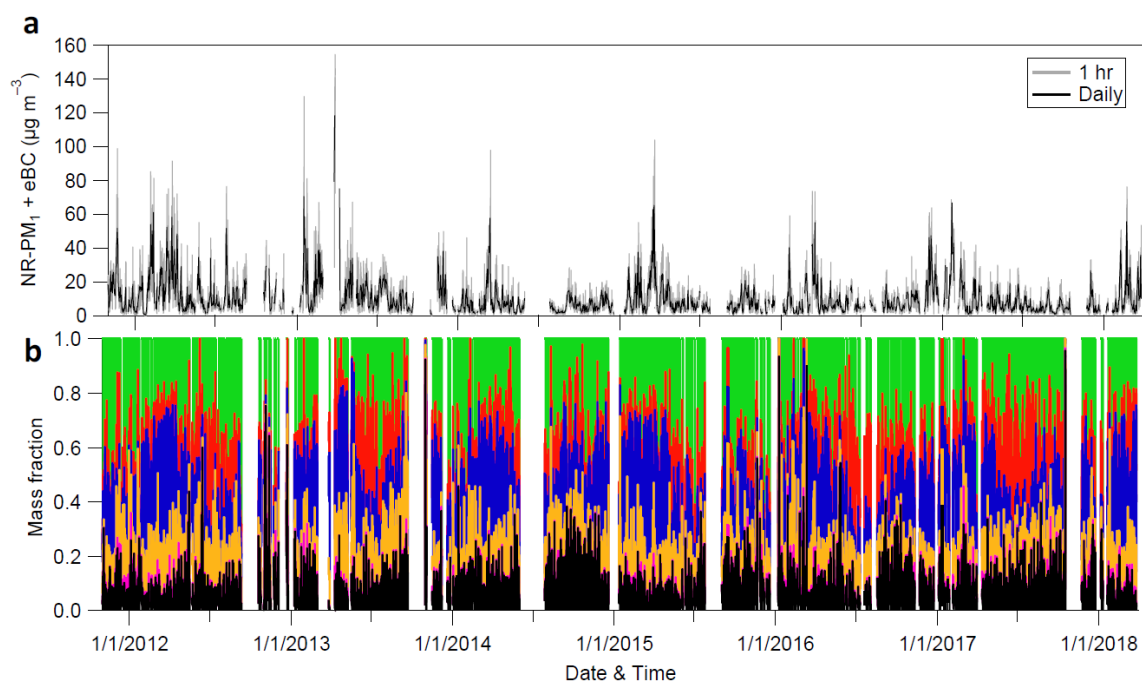


Figure 22 : Suivi sur le long terme des concentrations globales et des contributions relatives des principales espèces chimiques constituant les particules submicroniques au SIRTÀ. Sur le graphique du bas : fractions non-réfractaires (NR-PM₁) mesurées par ACSM (matière organique en vert, sulfate en rouge, nitrate en bleu, ammonium en orange et chlore en rose) et carbone suie mesuré par AE33 (en noir). Sur le graphique du haut : variations temporelles de la somme de l'ensemble de ces espèces majeures.

Comme illustré par la Figure 22, les aérosols submicroniques mesurés au SIRTÀ sont majoritairement constitués des particules carbonées (carbone suie et matière organique) et de nitrate d'ammonium, avec des maxima de concentration généralement observés en hiver et au début du printemps. En particulier, mars apparaît comme le mois le plus pollué sur la période d'étude, avec une concentration moyenne en particules submicroniques légèrement supérieure à 20 $\mu\text{g/m}^3$ et une composante majoritaire attribuée au nitrate d'ammonium (Figure 23). Cette observation coïncide avec des pratiques agricoles induisant

une augmentation des émissions de NH_3 lors des épandages réalisés en fin d'hiver et expliquant en partie les événements de pollution au nitrate d'ammonium fréquemment observés dans le nord-ouest de l'Europe au cours de cette saison. De plus, l'accumulation de polluants sous l'effet de conditions atmosphériques stagnantes, à faible hauteur de couche limite et favorisant les réactions photochimiques, favorise la formation d'aérosols inorganiques secondaires. À l'inverse, la dissociation des particules de nitrate d'ammonium se produit plus favorablement lorsque la température de l'air ambiant est plus élevée en saison chaude.

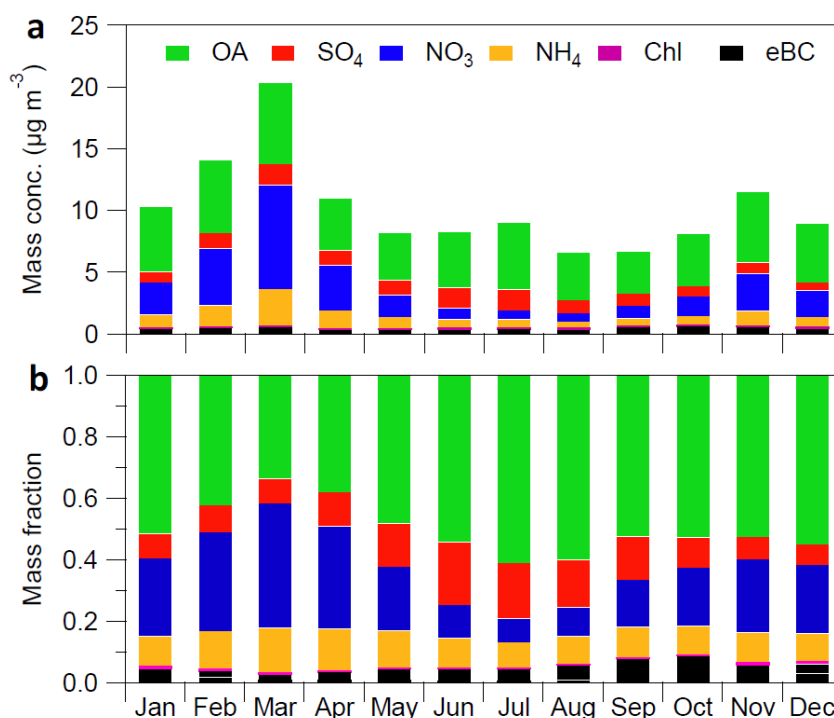


Figure 23 : Moyennes mensuelles des concentrations et contributions relatives des espèces chimiques majeures de l'aérosol submicronique au SIRTa entre fin 2011 et début 2018.

Les réactions d'équilibre entre phases gazeuse et particulaire influençant les concentrations de nitrate d'ammonium sont également observables au travers des cycles journaliers. En effet, comme illustré sur la Figure 24, les concentrations de nitrate et d'ammonium présentent clairement des maxima en fin de nuit et des minima en début d'après-midi. En outre, la constante théorique de partage entre phases gazeuse et particulaire (K_p) présente un profil journalier très similaire à ces observations, confirmant l'hypothèse d'une évaporation du nitrate d'ammonium en milieu de journée sous l'effet de l'augmentation de la température.

Par ailleurs, il est intéressant de noter que l'amplitude des concentrations maximales de nitrate semble présenter un décalage d'une journée par rapport à celles des NO_x . Par exemple, les concentrations de nitrate particulaire les plus faibles sont obtenues typiquement le dimanche et lundi (contre le samedi et le dimanche pour les NO_x). Ce phénomène pourrait être directement lié au caractère secondaire du nitrate d'ammonium, qui pourrait être partiellement transporté et/ou formé par des réactions impliquant des composés gazeux émis la veille.

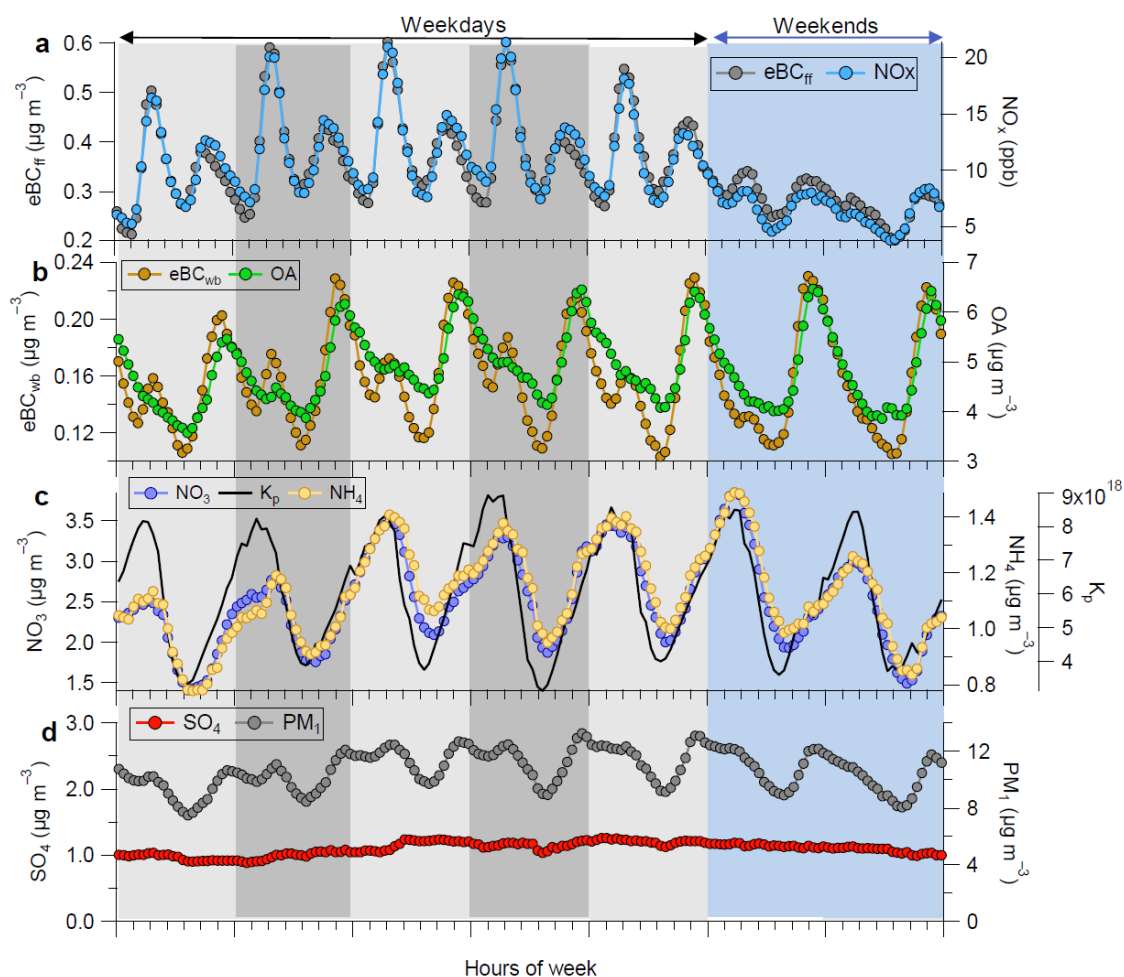


Figure 24 : Cycles journaliers moyens des espèces chimiques majeures des PM_{10} , et de quelques précurseurs gazeux, pour chaque jour de la semaine pour chaque jour de la semaine. Moyennes horaires calculées pour l'ensemble de la période comprise entre novembre 2011 et mars 2018.

Pour la matière organique, les variations mensuelles sont moins marquées, avec des concentrations moyennes oscillant entre environ 3,5 à 6,5 $\mu g/m^3$ (Figure 23). Tout comme le sulfate, sa contribution relative aux PM_{10} est maximale en été. Cette dernière observation est à relier à l'intensité des processus photochimiques estivaux. Cependant, la matière organique et le sulfate présentent des cycles journaliers moyens très différents (Figure 24). Le profil observé pour le sulfate est plat tout au long de la semaine, indiquant une influence prédominante des phénomènes d'advection à longue distance (vs. processus locaux) sur les concentrations de sulfate d'ammonium à SIRTa. De son côté, la matière organique présente un profil journalier moyen clairement marqué, avec des maxima aux alentours de 22h. Le même type de profil est obtenu pour la fraction de carbone suie liée à la combustion de biomasse (eBC_{wb}), suggérant la forte influence de cette source, principalement hivernale, sur les concentrations globales de matière organique et sur ses moyennes horaires annuelles.

Pour eBC_{wb} , il est également intéressant de noter que ses pics nocturnes de concentration sont nettement plus prononcés du vendredi au dimanche soir que pendant le reste de la semaine. Cette observation est en relation avec l'augmentation attendue des émissions de chauffage résidentiel au bois le week-end.

Enfin, un « effet week-end » opposé peut être observé pour la fraction de carbone suie liée à la combustion d'hydrocarbures (eBC_{ff}), avec des pics de concentration intenses le matin et le soir en semaine, alors que, pendant le week-end, les pics sont plus faibles et plus étalés. Le même type de variation temporelle est observé pour les concentrations de NO_x , indiquant des sources d'émission primaires communes à ces deux espèces (en particulier le transport routier).

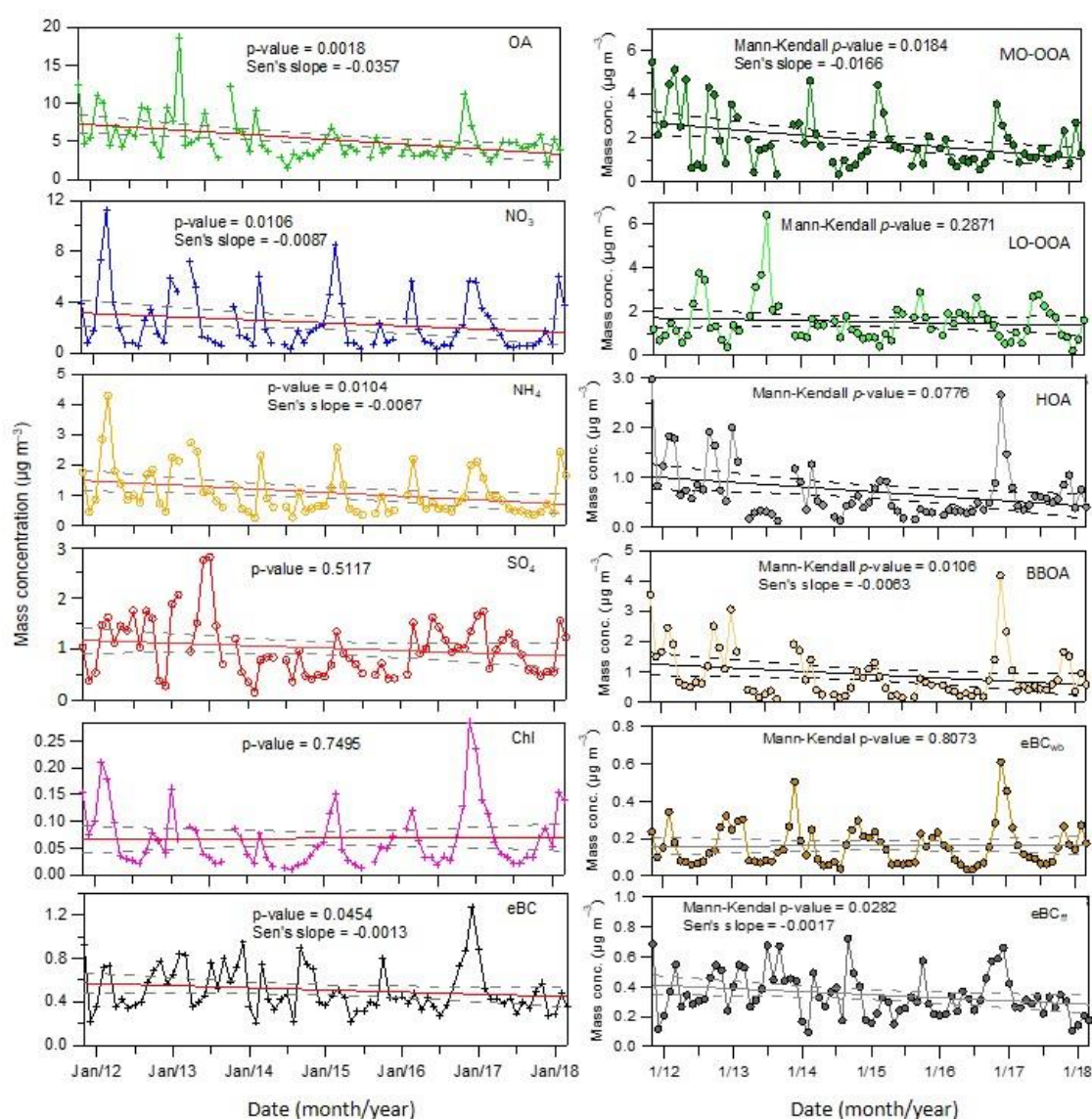


Figure 25 : Tendances à long terme des concentrations des espèces chimiques majeures des PM_{10} au SIRTa, calculées à partir des moyennes mensuelles. Une p -value inférieure à 0,05 est considérée comme significative, et la valeur de Sen's slope indique le taux d'évolution moyen des concentrations considérées (en $\mu g/m^3$ / mois).

Compte-tenu de la longueur de la série de données disponible (> 6 ans), il a été possible d'effectuer une première analyse de tendance à long terme des concentrations des espèces mesurées à l'aide de l'ACSM et de l'AE33 (Figure 25). Cette analyse a été réalisée selon la méthodologie définie par Mann-Kendall [26].

À l'exception du chlore, toutes les espèces affichent une tendance à la baisse au cours de la période étudiée. Cependant, ces tendances sont plus significatives pour la matière organique ($p < 0,002$, environ $-0,4 \mu\text{g}/\text{m}^3$ / an), ainsi que pour le nitrate et l'ammonium (p d'environ 0,01 et d'environ $-0,1 \mu\text{g}/\text{m}^3$ / an), que pour le carbone suie (avec une valeur de p autour de 0,05, ce qui correspond au seuil couramment utilisé pour déterminer la signification des résultats) et pour le sulfate (tendance non significative). Ces tendances à la baisse pourraient refléter la réponse des concentrations de PM à la diminution des émissions de sources anthropiques au cours de ces dernières années en Europe, comme indiqué par le programme de coopération pour la surveillance et l'évaluation du transport à longue distance des polluants atmosphériques [27].

En particulier, un effort de réduction des émissions primaires liées à la combustion d'hydrocarbures (dont les émissions véhiculaires à l'échappement) et des composés organiques volatils (COVs) peut expliquer la tendance à la baisse des concentrations de eBC_{ff} ($-0,02 \mu\text{g}/\text{m}^3$ / an) et de la matière organique. Pour cette dernière, une analyse PMF a permis d'identifier 4 facteurs principaux, parmi lesquels la fraction la plus oxydée (MO-OOA) - principalement issue de mécanismes de formation secondaire - explique environ la moitié de la diminution des concentrations de matière organique totale. Ce phénomène pourrait être partiellement lié à une baisse des émissions de COVs anthropiques.

En revanche, l'autre fraction principalement secondaire de la matière organique (LO-OOA) - notamment associée en été à l'oxydation de COVs émis par la végétation - ne présente aucune tendance significative à long terme. Outre la stabilité des émissions de COVs biogéniques, la complexité des mécanismes de rétroactions impliquant à la fois des émissions naturelles et anthropiques pourrait également concourir à la relative stabilité à long terme de cette fraction LO-OOA au SIRTa.

Par ailleurs, la faiblesse de la diminution des concentrations de nitrate et d'ammonium pourrait résulter de l'absence de réduction significative des émissions de NH_3 [27], ne permettant pas de transposer directement sur les concentrations de nitrate d'ammonium les efforts réalisés pour la réduction des NO_x en air ambiant.

Enfin, la fraction organique directement issue de la combustion de biomasse (BBOA) présente une très légère tendance à la baisse (environ $80 \text{ ng}/\text{m}^3$ / an). Cependant, les concentrations d' eBC_{wb} restent relativement stables au cours de la période étudiée. On peut supposer qu'une faible amélioration des rendements de combustion de l'ensemble du parc de dispositifs de chauffage au bois en région parisienne pourrait avoir plus d'influence sur les facteurs d'émission de BBOA que ceux d' eBC_{wb} (en limitant essentiellement l'émission des imbrûlés les plus lourds et les plus oxydés). Cette supposition pourrait également permettre d'expliquer la relative stabilité de la fraction HOA, qui correspond à la part la moins oxydée des particules organiques, issue de la combustion d'hydrocarbures mais également de la combustion de biomasse [28]. Néanmoins, aucune preuve n'a permis d'étayer définitivement cette hypothèse à ce stade, et l'analyse des tendances à long terme décrite ci-dessus doit être effectuée sur des jeux de données plus longs (e.g., 10 ans) pour une meilleure évaluation de l'efficacité des plans d'action mis en œuvre pour l'amélioration de la qualité de l'air en région parisienne (et plus largement aux échelles nationale et européenne).

7. PARTICIPATION A LA REVISION DU GUIDE EUROPEEN POUR L'UTILISATION DES « MODELES RECEPTEURS »

En 2018-2019, le LCSQA/Ineris s'est fortement impliqué dans la révision du guide méthodologique européen pour la mise en œuvre des outils statistiques de déconvolution de sources (« modèles récepteurs ») [29-30]. Ce travail a été réalisé dans le cadre des activités du forum Européen pour la modalisation de la qualité de l'air (FAIRMODE)⁴ et en étroite collaboration avec le *Joint Research Center*.

Ces outils statistiques sont aujourd'hui couramment utilisés pour l'identification et la quantification des sources de polluants atmosphériques, en particuliers les particules fines. Pour ces dernières, les méthodologies appliquées incluent généralement la détermination d'une grande diversité de traceurs spécifiques, suivie de l'utilisation d'outils statistiques basés soit sur une bonne connaissance *a priori* des principales sources et de leur profil d'émission (par ex. CMB : *Chemical Mass Balance*), soit sur une détermination *a posteriori* de ces sources à l'aide de profils d'émission déterminés par ailleurs (par ex. PMF : *Positive Matrix Factorization*). Le jeu de données peut être obtenu par analyse d'échantillons prélevés sur le site d'étude ou par mesures en ligne. Outre les méthodologies analytiques classiquement utilisées pour la caractérisation chimique des particules (e.g., chromatographie ionique, spectrométrie de masse, analyses thermiques et/ou optiques), d'autres approches, telles que comme l'analyse isotopique, la résonance magnétique nucléaire ou encore la spectroscopie infrarouge à transformée de Fourier, peuvent également être mises en œuvre. Quelle que soit l'approche utilisée, l'obtention de résultats pertinents nécessite une bonne connaissance de l'environnement immédiat du site d'étude et des principales sources d'émission pouvant y influencer les concentrations de particules, ainsi que l'élaboration d'une stratégie expérimentale adaptée.

Les informations fournies par les « modèles récepteurs » sont directement exploitables (et communicables) pour les sources primaires de particules (e.g., combustion de biomasse, émissions directes à l'échappement automobile, sels de mer, ...). En revanche, pour les aérosols secondaires, les contributions obtenues ne peuvent permettre de statuer sur l'impact réel d'une modification des concentrations de leurs précurseurs gazeux (dont les sources restent, en outre, fréquemment à déterminer) sur leurs niveaux de concentrations particulières. En effet, comme les processus de transformations secondaires ne sont généralement pas linéaires, les polluants émis par les différentes sources (anthropiques ou naturelles) réagissent entre eux, selon des processus que les modèles récepteurs ne peuvent ni discriminer ni quantifier. Pour exemple, les sorties PMF permettent d'estimer la contribution des émissions directes de particules par le transport routier, mais n'apportent pas d'information chiffrée sur l'influence réelle de cette même source dans la formation d'aérosols secondaires (en particulier le nitrate d'ammonium et les aérosols organiques secondaires).

Par ailleurs, ce type d'approche n'apporte pas d'information sur l'origine géographique des facteurs de sources mis en évidence. Une analyse complémentaire des variables météorologiques (dont les directions et vitesse de vent) et/ou des rétro-trajectoires des masses d'air peut néanmoins permettre de donner des informations qualitatives sur ces origines géographiques.

⁴ <https://fairmode.jrc.ec.europa.eu/>

Enfin, l'application de « modèles récepteurs » implique généralement l'utilisation de nombreuses hypothèses conceptuelles et empiriques. Elle requière donc une bonne maîtrise de leur principe de fonctionnement et de la littérature scientifique afférente. De ce fait, il est également recommandé d'accompagner les rapports d'étude ou publications scientifiques présentant les résultats obtenus d'un maximum d'information sur les choix réalisés au cours des différentes étapes de leur mise en œuvre.

8. VALORISATION DES TRAVAUX DU PROGRAMME CARA SOUS LA FORME DE PUBLICATIONS SCIENTIFIQUES

Les travaux réalisés en 2018 et 2019 ont également accordé une large place à la valorisation à l'international de différents jeux de données et/ou résultats obtenus et traités précédemment dans le cadre du programme CARA. Cet effort de valorisation inclut notamment la publication, dans des revues à comité de lecture de rang A, des articles scientifiques listés ci-dessous.

Utilisations de la PMF pour l'identification et la quantification des sources de PM à partir de jeux de données de spéciation chimique sur filtres :

Comparison of PM₁₀ source profiles at 15 French sites using a harmonized constrained positive matrix factorization approach. Weber, S., D. Salameh, A. Albinet, L. Alleman, A. Waked, J.-L. Besombes, V. Jacob, G. Guillaud, B. Mesbah, B. Rocq, A. Hulin, M. Dominik-Sègue, E. Chrétien, J.-L. Jaffrezo, O. Favez. *Atmosphere*, 10, 310, 2019. doi: 10.3390/atmos10060310. <https://www.mdpi.com/2073-4433/10/6/310>

- Synthèse des résultats obtenus par application d'une méthodologie PMF harmonisée aux différents jeux de données obtenus en France (dont prog. CARA) sur la période 2012-2016.

Sources and geographical origins of particulate matter (PM₁₀) in Metz (France) using oxalate as a marker of secondary organic aerosols by positive matrix factorization analysis. Petit, J.E., C. Pallarès, O. Favez, L.Y. Alleman, N. Bonnaire, E. Rivière. *Atmosphere*, 10(7), 370, 2019. doi: 10.3390/atmos10070370. <https://www.mdpi.com/2073-4433/10/7/370>

- Etude des sources de PM₁₀ sur le site de Metz-Borny sur la période 2016-2017.

Speciation of organic fraction does matter for source apportionment. Part 1: a one-year campaign in Grenoble (France). Srivastava, D., S. Tomaz, O. Favez, G.-M. Lanzafame, B. Golly, J.-L. Besombes, L. Y. Alleman, J.-L. Jaffrezo, V. Jacob, E. Perraudin, E. Villenave, A. Albinet. *Science of the Total Environment*, 624, 1598-1611, 2018; doi: 10.1016/j.scitotenv.2017.12.135. <https://www.sciencedirect.com/science/article/pii/S0048969717335593>

- Etude des sources de PM₁₀ sur le site de Grenoble Les Frênes en 2013.

Long range and local air pollution: what can we learn from chemical speciation of particulate matter at paired sites? Pandolfi, M., D. Mooibroek, P. Hopke, D. van Pinxteren, X. Querol, A. Alastuey, O. Favez, C. Hüglin, E. Perdrix, V. Riffault, S. Sauvage, E. van der Swaluw, O. Tarasova, A. Colette. *Atmospheric Chemistry and Physics*, 20, 409-429, 2020, doi: 10.5194/acp-20-409-2020. <https://www.atmos-chem-phys.net/20/409/2020/>

- Exploitation des jeux de données 2013-2014 et analyses PMF relatifs aux sites de Lens et Revin.

Evaluation of receptor and chemical transport models for PM₁₀ source apportionment. Belis, C.A., D. Pernigotti, G. Pirovano, O. Favez, J.-L. Jaffrezo, J. Kuenen, H. Denier Van Der Gon et al. *Atmospheric Environment*: X, 5, 2020. doi: 10.1016/j.aeaoa.2019.100053. <https://www.sciencedirect.com/science/article/pii/S2590162119300565?via%3Dihub>

- Utilisation du jeu de données correspondant à l'analyse PMF de Lens 2011-2012 pour la réalisation d'une intercomparaison européenne sur l'application d'outils statistiques ou de modèles numériques pour l'étude de source PM.

Spéciation moléculaire de marqueurs de sources :

Analysis and determination of Secondary Organic Aerosol (SOA) tracers (markers) in particulate matter standard reference material (SRM 1649b, urban dust). Albinet A., G.-M. Lanzafame, D. Srivastava, N. Bonnaire, F. Nalin, S. A. Wise. *Analytical and Bioanalytical Chemistry*, 411(23), 5975-5983, 2019. doi:10.1007/s00216-019-02015-6.

- Détermination des concentrations de nouveaux marqueurs de source d'aérosols organiques au sein du matériau de référence 1649b (NIST).

Arabitol, mannitol, and glucose as tracers of primary biogenic organic aerosol: the influence of environmental factors on ambient air concentrations and spatial distribution over France. Samake, A., J.-L. Jaffrezo, O. Favez, S. Weber, V. Jacob, A. Albinet, V. Riffault, E. Perdrix, A. Waked, B. Golly, D. Salameh, F. Chevrier, D.M. Oliveira, J.-L. Besombes, J.M.F. Martins, N. Bonnaire, S. Conil, A. Charron, T. Canete, P.Y. Robic, G. Guillaud, B. Mesbah, B. Rocq, A. Hulin, S. Lemeur, M. Descheemaeker, E. Chrétien, N. Marchand, G. Uzu. *Atmospheric Chemistry and Physics*, 19, 11013-11030, 2019. doi: 10.5194/acp-19-11013-2019. <https://www.atmos-chem-phys.net/19/11013/2019/>

- Utilisation de données du programme CARA (Rouen, Roubaix, Nogent sur Oise, Grenoble, Marseille, Nice) pour l'étude des principaux paramètres environnementaux influençant les concentrations de marqueurs moléculaires des particule biogéniques primaires.

Polyols and glucose particulate species as tracers of primary biogenic organic aerosols at 28 French sites. Samake, A., J.-L. Jaffrezo, O. Favez, S. Weber, V. Jacob, A. Albinet, V. Riffault, E. Perdrix, A. Waked, B. Golly, D. Salameh, F. Chevrier, D.M. Oliveira, N. Bonnaire, J.-L. Besombes, J.M.F. Martins, S. Conil, G. Guillaud, B. Mesbah, B. Rocq, P.Y. Robic, A. Hulin, S. Lemeur, M. Descheemaeker, E. Chrétien, N. Marchand, G. Uzu. *Atmospheric Chemistry and Physics*, 19, 3357-3374, 2019. doi: 10.5194/acp-19-3357-2019. <https://www.atmos-chem-phys.net/19/3357/2019/acp-19-3357-2019.pdf>

- Variabilité spatiale et saisonnière des concentrations de polyols et du glucose comme marqueurs des particule biogéniques primaires (bioaérosols) à partir de mesures sur différents sites français (dont 13 sites du programme CARA).

Exploitation de mesures automatique de la composition chimique des PM (ACSM et/ou AE33) :

Six-year source apportionment of submicron organic aerosols from near-continuous highly time-resolved measurements at SIRTA (Paris area, France). Zhang, Y., O. Favez, J.-E. Petit, F. Canonaco, F. Truong, N. Bonnaire, V. Crenn, T. Amodeo, A.S.H. Prévôt, J. Sciare, V. Gros, A. Albinet. *Atmospheric Chemistry and Physics*, 19, 14755-14776, 2019. doi: 10.5194/acp-19-14755-2019. <https://www.atmos-chem-phys.net/19/14755/2019/>

- Etude des principales sources d'aérosol organique submicronique au SIRTA sur la période fin 2011 - début 2018.

Impact sanitaire des particules :

Seasonal variations and chemical predictors of oxidative potential of particulate matter (PM) for 7 urban French sites. Calas A., G. Uzu, J.-L. Besombes, J. Martins, M. Redaelli, S. Weber, A. Charron, A. Albinet, F. Chevrier, G. Brulfert, B. Mesbah, O. Favez, J.-L. Jaffrezo. *Atmosphere*, 10, 698, 2019. doi: 10.3390/atmos1011069. <https://www.mdpi.com/2073-4433/10/11/698>

- Etude des relations entre l'induction de stress oxydant cellulaire par les PM et les concentrations d'espèces chimiques majeurs et de marqueurs de source sur 7 sites français (dont Grenoble, Nice, Port-de-Bouc et Talence).

9. PERSPECTIVES D'ÉVOLUTION DU DISPOSITIF DE PRÉLEVEMENTS SUR FILTRES

L'émergence et la consolidation du dispositif de mesures automatiques de la composition chimique des particules fines sur l'ensemble des sites d'intérêt national, couplées aux contraintes financières, conduisent aujourd'hui le LCSQA à envisager la diminution du nombre de sites du programme CARA équipés de préleveurs sur filtres [31]. En effet, ACSM et AE33 permettent d'identifier en temps quasi-réel la nature des épisodes de pollution particulaires les plus fréquents (printaniers et/ou liés à l'accumulation hivernale des émissions primaires de combustion). Néanmoins, la poursuite de prélèvements sur filtres reste nécessaire à :

- la mise en œuvre de procédures de contrôle qualité des mesures automatiques ;
- l'observation des particules grossières (plutôt de nature minérale et/ou d'origine naturelle) ;
- l'étude fine des sources et processus de formation à partir d'analyses de traceurs moléculaires ou isotopiques spécifiques.

Dans ce contexte, il a été proposé en commission de suivi du dispositif national de surveillance (« CS Observatoires Nationaux ») de privilégier les actions ci-dessous pour l'évolution du dispositif CARA-Filtres.⁵

Redéploiement vers des sites ruraux

Dans un souci de rationalisation, il semble opportun d'envisager la diminution du nombre de sites CARA-filtres et de redéployer certains d'entre eux vers des sites ruraux nationaux (SRN). En effet, ces derniers sont d'ores et déjà équipés de 2 préleveurs haut-débits ne réalisant actuellement des prélèvements qu'1 jour sur 6, l'un pour EC/OC et anions-cations en PM_{2.5}, l'autre pour HAPs en PM₁₀ (mesures réglementaires dans les deux cas). Sur tout ou partie des SRN, l'un et/ou l'autre de ces préleveurs pourrai(en)t être utilisé(s) pour un échantillonnage journalier en complément des mesures réglementaires. La fraction PM₁₀ serait ici à privilégier pour s'assurer la possibilité de documenter correctement les éventuels épisodes de pollution particulaire liés au transport de poussières naturelles. Selon les financements disponibles et les besoins pour les travaux de modélisation (notamment), des prélèvements en parallèle en PM_{2.5} et PM₁₀ pourraient également être envisagés. Enfin, certains autres sites de fond rural (e.g. stations *Brume* en Martinique, *Observatoire de Haute Provence* en PACA, ...), bien que non SRN, pourraient être utiles à une meilleure prise en compte de l'impact des poussières terrigènes aux échelles régionales.

Maintien d'un dispositif restreint de prélèvements en zone urbaine

Sous réserve de disponibilité de co-financement régionaux, nationaux et/ou européens, la poursuite de prélèvements quasi-systématiques de filtres PM₁₀ pourrait être envisagée pour les sites disposant des plus longues séries d'échantillons d'ores et déjà disponibles. Cette action permettrait notamment d'assurer la réalisation d'études de tendance à long-terme ainsi que la consolidation de la « filtrothèque » ayant pu être constituée dans le cadre du programme CARA au cours de ces dix dernières années.

⁵ https://www.lcsqa.org/system/files/contenu/evenement/CR_CS_Obs%20Nat_22nov2019_vf.pdf

Par ailleurs, la réalisation d'études spécifiques et ponctuelles, en collaboration avec les AASQA qui en feraient la demande, reste probablement d'intérêt dans certains cas particuliers de pollution locale induisant des dépassements inexpliqués de valeurs limites.

Accompagnement des AASQA à l'élaboration/évaluation des plans d'actions

Depuis 2012, des outils statistiques de traitement de données ("modèles récepteurs") ont été mis en œuvre afin de quantifier l'impact des principales sources primaires de PM sur différents sites du programme CARA. Ces travaux peuvent servir à l'élaboration et/ou l'évaluation des politiques publiques d'amélioration de la qualité de l'air. Ainsi, le programme CARA a notamment permis d'accompagner Atmo Hauts-de-France dans la mise en œuvre du Plan de Protection de l'Atmosphère (PPA) de l'agglomération creilloise (action qui s'est achevée fin 2017), et Atmo Auvergne – Rhône-Alpes (Atmo AuRA) pour le suivi de l'impact du "fond air bois" sur la qualité de l'air à Grenoble. Il est proposé ici de maintenir ce type d'actions, en étroite collaboration avec les AASQA disposant de co-financements spécifiques. En particulier, l'étude à Grenoble pourra être renforcée en incluant un soutien à l'analyse de filtres et de données de nouveaux sites de mesure, en lien également avec les projets de recherche menés par Atmo AuRA avec l'Institut des Géosciences de l'Environnement (équipe de Jean-Luc Jaffrezo), afin de permettre une meilleure évaluation de l'efficacité des actions réalisées dans le cadre du « fond air bois ». Des travaux dans d'autres agglomérations pourront également être réalisés en concertation avec les AASQA le souhaitant. Ces travaux pourront notamment inclure l'analyse de séries pseudo-continues (cf. Annexe 1) de filtres prélevés dans le cadre du programme CARA au cours de ces dernières années.

Les modalités d'application des propositions ci-dessus restent à finaliser en 2020 dans le cadre des travaux de la « CS Observatoires Nationaux », et selon les contraintes et/ou opportunités financières s'appliquant aux différents acteurs du dispositif national de surveillance la qualité de l'air.

10. 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. <https://www.lcsqa.org/fr/rapport/campagne-detallonnage-des-acsm-2017-application-dune-nouvelle-methode-detallonnage-et>
- [7] Bilan des travaux 2014-2015 du programme CARA. Rapport LCSQA 2015. <http://www.lcsqa.org/rapport/2013/ineris/synthese-travaux-2013-programme-cara>
- [8] 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>
- [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
- [10] Episode de pollution particulaire de mi-février 2018 : éléments de compréhension à partir de mesures automatiques de composition chimique (21-23 février). Note LCSQA du 23 février 2018. <https://www.lcsqa.org/fr/rapport/2018/ineris-imt-lille-douai/episode-pollution-mi-fevrier-2018-elements-comprehension-partir->
- [11] Analyse de tendances nationales en matière de qualité de l'air. Rapport LCSQA 2016. https://www.lcsqa.org/system/files/rapport/lcsqa2016-tendances_nationales_ga_vf.pdf
- [12] Bilan de la qualité de l'air extérieur en France en 2018. Rapport du commissariat général au développement durable. <https://www.statistiques.developpement-durable.gouv.fr/sites/default/files/2019-11/datalab-61-bilan-qualite-air-exterieur-france-2018-novembre2019.pdf>
- [13] Caractérisation chimique des particules : comparaison modèle/mesure. Rapport LCSQA 2010. https://www.lcsqa.org/system/files/drc-10-111579-01718a_pm10-pm2.5_vf.pdf

- [14] Establishing guidelines for demonstration and subtraction of exceedances attributable to natural sources under the Directive 2008/50/EC on ambient air quality and cleaner air for Europe. Sec(2011) 208 final. P.22 (subsection 4.1.5). http://ec.europa.eu/environment/air/quality/legislation/pdf/sec_2011_0208.pdf
- [15] Caractérisation chimique et étude de sources des particules en Martinique en 2018. Rapport LCSQA 2019. https://www.lcsqa.org/system/files/documents/LCSQA2019-CARA_Martinique%202018.pdf
- [16] Analyse de données de mesure de PM en Martinique : évolution des concentrations entre 2000 et 2018. Rapport LCSQA 2019. <https://www.lcsqa.org/fr/rapport/analyse-de-donnees-de-mesure-de-pm-en-martinique-evolution-des-concentrations-entre-2000-et>
- [17] Suivi long-terme des particules issues de la combustion de biomasse à Grenoble. Rapport LCSQA 2018. https://www.lcsqa.org/system/files/rapport/LCSQA_2018_Metrologie_PMbiomasse%20Grenoble.pdf
- [18] NF EN 16909 - Air ambiant - Mesurage du carbone élémentaire (EC) et du carbone organique (OC) prélevés sur filtre. Mai 2017. Disponible auprès de l'AFNOR.
- [19] Quantification of levoglucosan and its isomers by High Performance Liquid Chromatography - Electrospray Ionization tandem Mass Spectrometry and its applications to atmospheric and soil samples. Piot et al., Atmos. Meas. Tech., 5, 141-148, 2012. <https://doi.org/10.5194/amt-5-141-2012>
- [20] NF EN 15549 - Qualité de l'air - Méthode normalisée pour le mesurage de la concentration de benzo[a]pyrène dans l'air ambiant. Juillet 2008. Disponible auprès de l'AFNOR.
- [21] XP/CEN TS 16645 - Air ambiant - Méthode pour la mesure de benz[a]anthracène, benzo[b]fluoranthène, benzo[j]fluoranthène, benzo[k]fluoranthène, dibenz[a,h]anthracène, indeno[1,2,3-cd]pyrène et benzo[ghi]perylène. Mai 2014. Disponible auprès de l'AFNOR.
- [22] Characterising an intense PM pollution episode in March 2015 in France from multi-site approach and near real time data: climatology, variabilities, geographical origins and model evaluation. Petit et al., Atmospheric Environment, 155, 68-84, 2017. <https://www.sciencedirect.com/science/article/abs/pii/S1352231017300821?via%3Dihub>
- [23] Substantial brown carbon emissions from wintertime residential wood burning over France. Zhang et al., Science of the Total Environment, 743, 140752, 2020. <https://www.sciencedirect.com/science/article/pii/S0048969720342765>
- [24] Compréhension des sources et des processus de formation de la pollution particulaire en région Ile de France. Manuscrit de thèse de doctorat de Jean-Eudes Petit, 2014. <https://tel.archives-ouvertes.fr/tel-01165065/document>
- [25] Estimation multi-annuelle des sources d'aérosols organiques et de leurs propriétés d'absorption de la lumière en région parisienne. Manuscrit de thèse de doctorat de Yunjiang Zhang, 2019.
- [26] Rank Correlation Methods. Kendall, M. G. Ouvrage édité par Griffin, London, 1975.
- [27] Air pollution trends in the EMEP region between 1990 and 2012. CCC-report 1/2016, 2016.

- [28] Submicron aerosol source apportionment of wintertime pollution in Paris, France by Double Positive Matrix Factorization (PMF²) using Aerosol Chemical Speciation Monitor (ACSM) and multi-wavelength Aethalometer. Petit et al., Atmospheric Chemistry and Physics, 14, 17773-17787, 2014. <https://acp.copernicus.org/articles/14/13773/2014/>
- [29] European guide on air pollution source apportionment with receptor models. JRC Technical Report, 2019. <https://ec.europa.eu/jrc/en/publication/european-guide-air-pollution-source-apportionment-receptor-models>
- [30] Guide européen pour la mise en œuvre d'outils statistiques de type « modèles récepteurs » : principaux points d'attention. Note LCSQA 2018. https://www.lcsqa.org/system/files/documents/LCSQA2018-CARA_guide%20EU%20mod%C3%A8les%20r%C3%A9cepteurs.pdf
- [31] Pistes d'évolution du programme CARA du dispositif national de surveillance de la qualité de l'air. Note LCSQA 2018. <https://www.lcsqa.org/fr/rapport/pistes-devolution-du-programme-cara-du-dispositif-national-de-la-qualite-de-lair>



direction et secrétariat du LCSQA

INERIS - parc technologique Alata - BP 2 - F60550 Verneuil-en-Halatte
tél. 03 44 55 64 04 - www.lcsqa.org