



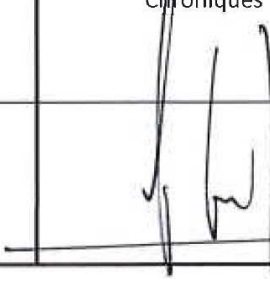
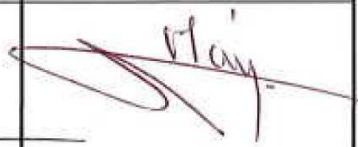
Bilan des Travaux 2014-2015 du Programme CARA

Laboratoire Central de Surveillance de la Qualité de l’Air

BILAN DES TRAVAUX 2014-2015 DU PROGRAMME CARA

Olivier FAVEZ et al. (cf. liste des collaborations p. 8)

Programmes d’étude 2014 et 2015 du LCSQA

	Rédaction	Vérification	Approbation
NOM	Olivier FAVEZ	Marc DURIF	Anne MORIN
Qualité	Ingénieur de l’Unité CIME Direction des Risques Chroniques	Responsable du Pôle CARA Direction des Risques Chroniques	Adjointe à la Direction des Risques Chroniques Direction des Risques Chroniques
Visa			



LE LABORATOIRE CENTRAL DE SURVEILLANCE DE LA QUALITE DE L'AIR

Le Laboratoire Central de Surveillance de la Qualité de l'Air est constitué des laboratoires de Mines 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 de l'Environnement, de l'Énergie et de la Mer (MEEM). 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 MEEM 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
COLLABORATIONS	8
1. INTRODUCTION	9
2. CARACTERISATION CHIMIQUE DES EPISODES DE POLLUTION PARTICULAIRE.....	11
2.1 Episode de mars 2014	11
2.2 Episode de mai 2014	12
2.3 Episode de fin septembre 2014	13
2.4 Episode de fin décembre 2014 – début janvier 2015	14
2.5 Episode de mars 2015	14
3. ACCOMPAGNEMENT A LA MISE EN ŒUVRE DES ANALYSEURS AUTOMATIQUES DE LA COMPOSITION CHIMIQUE DES PM	17
3.1 Accompagnement à la mise en œuvre de l'AE33	17
3.1.1 Création et animation d'un groupe utilisateurs AE33.....	17
3.1.2 Réalisation d'un exercice d'intercomparaison.....	18
3.1.3 Réalisation de comparaisons deux-à-deux.....	20
3.2 Accompagnement à la mise en œuvre de l'ACSM	22
3.2.1 Participation à l'exploitation des résultats de la CIL ACSM ACTRIS-1.....	22
3.2.2 Caractérisation de la procédure d'étalonnage de l'ACSM	25
3.2.3 Tests à réception, formations des AASQA et étalonnages.....	25
3.2.4 Création et animation d'un groupe utilisateurs ACSM	26
4. ETUDES DE SOURCES.....	27
4.1 Impact de la combustion de biomasse lors de l'hiver 2014-2015	27
4.2 Etudes par Positive Matrix Factorization (PMF)	31
4.2.1 Etude PMF multi-sites dans le nord de la France.....	31
4.2.2 Etude PMF sur un site de proximité automobile	32
4.2.3 Etude PMF sur le site de Grenoble Les Frênes.....	34
4.3 Programmes INACS & INACS-2.....	36
5. CONCLUSIONS ET PERSPECTIVES	40
6. REFERENCES	42
7. LISTE DES ANNEXES.....	44

Le présent rapport synthétise les travaux 2014-2015 du programme CARA, mis en place en 2008, à l'initiative du LCSQA, pour répondre à une forte demande du ministère et des AASQA d'amélioration des connaissances sur les sources et origines des épisodes de pollution particulaire d'ampleur nationale et d'identification des principales sources de PM à l'échelle (pluri-)annuelle. Basé sur une étroite collaboration avec les AASQA volontaires mais aussi avec des laboratoires universitaires, ce programme assure également un transfert de compétences de la recherche vers l'opérationnel.

Outre l'impact du transport de particules d'origine naturelle (poussières sahariennes et aérosols issus d'émissions volcaniques), l'analyse des épisodes de pollution confirme le rôle majeur joué par la matière organique (issue en particulier du chauffage au bois) et le nitrate d'ammonium (particules secondaires dérivant notamment des émissions véhiculaires et agricoles) sur les niveaux de PM₁₀, respectivement en période hivernale et en fin d'hiver - début de printemps.

Afin d'apporter une réponse adaptée au besoin grandissant de compréhension immédiate de ces épisodes, le programme CARA s'est attaché au cours de ces dernières années au développement d'un dispositif d'observation en temps réel de la composition chimique des PM. Dans la continuité des travaux précédents ayant permis d'identifier et de tester deux instruments particulièrement adaptés au cadre opérationnel (i.e., l'Aethalomètre multi-longueur d'ondes de type AE33 et l'*Aerosol Chemical Speciation Monitor*), une large place a été accordée en 2014-2015 à l'accompagnement des AASQA pour le déploiement de ces analyseurs sur quelques sites d'intérêt national. Ce suivi a notamment intégré un soutien technique pour la mise en œuvre et la calibration des instruments, la création et l'animation de « groupes utilisateurs » spécifiques, la réalisation d'exercices d'intercomparaisons, ainsi qu'une collaboration active entre AASQA et LCSQA pour le traitement et la valorisation des données.

Concernant la détermination des principales sources de PM, une étude menée simultanément sur dix sites de fond urbains métropolitains entre novembre 2014 et avril 2015 illustre clairement l'importance des contributions de la combustion de biomasse à l'échelle nationale, non seulement lors des épisodes de pollution hivernaux mais également sur les concentrations de fond (i.e., entre 18 % et 36 % des PM₁₀ selon l'agglomération étudiée, sur cette période incluant également le début du printemps). Les analyses par *Positive Matrix Factorization* en cours (notamment sur les sites CARA du nord de la France et à Grenoble) confirment ces observations, ainsi que la forte influence des aérosols secondaires (organiques et inorganiques) tout au long de l'année. Outre les émissions particulières à l'échappement, le transport routier agit comme un contributeur majeur des précurseurs gazeux (NO_x et composés organiques volatils) nécessaires à la formation de ces aérosols secondaires. Son impact en site de proximité automobile inclut également les phénomènes d'abrasion (freins, pneus, chaussée) et de remise en suspension (30-35 % des PM₁₀, en moyenne annuelle, en bordure de périphérie parisienne). Enfin, l'analyse d'un très large panel de filtres du programme CARA dans le cadre des projets INACS et INACS-2 a permis de mettre en évidence, à l'aide d'une méthodologie novatrice (basée sur l'analyse isotopique), l'origine principalement agricole de l'ammonium lors des épisodes de pollution printaniers.

COLLABORATIONS

Les résultats des travaux présentés dans ce rapport sont le fruit de nombreuses collaborations menées par le LCSQA avec les AASQA et différents laboratoires de recherche académiques. Sans pouvoir être totalement exhaustif, ils impliquent notamment :

Pour les AASQA : Jean-Eudes Petit et David Missler (Air Lorraine) ; Didier Grenier, Emmanuel Moussu, Clément Bret, Alexandre Thomasson et Yann Pellan (Air Rhône-Alpes) ; Vincent Tribout, Floran Pin et Pierre-Yves Guernion (AirAq) ; Michaël Morand, Sébastien Lemeur, Marta Dominik-Sègue et Nicolas Lepelley (Air Normand) ; Aurélie Stoerckel, Jérémie Soubise, Grégory Gille et Boualem Mesbah (Air PACA) ; Nathalie Delaunay, Régis Piet et Agnès Hulin (Atmo Poitou-Charentes) ; Arnaud Tricoire et Florence Guillou (Air Pays de la Loire) ; Eric Herber, Didier Steiger et Cyril Pallares (ASPA) ; Anne Arounothay, Eve Chrétien et Bastien Gal (Atmo Champagne-Ardenne) ; Hélène Moritz, Claire Labartette et Anaïs Detournay (Atmo Franche-Comté) ; Véronique Gherzi, Sophie Mokhtar, Patrick Garnoussi, Gregory Abbou, Benjamin Brugge et Christophe Ampe (Airparif) ; Tiphaine Delaunay, Arabelle Anquez et Jean-Yves Saison (Atmo Nord Pas de Calais) ; Gabrielle Pochet et (Qualit'air Corse).

Pour le Laboratoire de Glaciologie et de Géophysique de l'Environnement (LGGE): Jean-Luc Jaffrezo, Benjamin Golly, Yann Cohen et Fanny Masson.

Pour le Laboratoire des Sciences du Climat et de l'Environnement (LSCE) : Jean Sciare, Valérie Gros et Nicolas Bonnaire.

Pour le laboratoire Environnements et Paléoenvironnements Océaniques et Continentaux (EPOC) : Sophie Tomaz, Emilie Perraudin et Eric Villenave.

Pour le CEREMA (ex-CETE) Ile de France : Tiphaine Lepriol et Jean-François Petit.

Pour l'IDAEA-CSIC (Barcelone, Espagne) : Fulvio Amato et Marco Pandolfi.

Pour Mines Douai : Laurent Alleman, Diogo Oliveira, Esperanza Perdrix, Véronique Riffault et Stéphane Sauvage.

Pour l'INERIS : Alexandre Albinet, Tanguy Amodeo, Robin Aujay, Stéphane Verlhac, Deepchandra Srivastava, Valérie Minguet, Nicolas Chatellier, Bruno Triart et Arnaud Papin.

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_{10} du printemps 2007. Créé et géré par le LCSQA, ce dispositif aujourd'hui pérenne, fonctionne en étroite collaboration avec les AASQA et, ponctuellement, avec des laboratoires universitaires. 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 QA/QC 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 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.

La description détaillée du programme CARA et de ses perspectives d'évolution a fait l'objet d'une note de synthèse LCSQA 2014 [1], reproduite en Annexe 1 du présent rapport. La figure ci-dessous présente les principales stations de mesure AASQA associées à ce programme en 2014-2015.

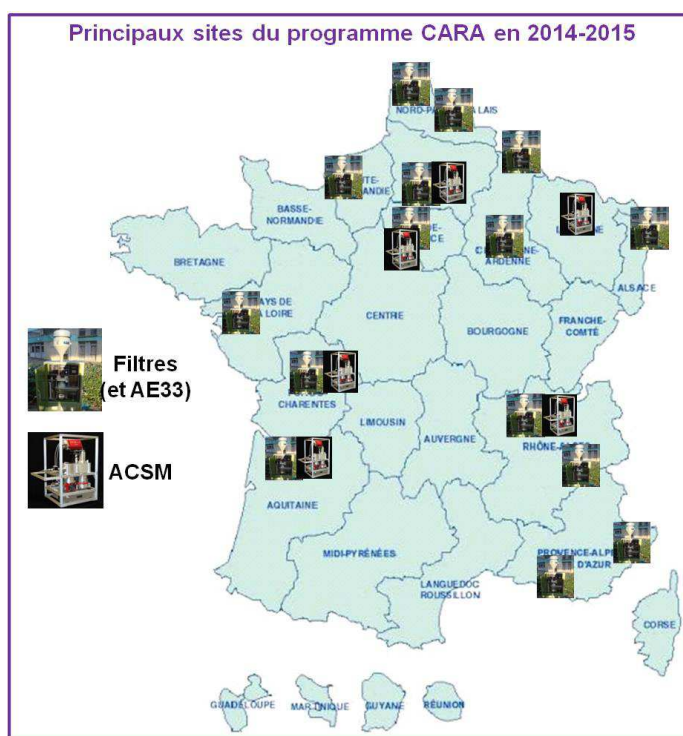


Figure 1

D'un point de vue pratique, ce programme repose historiquement sur l'analyse chimique au laboratoire (INERIS, Mines 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 permet pas de répondre complètement au besoin grandissant d'une détermination en temps quasi-réel de la composition chimique des PM.

Tableau de synthèse sur l'utilisation de la spéciation chimique pour la détermination des contributions des principales sources de PM :

Espèces chimiques	Chimie différée (filtres)	Chimie rapide
Fractions carbonées EC-OC	Sunset Lab. Analyzer	Sunset Field Analyzer
Black Carbon (carbone suie)		AE33
Spectres de masse de la matière organique		ACSM
Fractions inorganiques solubles (anions/cations)	IC	ACSM
Traceurs organiques spécifiques	GC-MS, LC-(Q -ToF)-MS, ..	MS et LC on-line
Métaux (majeurs et traces)	ICP-OES et ICP-MS	XRF on-line
Isotopes stables (e.g., C, N, O, ..)	MS, conversion bactérienne,	
Techniques maîtrisées	Perfectionnement en cours	Pistes de développement

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 4 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.

Dans la continuité des années précédentes, les travaux 2014 et 2015 ont principalement porté sur :

- ✓ la caractérisation chimique des principaux épisodes de pollution particulaire d'ampleur nationale ;
- ✓ l'accompagnement à la mise en œuvre en AASQA d'analyseurs automatiques de la composition chimique des PM ;
- ✓ l'identification et l'estimation des contributions de sources de PM en différents points du dispositif national.

En 2014-2015, ces travaux ont donné lieu à la rédaction de 7 rapports et notes du LCSQA, et ont permis de contribuer à autant de publications scientifiques (listées en section 6).

2. CARACTERISATION CHIMIQUE DES EPISODES DE POLLUTION PARTICULAIRE

Ce premier point correspond au dispositif « historique » du programme CARA. Il permet d'apporter des informations sur la composition chimique des particules, en situation de fortes concentrations ou d'autres situations d'intérêts, à partir d'échantillons collectés par les AASQA volontaires. Ces mesures chimiques permettent d'apporter de premiers éléments de compréhension des principales sources d'émission. Cinq épisodes majeurs de pollution particulaire d'ampleur nationale ont été identifiés sur la période 2014-2015.

2.1 Episode de mars 2014

Le premier épisode, du 9 au 17 mars 2014, était exceptionnel par son intensité et sa couverture géographique, mais caractéristique des épisodes fréquemment observés en fin d'hiver - début de printemps [6]. Il a touché toute la France et une large partie de l'Europe de l'Ouest (Figure 2). Les concentrations ont dépassé le seuil d'information et de recommandation dans l'ensemble du pays et le seuil d'alerte a également été dépassé pendant plusieurs jours dans plusieurs régions (Alsace, Champagne-Ardenne, Ile de France, Lorraine, Nord pas de Calais, Picardie, Rhône-Alpes).

L'analyse des filtres collectés par les AASQA a mis en évidence le rôle prépondérant joué par le nitrate d'ammonium dans la survenue de cet épisode (Figures 2 et 3). Les conditions météorologiques extrêmement stables avec de fortes inversions thermiques et les températures plutôt douces en journée ont notamment favorisé :

- la volatilisation de l'ammoniac issu des épandages d'engrais azotés,
- l'oxydation des NO_x (issus majoritairement du transport routier) en acide nitrique,
- la production de nitrate d'ammonium à partir de ces deux précurseurs gazeux, et son maintien en phase particulaire.

Répartition des espèces chimiques majeures au sein des PM₁₀, moyenne du 11 au 15 mars 2014

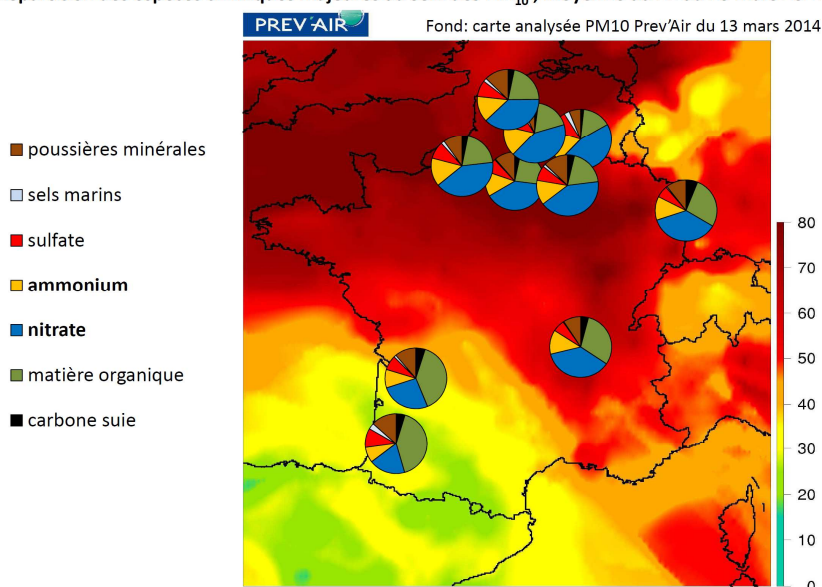


Figure 2

Evolution des espèces chimiques majeures au sein des PM₁₀ entre le 5 et 16 mars 2014

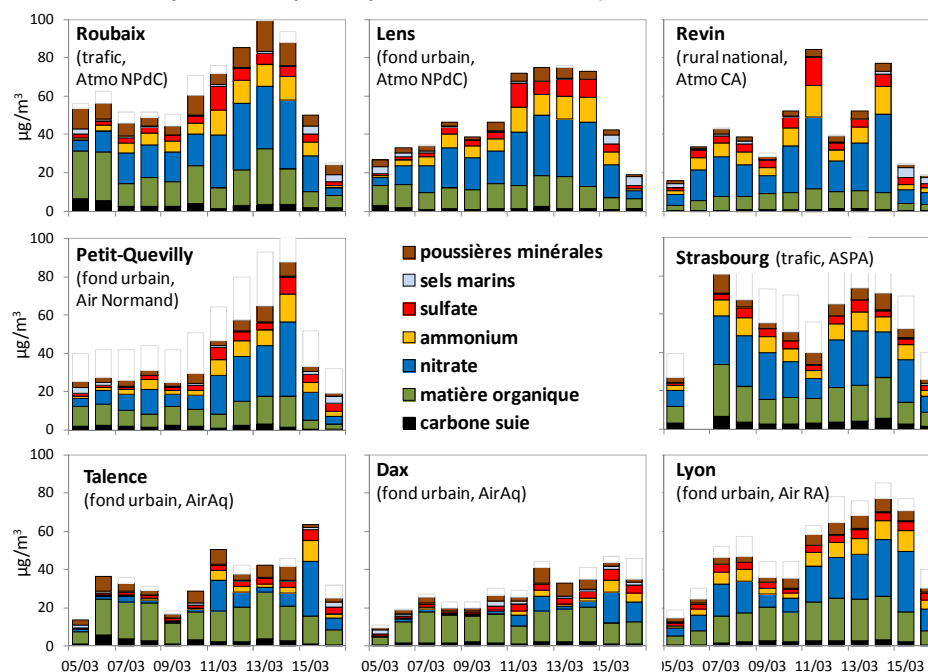


Figure 3

L'analyse de cet épisode de mars 2014 a notamment été présentée lors du séminaire LCSQA du 22 mai 2014 ainsi qu'au sein de deux publications scientifiques [7-8]. A noter que les comparaisons mesures - modèles ayant pu être réalisées aux regards de l'ensemble des paramètres météorologiques et physico-chimiques mesurés au SIRTa confirment l'intérêt de pouvoir disposer d'une meilleure prévision de la hauteur de couche limite afin d'optimiser les outils de modélisation.

2.2 Episode de mai 2014

Du 21 au 23 mai 2014, de nombreux dépassements du seuil journalier fixé pour les PM₁₀ ont été observés le long du littoral méditerranéen (Figure 4).

Maximum des concentrations moyennes journalières de fond en PM₁₀ sur la période du 21 au 23 mai 2014

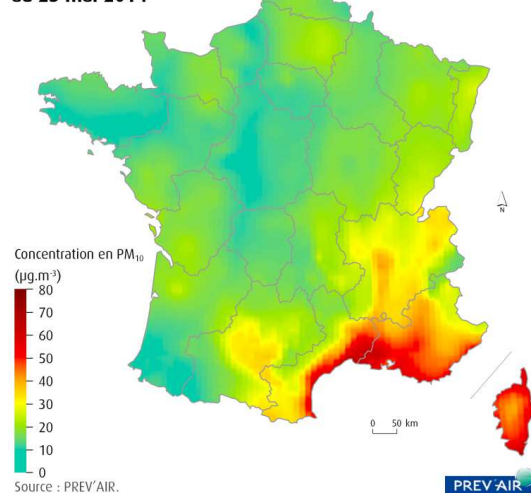


Figure 4

Cet épisode n'a pas fait l'objet d'une analyse spécifique dans le cadre du programme CARA. Néanmoins, il est très similaire à un épisode d'avril 2013, pour lequel l'analyse (au cours de l'année 2014) de filtres collectés en Corse a permis de conclure à la prédominance des poussières sahariennes sur les niveaux de PM₁₀ [9]. Les observations satellites ont par ailleurs confirmé l'importance du transport de ce type de particules au-dessus de la Méditerranée autour du 22 mai 2014.

2.3 Episode de fin septembre 2014

Ce dernier épisode majeur de 2014 était également d'origine naturelle. Le 22 septembre au matin, une élévation des niveaux de concentrations de PM et de dioxyde de soufre (SO₂) a été constatée par les AASQA du nord de la France (Atmo Nord Pas de Calais, Atmo Picardie, et Atmo Champagne Ardennes). L'étendue géographique de ce phénomène s'est ensuite rapidement étendue à l'Île de France et à la Normandie. Le caractère atypique et imprévu de cet épisode a tout d'abord laissé les AASQA concernées dans la perplexité quant à son origine. Néanmoins, les travaux réalisés au SIRTa en collaboration avec le Laboratoire des Sciences du Climat et de l'Environnement (LSCE) ont permis d'identifier l'origine de cet épisode dès la fin de matinée. En effet, les mesures en temps réel (par ACSM) ont mis en évidence l'augmentation exceptionnelle des niveaux de sulfate d'ammonium au sein des PM, en concomitance avec l'arrivée de masses d'air enrichies en SO₂ par les rejets du volcan islandais Bardabunga. Les mesures sur filtres pour différents points de mesure du programme CARA ont ensuite confirmé la forte influence des concentrations de sulfate d'ammonium, formé par oxydation du dioxyde de soufre. Comme illustré par la Figure 5, ces émissions volcaniques ont été à l'origine de dépassements de la valeur journalière de 50 µg/m³ dans le quart Nord-Ouest du territoire national entre les 22 et 24 septembre 2014.

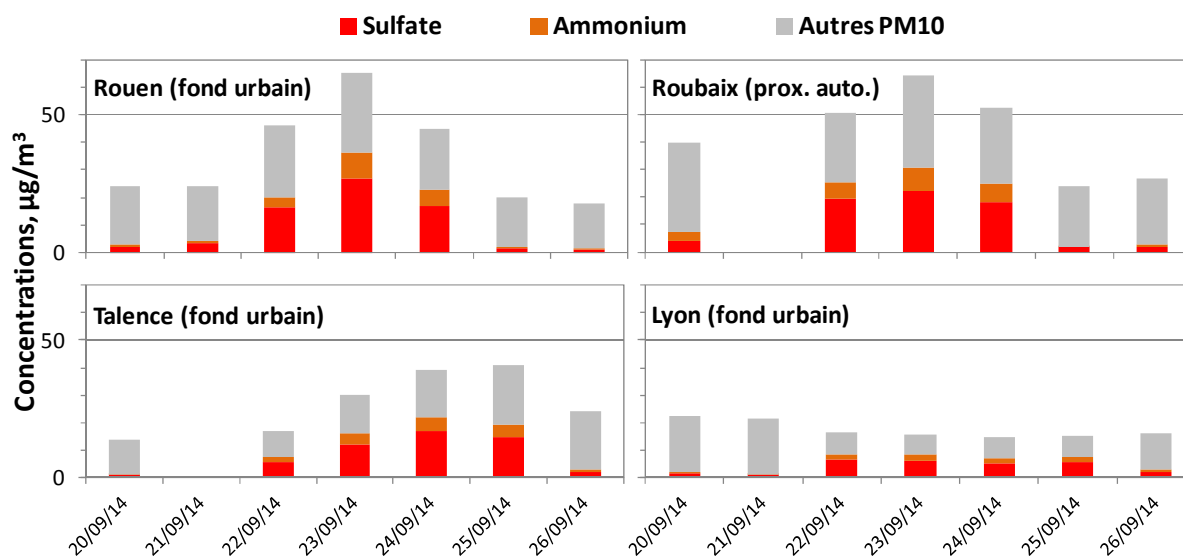


Figure 5 : importance des concentrations de sulfate d'ammonium au sein des PM₁₀ lors de l'épisode du 22-24 septembre 2014 (mesures sur filtres).

2.4 Episode de fin décembre 2014 - début janvier 2015

L'analyse de cet épisode a fait l'objet d'une note spécifique du LCSQA, publiée au premier trimestre 2015 [10].

De nombreux dépassements de valeurs limites ont été constatés en fin d'année 2014 - début d'année 2015 (en particulier la façade ouest, le bassin parisien, l'Alsace et Rhône-Alpes). Ces dépassements étaient liés à de fortes augmentations des concentrations de matière organique, cette dernière fraction constituant près des $\frac{3}{5}$ de l'ensemble des PM_{10} pour les sites et pour les jours les plus impactés (Figure 6).

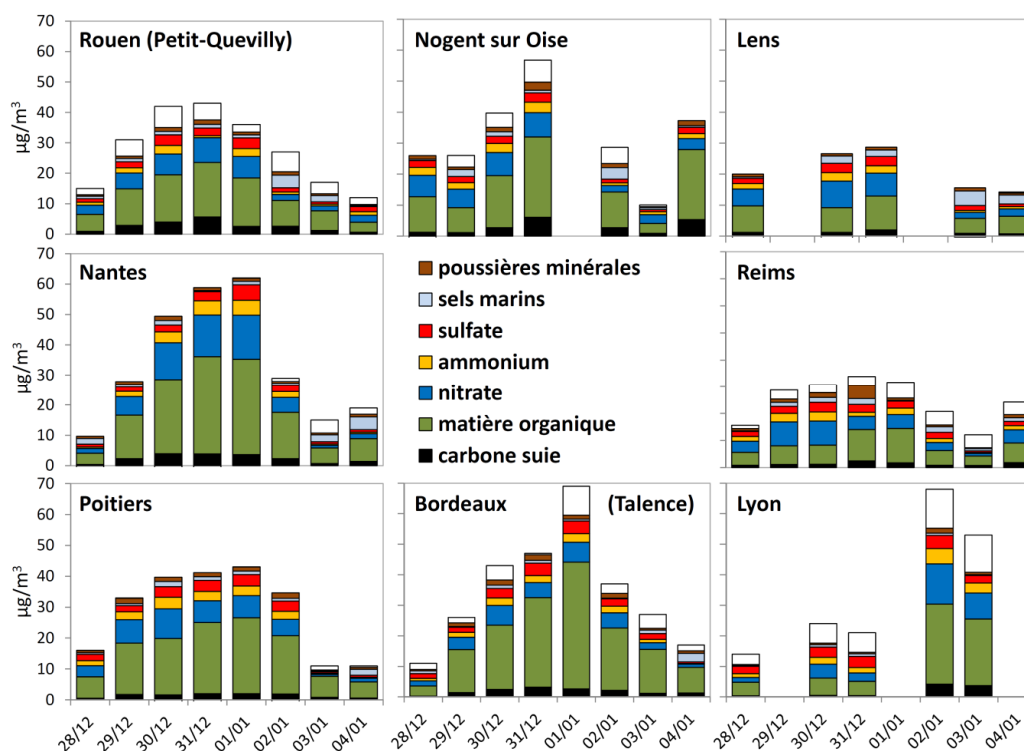


Figure 6 : Répartition des espèces chimiques majeures au sein des PM_{10} sur 8 sites urbains de fond du programme CARA entre le 28 décembre 2014 et le 4 janvier 2015. La fraction laissée en blanc correspond à la fraction indéterminée.

L'analyse du contenu en lévoglucosan sur les filtres disponibles a permis de conclure à une forte influence de la source « combustion de biomasse » sur ces niveaux de matière organique. Ces résultats sont à relier en premier lieu à l'utilisation accrue du chauffage au bois au cours des vacances et jours fériés, couplée à des conditions météorologiques défavorables à la dispersion des polluants autour du 1^{er} janvier 2015, en particulier sur la partie ouest de la France.

2.5 Episode de mars 2015

Comme en 2014, l'épisode de pollution le plus important de l'année 2015 a été observé au milieu du mois de mars, lors de la survenue de conditions météorologiques très stables, avec des températures froides la nuit et le matin qui se réchauffent dans la journée. L'analyse détaillée de ces observations en temps réel a fait l'objet d'une note

LCSQA spécifique se basant sur les observations ayant pu être réalisées en temps réel au cours de cette période sur quatre sites du dispositif national [11].

La figure 7 synthétise les observations obtenus à l'aide d'*Aerosol Chemical Speciation Monitors* (ACSM). Deux des quatre séries de mesure proviennent d'instruments mis en œuvre par Air Lorraine (sur le site de fond urbain de Metz-Borny) et Air Rhône-Alpes (sur le site de fond urbain de Lyon centre), tandis que les deux autres résultent de la collaboration entre l'INERIS et le LSCE au SIRTa, ainsi que, pour une campagne de mesure spécifique, sur la station urbaine de CREIL « Faïencerie » (ATMO Picardie - LCSQA).

- La deuxième semaine du mois de mars (du 5 au 13 mars), était caractérisée par des concentrations de particules relativement élevées à très élevées ($> 80 \mu\text{g}/\text{m}^3$, en moyenne horaire, notamment dans le quart nord-est) et par la prédominance de carbone organique. Comme suggéré par les mesures AE33, et par la faiblesse des concentrations de sulfate d'ammonium, cette période semble principalement sous influence des émissions locales de combustion (dont chauffage au bois).

- La période couvrant la troisième semaine de mars (en particulier du 17 au 21 mars), était ensuite dominée par les aérosols inorganiques secondaires, et en premier lieu par le nitrate d'ammonium. Il est néanmoins à noter que les concentrations de matière organique restent relativement stables par rapport à celles observées lors de la période précédente. Enfin, l'augmentation significative des concentrations de sulfate d'ammonium suggère une influence non-négligeable des phénomènes de transports de polluants.

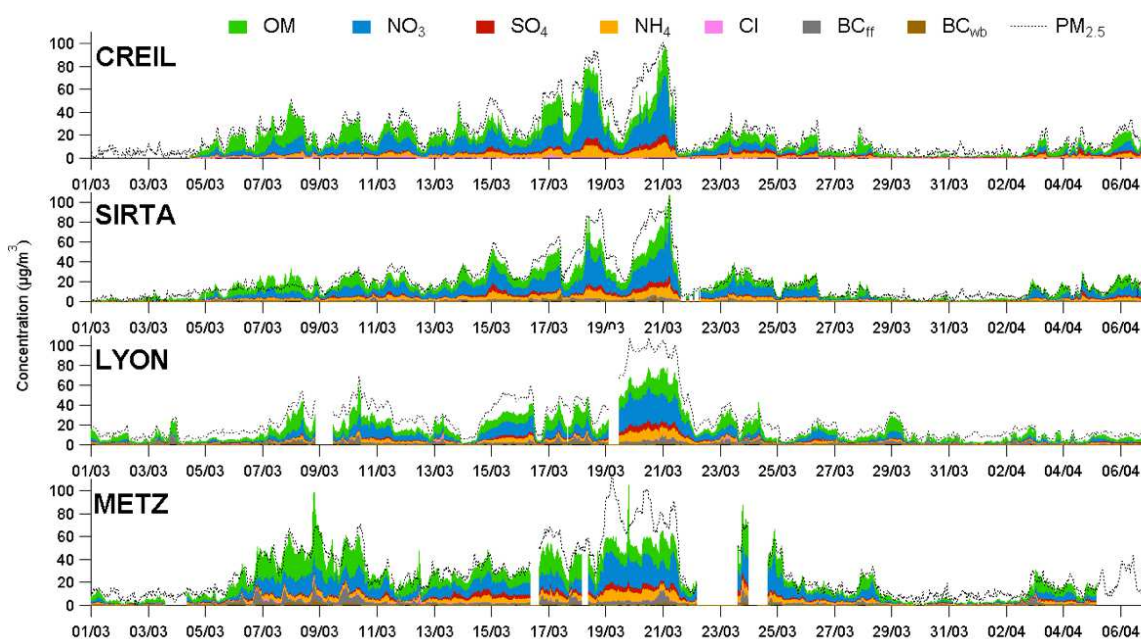


Figure 7 : Variations temporelles des principales espèces particulaires mesurées par ACSM sur 4 sites de fond (péri-)urbains au cours du mois de mars 2015.

Soulignons également la très forte similitude des séries temporelles mesurées à Creil et au SIRTa. Dans le détail, lors de la période la plus polluée (i.e., du 18 au 21 mars), ces deux sites étaient constamment sous influence du secteur de vent Nord – Nord-Est, et donc situés respectivement en amont et en aval de l'agglomération parisienne par rapport au transport des masses d'air. Les concentrations de nitrate (d'ammonium) y

étaient remarquablement identiques mais avec un décalage temporel d'une demi-heure à deux heures entre Creil et le SIRTa. Ce résultat suggère une nette prédominance des phénomènes de transport du nitrate d'ammonium sur la région parisienne (par opposition aux phénomènes de production locale). Néanmoins, il convient de modérer cette interprétation en raison des incertitudes de mesure (de l'ordre de 20 % pour le nitrate). Par ailleurs, les phénomènes de transport atmosphérique sont associés à des mécanismes de dispersion et de dilution incompatibles avec la stricte conservation des niveaux de concentration au long du parcours. Ainsi, il est probable que des mécanismes de production de nitrate d'ammonium ait compensé la dispersion/dilution de ce polluant entre Creil et le SIRTa. Notons enfin que ce dernier site ne représente pas les niveaux les plus importants de PM_{10} relevés dans l'agglomération parisienne ou sous le vent de cette dernière. Une caractérisation des propriétés physico-chimiques des particules (fines et grossières) en proximité du trafic routier permettrait notamment de mieux appréhender les différentes contributions locales et d'affiner les interprétations.

L'étude de cet épisode de pollution fait par ailleurs l'objet de la rédaction d'une publication scientifique [12], intégrant également un exercice de comparaison mesures – modèle sur la spéciation. Comme illustré par la Figure 8 pour la station Lyon Centre, le modèle Prev'Air conduit à une forte sous-estimation des concentrations de matière organique tout au long de la campagne ainsi qu'à une sous-estimation significative des espèces inorganiques secondaires lors du pic autour du 20 mars. Ces observations rejoignent celles réalisées précédemment (e.g., [3]) et s'expliquent en priorité par la faiblesse des cadastres d'émissions des particules organiques semi-volatiles ainsi que par la complexité des processus reliant les paramètres météorologiques et les mécanismes de formation des aérosols secondaires.

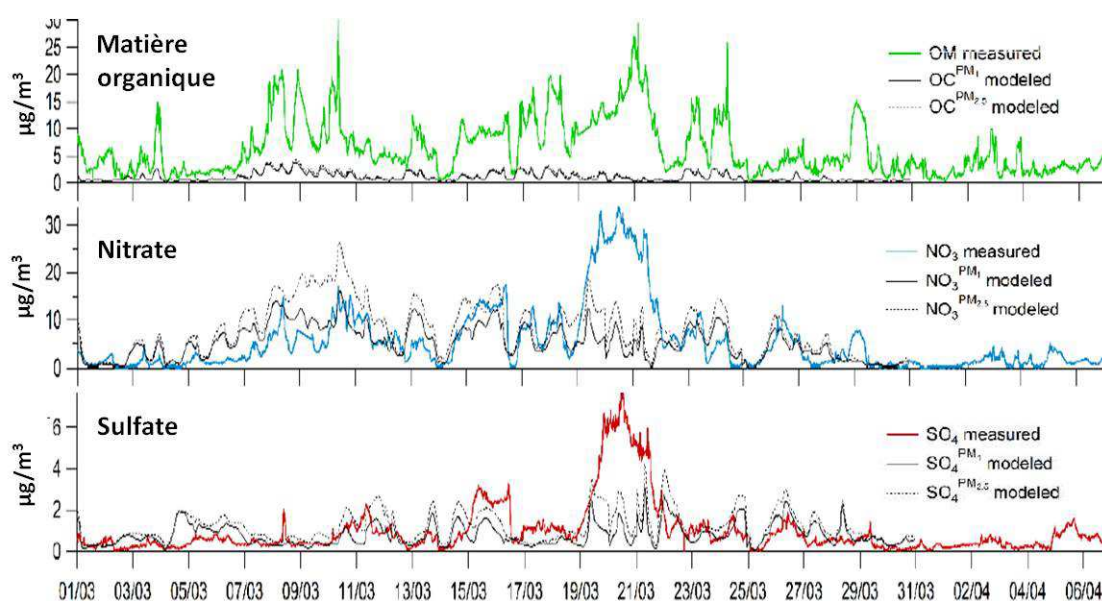


Figure 8 : Comparaison mesures-modèle (Prev'Air) pour le site de fond urbain de Lyon centre lors de l'épisode de pollution particulaire de mars 2015

3. ACCOMPAGNEMENT A LA MISE EN ŒUVRE DES ANALYSEURS AUTOMATIQUES DE LA COMPOSITION CHIMIQUE DES PM

Comme mentionné en introduction, une réponse adaptée au besoin grandissant de compréhension en temps réel des épisodes de pollution particulaire ne peut être basée uniquement sur l'analyse chimique de prélèvements sur filtres. Ainsi, la nécessité d'optimiser l'adéquation entre les objectifs et les stratégies du programme CARA implique le recours à des analyseurs automatiques de la composition chimique des PM. Dans ce contexte, le LCSQA/INERIS s'est attaché ces dernières années à l'identification et à l'évaluation d'une instrumentation adaptée au cadre opérationnel. Deux analyseurs, en particulier, ont été retenus : l'Aethalomètre multi-longueur d'ondes de type AE33 et l'ACSM (*Aerosol Chemical Speciation Monitor*). En 2014-2015, une large part des travaux du programme CARA a été dédiée à l'accompagnement des AASQA pour le déploiement de ces analyseurs sur quelques sites d'intérêt national. Ce suivi intègre notamment un soutien technique pour la mise en œuvre et la calibration des instruments (via l'animation de « groupes utilisateurs »), la réalisation d'exercices d'intercomparaisons, ainsi qu'une collaboration active entre AASQA et LCSQA pour le traitement et la valorisation des données, tels que synthétisés ci-dessous pour chacun des deux analyseurs automatiques concernés.

3.1 Accompagnement à la mise en œuvre de l'AE33

L'AE33 permet en premier lieu le suivi des concentrations de carbone suie (ou *Black Carbon*, BC), émis par les sources de combustion et considéré comme un bon traceur de l'impact sanitaire potentiel des PM. Outre sa robustesse, sa simplicité d'utilisation et son faible coût de fonctionnement, cet instrument offre également la possibilité de différencier les sources de combustion selon leurs origines fossile (BC_{ff}, provenant de la combustion de dérivé du pétrole) ou biomasse (BC_{wb}, provenant essentiellement du chauffage au bois, mais potentiellement aussi de la combustion de déchet vert et/ou de charbon) [1-3].

A noter que le terme « black carbon » (BC) est utilisé ici pour simplification, mais qu'il serait plus juste de parler d'« equivalent black carbon (EBC) » afin de tenir compte du fait que la mesure optique réalisée à l'aide de l'AE33 ne peut être convertie en concentration massique qu'à l'aide d'un coefficient d'absorption massique (MAE) dont le choix reste actuellement sujet de discussion au sein de la communauté scientifique et des instances normatives (cf. [13] et Annexe 2).

3.1.1 Création et animation d'un groupe utilisateurs AE33

Une quinzaine d'AASQA ont pu s'équiper de cet instrument entre fin 2013 et fin 2015. Dans ce contexte, et afin d'harmoniser les pratiques, un groupe d'utilisateurs a été créé dès le début de l'année 2014, et a été actif depuis, principalement sous forme d'échanges d'informations par courriels et via la tenue d'une réunion par an (cf. comptes-rendus en Annexe 2). En particulier, il est à noter la préparation et la diffusion en 2014 d'un fichier type de traitement de données (sous format Excel) permettant d'explicitier la

méthodologie de détermination des composantes BC_{ff} et BC_{wb} mise en œuvre par le logiciel interne de l'AE33. Les protocoles de récupération des données via les systèmes d'acquisition en station, d'intégration sur les postes centraux et d'envoi sur la base de données nationale ont pu également être développés en 2015 en collaboration avec les AASQA. Un schéma de validation (technique et environnementale) des données est aujourd'hui en cours de test par les AASQA. L'ensemble des travaux de ce groupe utilisateurs devraient permettre l'élaboration en 2016 d'une première version du guide méthodologique pour l'utilisation de l'AE33 au sein du dispositif national.

3.1.2 Réalisation d'un exercice d'intercomparaison

En parallèle, la réalisation d'un exercice de comparaison inter-laboratoires (CIL) au cours du deuxième semestre 2014 (17/09 au 06/10) a également permis d'organiser deux journées de formation (22 et 23/09) à l'attention de toutes les AASQA possédant un ou plusieurs AE33 et de confirmer la bonne reproductibilité des mesures de carbone suie réalisée au sein du dispositif national. Cette CIL a été réalisée sur la plateforme expérimentale de l'ACMCC (*Aerosol Chemical Monitor Calibration Centre*) co-gérée par l'INERIS et le LSCE depuis fin 2013. Elle regroupait un total de 19 instruments.

L'ensemble des instruments ont été réceptionnés entre le 15 et le 18 septembre 2014. Ils ont été installés dans la station selon les configurations suivantes :

- 4 groupes de 4 instruments, en aval d'une tête de coupe d'environ $2\ \mu m$ (Tête PM2.5 à un débit de 16,7 l/min mais utilisée ici à $4 \times 5 = 20\ l/min$)
- 1 instrument en aval d'une tête de coupe PM2.5 (à 5 l/min)
- 2 instruments (également à 5 l/min) en aval d'une même ligne de prélèvement TSP.



CIL et journées d'échanges techniques sur l'AE33 en sept.-oct. 2014 à l'ACMCC

Les instruments ont été configurés selon les paramètres internes de fonctionnement classiquement utilisés par les réseaux de mesure français. Aucune maintenance

particulière n'a été réalisée au départ de la CIL, et l'ensemble des instruments a pu être mis en fonctionnement dans l'air ambiant à partir du 19 septembre. Au cours de la session de formation et d'échanges techniques organisée par le LCSQA et le distributeur français (ECOMESURE), les instruments ont été vérifiés individuellement par leurs utilisateurs, incluant notamment des tests de fuite et de blancs d'instruments, ainsi que l'étalonnage des débits de prélèvements et des mesures d'atténuation. A partir du 25 septembre, les instruments ont ensuite été à nouveau laissé en fonctionnement afin de réaliser des mesures en air ambiant jusqu'au 6 octobre. Comme illustré par la Figure 9a, les conditions météorologiques étaient relativement clémentes au cours de cette principale période d'inter-comparaison, avec des températures, en moyennes quart-horaires (QH), oscillant entre 5 et 30° C. Sur cette même période, une large gamme de concentrations de BC s'étalant de 0 à 8 $\mu\text{g}/\text{m}^3$ (également en moyennes quart-horaires) a pu être étudiée, avec une répartition en fréquence globalement bimodale et des niveaux principalement situés autour de 0,8 et de 2,7 $\mu\text{g}/\text{m}^3$ (Figure 9b).

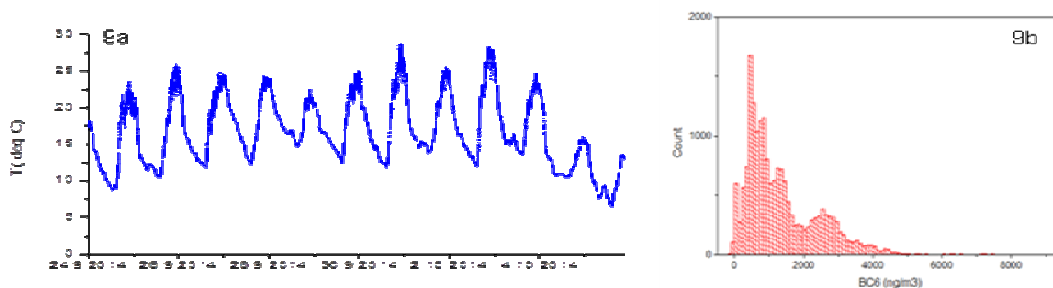


Figure 9 : (a) suivi des températures et (b) distribution des concentrations de BC lors de la CIL AE33 de sept.-oct. 2014

La Figure 10a présente les résultats de mesures de BC en air ambiant obtenus par chacun des instruments tout au long de la CIL (du 19 septembre au 6 octobre 2014). On note un très bon accord entre l'ensemble des instruments, se traduisant par des valeurs moyennes et médianes très comparables d'un AE33 à l'autre (Figure 10b), avec néanmoins une tendance à la sous-estimation par rapport aux autres instruments pour les 3 appareils les plus anciens (et en particulier pour le numéro 53, qui a été renvoyé chez le constructeur pour maintenance curative à l'issue de la CIL). L'exploitation statistique des résultats obtenus lors de cette CIL permet de conclure à une incertitude relative élargie de 8 % pour la mesure de BC à l'aide de l'AE33.

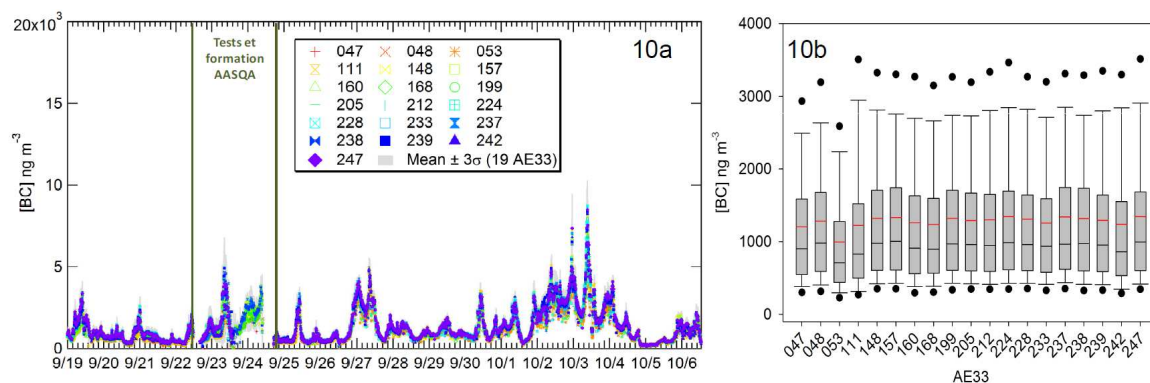


Figure 10 : (a) variations temporelles de BC obtenues au cours de la CIL de sept.-oct. 2014 par l'ensemble des instruments, identifiés par leur numéro de série. (b) Comparaison des valeurs moyennes (-), médianes (-), maximales/minimales (•) et des écart-types de BC obtenus pour chacun de ces instruments.

3.1.3 Réalisation de comparaisons deux-à-deux

La CIL présentée ci-dessus a été organisée à l'automne afin de permettre aux AASQA de disposer de leur(s) instrument(s) pendant les périodes hivernales et printanières les plus favorables au développement d'épisodes de pollution. Il n'a donc pas été possible d'y tester en conditions réelles la bonne reproductibilité des estimations de BC_{ff} et BC_{wb} issues des mesures AE33 pour des concentrations importantes de BC_{wb} . Afin de pallier à ce problème, le LCSQA a organisé des exercices de comparaison deux-à-deux en faisant circuler un AE33 témoin pour des campagnes de 2 à 3 semaines sur six stations AASQA équipée d'un instrument du même type au cours de l'hiver 2014-2015. Ces six stations correspondent aux sites de fond urbain de Metz Borny (Air Lorraine), Grenoble Les Frênes (Air Rhône-Alpes), Bordeaux Talence (AirAq), Rouen Petit-Quevilly (Air Normand), Marseille Cinq Avenues (Air PACA) et Poitiers Augouard (Atmo Poitou-Charentes).

Les données obtenues pour ces exercices de comparaison deux-à-deux ont été validées selon la procédure décrite en Annexe 2. Selon les sites et les instruments, le taux de fonctionnement (incluant l'indisponibilité des mesures et les données invalides) est compris entre 88 % et 97 % en moyennes quart-horaires.

Comme illustré par la Figure 11, des résultats très satisfaisants ont été obtenus pour la fraction (majoritaire) de BC liée à la combustion de dérivés du pétrole (BC_{ff}), avec une déviation moyenne par rapport à l'instrument témoin inférieure à 10 % sur l'ensemble des six sites étudiés.

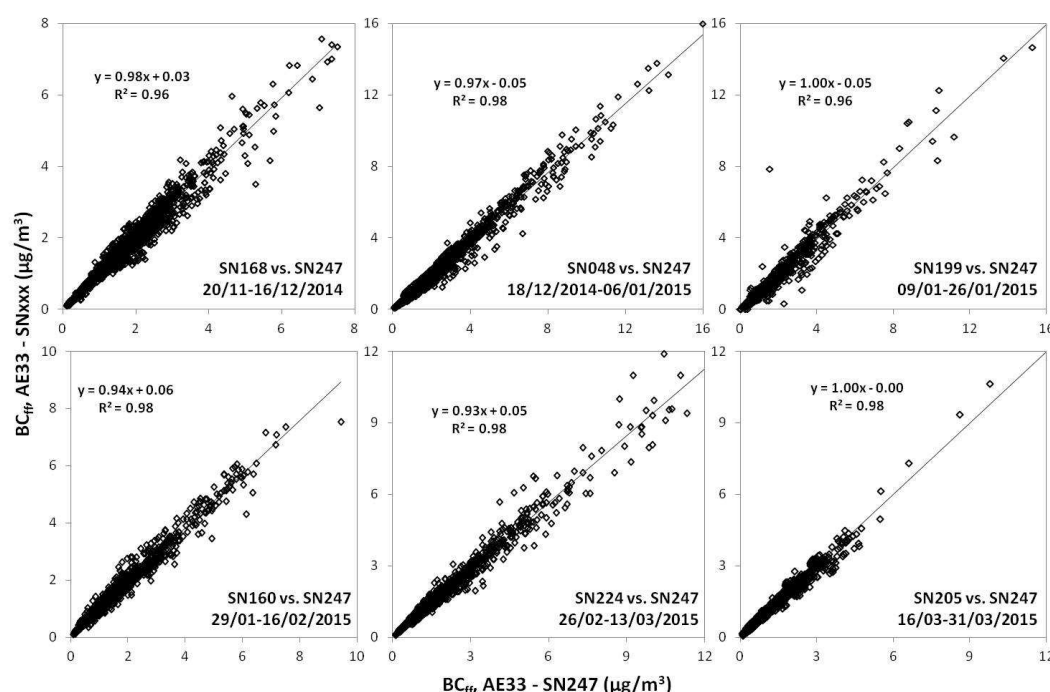


Figure 11 : corrélations des mesures de BC_{ff} obtenues lors des comparaisons deux-à-deux entre un instrument témoin et six instruments en station (identifiés par leur numéro de série) lors de l'hiver 2014-2015.

Les résultats obtenus pour les comparaisons de BC_{wb} présentent une dispersion nettement plus importante (Figure 12), mais un accord globalement satisfaisant compte-tenu du caractère minoritaire de cette fraction au sein de l'ensemble des particules

carbonées et de l'importance des incertitudes des différentes hypothèses de calcul liées à l'estimation de cette fraction.

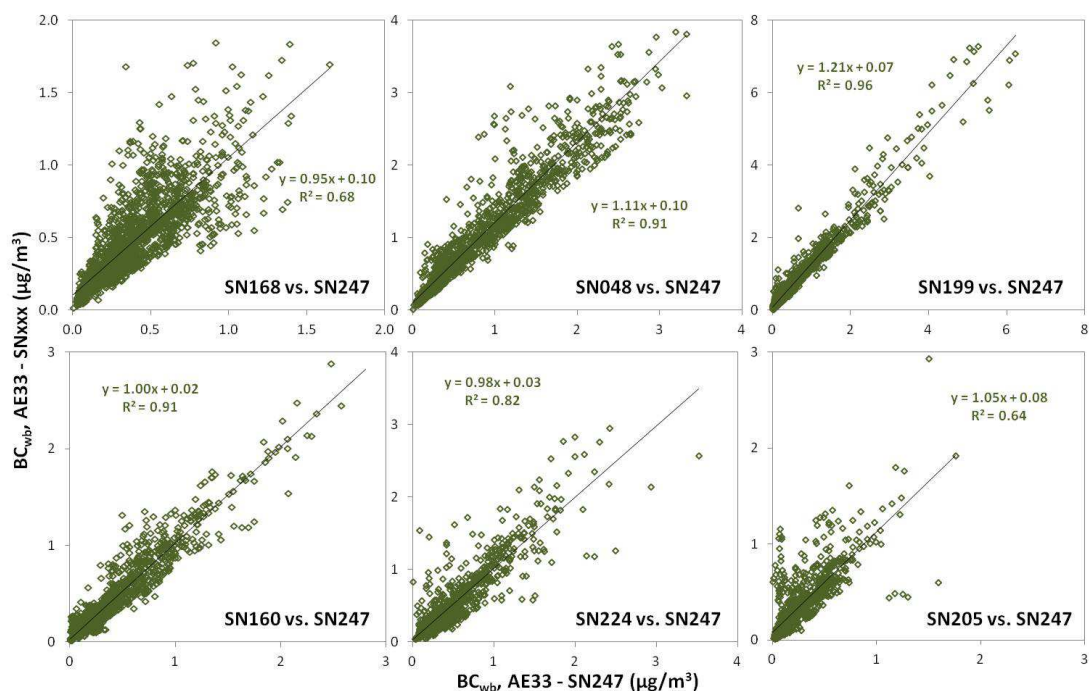


Figure 12 : corrélations des mesures de BC_{wb} obtenues lors des comparaisons deux-à-deux entre un instrument témoin et six instruments en station (identifiés par leur numéro de série) lors de l'hiver 2014-2015.

Au final, comme illustré par la Figure 14, ces comparaisons deux-à-deux indiquent des écarts maximaux de reproductibilité de l'ordre de $\pm 40\%$ sur les moyennes journalières de BC_{wb} , pouvant leur conférer un statut de mesure indicative selon les critères définis pour la surveillance de la qualité de l'air (cf. Directive 2008/50/CE).

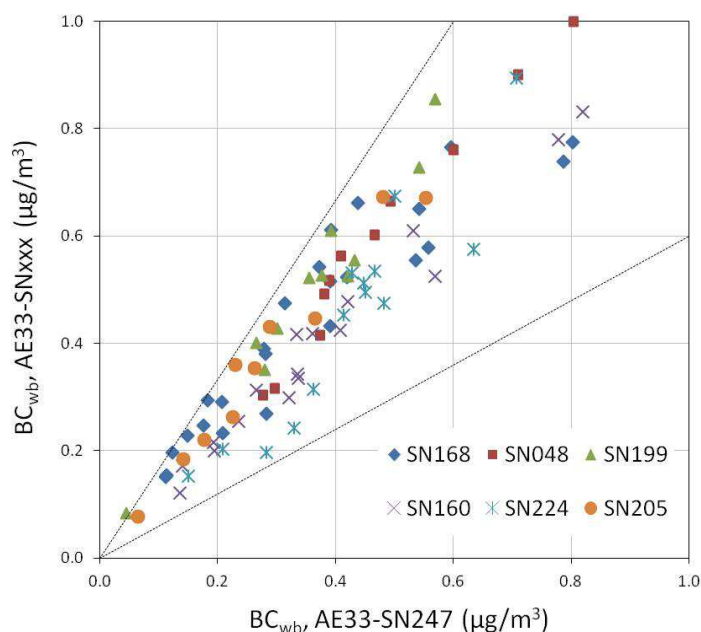


Figure 13 : comparaisons deux-à-deux des moyennes journalières de BC_{wb} lors des campagnes de l'hiver 2014-2015.

3.2 Accompagnement à la mise en œuvre de l'ACSM

L'ACSM permet de mesurer les concentrations des principales espèces chimiques de la fraction fine des particules (matière organique, sulfate, nitrate, chlore, et ammonium, regroupés sous le nom de NR-PM₁ pour PM₁ non réfractaire), ainsi que de réaliser des études de sources [14-15]. Cet instrument a été développé spécifiquement pour des activités d'observation en routine. Sa robustesse et son autonomie ont pu être vérifiées dans le cadre d'une thèse de doctorat INERIS/LSCE (2011-2014) dédiée aux mesures en temps-réel au SIRTa. En 2014, deux AASQA (Air Rhône-Alpes et Air Lorraine) ont pu s'équiper de cet instrument, suivies en 2015 par quatre autres AASQA (AirAq, Atmo Poitou-Charentes, Atmo Picardie et Airparif). A l'origine de ce déploiement instrumental, le LCSQA accompagne les AASQA lors de formations techniques ainsi que pour les tests à réception, l'installation en station, la réalisation des étalonnages et la mise en œuvre de procédures de validation et de traitement de données. En parallèle, le LCSQA a également participé en 2014 à l'interprétation des résultats obtenus lors de la première comparaison inter-laboratoire européenne d'ACSM réalisée en fin d'année 2013 dans le cadre du programme ACTRIS-1. Enfin, les travaux sur l'ACSM ont inclus en 2015 la caractérisation des paramètres clés du dispositif d'étalonnage préconisé par le constructeur.

3.2.1 Participation à l'exploitation des résultats de la CIL ACSM ACTRIS-1

Cet exercice de comparaison inter-laboratoires (CIL) pour la mesure par ACSM a été organisé fin 2013 par le LSCE et l'INERIS dans le cadre du programme Européen ACTRIS-1 (www.actris.eu). Via l'INERIS, le LCSQA a activement collaboré avec le LSCE et le Paul Scherrer Institute (PSI) à l'exploitation des données issues de cette CIL, afin notamment de pouvoir déterminer les incertitudes de mesure de l'ACSM et la robustesse des outils statistiques de traitements de données généralement utilisés pour l'étude de sources de la matière organique. Ces travaux s'inscrivent dans le cadre de la publication de deux articles scientifiques dans la revue *Atmospheric Measurement Techniques* [16-17]. A noter que cette CIL a conduit au développement au LSCE du centre de calibration pour les analyseurs de la composition chimique des aérosols (ACMCC, sous la co-responsabilité du CNRS et de l'INERIS). Il a été utilisé pour la réalisation de la CIL AE33 présentée ci-dessus (3.1.2). Ce centre de calibration est également responsable de l'organisation de deux nouvelles CIL ACSM en 2016 et 2017 dans le cadre du programme ACTRIS-2.

Cette CIL, première du genre à l'échelle internationale, regroupait notamment treize ACSM de type quadrupôle, identiques à ceux utilisés en AASQA. Elle incluait également l'un des premiers ACSM de type ToF-ACSM. Cette nouvelle version dispose d'un détecteur de type « temps de vol (ToF) » plus sensible que les quadrupôles. A noter qu'un instrument de ce type est actuellement testé sur le long terme par le LCSQA (en collaboration avec le LSCE au SIRTa) afin de statuer sur sa possible utilisation au sein du dispositif national [18].

Les mesures en air ambiant ont été réalisées du 15 novembre au 3 décembre 2013. Au préalable, les instruments ont été étalonnés de manière identique et configurés selon un mode de fonctionnement commun (et usuel) en collaboration avec le constructeur. Il s'agissait ainsi de s'assurer de la bonne reproductibilité des mesures en s'affranchissant

des écarts pouvant être liés aux différentes pratiques de chaque utilisateur (en fonction notamment de leur degré de compétence technique).

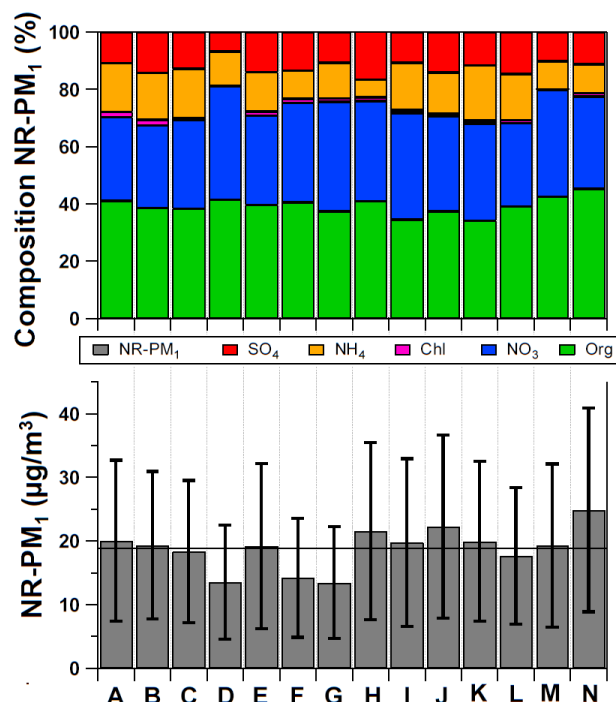


Figure 14 : concentrations moyennes en NR-PM₁ et contribution des différentes espèces chimiques mesurées par chaque ACSM lors de la CIL ACTRIS-1 de fin 2013.

La Figure 14 synthétise les résultats obtenus, tant du point de vue des concentrations absolues de NR-PM₁ que de la composition chimique de cette fraction de l'aérosol. La fiabilité de ces mesures a également pu être vérifiée par comparaison avec d'autres instruments, tels par exemples qu'un TEOM-FDMS (Figure 15) et un analyseur automatique de carbone (*Sunset Field Analyzer*) et des mesures automatiques .

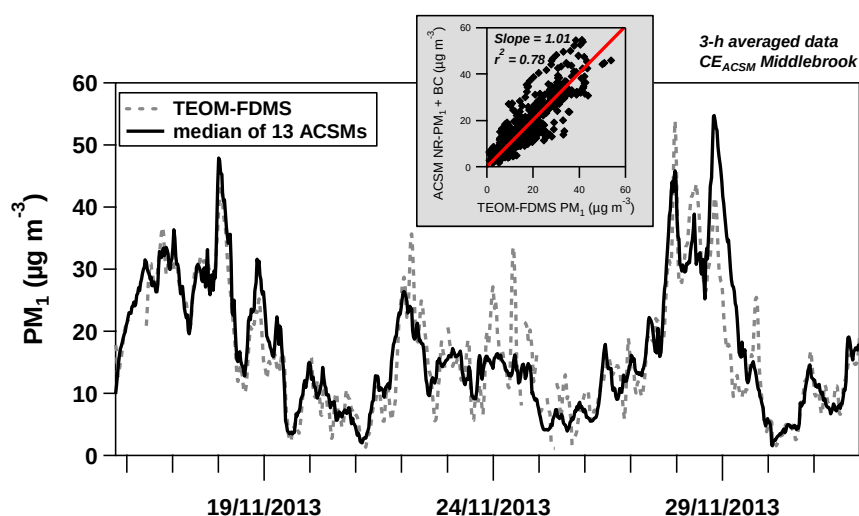


Figure 15 : comparaison entre les mesures PM₁ par TEOM-FDMS et la valeur médiane des 13 ACSM quadrupôle mis en œuvre lors de la CIL ACTRIS-1. Ces concentrations sont ajoutées à celles de BC dans l'encart supérieur afin d'affiner la comparaison.

Le traitement statistique de ces mesures a permis de déterminer une incertitude relative élargie pour la mesure de chacune des principales espèces chimiques (à l'aide d'une approche de type « Z-scores »). Ces incertitudes sont synthétisées dans le tableau ci-dessous :

	NR-PM1	Matière orga.	Nitrate	Sulfate	Ammonium
Ur(%)	9%	19%	15%	28%	36%

On constate de très bonnes performances de mesure pour les espèces majoritaires que sont la matière organique et le nitrate (i.e., incertitude relative élargie inférieure à 20 %, à comparer à la valeur de 25 % préconisée par la réglementation européenne pour la mesure de l'ensemble des fractions PM_{2.5} et PM₁₀). Les résultats moins satisfaisants obtenus pour le sulfate et l'ammonium sont à relier aux plus faibles teneurs enregistrées pour ces espèces ainsi qu'aux plus grandes incertitudes liées à leur calibration (tenant compte des résultats obtenus pour le nitrate et donc sujette à des propagations d'erreurs).

A noter également que la comparaison des résultats obtenus pour les principaux fragments constitutifs de la matière organique indique des écarts significatifs d'un instrument à l'autre. Ce résultat est illustré ici par la Figure 16, présentant, pour chaque instrument, les déviations par rapport à la médiane des mesures du ratio $f_i = m/z_i / \Sigma m/z$, où m/z_i correspond au signal mesuré pour le composé de rapport masse-sur-charge i et $\Sigma m/z$ représente la concentration totale en matière organique.

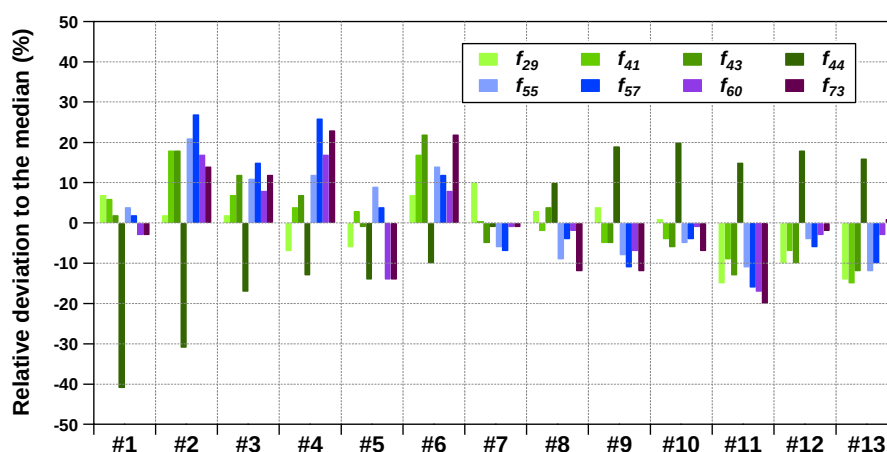


Figure 16 : déviations de chaque ACSM de type quadrupôle par rapport à la valeur médiane pour certains fragments relatifs à la matière organique lors de la CIL ACTRIS-1.

Ces écarts sont principalement dus aux différences observées pour le fragment relatif à m/z 44, indicateur de la mesure de particules oxydées. Plusieurs explications à ce phénomène sont actuellement en cours d'étude au sein de la communauté scientifique (en particulier au travers de travaux approfondis lors des CIL ACSM du programme ACTRIS-2). Néanmoins, il peut d'ores et déjà être souligné que ces écarts ne semblent pas engendrer de différences significatives au niveau des résultats issus du traitement statistique des données pour l'étude des sources de la matière organique [17].

3.2.2 Caractérisation de la procédure d'étalonnage de l'ACSM

Le dispositif expérimental d'étalonnage des ACSM consiste à injecter dans l'instrument des aérosols, monodispersés en taille, dont la nature chimique et les concentrations sont connues. En 2015, le LCSQA s'est attaché à caractériser les éléments constitutifs de ce dispositif à savoir : un analyseur de mobilité électrique (DMA) et un compteur de particules (CNC). Plus précisément, l'étude a porté sur la capacité du dispositif à générer des particules monodispersées de diamètre connu et à mesurer les concentrations des particules en nombre (nb/cm³) avec justesse.

L'étude expérimentale de ces deux paramètres clés a permis de se prononcer sur la validité de la méthode d'étalonnage proposé par le constructeur en évaluant notamment les erreurs de mesure maximales associées au dispositif, tel que détaillé dans un rapport disponible sur le site web du LCSQA [19]. Les résultats obtenus indiquent notamment que l'erreur de mesure de la concentration massique liée à la génération de particules monodispersées est inférieure à 16 % et que celle induite par la mesure de la concentration en nombre est proche de 1 %. La réalisation de cette étude a également permis d'identifier des points d'amélioration, ce qui permettra en 2016, de travailler à l'abaissement de ces incertitudes.

3.2.3 Tests à réception, formations des AASQA et étalonnages

Air Rhône-Alpes et Air Lorraine se sont dotés d'un ACSM au deuxième semestre 2014. Les instruments ont été réceptionnés et étalonnés par le LCSQA/INERIS sur le site de l'ACMCC, où une formation a été délivrée aux utilisateurs en septembre 2014. Les instruments ont ensuite été installés dans les stations de mesure de fond urbain de Lyon Centre et de Metz Borny avec l'aide du LCSQA. Un an plus tard, quatre autres AASQA se sont équipées d'un ACSM : AirAQ, Atmo Poitou-Charentes, Atmo Picardie et Airparif. Ces instruments ont également été livrés sur le site de l'ACMCC et une formation de deux jours a été réalisée fin octobre 2015 pour les personnels AASQA par la société ADDAIR (devenue le distributeur français d'Aerodyne depuis début 2015), en collaboration avec le LCSQA/INERIS. A l'issue de la formation, les ACSM ont été vérifiés et étalonnés par le LCSQA. Ils ont ensuite été mis en fonctionnement dans l'air ambiant, du 28 octobre au 10 novembre, en parallèle les uns des autres sur une même ligne de prélèvement en air ambiant. Les résultats relatifs à l'ensemble de ces tests ont fait l'objet de notes LCSQA à l'intention de chaque AASQA concernée.

Ces travaux ont également été accompagnés d'étalonnages après installation sur les sites des AASQA ainsi que d'analyses chimiques de prélèvements sur filtre de la fraction PM₁ permettant une vérification externe de la bonne configuration des instruments, tel que décrit dans un rapport LCSQA spécifique aux travaux 2015 d'appui direct aux AASQA pour la mise en œuvre des ACSM sur leur site de mesure [5].

Compte-tenu de l'importance du travail nécessaire à la réalisation de ce contrôle qualité des mesures, en 2016, une action spécifique « métrologie et assurance qualité » pour le suivi et à l'optimisation de l'utilisation des analyseurs automatiques de la composition

chimique des PM a été créé au sein du programme d'étude du LCSQA, en cohérence avec l'axe A.6 et B.3 du Plan National de Surveillance de la Qualité de l'Air.

3.2.4 Création et animation d'un groupe utilisateurs ACSM

Comme pour l'AE33, un « groupe utilisateurs ACSM », relevant du GT « Composition chimique et études de sources des PM », est animé par le LCSQA. Les travaux de ce GU ont été initiés lors d'une réunion de décembre 2015, dont le compte-rendu est reproduit en Annexe 3 du présent rapport. Les principales actions du GU concernent :

- ✓ les retours d'expérience sur la formation et les installations en station ainsi que sur le fonctionnement des instruments ;
- ✓ le bilan des tests effectués régulièrement par le LCSQA/INERIS ;
- ✓ la mise en œuvre de l'instrument en routine ;
- ✓ la récupération des données primaires sur les postes centraux puis sur la base de données nationale ;
- ✓ l'aide à la gestion des pannes et/ou à l'élaboration de contrats de maintenance ;
- ✓ la définition de schémas de validation des données ;
- ✓ Accompagnement à l'exploitation et le traitement statistique de ces données, en particulier lors des épisodes de pollution.

4. ETUDES DE SOURCES

En 2014-2015, une attention particulière a été portée à l'estimation de la contribution de la combustion de biomasse sur les niveaux de PM_{10} hivernaux. En effet, les travaux précédents [e.g., 3, 6, 7, 10] indiquent qu'une meilleure maîtrise des émissions du chauffage résidentiel au bois constitue un levier d'action efficace pour une réduction des niveaux de fond (et de certains épisodes de dépassements, en particulier en début d'hiver). Le développement de la mesure par AE33 permet aujourd'hui d'envisager un suivi pérenne, et à faible coût, des plans d'actions ciblant cette source [1-2].

En parallèle, les travaux sur l'utilisation d'outil statistique de type « Positive Matrix Factorization » (PMF), devant permettre l'identification et la quantification des principales sources primaires de PM ont été poursuivis en 2014-2015. Les études ont principalement porté sur le nord de la France, région fréquemment soumise à des dépassements de valeurs limites, sur la station de Grenoble Les Frênes (en lien avec les travaux sur les HAPs et leurs dérivés), ainsi qu'à l'étude des particules émises par le transport routier sur un site de proximité automobile parisien.

Enfin, la participation aux projets de recherche ADEME INACS et INACS-2 a permis de valoriser les prélèvements sur filtres du programme CARA pour l'étude des sources des précurseurs gazeux du nitrate d'ammonium.

4.1 Impact de la combustion de biomasse lors de l'hiver 2014-2015

Cette étude s'inscrit dans la continuité des travaux menés depuis une dizaine d'années par le LCSQA (en étroite collaboration avec des laboratoires de recherche, dont le LGGE) afin de mieux évaluer l'impact du chauffage résidentiel au bois sur les niveaux de PM_{10} enregistrés sur différentes stations du dispositif national. Il n'existe pas de méthodologie permettant de mesurer directement la contribution de cette source. Néanmoins, les particules émises par combustion de biomasse peuvent être identifiées via l'analyse chimique de marqueurs organiques spécifiques, en particulier le levoglucosan, et il est ensuite possible d'estimer la quantité de carbone organique puis de PM provenant de cette source en appliquant différents facteurs multiplicatifs aux concentrations obtenues pour ce marqueur. Par ailleurs, comme détaillé au chapitre 3, ces dernières années ont vu le développement au sein du dispositif national de la mesure par AE33, permettant notamment la mesure en temps réel d'un autre marqueur des particules émises par la combustion de biomasse (BC_{wb}). L'objectif ici était de combiner des mesures sur filtres et des mesures par AE33 au cours de l'hiver 2014-2015, afin :

- 1) de dresser, à l'aide d'une méthodologie harmonisée, une phénoménologie de l'impact du chauffage au bois sur les niveaux de PM d'un large panel d'agglomérations françaises ;
- 2) d'apporter les éléments nécessaires aux AASQA pour les guider dans la détermination du facteur de conversion entre BC_{wb} et PM_{wb} spécifique pour leur(s) site(s) équipé(s) d'un AE33.

Un rapport LCSQA rend compte des résultats obtenus à l'aide des mesures sur filtres, constituant à ce jour la plus importante étude française sur cette thématique, en termes de nombre de sites étudiés simultanément [20]. Le présent rapport synthétise également les résultats issus de la comparaison avec les mesures AE33.

Les prélèvements sur filtres ont été réalisés lors d'une période hivernale élargie s'étendant de mi-novembre 2014 à mi-avril 2015 sur les dix stations de fond urbain du programme CARA équipés d'un AE33 à la fin de l'année 2014 (Figure 17).

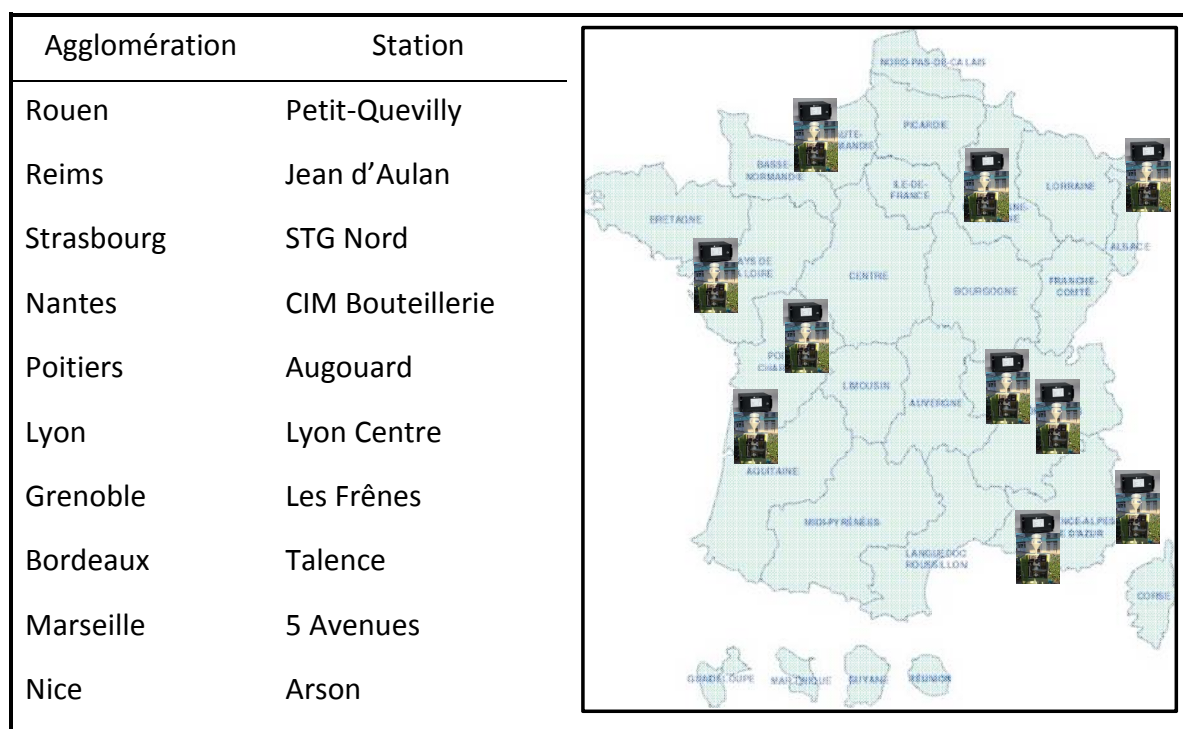


Figure 17 : liste et localisation des sites de fond urbain disponibles pour l'étude de l'impact de la combustion de biomasse sur les niveaux de PM lors de l'hiver 2014- 2015.

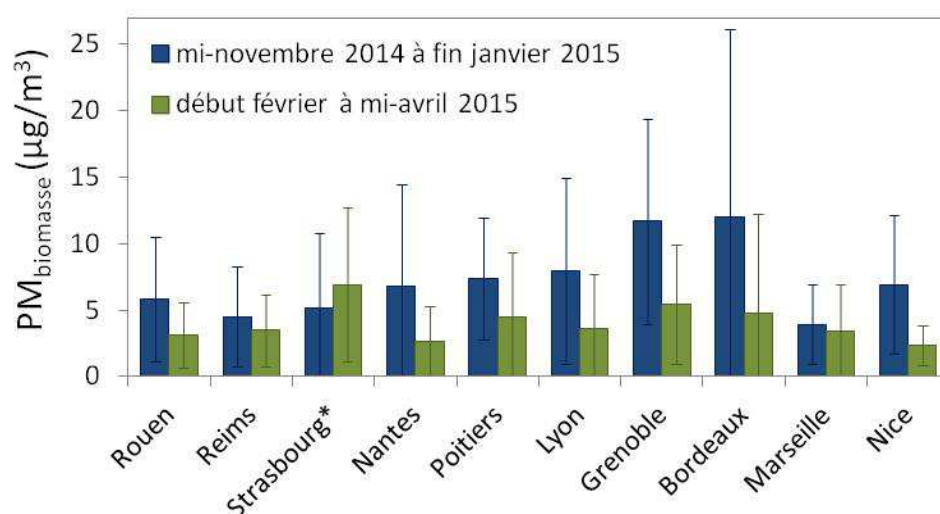


Figure 18 : Moyennes et écart-types des concentrations de $PM_{biomasse}$ obtenues sur chaque site pour le début et la fin de la période d'étude. * Pour Strasbourg, ces deux plages de temps correspondent respectivement à fin décembre 2014-fin janvier 2015 et début février-fin mars 2015.

Les prélèvements ont été réalisés dans la fraction PM_{10} par les AASQA et les analyses chimiques ont été confiées au LGGE. Les données ont été traitées en appliquant une méthodologie choisie de façon à éviter les risques de surestimation des concentrations de PM liées à la combustion de biomasse [20].

Comme illustré par la Figure 18, les concentrations de $PM_{biomasse}$ les plus élevées ont été estimées pour les agglomérations de Grenoble et Bordeaux, déjà connues pour l'importance de leurs émissions liées au chauffage résidentiel aux bois (e.g., [3]). Les contributions journalières moyennes aux PM_{10} sont globalement comprises entre 18 % et 36 %, les plus faibles niveaux étant obtenus pour Marseille et les plus élevés pour Grenoble. Parmi les autres agglomérations étudiées, et outre Bordeaux, Poitiers présente également des contributions journalières très élevées (environ 30 %). Pour les autres sites (Rouen, Reims, Strasbourg, Nantes, Lyon, et Nice), cette contribution est estimée à environ 20 %. Ces résultats sont en bon accord avec ceux obtenus précédemment, pour certains de ces sites ou pour d'autres agglomérations françaises, confirmant l'importance de l'influence du chauffage résidentiel au bois sur la qualité de l'air de l'ensemble du territoire métropolitain en hiver.

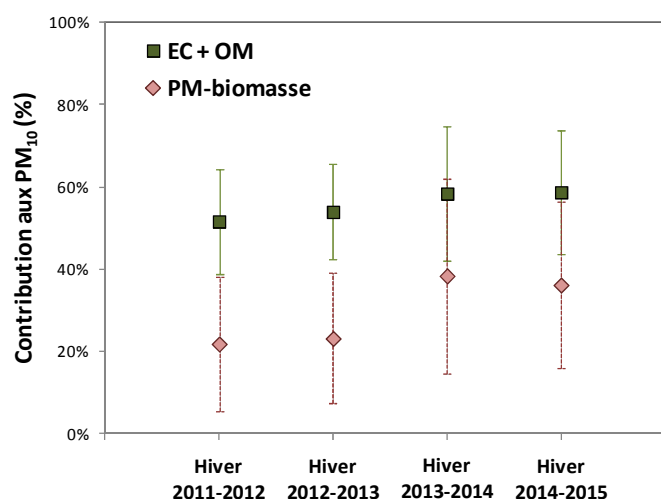


Figure 19 : Contribution journalière moyenne ($\pm$ écart-type) de la fraction carbonée (EC + OM) et de $PM_{biomasse}$ aux PM_{10} à Grenoble lors des hivers 2011-2012, 2012-2013, 2013-2014, et 2014-2015

Par ailleurs, une série temporelle relative au levoglucosan est disponible en continu sur le site des Frênes à Grenoble depuis mi-2011. Il est donc possible d'y comparer les résultats de l'hiver 2014-2015 à ceux des 3 années précédentes, en appliquant la même méthodologie. Comme illustré par la Figure 19, la contribution journalière moyenne obtenue en 2014-2015 est très comparable à celle de l'hiver précédent (38 %) et significativement supérieure à celles estimées pour les hivers 2012-2013 (environ 22 %). Ces derniers résultats s'accompagnent d'une augmentation de la contribution hivernale de la fraction carbonée (EC + OM) aux PM_{10} (de l'ordre de 50 % en 2011-2012 et 2012-2013, contre environ 60 % en 2013-2014 et 2014-2015), semblant confirmer une plus forte influence des émissions dues au chauffage résidentiel au bois sur la qualité de l'air au cours des deux derniers hivers.

Compte-tenu de ces résultats, il semble utile de renforcer les travaux visant à assurer un suivi sur le long terme des concentrations de particules émises par le chauffage résidentiel au bois. Ces travaux permettront en outre d'apporter des éléments utiles pour

l'optimisation et l'évaluation des plans et programmes visant l'amélioration de la qualité de l'air en France. Dans ce contexte, les mesures automatiques par AE33 pourront s'avérer particulièrement utiles, pour un faible coût de fonctionnement. Pour ce faire, il convient d'affiner le choix du facteur multiplicatif devant être appliqué localement pour estimer la part de PM_{10} liée à la combustion de biomasse à partir des concentrations de BC_{wb} issues des mesures AE33. Les résultats issus des mesures sur filtres peuvent permettre une bonne estimation de ce facteur multiplicatif. Pour exemple, la Figure 20 présente la corrélation entre les concentrations de $PM_{biomasse}$ (calculées pour la présente étude à partir des mesures de levoglucosan) et les données de BC_{wb} issues de l'AE33, pour la station Petit-Quevilly dans l'agglomération rouennaise. On note une très bonne corrélation entre ces deux paramètres, confortant la pertinence des deux approches indépendantes de suivi des émissions issues de la combustion de biomasse. La valeur de 12,7 correspondant à la pente de la droite de corrélation peut donc être directement utilisée pour l'interprétation des données AE33 obtenues sur la station Petit-Quevilly (i.e., $PM_{biomasse} = 12,7 \times BC_{wb}$)

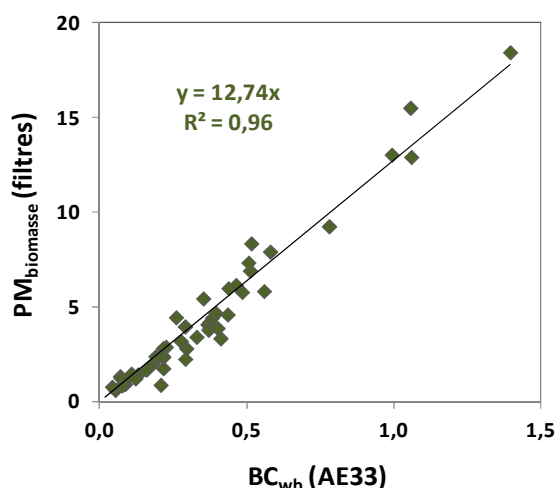


Figure 20 : Corrélation entre BC_{wb} et $PM_{biomasse}$ lors de l'hiver 2014-2015 sur la station Petit-Quevilly

Le tableau ci-dessous synthétise les valeurs de facteurs multiplicatifs obtenues pour chacun des sites étudiés au cours de l'hiver 2014-2015.

	$PM_{biomasse} / BC_{wb}$		$PM_{biomasse} / BC_{wb}$
Reims	13,0	Strasbourg	8,6
Rouen	12,7	Lyon	13,4
Nantes	15,2	Grenoble	11,1
Poitiers	15,3	Marseille	16,0
Bordeaux	14,2	Nice	17,3

Compte-tenu des écarts de reproductibilité observés lors des comparaisons deux-à-deux (cf. chapitre 3.1.3) et des possibles évolutions du parc des appareils de chauffage au bois, il est recommandé de comparer les mesures BC_{wb} à des analyses sur filtres aussi régulièrement que possible (i.e., tout les 2-3 ans) pour chaque agglomération soumise à une surveillance pérenne par AE33.

4.2 Etudes par Positive Matrix Factorization (PMF)

Cet outil statistique est utilisé depuis 2011 par le LCSQA pour l'exploitation des données issues du programme CARA et des travaux sur les HAPs [1, 3, 21-23]. Il permet la détermination de la contribution des principales sources et mécanismes de formation des particules, à partir d'un jeu de données aussi dense que possible (en termes de nombre d'échantillons et d'espèces chimiques mesurées). En 2014-2015, les efforts ont principalement porté sur la finalisation des analyses chimiques nécessaires à l'étude multi-sites dans le nord de la France, le traitement des données obtenues pour 2013 sur le site de Grenoble Les Frênes, ainsi qu'à la participation à un projet ADEME PRIMEQUAL ZAPA avec un focus sur les particules directement émises par le transport routier (dont remise en suspension et phénomènes d'abrasion).

4.2.1 Etude PMF multi-sites dans le nord de la France

Plusieurs stations CARA du nord de la France (Nogent/Oise, Roubaix, Lens, Rouen et Revin) ont fait l'objet de prélèvements et d'analyses chimiques sur filtres entre début 2013 et mi-2014, en vue d'une étude PMF multi-sites dans le cadre d'une thèse de doctorat (2013-2016). Ces analyses chimiques comprennent la détermination des composés particuliers majeurs (carbone suie, matière organique, anions/cations), d'une trentaine d'espèces métalliques et de différents traceurs organiques, tels que le levoglucosan, l'oxalate (provenant principalement des mécanismes de formation des aérosols organiques secondaires) et l'acide méthyl-sulfonique (MSA, produit de dégradation du DMS notamment émis par le phytoplancton).

Ce travail de thèse est cofinancé par le LCSQA-INERIS et Mines Douai, et confié à Diogo Oliveira. Les analyses chimiques nécessaires à cette étude ont été finalisées mi-2015, et de premiers résultats issues d'une analyse PMF ont pu être présentés à l'*European Aerosol Conference* (EAC) de septembre 2015. Comme illustré par la Figure 21, ces résultats mettent en évidence :

- la prédominance (30-40 %) d'un facteur riche en nitrate d'ammonium, à l'origine notamment de la survenue des épisodes de pollution printaniers (cf. chapitre 2 du présent rapport) ;
- l'importance (20-35 %) d'autres familles d'aérosols secondaires contenant du sulfate d'ammonium associé à des aérosols organiques secondaires d'origines biogéniques (contenant notamment du MSA) et/ou issus de processus de formation hétérogène (i.e., vieillissement des particules, tracé notamment par l'oxalate) ;
- une forte influence du transport routier et de la combustion de biomasse, ces deux sources primaires représentant ensemble 20 à 30 % des PM_{10} en moyenne annuelle selon le site étudié.

Il est également à noter la participation de l'INERIS à un projet complémentaire financé par la DREAL Nord Pas de Calais sur les sites côtiers du Cap Griz-Nez et du port de Calais, afin d'affiner l'étude des émissions marines [24].

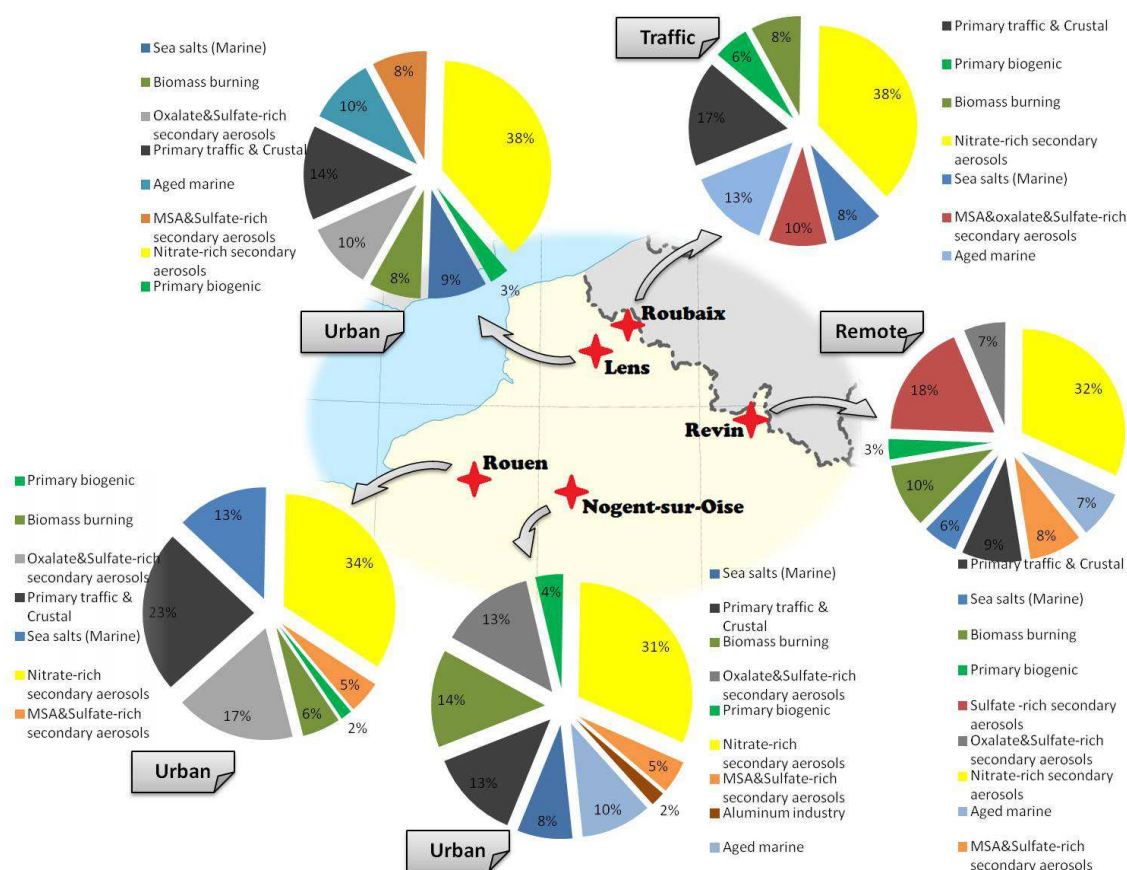


Figure 21 : résultats préliminaires de l'étude PMF multi-sites dans le nord de la France

4.2.2 Etude PMF sur un site de proximité automobile

Cette étude, cofinancée via le programme CARA, s'inscrit également dans le cadre du projet PREQUALIF « IZNOGOU - BARC » (PRIMEQUAL ZAPA), axé sur l'étude des bénéfices attribuables au projet de zones d'actions prioritaires pour l'air qui devaient être expérimentées en France (et notamment à Paris) à partir de 2013. Ce projet a été réalisé notamment en collaboration avec le LSCE (responsable de l'ensemble du projet PREQUALIF), d'Airparif, du Centre d'Etude Technique de l'Equipe Ile de France (ex-CETE IdF, maintenant inclus dans le CEREMA IdF).

L'action présentée ici correspond uniquement à l'une des tâches du projet et avait pour objectif l'amélioration des connaissances de l'ensemble des émissions de PM_{10} liées au trafic automobile sur un site de proximité automobile. Pour ce faire, le profil chimique des poussières présentes sur la chaussée et susceptibles d'être remises en suspension par le trafic automobile a été déterminé à l'aide de prélèvements *in situ* suivis d'analyses chimiques, en partenariat avec le laboratoire IDAEA-CSIC de Barcelone. Ce profil chimique a ensuite été utilisé comme donnée d'entrée du logiciel PMF, définissant ainsi par avance les caractéristiques de l'une des sources à identifier. La même démarche a été suivie pour la source « salage », à l'aide du profil chimique obtenu par analyse d'échantillons des sels utilisés sur le périphérique.

L'utilisation de cette méthodologie a permis de différencier (i) les émissions primaires à l'échappement des émissions « hors échappement », (ii) au sein de ces dernières, les

émissions liées à l'abrasion (notamment des freins) de celles liées à la remise en suspension, et (iii) les particules liées au salage de celles liées au transport d'embruns marins.

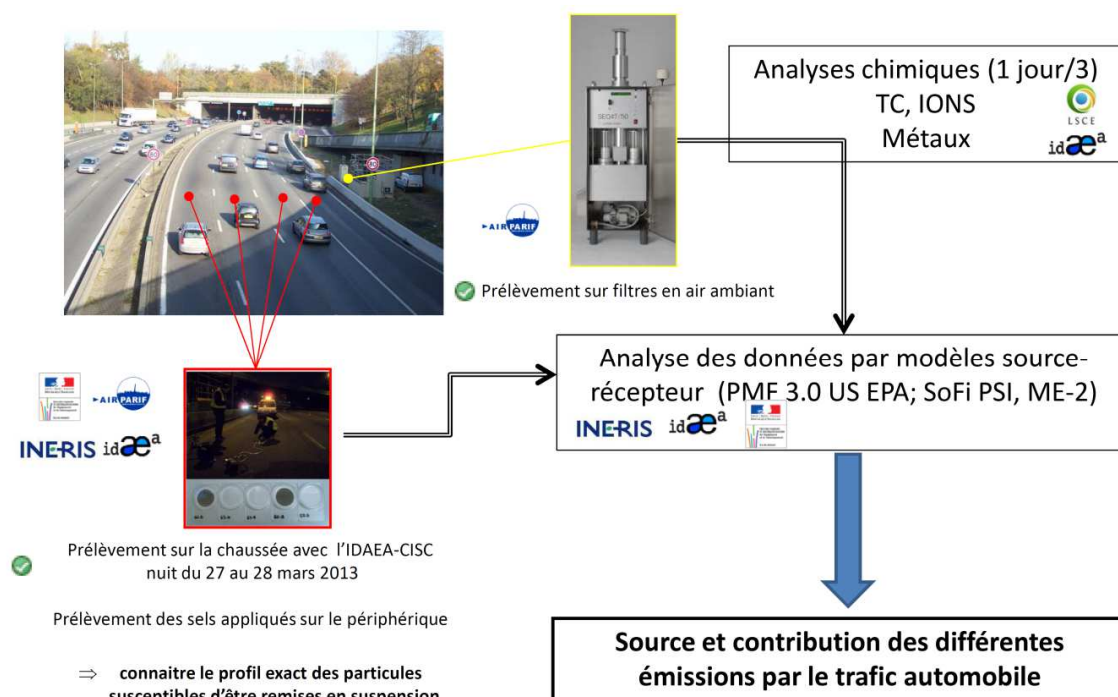


Figure 22 : stratégie mise en œuvre pour la détermination des contributions des différentes émissions liées au transport routier en site de proximité automobile dans le cadre du projet PREQUALIF.

Les résultats préliminaires de cette étude ont déjà été présentés dans le rapport de synthèse des travaux 2013 du programme CARA [3]. En 2014-2015, une nouvelle analyse du jeu de données a donné lieu à la rédaction d'une publication scientifique, proposant également une estimation des facteurs d'émissions « hors-échappements » liées au transport routier en fonction du type de voies de circulation de l'agglomération parisienne [25]. Les principales conclusions pouvant être déduites des différents travaux réalisés dans le cadre de cette étude sont synthétisés ci-dessous :

- La source « échappement », constituée essentiellement de carbone total et de quelques métaux trouvés dans les carburants, représente en moyenne annuelle 25-30 % des PM_{10} mesurées sur le site d'étude situé le long du périphérique ;
- la source « abrasion pneus-freins » (15-20 % des PM_{10}) présente un profil chimique riche en métaux (dont Cu, Cr, Sb et Fe) et une série temporelle très proche de la source « échappement » ;
- la source « remise en suspension » correspond à environ 15 % des PM_{10} et présente des variations temporelles inversement proportionnelles à la pluviométrie ;
- la source « salage » n'a qu'un impact très marginal sur les niveaux de PM_{10} et ne peut être considérée comme responsable de la survenue de dépassements du seuil journalier de $50 \mu g/m^3$;
- les aérosols secondaires et les émissions par combustion de biomasse représentent en moyennes annuelles respectivement 20-25 % et 10 % des niveaux

de PM₁₀ mesurées à proximité immédiate du périphérique ;

- les facteurs d'émission de la source « poussières de route » (i.e., ensemble des émissions véhiculaires « hors échappements ») varient de 5-9 mg/VKT (*Vehicle Kilometer Traveled*) dans les rues de Paris à 17-18 mg/VKT sur le périphérique ;
- Comme illustrée par la Figure 23, ces émissions sont composées principalement de poussières minérales (provenant notamment de l'abrasion de la chaussée), de débris de freins, et de particules carbonées (dont débris de pneus).

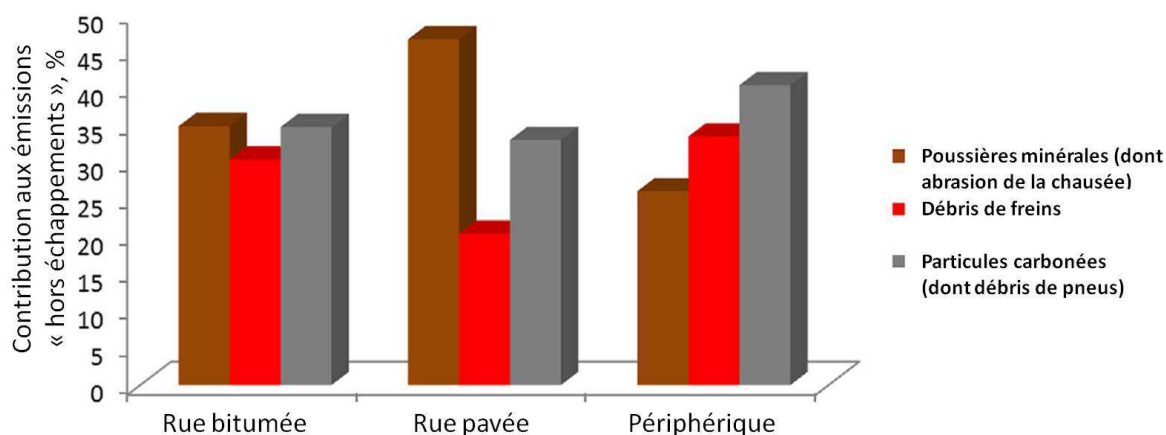


Figure 23 : composition des émissions PM₁₀ « hors échappements » sur trois différents types de voies de circulation de l'agglomération parisienne [25].

4.2.3 Etude PMF sur le site de Grenoble Les Frênes

Cette étude s'inscrit dans le cadre du suivi en continu de l'impact sur la qualité de l'air des particules (dont les Hydrocarbures Aromatiques Polycycliques, HAP) provenant de la combustion de biomasse. Réalisée en collaborations avec Air Rhône-Alpes et le LGGE, elle repose sur l'analyse chimique de prélèvements sur filtres provenant de la station de fond urbain de Grenoble Les Frênes. Au-delà des résultats découlant de la mesure du levoglucosan (discutés au chapitre 4.1 du présent rapport), il était proposé la réalisation d'une étude approfondie de l'ensemble des sources à travers la mesure sur une année (2013) de l'ensemble des espèces majeures ainsi que d'un nombre conséquent de traceurs des particules primaires mais aussi secondaires. Les efforts de caractérisation chimique ont principalement porté sur l'analyse d'une trentaine d'espèces métalliques, d'une quinzaine de HAP, et d'une soixantaine de produits d'oxydation de ces HAP (NHAP et OHAP). Comme pour les autres études PMF réalisées dans le cadre du programme CARA, les filtres analysés ont été prélevés à une fréquence régulière (1 jour sur 3) permettant d'assurer la représentativité des résultats obtenus à l'échelle annuelle. Ce jeu de données a notamment pu être valorisé dans le cadre des travaux de thèse de Sophie Tomaz et de Deepchandra Srivastava (collaborations INERIS - laboratoire EPOC de l'université de Bordeaux) [26].

En particulier, les premiers résultats de l'étude PMF effectuée à l'aide de ce jeu de données ont fait l'objet d'une présentation par affiche, qui a reçu le prix du meilleur poster dans sa session (PM_x), à l'EAC 2015. Ces résultats permettent l'identification d'une dizaine de sources ou de mélanges de sources influençant les concentrations de PM₁₀ à

Grenoble. A l'aide du nouveau logiciel de traitement de données US EPA PMF5.0, il a notamment été possible d'appliquer différentes contraintes au modèle afin d'optimiser la contribution de la source primaire liée au trafic automobile, caractérisée par la présence de carbone élémentaire (EC) et de 1-nitropyrene (nitro-HAP caractéristique des émissions diesel), comme illustré par la Figure 24.

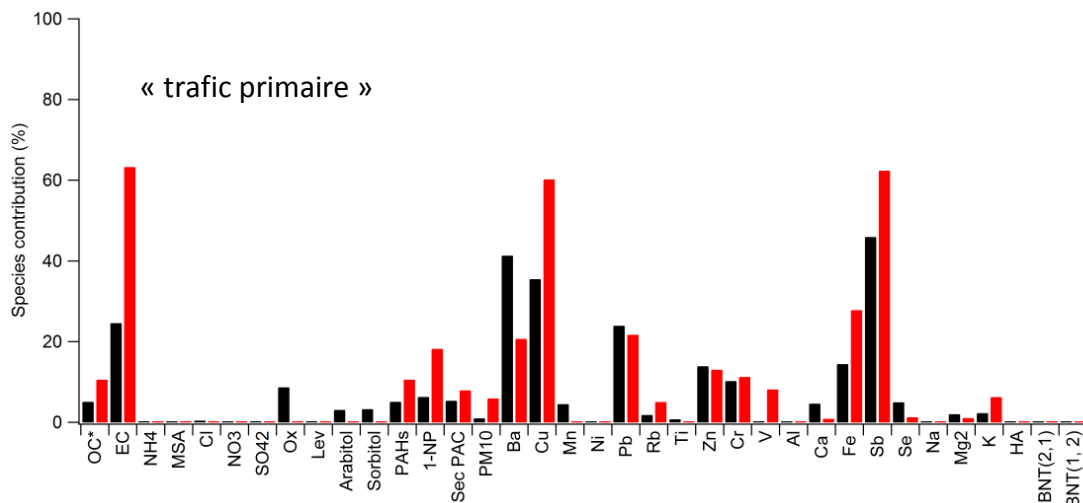


Figure 24 : Profil du facteur d'émissions primaires par le trafic automobile avant (en noir) et après (en rouge) l'application d'une contrainte sur la contribution de EC au sein de ce facteur.

Par ailleurs, une source directement liée à la formation de composés aromatiques polycycliques secondaires (« Secondary PAC ») a pu être mise en évidence grâce à l'utilisation de traceurs spécifiques (Figure 25), suggérant l'importance de mécanismes de transformation de type « fenton reaction » très peu étudiés jusqu'ici en chimie atmosphérique.

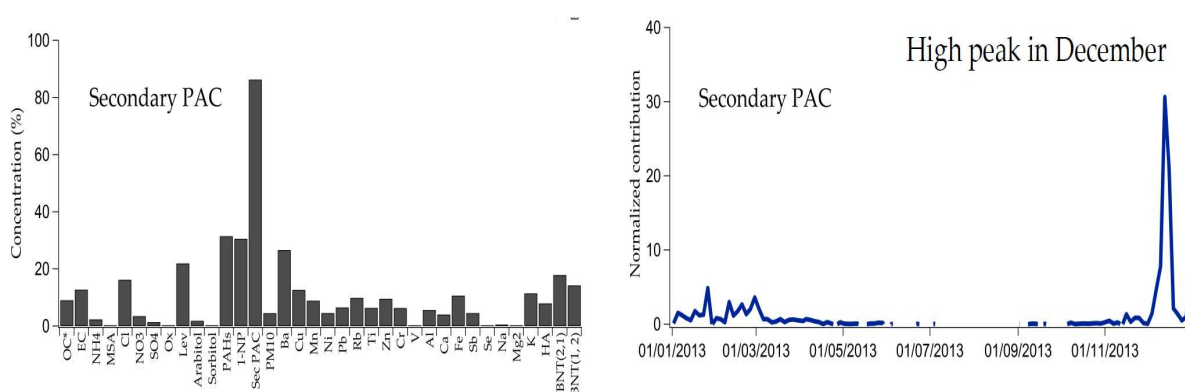


Figure 25 : Profil chimique et variation temporelle du facteur « HAP secondaires » identifiés par PMF sur le jeu de données de Grenoble pour l'année 2013.

La mise en évidence de cette « nouvelle » source d'aérosols secondaires vient renforcer l'importance globale des aérosols secondaires sur les niveaux de PM₁₀. Comme illustré par la Figure 26, l'ensemble de ces particules secondaires représente plus de 40 % des PM₁₀ en fond urbain à Grenoble en moyenne annuelle. A souligner néanmoins, que les émissions primaires liées à la combustion de biomasse y représentent environ 15 % des PM₁₀ sur cette même échelle annuelle, en bon accord avec les fortes contributions hivernales discutées au chapitre 4.1.

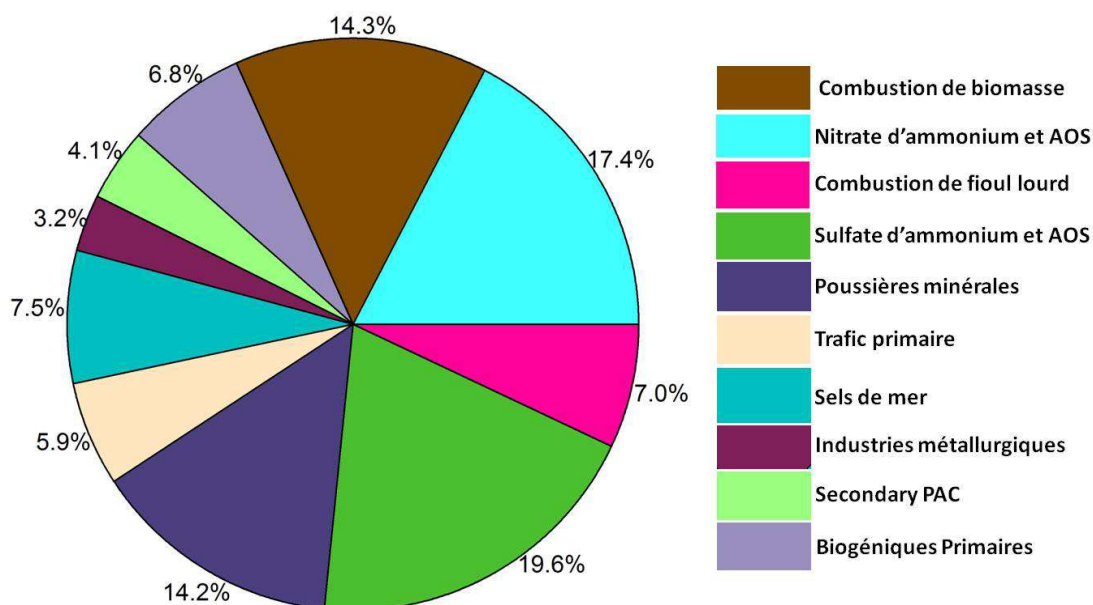


Figure 26 : résultats préliminaires de l'analyse PMF pour le site de Grenoble Les Frênes

4.3 Programmes INACS & INACS-2

Comme illustré au chapitre 2, le nitrate d'ammonium constitue la principale espèce chimique des épisodes de pollution printaniers. Compte-tenu de son caractère secondaire, il n'est pas possible de lui attribuer directement une ou plusieurs source(s) d'émission. En outre, et à l'inverse de la matière organique, la simplicité moléculaire de ses précurseurs gazeux (NO_x et NH_3) ne permet pas de différencier les sources de ces précurseurs à l'aide de méthodes « classiques » de chimie analytique. Néanmoins, il est possible d'envisager une identification de ces sources via l'étude des isotopes stables de N et O présents au sein du nitrate d'ammonium. C'est l'objet des projets INACS & INACS-2, qui s'inscrivent dans le cadre des programmes CORTEA de l'ADEME, sur la période 2012-2016 et résultent d'une collaboration scientifique entre le LGGE, l'INERIS et l'INRA. Les méthodologies mises en œuvre sont particulièrement novatrices, car quasiment jamais utilisées à ce jour pour l'étude des particules atmosphériques en air ambiant. Ces deux programmes, se succédant dans le temps, visent :

- la réalisation d'analyses isotopiques du nitrate et de l'ammonium particulaire sur une très large série de prélèvements sur filtres (environ 1000 échantillons), issus en grande partie du programme CARA, permettant :
 - d'avoir une vision statistiquement représentative des épisodes de dépassement des PM de printemps sur les 5 dernières années et pour une large gamme de sites de CARA ;
 - de disposer d'une demi-douzaine de longues séries temporelles (au moins annuelles) sur des sites différenciés ;
 - d'avoir une vision statistiquement représentative des épisodes de pollution printaniers d'ampleur nationale ;

- d'avoir un contrepoint avec quelques épisodes de dépassement hors épisodes de printemps ;
- l'obtention de rapports isotopiques de N et O au sein des précurseurs gazeux (NO_x et NH_3) et de leur variabilité par types d'émetteurs spécifiques (véhiculaires, combustion de biomasse, épandages d'engrais, élevage), à partir de mesures en champ proche ;
- la comparaison des résultats obtenus pour les précurseurs gazeux et pour le nitrate d'ammonium particulaire, afin de discuter des possibles origines du nitrate et de l'ammonium, en particulier lors des épisodes de printemps ;
- l'évaluation de la faisabilité d'une quantification des sources des précurseurs gazeux du nitrate d'ammonium à partir des données isotopiques, en apportant de plus une connaissance des voies de formation ;
- l'évaluation de la faisabilité de l'utilisation de ces données isotopiques dans le cadre d'études de type PMF, pour une étude globale des sources de PM.

L'ensemble des résultats obtenus pour ces programmes fera l'objet d'un rapport d'étude en cours de finalisation. La synthèse des conclusions pouvant être tirées pour les trois premiers points listés ci-dessus et concernant l'ammonium particulaire (NH_4^+) peut d'ores et déjà être proposé ici.

Concernant les techniques analytiques mises en œuvre, une méthode de mesure de la composition isotopique du nitrite et du nitrate par conversion bactérienne du N_2O avait été préalablement développée au LGGE pour l'analyse d'échantillons de neige. Dans le cadre du programme INACS, cette méthode a été adaptée pour l'analyse du nitrate atmosphérique. Concernant l'ammonium, une méthode spécifique a également été développée au LGGE, afin de permettre son oxydation en nitrite, avant d'intégrer la chaîne d'analyse par conversion bactérienne.

L'analyse des nombreux filtres étudiés indique que les isotopes stables de l'azote de l'ammonium ont une réponse très prononcée aux pics de pollution printaniers, avec un appauvrissement généralisé des compositions isotopique en ^{15}N lors de ces épisodes de pollution aux particules. En effet, comme illustré par la Figure 27 pour 8 sites distincts (dont 6 du programme CARA), on observe une chute de ce signal isotopique lors des épisodes de pollution de mars 2011, février-mars 2012, mars 2013 et mars 2014, riches en nitrate d'ammonium. Ces faibles valeurs de la composition en ^{15}N sont à rapprocher des résultats obtenus pour la mesure en champ proche pour le NH_3 (Figure 28), indiquant des anomalies isotopiques fortement négatives pour les mesures dans les bâtiments d'élevages et lors des épandages sur le site de l'INRA, et des valeurs proches de 0 pour les mesures à la source en tunnel et lors d'essais de combustion de biomasse (en accord avec les valeurs reportés dans la littérature). Ainsi, au début du printemps, les sources agricoles additionnelles sont fortement soupçonnées d'être à l'origine de l'ammoniac car ce sont les plus à même d'expliquer les très forts appauvrissements observés en ^{15}N . A contrario, hors période de pollution printanière, la composition isotopique en ^{15}N du bruit de fond d'ammonium, est extrêmement homogène à l'échelle du territoire et s'accorde

avec des sources d'émissions issues de combustion (stationnaire et véhiculaire qui ne peuvent être distinguées).

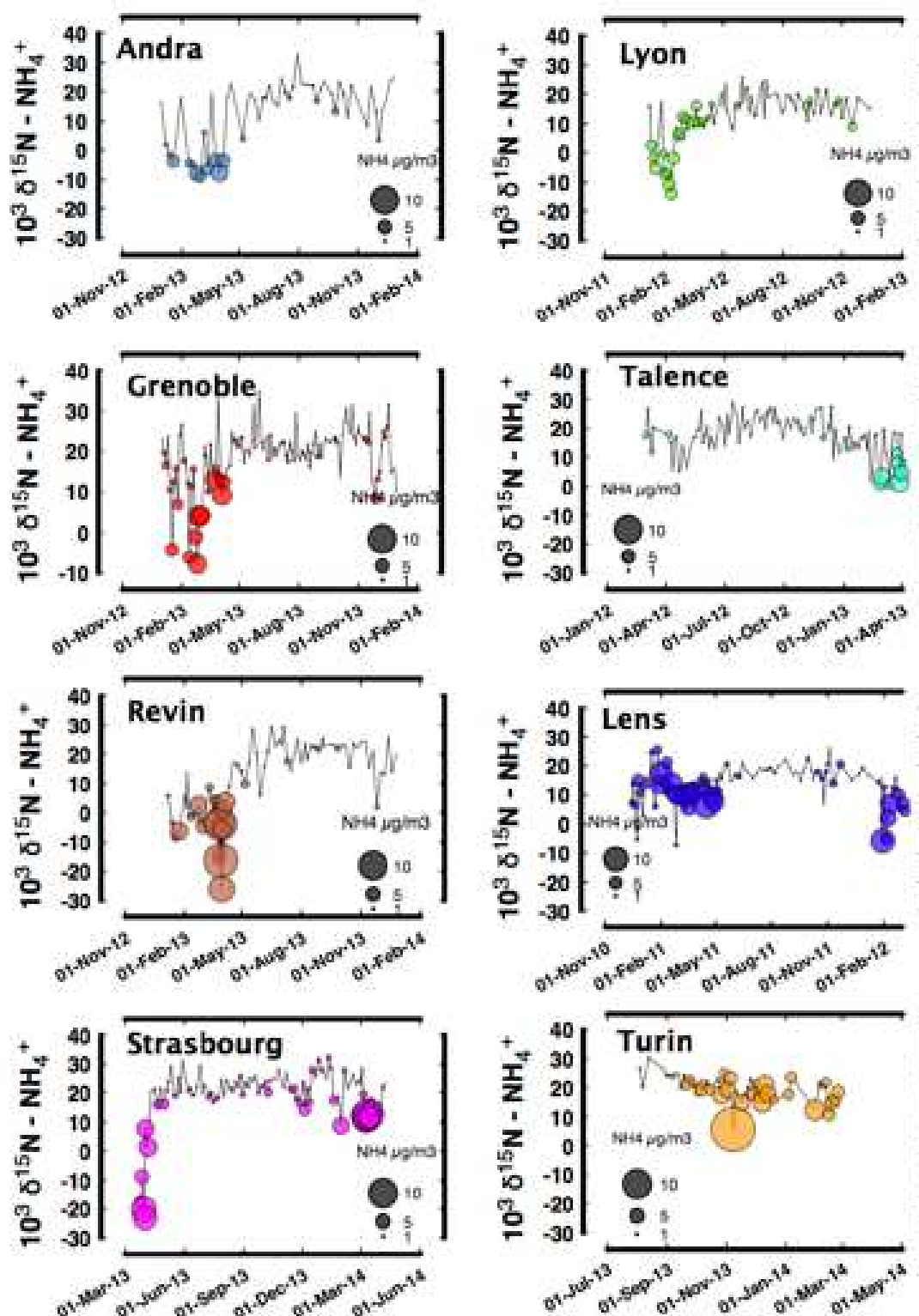


Figure 27 : Séries annuelles du $\delta^{15}\text{N}(\text{NH}_4^+)$ sur les sites de l'Andra - OPE (2013), Lyon (2012), Grenoble - Frenes (2013), Talence (2012-2013) Revin(2013), Lens (2011), Strasbourg (2013-2014) et Turin (2013 - 2014).

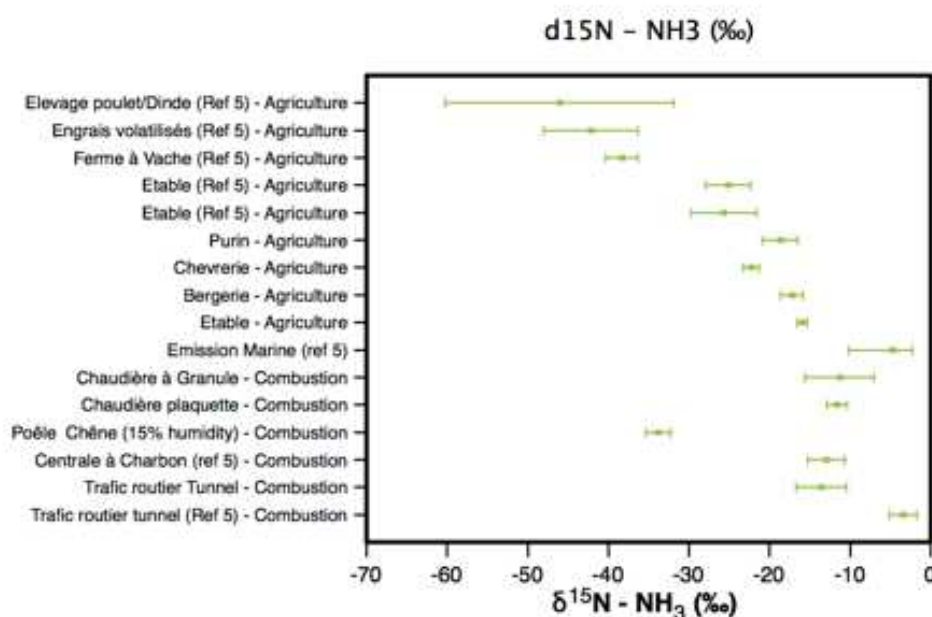


Figure 28 : Composition isotopique de l'ammoniac issue de différentes sources

Les connaissances actuelles des mécanismes de transformation dans l'atmosphère et des compositions isotopiques au niveau des sources ne permettent pas à ce jour une quantification précise des sources sur cette base, via des méthodes simples. Néanmoins, la composition isotopique de l'ammonium semble bien être porteuse d'une information pertinente, non accessible par la mesure des concentrations, sur l'origine de ses précurseurs gazeux. Ainsi, les données acquises durant les programmes INACS ouvrent des perspectives intéressantes qu'une analyse plus poussée croisant les systèmes d'information géographique associés à la poursuite des caractérisations des sources pourrait faire déboucher sur des quantifications plus robustes. A noter enfin que l'étude de la composition isotopique du nitrate semble quant à elle plus propice à l'étude des différentes voies d'oxydation des NO_x qu'à la détermination de ces sources d'émission.

5. CONCLUSIONS ET PERSPECTIVES

Dans la continuité des années précédentes, les travaux 2014-2015 du programme CARA ont principalement porté sur la caractérisation chimique des particules mesurées lors d'épisodes de pollution, l'identification et l'estimation des sources de PM en différents points du dispositif national ainsi que la mise en œuvre d'analyseurs automatiques de la composition chimique des PM.

Outre la contribution exceptionnelle du transport de particules d'origine naturelle (poussières sahariennes et aérosols issus d'émissions volcaniques), l'analyse des principaux épisodes de pollution particulaire confirme le rôle majeur joué par la combustion de biomasse ainsi que par le transport routier et les épandages agricoles (conduisant à la formation de nitrate d'ammonium) sur les dépassements de seuils journaliers fixés pour les PM₁₀. On retiendra en particulier la grande similitude observée entre les deux plus importants épisodes de pollution d'ampleur nationale survenus respectivement en mars 2014 et mars 2015. Dans les deux cas, des conditions météorologiques particulièrement stables ont été à l'origine :

- dans un premier temps, d'une augmentation significative des concentrations de matière organique, provenant notamment des émissions locales liées au chauffage et au transport routier, ainsi qu'à la formation d'aérosols organiques secondaires ;
- dans un second temps à la formation et au transport d'espèces inorganiques secondaires, et en premier lieu de nitrate d'ammonium, venant s'ajouter à la matière organique.

La caractérisation en temps réel de ce type d'épisodes est aujourd'hui possible grâce aux efforts réalisés ces deux dernières années pour l'implantation d'analyseurs automatiques de la composition chimique des PM (AE33 et ACSM) sur différentes stations du dispositif national. Le développement d'un tel observatoire opérationnel, unique en Europe, permet d'apporter des éléments de compréhension et d'aide à la décision dès les premières heures de la survenue de pics de PM. Il pourrait également fournir un moyen d'évaluation des politiques publiques sur le long terme.

La consolidation de ce dispositif nécessite la pérennisation des activités de contrôle qualité des mesures et d'accompagnement des AASQA pour la mise en œuvre d'une instrumentation adéquate. Dans ce contexte, une fiche étude spécifiquement dédiée au suivi et à l'optimisation de la mesure en temps réel de la composition chimique des PM a été ajoutée aux travaux du LCSQA à partir de 2016. Ces travaux métrologiques s'attacheront notamment à l'optimisation des méthodologies de calibration des ACSM, en étroite collaboration avec les activités de l'ACMCC et en lien avec la poursuite des programmes ACTRIS au sein d'une infrastructure de recherche européenne pérenne (ACTRIS-RI) en cours de montage.

Par ailleurs, afin d'assurer une bonne complémentarité avec les prélèvements sur filtres, une action du PNSQA vise à définir les modalités d'optimisation et de rationalisation de l'ensemble des sites et moyens de mesure du programme CARA. Ce travail se basera notamment sur l'étude de l'homogénéité spatiale des épisodes de pollution survenus en début d'années 2016.

Concernant l'évaluation des principales sources de PM, l'étude spécifique de l'impact du

chauffage résidentiel au bois sur une dizaine de stations de fond urbain métropolitaine lors de l'hiver 2014-2015 illustre l'importance de ces émissions tout au long de la période hivernale. Cette étude confirme donc que la combustion de biomasse constitue un levier d'action intéressant pour l'amélioration de la qualité de l'air. Par ailleurs, les résultats des programmes INACS et INACS-2 mettent en avant le rôle joué par les épandages de fertilisants agricoles dans la survenue des épisodes de pollution printaniers.

A noter néanmoins que, si l'agriculture semble bien être le premier responsable des fortes concentrations d'ammonium observées lors de ces épisodes, les émissions de NO_x par le transport routier et les activités industrielles sont également à incriminer en amont des processus de (photo-) oxydations induisant la formation de nitrate. Un autre impact du transport routier est lié aux phénomènes d'abrasion et de remise en suspension, constituant globalement la moitié des émissions liées à cette source sur le site de proximité automobile étudié lors du programme PREQUALIF (sur le périphérique parisien).

Les efforts menés au cours des dernières années pour la maîtrise de méthodologies performantes de traitement de données (e.g., exploitation des mesures AE33 et analyses PMF contraintes) permettent de disposer aujourd'hui au sein du programme CARA de précieux outils pour l'analyse des sources de PM. Pour la PMF, une analyse harmonisée de l'ensemble des jeux de données disponibles pour les stations de fond urbain françaises sera réalisée dans les deux ans à venir, en lien avec le projet SOURCES (collaborations INERIS-LGGE) cofinancé par l'ADEME, afin d'apporter une vision homogène à l'échelle nationale. Par ailleurs, il est aujourd'hui possible d'envisager le développement de méthodologies simples mais rapides d'estimation des sources à partir des mesures automatiques, permettant notamment d'obtenir des informations en temps quasi-réel sur l'origine des principales espèces chimiques (en particulier organiques) détectées par les ACSM. Ce travail novateur sera réalisé en collaboration avec le *Paul Scherrer Institute* (PSI, laboratoire de recherche suisse), leader en Europe dans le domaine de l'exploitation des données ACSM (notamment dans le cadre du programme ACTRIS). L'ensemble de ces méthodologies ont vocation, *in fine*, à être directement utilisées par les AASQA, dont la formation continuera d'être assurée via le groupe de travail « Caractérisation Chimique et Etudes de Sources des PM » (devant évoluer en commission de suivi) ainsi qu'au travers de collaborations bilatérales avec le LCSQA.

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 211. <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-automatig>
- [5] Description des actions menées pour la mise en place des ACSM (Aerosol Chemical Speciation Monitor) au sein du dispositif national de surveillance de la qualité de l'air. Note LCSQA 2015. <http://www.lcsqa.org/rapport/2015/ineris/description-actions-menees-mise-place-acsm-aerosol-chemical-speciation-monitorin>
- [6] Caractéristiques et origines principales des épisodes de pollution hivernaux aux PM₁₀ en France. *Pollution Atmosphérique*, numéro spécial de Novembre 2012. http://www.appa.asso.fr/_docs/1/fckeditor/file/Revues/PollutionAtmospherique/Hors-serie-particules-novembre-2012/P--%20Favez%281%29.pdf
- [7] Episodes de pollution particulaire en France : quels enseignements tirer des récents épisodes. *Pollution Atmosphérique*, numéro spécial de Mars 2015. http://www.appa.asso.fr/_docs/1/fckeditor/file/Revues/PollutionAtmospherique/HS_pointes/Rouil.pdf
- [8] Role of the boundary layer dynamics effects on an extreme air pollution event in Paris. Soumis à *Atmospheric Environment* (2015).
- [9] Impact of a Saharan dust outbreak on PM₁₀ ground levels in Southeastern France. *Climatologie*, 12, 65-82 (2015). http://lodel.irevues.inist.fr/climatologie/docannexe/file/1129/michelot_et_al_climatologie_2015_pages_65_a_82.pdf
- [10] Eléments de compréhension des épisodes de pollution particulaire de fin décembre 2014 - début janvier 2015. Note LCSQA 2015. <http://www.lcsqa.org/rapport/2015/ineris/elements-comprehension-episodes-pollution-particulaire-fin-decembre-2014-debut-j>
- [11] Observation et analyse en temps quasi-réel des épisodes de pollution particulaire de mars 2015. Note LCSQA 2015. <http://www.lcsqa.org/rapport/2015/ineris/observation-analyse-temps-quasi-reel-episodes-pollution-particulaire-mars-2015-n>
- [12] Characterizing an intense PM pollution episode in March 2015 in France from multi-site approach and near real time data: climatology, variability, geographical origins and model evaluation. En cours de rédaction.

- [13] Carbone élémentaire ou black carbon ? Note LCSQA 2012.
<http://www.lcsqa.org/rapport/2012/ineris-airparif-air-rhone-alpes/carbone-elementaire-ou-black-carbon>
- [14] Two years of near real-time chemical composition of submicron aerosols in the region of Paris using an Aerosol Chemical Speciation Monitor (ACSM) and a multi-wavelength Aethalometer, *Atmospheric Chemistry and Physics*, 15, 2985-3005 (2015).
<http://www.atmos-chem-phys.net/15/2985/2015/>
- [15] 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, *Atmospheric Chemistry and Physics*, 14, 13773-13787 (2014). <http://www.atmos-chem-phys.net/14/13773/2014/>
- [16] ACTRIS ACSM Intercomparison – Part 1 : Reproducibility of concentration and fragment results from 13 individual Quadrupole Aerosol Chemical Speciation Monitors (Q-ACSM) and consistency with co-located instruments. *Atmospheric Measurement Techniques*, 8, 5063-5087 (2015). <http://www.atmos-meas-tech.net/8/5063/2015/>
- [17] ACTRIS ACSM Intercomparison – Part 2 : Intercomparison of ME-2 organic source apportionment results from 15 individual, colocated aerosol mass spectrometers. *Atmospheric Measurement Techniques*, 8, 2555-2578 (2015). <http://www.atmos-meas-tech.net/8/2555/2015/>
- [18] Point d'étape pour 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-note-strategique>
- [19] Caractérisation du dispositif de calibration de l'Aerosol Chemical Speciation Monitor (ACSM). Rapport LCSQA 2015. <http://www.lcsqa.org/rapport/2015/ineris/caracterisation-dispositif-calibration-aerosol-chemical-speciation-monitor-acsm>
- [20] Impact de la combustion de biomasse sur les concentrations de PM₁₀ dans 10 agglomérations du programme CARA au cours de l'hiver 2014-2015. Rapport LCSQA 2015. <http://www.lcsqa.org/rapport/2015/ineris/impact-combustion-biomasse-concentrations-pm10-programme-cara-hiver-2014-2015>
- [21] Synthèse des travaux 2012 du programme CARA. Rapport LCSQA 2012. <http://www.lcsqa.org/rapport/2012/ineris/metrologie-particules-pm10-pm25-caracterisation-chimique-particules-synthese-tra>
- [22] Mise en oeuvre d'un « modèle récepteur » de type PMF (« Positive Matrix Factorization ») pour l'identification et la quantification des principales sources de PM₁₀ sur le site urbain de fond de Lens (Atmo Nord Pas de Calais). Rapport LCSQA 2012. <http://www.lcsqa.org/rapport/2012/ineris/mise-oeuvre-modele-recepteur-type-pmf-positive-matrix-factorization-identificati>
- [23] Mise en oeuvre d'une méthodologie d'estimation des sources de HAP par modèle récepteur. Application de la Positive Matrix Factorization (PMF). Rapport LCSQA 2013. <http://www.lcsqa.org/rapport/2013/ineris/mise-oeuvre-methodologie-estimation-sources-hap-modele-recepteur-application-pos>
- [24] Etude des concentrations et de la composition des PM₁₀ sur le littoral du nord de la France – Evaluation des contributions maritimes de l'espace Manche-Mer du Nord. Manuscrit de thèse de doctorat de Cloé Roche (2016).

[25] Traffic induced particle resuspension in Paris: Emission factors and source contribution. *Atmospheric Environment*, 129, 114-124 (2016). http://ac.els-cdn.com/S1352231016300309/1-s2.0-S1352231016300309-main.pdf?_tid=f4962f56-3158-11e6-a601-00000aab0f01&acdnat=1465817061_4b28be58c2433f633add7ad30e9485e3

[26] Etude des composés poly-aromatiques dans l'atmosphère : caractérisation moléculaire et processus réactionnels en lien avec l'aérosol organique. Manuscrit de thèse de doctorat de Sophie Tomaz (2015). <http://www.theses.fr/2015BORD0416>

7. LISTE DES ANNEXES

Annexes	Titres
Annexe 1	Description du programme CARA (note de synthèse LCSQA, 2014).
Annexe 2	Compte-rendus des réunions du groupe utilisateurs AE33 de janvier 2014 et septembre 2015
Annexe 3	Compte-rendu de la réunion du groupe utilisateurs ACSM de décembre 2015

Note de synthèse du LCSQA

DESCRIPTION DU PROGRAMME CARA DU DISPOSITIF NATIONAL DE SURVEILLANCE DE LA QUALITE DE L'AIR

OLIVIER FAVEZ, EVA LEOZ-GARZIANDIA (INERIS)

Résumé

La présente note propose une description synthétique du programme CARA (**CARActérisation chimique des particules**) mis en place en 2008, à l'initiative du LCSQA, pour répondre à une forte demande du ministère et des AASQA :

- de documenter la nature des principaux **épisodes de pollution particulaire** d'ampleur nationale
- d'identifier et quantifier les **principales sources de PM** à l'échelle (pluri-)annuelle, sur différents points du dispositif national
- de servir de référence pour l'**optimisation des modèles**
- d'assurer un **transfert de compétences et de connaissances** de la recherche vers l'opérationnel

Ce programme est basé sur la spéciation chimique des particules **selon deux approches complémentaires** :

1) A partir de **prélèvements sur filtres PM₁₀ sur une quinzaine de stations** (urbaines, majoritairement) du dispositif national.

Points forts : taille du dispositif, implication des AASQA, diversité des paramètres mesurés

Points faibles : lourdeur et coût des analyses, délais de réponse (2-3 jours à plusieurs mois)

2) A l'aide d'**analyseurs automatiques (en cours de mise en place)**.

Points forts : rapidité de réponse (« quasi temps réel »), variations temporelles fines des polluants, en lien avec l'évolution de leurs sources « anthropiques »

Points faibles : coûts d'investissement, sélectivité des mesures

Les principaux points d'amélioration de ce programme portent sur le renforcement du dispositif automatique en complément du dispositif manuel, la structuration du partage des informations dans le cadre d'un accord national collectif volontaire, et la valorisation des résultats obtenus.

1. Objectifs

- Renseigner rapidement la nature des épisodes de pollution particulaire qui touchent le territoire national ;
- Déterminer les principales sources de PM, afin notamment d'aider à l'élaboration ou l'évaluation de plans d'actions adaptés et d'apporter des éléments de réponse vis-à-vis du contentieux européen ;
- Contribuer à l'optimisation du système PREV'AIR via des exercices de comparaison des sorties de modèles aux mesures ;
- Apporter un appui technique et scientifique aux AASQA dans la mise en œuvre de campagnes de spéciation chimique des PM ;
- Réaliser un retour d'expérience et assurer une veille scientifique sur les méthodologies et projets nationaux en cours ;
- Valoriser l'expertise française à l'échelle européenne et internationale.

2. Organisation

Le programme CARA (« caractérisation chimique des particules ») a été créé en 2008 par le LCSQA/INERIS en réponse au besoin de compréhension et d'information sur l'origine des épisodes de pollution particulaire. Il est majoritairement financé par le MEDDE (cf. section 6 de la présente note) via le programme d'étude du LCSQA, et fonctionne en étroite collaboration avec :

- les AASQA, une quinzaine d'entre elles réalisant aujourd'hui des prélèvements et mesures *in situ* d'intérêt national,
- différents laboratoires universitaires, qui réalisent une partie des analyses chimiques et sont sollicités pour la mise à disposition de leurs connaissances et de leurs propres bases de données.

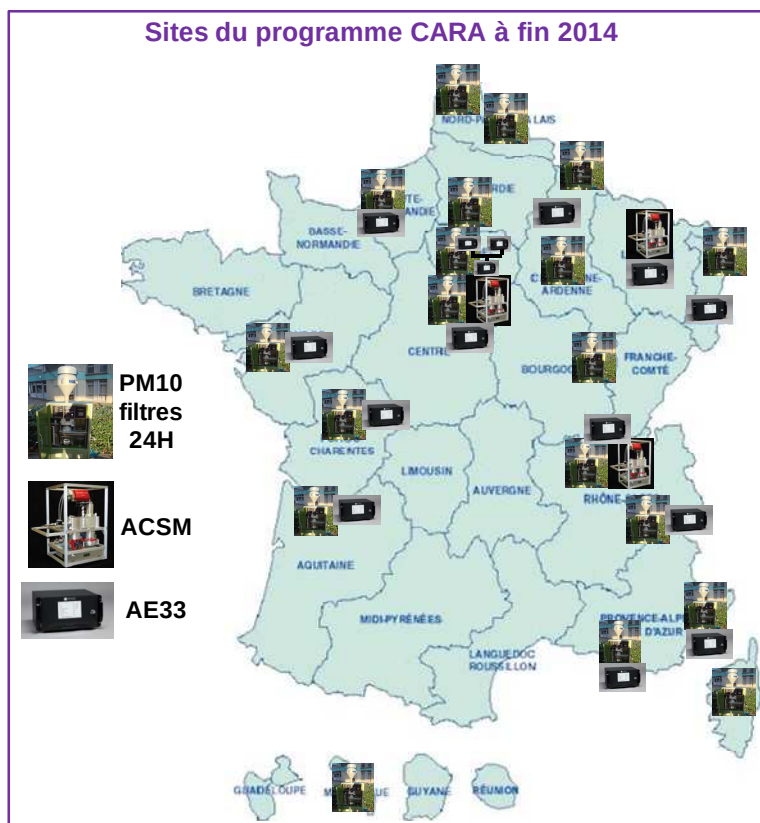
Le LCSQA prend directement en charge les aspects logistiques et méthodologiques, ainsi qu'une partie des analyses chimiques. Il est également responsable de la coordination de l'ensemble du programme, de l'interprétation scientifique des données, et de la diffusion des résultats obtenus. Ces derniers sont transmis en premier lieu aux acteurs du dispositif national par mails ou lors de réunions, puis diffusées plus largement via des notes et rapports du LCSQA ou d'AASQA, et des publications scientifiques.

Depuis fin 2011, un groupe de travail de la Commission de Suivi « particules en suspension » permet de renforcer les connexions entre les différents acteurs et projets d'études portant sur la caractérisation chimique ou l'étude de sources des PM.

En outre, le programme CARA, suscite l'élaboration de projets de recherche (ex : thèse Mines Douai-LCSQA/INERIS en cours sur les sources de PM dans le nord de la France), qu'il est capable d'alimenter en échantillons et en données. En retour, le programme CARA bénéficie de transferts de connaissances et de compétences issues des programmes

de recherche nationaux et européens (ex : thèse INERIS-LSCE de Jean-Eudes Petit, programme ACTRIS, ...).

3. Dispositifs de mesure sur filtres et automatique



3.1 Prélèvement sur filtres et analyses chimiques au laboratoire

Depuis son lancement en 2007, le programme CARA repose sur des prélèvements sur filtres avec analyses chimiques différées en laboratoire. Il est basé sur la spéciation chimique au laboratoire (INERIS, Mines Douai ou laboratoires universitaires) d'échantillons journaliers collectés en plusieurs points du dispositif national. Regroupant initialement six sites, ce dispositif a évolué progressivement pour compter aujourd'hui une vingtaine de sites, essentiellement en fond urbain.

Les prélèvements sont réalisés par les AASQA volontaires, principalement en PM₁₀ et sur sites de fond urbain. Ces prélèvements 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).

Les analyses chimiques, réalisées directement par le LCSQA ou confiées à des laboratoires universitaires partenaires, portent sur les espèces majeures des PM (fractions carbonées et anions/cations) ainsi que sur différents traceurs de sources organiques et métalliques (selon les situations étudiées).

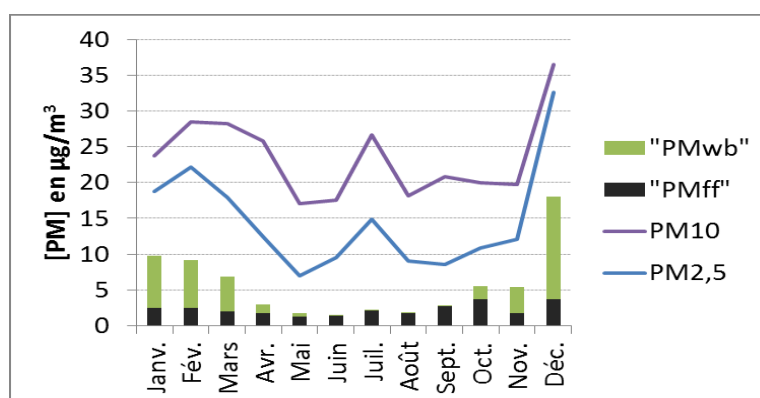
Ce dispositif a notamment démontré sa capacité à jouer un rôle d'outil de gestion des épisodes de pollution dans le cadre de la situation exceptionnelle générée par l'éruption du volcan Eyjafjallajökull au cours du mois d'avril 2010, en permettant d'évaluer

rapidement l'impact des émissions volcaniques sur la qualité de l'air. Ce type de déclenchement des prélèvements et analyses « sur alerte » a depuis été réédité à quelques reprises, en particulier lors d'épisodes de pollution printaniers. Néanmoins, le besoin grandissant d'une détermination en temps quasi-réel de la composition chimique des PM ne peut raisonnablement être basée sur l'utilisation exclusive de prélèvements sur filtres et l'analyse différée. Il requiert la mise en œuvre d'analyseurs automatiques de la composition chimique des PM. Une réflexion sur l'utilisation de ce type d'instrumentation au sein du dispositif national a été initiée dès 2011.

3.2 Mesures automatiques

Le développement d'analyseurs automatiques dimensionnés pour la surveillance en routine de la composition chimique des PM permet aujourd'hui de compléter le dispositif « sur filtres ». En l'état, deux types d'instruments s'avèrent particulièrement adaptés aux contraintes et besoins du dispositif :

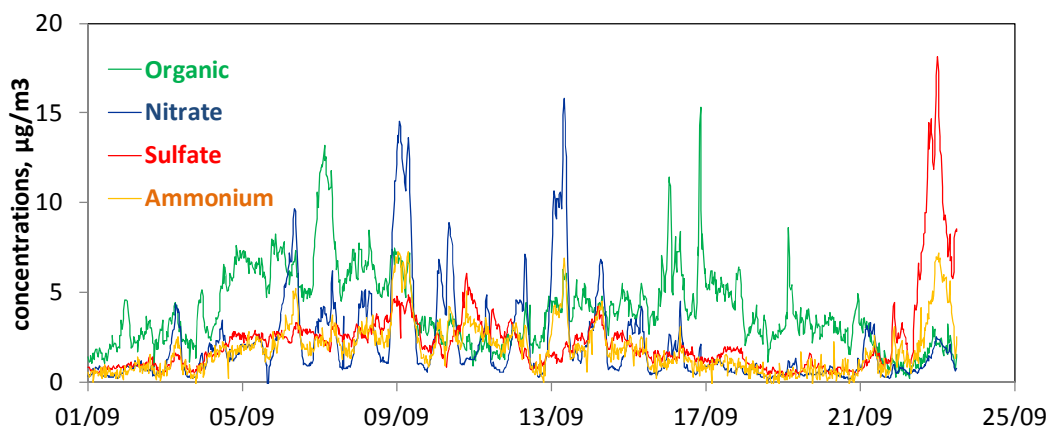
- L'aethalomètre AE33 : cet instrument permet non seulement le suivi des concentrations de carbone suie (ou « Black Carbon »), en tant qu'indicateur pertinent de l'impact sanitaire des particules anthropiques, mais également l'estimation de l'impact des sources de combustion de biomasse et de dérivés du pétrole sur les niveaux de PM. La figure ci-dessous présente, pour l'exemple, les concentrations moyennes mensuelles de PM liées à ces deux types de sources (respectivement PM_{wb} et PM_{ff}) estimées à partir de mesures AE33 sur le site de fond urbain de Talence (Aquitaine) en 2013.



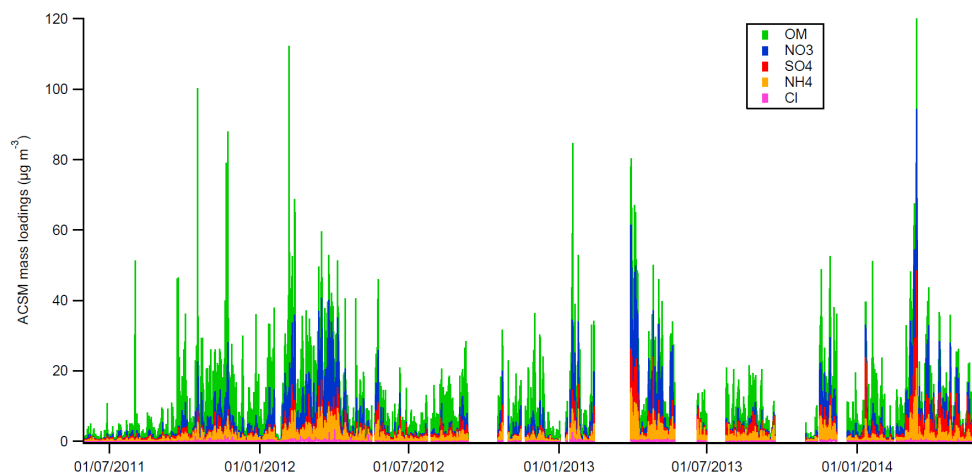
Compte-tenu de sa robustesse, de ses coûts d'investissement et fonctionnement limités, et du caractère local des composés qu'il mesure, il semble pertinent et raisonnable d'envisager l'équipement en AE33 de 1 ou plusieurs stations par AASQA (pour répondre à la fois aux besoins nationaux et régionaux).

- L'Aerosol Chemical Speciation Monitor (ACSM) : cet instrument permet le suivi des concentrations des espèces chimiques majeures de l'aérosol submicronique (matière organique, nitrate, sulfate, ammonium, ..). Pour l'exemple, la figure ci-dessous présente les résultats obtenus par mesure ACSM au SIRTAL-LSCE (Essonne) au cours du mois de septembre 2014. Après une alternance d'épisodes influencés par la matière organique et le nitrate d'ammonium lors de la première quinzaine,

l'import de sulfate d'ammonium issu de l'oxydation des composés soufrés émis par les émissions volcaniques islandaises peut être observé en fin de mois.



Les mesures par ACSM peuvent être réalisées sur le long-terme comme illustré par la figure ci-dessous présentant l'ensemble des résultats obtenus au SIRTA-LSCE entre mi-2011 et mi-2014 à l'aide d'un seul et même instrument (les périodes de sept.-oct. 2012, fév.-avr. 2013, et oct.-nov. 2013 correspondent à l'utilisation de l'ACSM pour d'autres applications).



Dans une deuxième phase de traitement des données fournies par l'ACSM, il est possible de réaliser une étude de sources de la matière organique, puis de l'ensemble des particules fines par couplage avec d'autres instruments de mesure (e.g. AE33, analyseur automatique de métaux).

Compte-tenu de l'importance de ses coûts d'investissement et de fonctionnement, et du caractère (supra-)régional des composés qu'il mesure, il semble pertinent et raisonnable d'envisager l'équipement en ACSM d'une demi-douzaine de stations du dispositif national de surveillance. Outre les mesures mises en œuvre depuis 2011 au SIRTA-LSCE, deux sites du dispositif national (Lyon Centre et Metz Borny) seront équipés d'un ACSM à partir de fin 2014. Les priorités de nouveaux équipements pourront notamment porter sur le nord de la France

(e.g., Normandie, Picardie ou Nord Pas de Calais), la façade ouest, la région PACA, ainsi qu'un site de proximité automobile en Ile de France.

D'autres types d'analyseurs automatiques d'intérêt sont également à considérer, en particulier :

- Le chromatographe ionique MARGA : pour la mesure des espèces ioniques particulières et gazeuses majeures (sa mise en œuvre reste plus complexe et coûteuse que les appareils précédents),
- La mesure automatique des métaux : ce type d'analyseur peut permettre une meilleure identification des sources (plusieurs modèles seront prochainement mis sur le marché),
- La mesure automatique du NH₃ : la mesure de ce polluant est intéressante en tant que précurseurs des épisodes de nitrate d'ammonium. Son suivi peut également être pertinent en lien avec la révision des plafonds d'émission.

4. Exemples d'informations recueillies

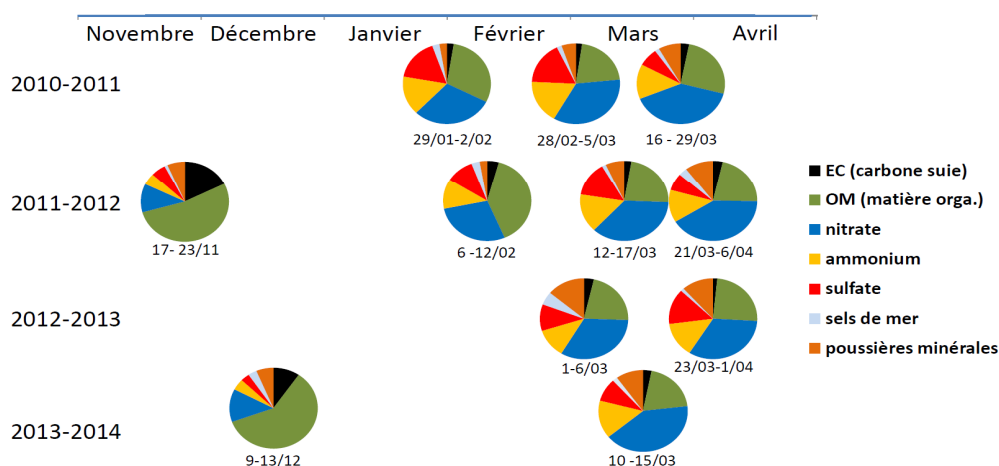
La présente section permet d'illustrer différentes applications du programme CARA (de l'analyse rapide des épisodes de pollution à l'étude de sources sur le long terme), par une série d'exemples récents.

4.1 Episodes de pollution

Nature chimique

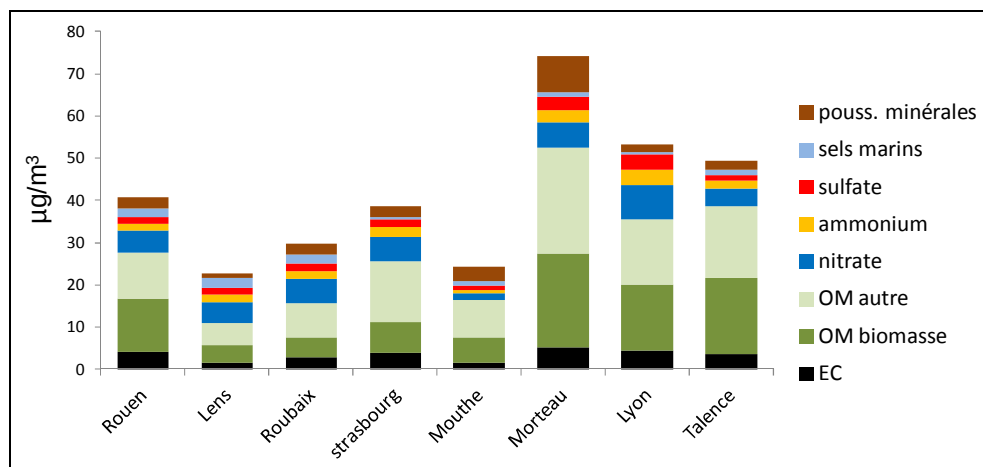
La majorité des épisodes de pollution de grande ampleur apparaissent entre mi-novembre et mi-avril. Ils sont très fortement influencés par les émissions de combustion (chauffage, transport) en début d'hiver, puis par la formation de particules secondaires à partir de précurseurs gazeux (NH₃, SO₂, NO_x, COVs, etc ..) en fin d'hiver - début de printemps.

Répartition des espèces chimiques majeures lors des 10 plus importants précédents épisodes de pollution particulaire (au moins 5 jours consécutifs présentant une moyenne globale en PM₁₀ > 50 µg/m³) à Petit-Quevilly (fond urbain, Air Normand):



Episode de début décembre 2013

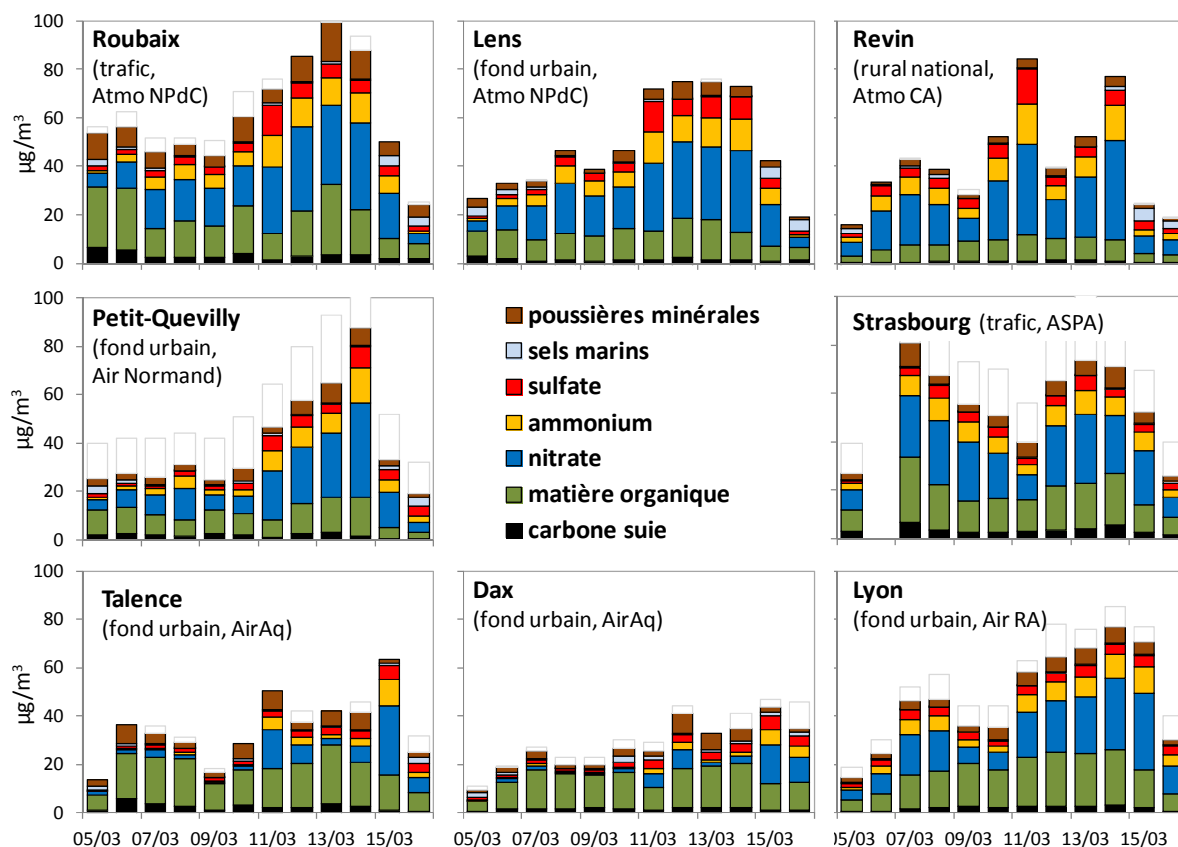
En décembre 2013, la plupart des régions françaises ont été impactées par des concentrations élevées de PM₁₀. Le programme CARA a mis en évidence la forte influence des sources de combustion, dont chauffage bois, au sein des particules



Episode de mars 2014 :

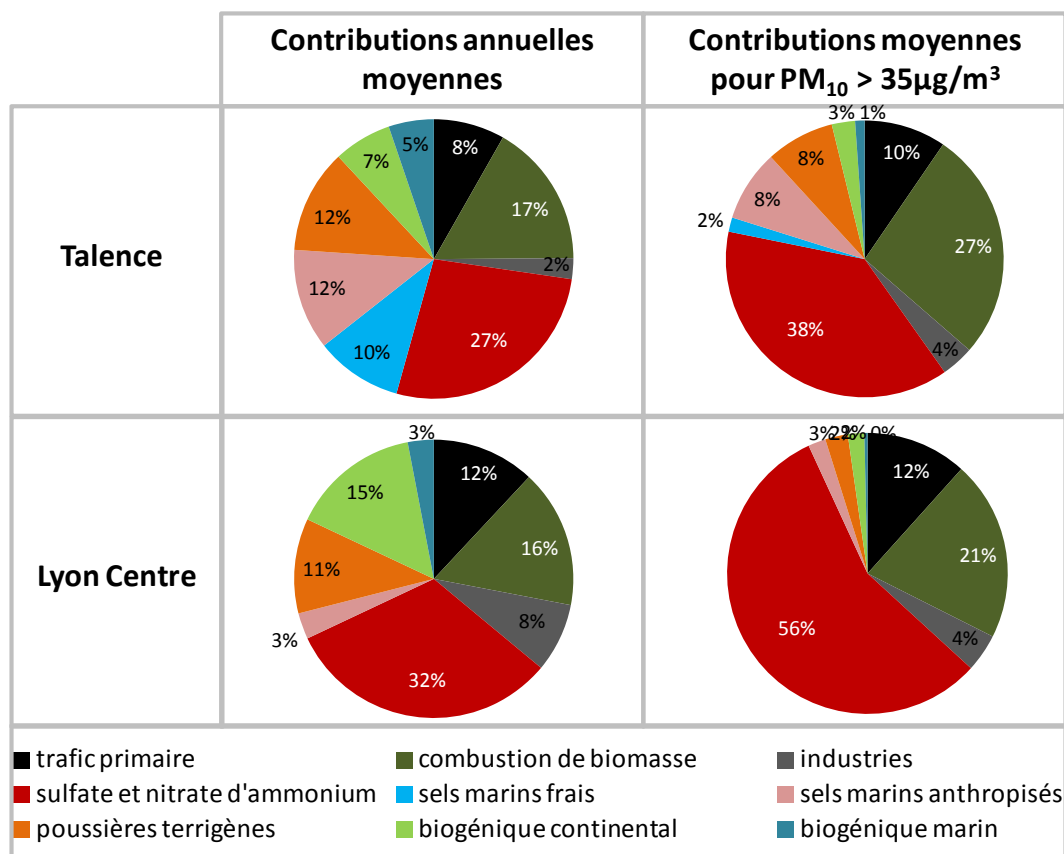
En mars 2014, la France a connu un épisode important de particules dont les analyses ont montré qu'il était dominé par le nitrate d'ammonium.

Evolution des espèces chimiques majeures au sein des PM₁₀ entre le 5 et 16 mars 2014

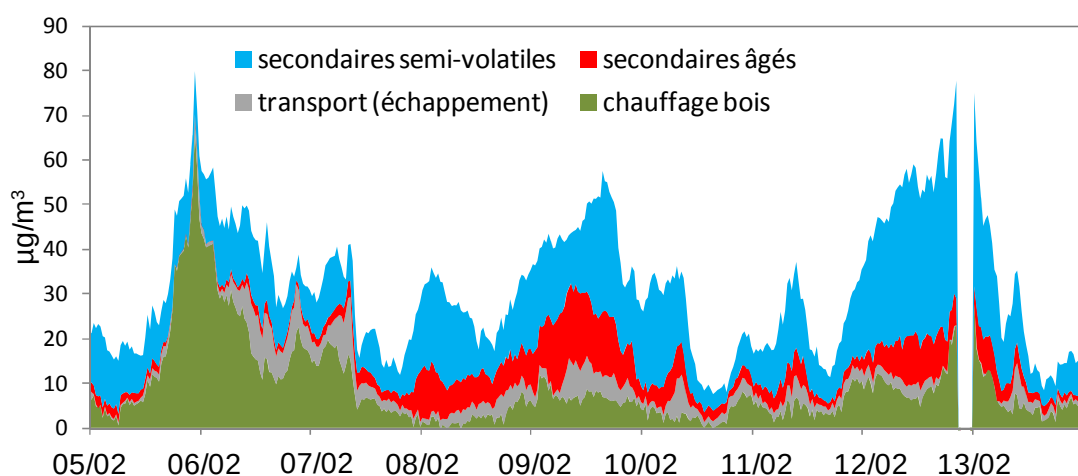


4.2 Etudes de sources

L'exploitation de prélèvements journaliers sur filtres à l'échelle pluriannuelle permet, en s'appuyant sur des outils statistiques de type *Positive Matrix Factorization*, de réaliser des analyses d'études de sources. Les graphiques ci-dessous illustrent la situation pour les sites de Lyon Centre (Air Rhône-Alpes) et Talence (AIRAQ) en 2012-2013.



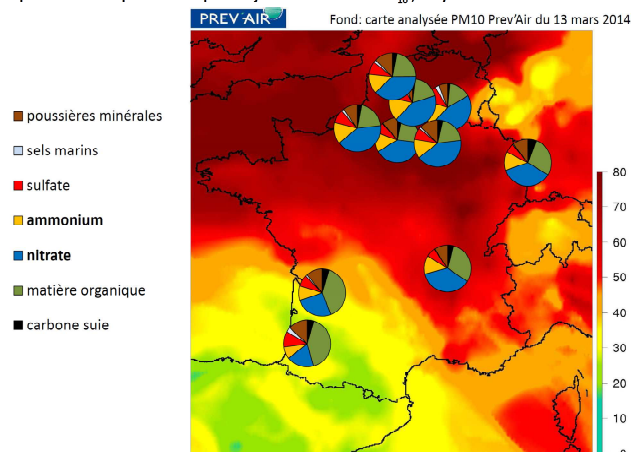
Avec des traitements similaires sur les données recueillies à l'aide des analyseurs automatiques, par exemple par couplage des mesures AE33 et ACSM, il est possible de préciser, en continu, les sources principales de particules. Le graphe ci-après présente les résultats lors d'un épisode de pollution de début février 2012 observé au SIRTAL-LSCE.



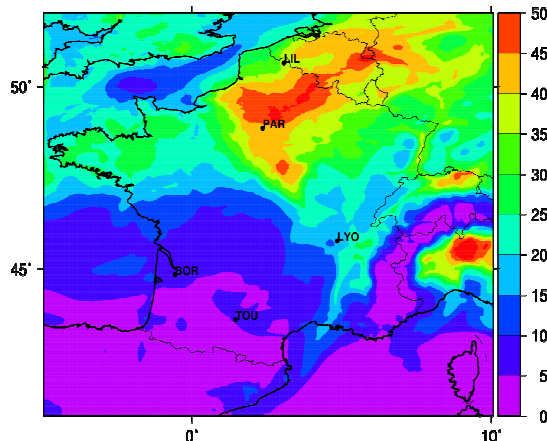
4.3 Comparaisons mesure/modèle

Le programme CARA permet également de confirmer le bon fonctionnement du système Prév'Air et il contribue également à son amélioration. Ainsi, en mars 2014, les analyses ont validé les bonnes prévisions spatio-temporelles de Prév'Air.

Répartition des espèces chimiques majeures au sein des PM₁₀, moyenne du 11 au 15 mars 2014



Estimation des concentrations de nitrate d'ammonium



4.4 Contentieux

La Directive 2008/50/CE autorise le retranchement des contributions naturelles lors de la vérification du respect des valeurs limites fixées pour les PM₁₀. Les résultats du programme CARA peuvent notamment être utilisés à cette fin.

Cela a été le cas pour la justification de la fermeture, en 2012, de la station *Bons Enfants* de l'Observatoire Réunionnais de l'Air (La Réunion), dont les dépassements de valeurs limites ont pu être directement attribués aux embruns marins.

Particules en suspension (PM₁₀)
Conformité aux valeurs limites fixées par la Directive 2008/50/CE

ANNEE	2008	2009	2010	2011
Moyenne annuelle				
Bons Enfants	44	48	46	36
Luther King	28	31	30	22
Nombre de dépassements du seuil journalier de 50 µg/m³				
Bons Enfants	82	128	85	41
Luther King	1	8	13	1

Avant retranchement

Particules en suspension (PM₁₀)
Conformité aux valeurs limites fixées par la Directive 2008/50/CE

ANNEE	2008	2009	2010	2011
Nombre maximal de dépassements du seuil journalier sur la station BON après retranchement de la contribution minimale des embruns marins par estimation objective				
Bons Enfants	≤ 15	≤ 30	≤ 28	≤ 5
Moyenne annuelle maximale estimée pour la station BON après retranchement de la contribution minimale des embruns marins (µg/m³) par estimation objective				
Bons Enfants	≤ 36	≤ 40	≤ 38	≤ 29

Après retranchement

5. Principaux points d'amélioration et perspectives

Afin de renseigner au mieux la nature des épisodes de pollution en temps réel, il convient :

- de renforcer le dispositif de mesures automatiques via l'équipement en ACSM d'un nombre limité de stations du dispositif national,
- de maintenir une veille technique sur de nouvelles technologies adaptées à la surveillance opérationnelle (e.g., analyseurs automatiques de NH₃, de métaux).

En parallèle, l'un des objectifs du PNSQA vise à mettre en place un accord national collectif volontaire définissant les modalités de mise en œuvre des mesures et des échanges entre les acteurs du dispositif national. A cette fin, il est nécessaire :

- de structurer les échanges et la bancarisation des données (au sein de Géod'Air), en interne du dispositif de surveillance et également en collaboration avec les laboratoires de recherche,
- d'organiser les échanges d'informations, en particulier lors des épisodes de pollution de grande ampleur.

Enfin, une plus ample valorisation des travaux du programme CARA est également à envisager via la diffusion de rapports techniques et scientifiques au niveau européen et de la rédaction de publications scientifiques.

6. Eléments financiers

Actuellement, le programme CARA repose notamment sur un budget annuel pour le LCSQA d'environ 2 ETP et des dépenses externes d'environ 160 k€/an, réparties à parts globalement égales entre (i) le maintien du dispositif sur filtres et l'analyse des épisodes de pollution, (ii) son exploitation pour des études de sources à l'échelle pluriannuelle, et (iii) le développement du dispositif de mesure automatique.

Le coût de fonctionnement annuel nécessaire à l'AASQA pour le maintien d'un point du dispositif sur filtres est d'environ 1/10 ETP technicien (~ 10 k€). Par ailleurs, le tableau ci-dessous synthétise une estimation des coûts unitaires d'investissement, de fonctionnement et les moyens humains nécessaires à différents types d'analyseurs automatiques :

	Investissement (TTC)	fonctionnement	moyens humains (technique + étude)
AE33	40 k€	5 k€ / an	1/10 ETP / an
ACSM	160 k€	10 k€ / an	1/4 à 1/2 ETP / an
MARGA	env. 160 k€	25 k€ / an	1/4 à 1/2 ETP / an
Analyseur de métaux	env. 200 k€	20 k€ / an	1/3 ETP / an
Analyseur de NH ₃	40-60 k€	5 k€ / an	1/10 ETP / an

ANNEXE 2

Réunion de travail- Groupe utilisateurs "Analyseurs de black carbon AE33"

Compte Rendu de la réunion du 16 janvier 2014

10h – 16h30 / Salle 30N47 (Grand Arche – Paroi Nord)

Etat actuel du réseau d'AE33 et perspectives de développement au sein des AASQA présentes à la réunion:

LCSQA/INERIS : 2 analyseurs ont été commandés en 2012 et testés au LCSQA puis mis à disposition d'Air Normand et Airaq (sites urbain de fond). Le LCSQA souligne son besoin de retour d'expérience complémentaire des AASQA utilisatrices.

ASPA : un achat est prévu en 2014 pour être installé en milieu urbain à Strasbourg (évaluation de PPA).

Air Rhône-alpes : un AE33 est installé à Lyon centre depuis une semaine et connecté sur une station FDE pour l'acquisition des données. Un AE31 (aîeul de l'AE33) est utilisé dans le cadre d'un programme de recherche avec le LCME sur Lanslebourg. Au travers d'un autre programme de recherche avec le LGGE, 3 AE33 sont installés sur Chamonix, Passy et Cluses (reliés également à une station FDE). Le protocole de communication a été développé rapidement par FDE (grâce à un appareil prêté par Ecomesure). Pour les appareils installés dans la vallée de l'Arves, les rouleaux de filtre doivent être changés toutes les 2 à 3 semaines lors de forts épisodes de PM.

Air PACA : 2 analyseurs vont être achetés en 2014 pour être installés en fond urbain.

Air Lorraine : un AE33 a été récemment réceptionné. Son installation est prévue dans un premier temps sur une station urbaine. Un deuxième appareil sera certainement acquis en 2014.

AIRPARIF : Depuis fin novembre 2007, utilisation des MAAP (mesure du black carbon à une seule longueur d'onde et par réflectance) pour poursuivre l'historique de mesure des fumées noires. Projet PREQUALIF initié en 2011 et poursuivi depuis 2013 par le projet REBECCA sur une dizaine de stations (présentation ppt ci-jointe). Ce mini-réseau est équipé de différents instruments : MAAP, AE42, AE31 et AE33. Ce dernier instrument présente le plus grand intérêt d'utilisation en AASQA, notamment en raison de sa fiabilité et des informations qu'il est susceptible de fournir. Dans le cadre de REBECCA, et en collaboration avec l'INERIS, AIRPARIF a financé le développement d'un protocole d'extraction de données pour les systèmes d'acquisition ISEO (cf. ci-dessous).

Atmo Poitou-Charente : Probablement un achat en 2014.

AIRAQ : Un achat prévu en 2014 pour remplacer celui du LCSQA actuellement en prêt. Peut être un 2^{ème} instrument à mobiliser sur des problématiques locales de chauffage au bois (exemple : Dax).

Pierre-Yves Guernion réalise un retour d'expérience sur l'utilisation d'un AE33 sur la station de Talence depuis fin 2012 (cf. présentation ppt ci-jointe). Il met notamment en avant la robustesse de l'instrument, ainsi que sa facilité d'utilisation. Mise en évidence de cycles saisonniers et journaliers marqués pour les composantes « combustion de biomasse » et « trafic routier » du black carbon. Nécessité de bien définir les protocoles QA/QC.

Atmo Champagne-Ardenne : 2 analyseurs prévus en 2014 (si soutien du MEDDE). Un serait installé en fond urbain et l'autre dans un moyen mobile sur la région.

Air Normand : Un AE33 du LCSQA est installé à Petit Quevilly en parallèle des prélèvements CARA PM10 et 2,5. Depuis octobre 2013, un AE33 a également été acheté et installé en parallèle. Achats prévus pour 2014 (en parallèle sur site trafic pour évaluer représentativité spatiale ? ou au Havre pour investiguer d'autres sources ?).

Nicolas Lepelley réalise un retour d'expérience sur l'utilisation d'un AE33 sur la station de Talence depuis fin 2012 (cf. présentation ppt ci-jointe). Il souligne notamment le besoin de définir des critères de maintenance et soulève la question de l'automatisation de la récupération des fichiers journaliers et du choix des variables pour le calcul d'indicateurs.

Mise en œuvre harmonisée à l'échelle nationale:

Décision : Le LCSQA produira en 2014 un guide méthodologique pour l'utilisation de l'AE33, se basant notamment sur les retours d'expériences et échanges réalisés au cours de la présente réunion. Une première version sera envoyée fin février aux personnes présentes pour avis.

Sites d'implantation :

Cyril Pallarès pose la question du choix de type de sites à instrumenter (e.g. fond urbain vs. trafic ?).

Au niveau national, il existe un double intérêt à la mise en œuvre de mesures AE33 sur différents sites urbains du dispositif :

- Suivi long-terme d'indicateurs d'impact des évolutions sociétales ou de plans d'actions et mesures d'urgence orientées « trafic » et/ou « biomasse » ;
- Cartographie nationale de l'impact de la combustion de biomasse en fond urbain sur une douzaine de sites (hiver 2014-15 et suivants).

Dans ce contexte, la priorité d'installation des AE33 est donnée à des sites urbains de fond. Néanmoins, l'implantation complémentaire d'AE33 sur un ou plusieurs sites de proximité automobile reste intéressante en particulier dans le cadre de l'évaluation de l'efficacité de mesures de réduction des émissions de l'axe routier étudié.

Rouleaux de filtres : Yann Pellan suggère la possibilité de les acheter directement auprès de Pall-Gelman. Christophe Ampe indique qu'il faut se renseigner auprès du constructeur de l'AE33 (Aerosol d.o.o.) et alerte sur le délai d'approvisionnement, actuellement de 3 mois.

Logiciel interne : Olivier Favez indique qu'une nouvelle version du logiciel interne est à installer sur les appareils déjà en service. Cette version calcule automatiquement la contribution de la combustion de biomasse (BB%) aux concentrations de black carbon mesurées. Il sera indiqué dans un guide d'utilisation à paraître la version du soft à utiliser.

Décision : La LCSQA va vérifier que les mesures de BB% fournies par l'AE33 sont comparables à la littérature et aux calculs Excel développés par Olivier Favez.

Ligne de prélèvement : Christophe Ampe indique que la qualité du tube souple fourni par Ecomesure n'est pas identique à celui fourni par Magee. Des tests sont en cours chez le fabricant pour valider la qualité de ce tube.

Il est recommandé d'isoler la partie de ligne de prélèvement en station pour éviter la condensation et les chocs thermiques.

Tête de prélèvement : Yann Pellan informe que les raccords de la tête PM_{2,5} BGI sont fragiles et que la longueur de ligne fournie est trop courte. Les autres utilisateurs confirment ce dernier point. Le LCSQA fera remonter cette information à Ecomesure.

Olivier Favez souligne que le black carbon est très majoritairement présent dans la fraction ultrafine, le choix de la tête de prélèvement TSP, PM_{2,5} ou PM₁₀ ne devrait donc pas avoir d'enjeux majeurs sur l'interprétation des résultats. En mesure TSP, il y a un risque de passage de grosses particules, ou d'insectes et d'encrassement de la cellule de mesure.

Pierres Yves Guernion alerte que si le choix se porte sur l'utilisation de tête PM_{2,5}, cela nécessite de percer toutes les stations en cas de l'utilisation d'un AE33 en itinérant.

Décision : Pas d'utilisation des têtes PM₁₀ pour des raisons de coûts et de risque de perte dans la ligne d'échantillonnage. Réalisation de tests pour évaluer la différence entre PM_{2,5} et TSP avant de faire un choix puis d'harmoniser le réseau. Nicolas Lepelley évalue la faisabilité pour que les tests soient réalisés par Air Normand.

Séchage des particules pendant le prélèvement : Sur demande du LCSQA, le fabricant a indiqué que le séchage n'est requis qu'en cas de fortes humidités (DOM-TOM) mais n'est pas utile sous le climat européen.

Décision : pas de séchage des particules pour la métropole française. (Tests à réaliser dans les DOM ?).

Débit de prélèvement : le débit est mesuré et régulé par un débitmètre massique. Il est donc nécessaire d'y relier des mesures de température et de pression pour obtenir des concentrations aux conditions réelles. Or l'AE33 ne possède pas de série d'une mesure des conditions ambiantes, hormis par la connexion à une mini-station météo proposée comme accessoire.

Décision : Il est convenu que les concentrations soient rapportées aux volumes réels comme pour toutes mesures de PM. Il est fortement recommandé d'équiper les AE33 de la station météo. *ad hoc* afin d'obtenir automatiquement des concentrations avec volumes réels. Dans le cas contraire, l'AASQA effectuera une correction manuelle des données obtenues par défaut sur le mode « AMCA ».

Le LCSQA va suggérer à Ecomesure d'inclure par défaut la station météo. avec l'AE33 pour le prix actuel de l'instrument seul.

Sonde CO2 : Christophe Ampe et Oliver Favez informent qu'il y a également la possibilité d'ajouter une mesure de CO2. Il n'y a actuellement aucune connaissance sur la fiabilité ni la précision mais ce pourrait être intéressant pour les études liées au facteur d'émission. Il va être demandé à Ecomesure et/ou Aerosol d.o.o. de nous en prêter une.

Calibration : Les cales étalons vendues par Ecomesure vont être achetées par le LCSQA/ INERIS. Ces dernières seront mises à disposition des AASQA à chaque réparation ou à minima une fois par an sur demande. En cas d'écart, il faudra renvoyer l'appareil au constructeur.

Acquisition des données :

Air RA (FDE) : développement FDE pour consultation automatique de la base de données de l'instrument. Opérationnel. L'appareil renvoie une soixantaine de paramètres, mais il faut configurer par paramétrage sur POLAIR celles qui seront traitées comme des mesures (récupération automatiques) de celles à considérer comme des voies techniques (accessibles lors du suivi rapide). Yann Pellan indique également que les pré-alarmes présentées sur la notice (-10 spots, -5 spots) ne sont pas présentes sur fichier de log. Discussion en cours entre Aerosol et FDE. *Précisions par mail (10/02/2014) de YP à ce sujet : « Nous avons eu en fait plusieurs arrêts mesures sur les AE33 avec le code d'état 387 (fin de papier + stop) et sans les codes d'état -10 (128) et -5 spots (256) mais qui ne correspondaient pas à une fin de rouleau ; Dans ce cas, le code 387 correspond aussi au fait que le rouleau n'est pas bien serré, il glisse, et donc ça arrête les mesures. Après changement du rouleau bien vérifier le bon serrage de la bobine réceptrice pour éviter ce problème. Les codes existent bien en cas de "vrai fin de rouleau" ».*

AirAq : tests en cours pour l'implantation des développements FDE ci-dessus.

AirParif : développement ISEO en cours.

Présentation de Christophe Josserand : Acquisition automatique des données AE33

La demande du LCSQA à AEROSOL d'implémenter le protocole QAIR JBUS dans l'AE33 a pour objectif de limiter le développement de nouveaux protocoles dans les différents types de stations d'acquisition en favorisant l'utilisation d'un protocole ouvert et non propriétaire déjà existant dans les stations et donc accessible à l'ensemble des AASQA.

CJ évoque la proposition qui sera présentée au CSIA concernant les stations et la prise en compte de la problématique des protocoles analyseurs :

Etendre le schéma d'homologation aux systèmes d'acquisition en rénovant les spécifications techniques pour revenir à un cadre cohérent standardisé et interopérable. Pour les protocoles, il s'agirait de rendre configurable les tables d'informations des principaux protocoles numériques analyseurs existants.

intégrer la problématique du protocole analyseur dans le schéma d'homologation des analyseurs en définissant des exigences aux constructeurs qui pourraient être par exemple la réutilisation de protocoles analyseurs déjà implémentés dans les stations (QUAIR JBUS et quelques autres protocoles principaux à définir) et dont les tables de mesures & infos techniques devront pouvoir être configurés sur les systèmes d'acquisition

Pour CJ, seule la mise en place d'un cadre formel dans le schéma d'homologation permettra d'imposer cet objectif aux constructeurs.

En attendant, le LCSQA relancera AEROSOL pour l'implémentation du protocole JBUS QAIR dans les AE33.

Décision : Implantation du protocole JBUS QA à réaliser.

Traitement des données :

Présentation d'Olivier Favez, sur le fonctionnement de l'AE33 et du traitement des données *a posteriori*. Ce traitement sera détaillé et expliqué dans le guide d'utilisation à paraître.

La mesure directe réalisée par l'AE33 est l'absorbance du BC (B_{abs}) réalisée sur 7 longueurs d'ondes différentes. Cette mesure est ensuite pondérée d'un coefficient MAE (« Mass Absorption Efficiency ») spécifique à chaque longueur d'onde et déterminé empiriquement. Ce coefficient peut être vérifié par comparaison avec la mesure thermo-optique de EC/OC sur filtres (également dépendante de la méthode utilisée). Airparif, l'INERIS et le LSCE réalisent actuellement des tests pour évaluer les MAE de sites de différentes typologies en fonction des saisons. Olivier Favez indique que les MAE peuvent varier plus rapidement, parfois d'un jour à l'autre (notamment lors des épisodes photochimiques).

Décision :

- Il est décidé de conserver en base de données les mesures brutes de toutes les longueurs d'ondes pour pouvoir revenir sur les données dans l'avenir si nécessaire.
- Tous les utilisateurs conservent les MAE définis par défaut dans l'AE33. Les données seront alors diffusées sous la forme d'équivalent BC. (Dans l'attente de résultats des tests en cours)

Divers :

Air Normand fait part d'un problème lorsque de la récupération sur clé usb qui occasionne des bugs dans les fichiers.

Le LCSQA va demander à Ecomesure de réaliser une formation AE33 aux AASQA en faisant l'acquisition.

Olivier Favez propose la réalisation d'une campagne d'intercomparaison AE33 pendant 3 semaines (mai - juin 2014). Un appel à candidature sera lancé prochainement par mail.

Le groupe d'utilisateurs constitué lors de la présente réunion ne souhaite pas la constitution d'un GT spécifiquement dédié à la mise en œuvre des AE33. En revanche, les questions relatives à l'interprétation et la valorisation des données AE33 seront discutées en GT « Caractérisation Chimique et Etudes de Sources des PM », dont les points jugés importants sont rapportés en CS PM. En parallèle, le groupe d'utilisateurs AE33 servira de plateforme d'échanges d'informations concernant les aspects techniques ainsi que les méthodologies de traitement de données.

Réunion de travail- Groupe utilisateurs "Analyseurs de black carbon AE33"

Compte Rendu de la réunion du 28 septembre 2015

10h – 16h30 / INERIS Hauteville

Retours d'expérience AASQA:

Il est rappelé qu'afin d'élaborer le guide méthodologique AE33, il est essentiel d'avoir, en premier lieu, un retour d'expériences des AASQA qui comprend non seulement un retour sur la validation des données mais aussi le retour sur les problèmes purement techniques.

Aspects techniques

- Installation en cabine (positionnement vis-à-vis de la climatisation). Ne pas mettre l'appareil ou la ligne de prélèvement en face de la clim° (expérience Air Normand). Plus de 20 % de valeurs négatives.

- Tête à utiliser (5 l/min ou 2 l/min, PM_{2.5}, PM₁ suivant la typologie des sites) :

Utilisation recommandée de la tête PM_{2.5} sur les sites de fond. Sur certains sites trafic (en particulier en IDF), le changement de tâche est trop rapide, aussi, il est question pour ces sites de recommander la tête PM₁ en fonctionnant à 2 L/min : permet de couper à « presque » 2.5 µm (2.9 µm en l'occurrence). Tests à faire (NPDC, IDF ? rien de figé).

- Lignes de prélèvement : installation à la verticale dans la mesure du possible, longueur de ligne... Recommander 3m maximum. Des tests seront à réaliser pour des lignes plus longues que 3 m.
- Fréquence de nettoyage des lignes (même procédure que pour les gaz, 1 à 3 mois), des têtes (de 1 à 3 mois), de la chambre (6 mois ou moins). Des distinctions seront à faire selon la typologie des sites (encrassement rapide en site trafic). Définir si les opérations de nettoyage doivent se faire au laboratoire ou sur le terrain.
- Passage de cale optique annuel (faire attention à la dérive en longueur d'onde des LED). Mise en circulation des cales LCSQA pour les AASQA qui en ont besoin (fiche calibration LCSQA LNE/INERIS à partir de 2016). Un circuit de circulation doit être défini. Les AASQA intéressées peuvent se manifester auprès du LCSQA. Dans le cas d'un écart supérieur à 10 %, il faut renvoyer l'analyseur au fournisseur (Ecomesure ou Aerosol, à définir), car la maintenance ne peut être faite soit même.
- Utilisation ou non d'un sécheur notamment sur les sites fortement humides ou lors de période de forte humidité (membrane Nafion). L'utilisation d'un sécheur est une recommandation d'ACTRIS pour les mesures optiques. Il conviendrait de tester les bénéfice/coût pour différentes typologies de sites. A tester en 2016 au niveau LCSQA. A ce jour, cette option n'est pas recommandée, sauf sur les DOM.
- Gestion des maintenances et réparation en associant le LCSQA pour discussion avec Ecomesure et Aerosol.
- Utilisation des sondes CO₂. Problème de communication en lien avec la version du soft ? (Air PACA).
- Utilisation des sondes T° et P.
- Etalonnage du débit. Recommander les débitmètres adaptés dans le guide (Tétracal certainement). Ecart acceptable sur le débit: 5% devra être validé après un retour d'expérience. Fréquence au minimum à chaque changement de rouleau et tous les 3 mois.
- Tests de fuite acceptable à 10 %. Fréquence tous les 6 mois.

Remarque : Ecomesure augmente a priori les prix des consommables et des pièces (rouleaux, têtes...) de façon injustifiée. Il est préconisé d'intégrer ces éléments dans la négociation groupée, voire, de regarder s'il n'est pas possible d'acheter certaines de ces pièces par un autre canal (cas des têtes, qui semblent également commercialisées par ADDAIR à un coût moindre), ou d'en référer directement à Aerosol

Remarque : Airparif précise qu'en cas de valeurs bruitées, ou négatives, il est intéressant de regarder les tâches à l'œil nu :

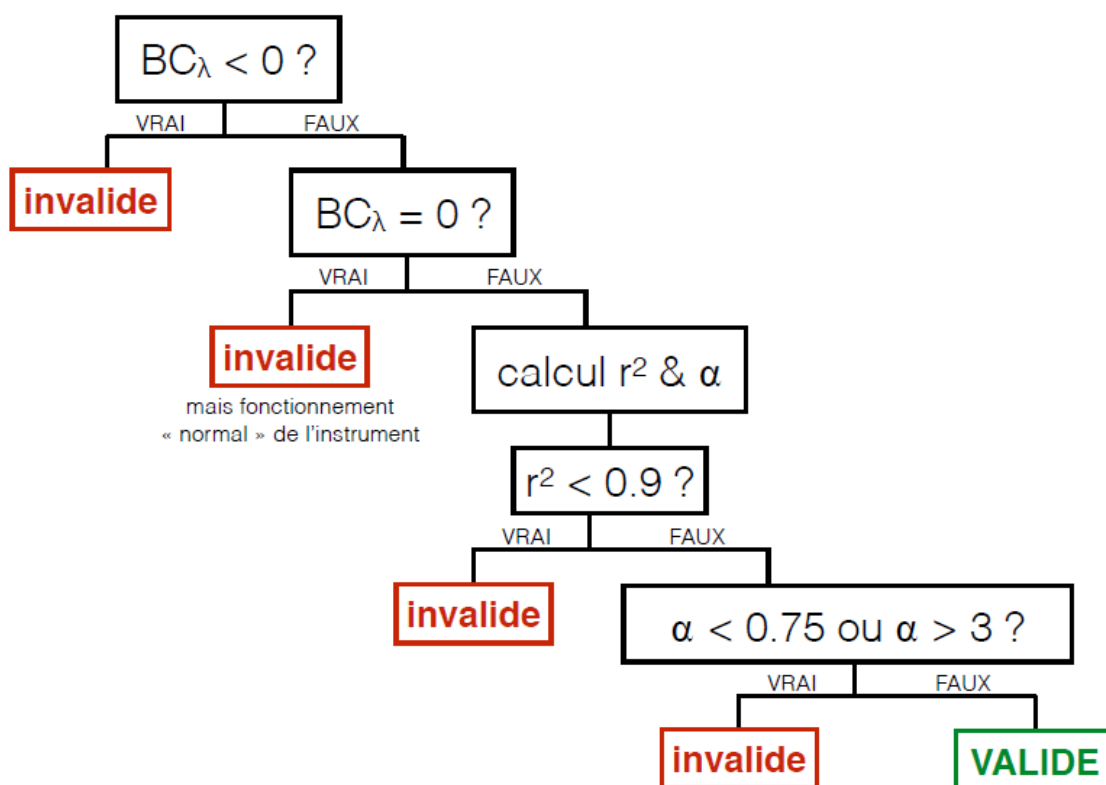
- Valeurs bruitées peuvent être signe de la présence d'un insecte dans la chambre de mesure
- Valeurs négatives : peut être synonyme de la présence d'humidité, la tâche a alors bavé.

Corrélations BC6 avec NO sur trafic et NO₂ sur site fond urbain.

Validation des données:

Présentation : **Air Lorraine** (J.-E. Petit) : Traitement & Validation des mesures AE33 à Metz Borny

Le schéma de validation des données a été discuté (cf, figure ci-dessous).



- OK pour les deux premières étapes
- pour $r^2 < 0,9$, a priori OK pour invalidation
- Selon les sites, alpha ou r^2 est discriminant. Globalement, au niveau quart horaire (QH), il y a moins d'1 % données invalidées avec ces critères.
- pour les règles sur les α , il n'y a pas consensus entre
 - o utiliser des règles strictes, entraînant invalidation (quitte à adapter les limites des α en fonction des sites : cas des vallées alpines où α peut aller jusqu'à 3)
 - o utiliser les limites plutôt en warning, et invalidation au cas par cas des données

- en particulier, sur site rural IDF, il semble que l'application stricte de la règle des α enlève beaucoup de données (Air Paris).
- les autres régions utilisent plutôt ces règles en règles strictes (Lorraine, Aquitaine...)
- A noter que les règles α et r^2 ne peuvent pas faire l'objet d'un processus de validation automatique car :
 - o Sur Polair, les calculs sont faits en dehors du PC et réimportés
 - o Sur Xair, les α et r^2 sont des mesures composites, qui font appel aux mesures, et donc il y a un risque de « référence circulaire »

Discussion sur les calculs réalisés au niveau des SAM :

- Lors des changements de tâche, l'appareil renvoie une mesure égale à 0, qui serait codée A. Ainsi, dans le cas de changement de tâche à cheval sur 2 QH, il est possible que la moyenne soit faussée par la prise en compte de ces 0
 - o Ceci est à vérifier par les AASQAs en comparant les fichiers analyseurs et les données QH puis retour à faire au GT.
- L'utilisation du BB % n'est finalement pas une bonne idée, car la SAM fait la moyenne des % observés sur le QH, qui ne reflète pas strictement le % moyen sur le QH (ex : si au début du QH des % très forts sur des valeurs de BC très faibles, et l'inverse sur la suite du QH, la moyenne des % sera « moyenne », alors que le % moyen sur le QH doit être faible).
 - o O. Favez a déjà fait la demande à Aerosol pour que ce soit le BCwb (concentration massique) qui sorte directement de l'appareil plutôt que BB %. En attente d'une réponse sur ce point.

Remarque : il en est de même pour les agrégations horaires et journalières. Il convient de ne pas utiliser BB %, mais de recalculer la part de BCwb à partir des données élémentaires de BCwb et de BC.

Mise à jour du software :

- La dernière version à ce jour 1.1.7.2 est disponible sur le site d'Aerosol. Il faut la demander à Ecomesure et l'installer (possibilité de solliciter le LCSQA aussi si besoin pour en disposer). Si des problèmes sont constatés avec les nouvelles versions de soft, il convient de faire un retour à l'ensemble des utilisateurs. Pour exemple, lors de la mise à jour du soft, l'appareil a tendance à se remettre tout seul en mode 1 seconde : bien vérifier après la mise à jour que l'appareil est en mode 1 minute (Air RA).
- Ecomesure doit renvoyer une version à jour du guide d'utilisation, prenant en compte la nouvelle version du soft (cf. version 1.53 du « user manual » d'Aerosol).
- En lien avec la CS automatique, les versions à utiliser des softwares seront à mettre à disposition sur le site du LCSQA à la page de la CS « mesures automatiques » (voir avec F. Mathé).

Remarque : les codes « D » liés au débit ne sont pas à prendre en compte lorsque l'on fonctionne en conditions réelles de prélèvement. En effet, ce code « D » est normalement à utiliser uniquement en conditions standards de prélèvement. Il s'agit d'un bug logiciel, qui doit normalement être résolu avec la nouvelle version de soft.

Pour les SAM FDE, il est question de l'installation d'un ralentisseur de débit : il n'y a pas consensus sur le sujet. Semble nécessaire sur certains sites, mais pas tous. Peut également ne pas suffire : à creuser...

Point sur les campagnes d'intercomparaison de l'hiver 2014-15 :

Présentation : LCSQA-INERIS (O. Favez) : « intercomp. hiver 2014-2015 »

Intercomparaison 2 à 2 AE33

Exercice réalisé cet hiver sur une demi-douzaine de sites du dispositif national français. Comparaison de 2 AE33 installés sur un même site pdt 2-3 semaines.

Les résultats montrent que :

- Sur BC6, pentes varient de 0,97 à 1,08, avec des bonnes corrélations ;
- Sur BCwb, les données sont beaucoup moins bien corrélées et des pentes allant jusqu'à 1,2 sont obtenues. Néanmoins, un bon accord général est obtenu.

Comparaison AE33/filtres

Les travaux ont été réalisés en collaboration avec le LGGE pour les mesures chimiques (EC notamment). Ce travail a fait l'objet d'un rapport de stage qui pourra être envoyé aux AASQAs mais en utilisation restreinte.

- Plusieurs tests de sensibilités ont été réalisés sur les α intégrés dans l'appareil (ex : α_{ff} maintenu à 1, et α_{wb} variant entre 1,94 et 2,53). Il est au final préconisé de ne pas toucher aux α dans le soft, et de garder α_{ff} égal à 1 et 2 respectivement pour ff et wb.
- Bonne corrélations entre BCwb et concentrations de levoglucosan. Cela conforte les hypothèses de calcul pour l'estimation de PMwb.
- Le ratio absorbance (ou MAC / MAE) / EC a été réalisé. Il varie de 7 à 13 m²/g, avec une moyenne, tous sites confondus, de l'ordre de 9-10. En l'état, il est décidé de ne pas toucher aux coefficients MAE présents dans le soft, et de rester sur l'existant pour les raisons décrites ci-dessous.
- Les résultats sur l'équivalence (ou plutôt la non-équivalence) BC/EC, confirment la tendance observée au niveau européen :
 - o La notion, initialement pressentie, de normalisation du EC, et de la démonstration d'équivalent du BC est abandonnée.
 - o Chaque paramètre, EC et BC, fera l'objet d'une normalisation spécifique.

⇒ Ainsi, au niveau de l'intégration dans la future révision de la Directive, alors qu'EC était initialement pressenti, il semble que ce soit plutôt BC qui soit désormais pressenti

- o A la fois pour son double impact réchauffement climatique/sanitaire.
- o Pour sa facilité à mettre en œuvre par mesure automatique.

Remarque : Il convient d'être vigilant, car les Allemands ont tendance au niveau du CEN à préconiser plutôt l'utilisation du MAAP que de l'AE33 (lobbying à prévoir).

ANNEXE 3

Réunion de travail- Groupe utilisateurs "ACSM"

Compte Rendu de la réunion du 3 décembre 2015

10h – 16h30 / INERIS Hauteville

Cette réunion officialisait le lancement du « groupe utilisateur ACSM » qui aura pour objectif d'échanger sur les aspects techniques relatifs à la mise en œuvre de cet instrument au sein du dispositif national de surveillance de la qualité de l'air, le transfert automatique des données sur les postes centraux, ainsi que la validation, le traitement et la valorisation de ces données.

Le LCSQA encourage vivement les personnes concernées à faire vivre les activités de ce GU au travers de discussions et/ou de retours d'expérience (description des problèmes rencontrés, des solutions trouvées) par échanges d'emails au sein de l'ensemble de la mailing list qu'il mettra à jour sur demande des AASQA.

Pour cette première réunion, étaient présents des représentants de chacune des six Associations Agréées de Surveillance de la Qualité de l'Air (AASQA) concernées par l'utilisation d'un ACSM, le distributeur Français (ADDAIR) ainsi que des représentants de l'INERIS et du LNE pour le LCSQA.

Adoption de l'ordre du jour :

Approbation de l'ordre du jour suivant :

- 1) Validation de l'OdJ
- 2) Retours d'expérience (AASQA) sur la formation (26-27/10) et les installations en station
- 3) Bilan des tests à réception (LCSQA)
- 4) Mise en œuvre de l'instrument en routine (suivi des paramètres de fonctionnement et « tunnings »)
- 5) Récupération des données primaires (concentrations et paramètres techniques) sur les postes centraux
- 6) Validation des données primaires
- 7) Gestion des pannes et contrats de maintenance
- 8) Nouvelle fiche étude LCSQA 2016 sur le QA/QC (dont étalonnage et vérification externe) des analyseurs automatiques de la composition chimique des PM
- 9) Exploitation des données primaires, en particulier lors des épisodes de pollution
- 10) Méthodologies de traitement de données avancées (e.g. PMF) : présentation des possibilités actuelles et perspectives de développement.
- 11) Questions diverses

Retour d'expérience des AASQA sur la formation (26-27/10) et les installations en station

Air Lorraine et Air RA ayant acquis et installés leur ACSM en 2014, seules quatre AASQA (AIRAQ, AIRPARIF, ATMO Picardie et ATMO Poitou-Charentes) étaient concernées par la formation des 26 et 27 Octobre 2015 (au LSCE). Cette formation a été jugée utile et réalisée sur une période suffisamment longue par les AASQA, sachant qu'un rappel des procédures a également été

effectué le jour de l'installation sur site par ADDAIR. Le manuel d'utilisation en français délivré par ADDAIR est jugé pertinent et très clair.

Trois ACSM (AIRAQ, AIRPARIF, ATMO PC) ont été installés au cours du mois de novembre 2015. Ces trois installations se sont bien déroulées. L'installation de l'ACSM d'ATMO PICARDIE est programmée le 07 décembre 2015.

L'utilisation d'un onduleur (300W minimum) est fortement conseillée, notamment en cas de coupure d'électricité supérieure à quelques minutes. D'après ADDAIR, les ACSM sont dotés d'une batterie interne qui leur permet d'activer le mode de sécurité en cas de coupure d'électricité (i.e. fermeture de la vanne, coupure des tensions et des pompes). ADDAIR propose de vérifier (à l'aide de leur numéro de série) que ce dispositif est bien disponible sur tous les ACSM du groupe utilisateur.

Tête de prélèvement : la ligne de prélèvement (de type inox) livrée avec l'ACSM étant relativement souple, il est suggéré aux ASQAA de la fixer à l'aide d'un trépied et/ou de remplacer ce tube de prélèvement par un tube inox plus rigide. Il est également demandé à ADDAIR de proposer un cyclone permettant l'installation d'une ligne de prélèvement ne présentant pas de courbure.

Bilan des tests a réception

Rappel

A l'issue de la formation des 26 et 27 octobre, le LCSQA/INERIS s'est proposé de réaliser des tests à réception sur les quatre nouveaux ACSM du dispositif national du 28 octobre au 10 novembre 2015, afin de valider le bon fonctionnement des instruments et d'aider les AASQA à réceptionner le matériel.

Une première série de calibrations (dont l'alignement des lentilles et l'efficacité d'ionisation IE) a été effectué le 29 octobre. Une deuxième série de calibrations, incluant l'efficacité d'ionisation relative (RIE) du sulfate, a été réalisée le 10 novembre. Entre ces deux dates, les 4 instruments ont effectué des mesures en parallèle sur la même ligne de prélèvement.

Les données relatives à chaque instrument ont été analysées séparément puis comparées entre elles.

Une note, résumant l'ensemble des observations et des conclusions de l'INERIS a été transmise à chaque AASQA en amont de la présente réunion.

Conclusion des tests

Les mesures délivrées par les quatre instruments ont été très cohérentes pendant la période de tests. Les coefficients de calibrations (IE & RIE) ont pu être validés. Ces coefficients de calibration sont reportés dans les notes techniques et ont été paramétrés par ADDAIR lors des installations.

Néanmoins, une anomalie a été détectée sur l'ACSM ATMO PC lors de cette phase de test : chute aléatoire de l'intensité du signal pour les masses les plus élevées ($m/z > 50$). Cette anomalie n'a pas été observée de nouveau à l'issue de l'installation sur site. Il est donc probable que ce problème soit lié à un problème électronique ponctuel, et ne se reproduise pas. Néanmoins, il est recommandé de rester vigilant sur cette observation dans les semaines à venir.

Par ailleurs, plusieurs plantages du détecteur ont été observés au cours des phases de test, mais également suite aux installations sur site (cf. section 4 ci-dessous). Lors de ces plantages, il revient à l'opérateur de redémarrer le PC, le détecteur, et de relancer l'acquisition.

Pas d'autres disfonctionnement observés.

Comparaison aux mesures sur filtres

Il est prévu de vérifier le bon fonctionnement des ACSM sur site à l'aide de mesure sur filtres de la fraction PM1 des particules. Les filtres seront analysés à l'INERIS afin de déterminer les concentrations en OC (et EC) et en anions-cations (dont nitrate, sulfate, chlore et ammonium).

Les prélèvements ont commencé entre mi-novembre et début décembre sur l'ensemble des sites, sauf à Creil (ATMO PICARDIE) puisque l'installation n'avait pas eu lieu le jour de la réunion.

Pour chaque station, une première série d'analyses chimiques sera effectuée sur la première quinzaine de filtres prélevés, en vue d'une comparaison aussi rapide que possible avec les mesures ACSM.

Un minimum de 40 points de comparaison semble adéquat pour chaque campagne. Au regard du calendrier et de la possibilité de n'avoir que des faibles concentrations au cours des semaines à venir, il est envisagé de pouvoir prolonger cette première série de campagnes jusqu'à la mi-avril 2016. Une sélection de filtres à analyser sera alors effectuée en partenariat avec l'AASQA afin de garantir l'étude de larges gammes de concentrations.

Mise en œuvre de l'instrument en routine

Le LCSQA/INERIS rappelle les principaux points clefs de la mise en œuvre d'un ACSM (cf. présentation 2015 12 03 GU ACSM.pptx), reprenant notamment les préconisations développées lors de la formation (cf. présentation réalisée par ADDAIR lors de la formation).

Plusieurs plantages du détecteur ont été observés par l'ensemble des utilisateurs. Ceux-ci se manifestent par le « gèle » des écrans du PC ou bien la perte de la connexion avec le détecteur, parfois accompagné d'un message d'erreur. En particulier, le détecteur Prisma connaît des dysfonctionnements aléatoires, qui nécessitent un redémarrage. Ce redémarrage peut être effectué de différentes manières :

- Redémarrer le détecteur à partir de l'option intégrée dans le soft des pompes
- Redémarrer à partir de l'option intégrée dans la dernière version du DAQ (soft ACSM)
- Débrancher/rebrancher le câble d'alimentation du Détecteur Prisma
- Utiliser VNC viewer
 - o lancer VNC viewer.
 - o renseigner l'adresse IP du détecteur Prisma et se connecter
 - o cliquer sur exit.
 - o puis relancer programme QMStart qui se trouve dans Flashdisk.

Ces problèmes sont connus du constructeur et de la communauté scientifique internationale. Air RA et Air Lorraine indiquent avoir également subi ce type de problème après à plusieurs reprises, mais soulignent également que leur instrument connaît de longues phases (plusieurs mois) d'utilisation sans plantage lorsqu'aucune intervention de maintenance n'est réalisée.

Atmo PC indique que certains de ces plantages étaient dus à l'utilisation du port Ethernet pour communication à distance. Il est conseillé d'utiliser plutôt l'un des ports USB.

Air RA rappelle que la procédure de redémarrage du système doit être réalisé dans l'ordre suivant :

- ✓ Reboot du détecteur Prisma
- ✓ Eteindre le PC
- ✓ Rallumer le PC
- ✓ Attendre quelques minutes pour que la communication entre le PC et le Prisma se stabilise
- ✓ Allumage du DAQ
- ✓ Relancer l'acquisition

Il est possible de mettre en œuvre cette procédure à l'aide de TeamViewer.

Air RA indique également utiliser une option de POLAIR permettant une alerte automatique par SMS lorsqu'un arrêt du rapatriement des données est détecté. Les utilisateurs de XR sont invités à vérifier si une telle option est disponible.

Un stock de pièces détachées devrait être disponible via ADDAIR (pompe primaire, filament, kit de maintenance de pompe, orifice critique).

Récupération des données primaires sur les postes centraux

Rappel

L'ACSM ne peut pas se connecter directement aux systèmes d'acquisition en station utilisés pour les autres analyseurs. Ainsi, l'intégration des mesures en temps quasi-réel dans les postes centraux nécessite une étape de récupération des données sur le PC d'acquisition.

L'activation de la routine Igor (« ACSM_Export_Panel »), permettant d'écrire les données sous la forme d'un fichier *.csv sur le PC local, est décrite dans le manuel utilisateur délivré par ADDAIR.

JE Petit (AIR LORRAINE) a développé une routine permettant de générer un fichier *.csv reprenant l'ensemble des paramètres à récupérer sur les postes centraux (cf. chapitre 6). Il propose de travailler à la modification de cette fonction Igor pour qu'elle s'active automatiquement au démarrage.

Ce fichier *.csv peut ensuite être exporté par exemple sur un serveur ftp. Pour ce faire, AIRPARIF propose d'utiliser le logiciel « Auto ftp manager ». La version payante (env. 50 euros) est plus adaptée que la version gratuite (cette dernière semblant engendrer des plantages), notamment car elle offre la possibilité de réaliser plusieurs tâches en même temps.

Les données écrites dans les fichiers *.csv sont exactement celles affichées sur le graphique du module de traitement des données Igor (ACSM Local). Il est donc important que le logiciel de traitement des données (ACSM Local), soit correctement configuré en amont l'export des données. L'opérateur doit bien s'assurer lors de ses vérifications de routine, que les RIE, IE, CE, les corrections d'AirBeam et de RIT ont bien été configurés puis activés en utilisant l'onglet « apply corrections ». En effet, l'ensemble de ces paramètres ne sont pas automatiquement configurés au démarrage, il revient donc à l'opérateur de le faire en suivant les instructions du manuel fourni par ADDAIR.

AIR RA (POLAIR) et AIRPARIF (XR) ont déjà développé les routines et procédures nécessaires à l'intégration des données sur leurs postes centraux (sous Shell et Python respectivement). Ils se proposent de communiquer aux autres AASQA les outils informatiques et les procédures utilisées. Chaque AASQA est invité à se rapprocher d'une de ces deux AASQA en fonction du type de poste central utilisé (Polair ou XR).

Il est recommandé de récupérer également les données du sécheur qui se situent dans un autre répertoire (Cf adresse du répertoire configuré dans le logiciel du sécheur). Cette récupération peut également être effectuée par export sur un serveur ftp. Néanmoins, la routine Igor « ACSM_Export_Panel » développée par le constructeur (ARI) devrait, à terme, permettre de récupérer ces données du sécheur (ainsi que celles des pompes) sur le même fichier *.csv que celui des données de l'ACSM. L'activation de cette commande a déjà été demandée à ARI à plusieurs reprises. ADDAIR doit se renseigner à nouveau auprès d'ARI sur le délai attendu pour cette optimisation de la génération des fichiers de données.

Codes constituants

Les codes constituant de l'ACSM ont été présentés lors de cette réunion. Ils sont reportés dans les tableaux 1 et 2 :

Tableau 1 : Liste des codes constituant relatifs à l'ACSM.

Code	Libellé	TYPE	Symbole	Unité
I1	Concentration Matière Organique PM1	polluants particulaires	Org	µg/m ³
I2	Concentration Sulfate PM1	polluants particulaires	SO ₄	µg/m ³
I3	Concentration Nitrates PM1	polluants particulaires	NO ₃	µg/m ³
I4	Concentration Ammonium PM1	polluants particulaires	NH ₄	µg/m ³
I5	Concentration Chlore PM1	polluants particulaires	Chl	µg/m ³
I6	Efficacité de collection de MiddleBrook	Efficacité de Collection	CE_dry	
I7	Levoglucosan ACSM	Polluants particulaires		µg/m ³
I8	Masse 60 PM1	Polluants particulaires	mz60	µg/m ³
I9	Masse 43 PM1	Polluants particulaires	mz43	µg/m ³
IA	Masse 44 PM1	Polluants particulaires	mz44	µg/m ³
IB	Masse 55 PM1	Polluants particulaires	mz55	µg/m ³
IC	Masse 57 PM1	Polluants particulaires	mz57	µg/m ³
ZD	Paramètres techniques ACSM	X	x	X
68	PM1	Polluants particulaires	PM1	µg/m ³
39	PM2.5	Polluants particulaires	PM2.5	µg/m ³

Tableau 2 : Code constituant des paramètres techniques de l'ACSM

Code	Code discriminant	Définition	unité
ZD	1	Chamber Temp.	Degré C
ZD	2	Airbeam (base e-9)	A
ZD	3	Inlet P	Torr
ZD	4	Vap. Temp.	Degré C
ZD	5	Débit sécheur	m/s
ZD	6	Humidité entrée	%
ZD	7	Humidité sortie	%
ZD	8	OM_tot-brut (base e-10)	A
ZD	9	Masse 60 (base e-12)	A
ZD	A	Masse43 (base e-12)	A
ZD	B	Masse44 (base e-12)	A
ZD	C	Masse55 (base e-12)	A
ZD	D	Masse57 (base e-12)	A
ZD	E	NO3/PM1	%
ZD	F	Org/PM1	%

L'ensemble des mesures décrites sur les tableaux 1 et 2, sont directement récupérables ou bien calculées à partir des fichiers *.csv générés et exportés par le PC local de l'ACSM.

Le fichier *.csv renseigne, entre autre, le signal relatif à certaines masses (m/z) représentatives de différentes familles d'aérosols organiques, en particulier m/z 60, 43, 44, 55 et 57 et 60. Celles-ci sont exprimées en Ampère (A) dans le fichier *.csv. Il convient de les convertir en µg/m³ avant de les rentrer dans le poste central. Le calcul est expliqué dans le tableau 3.

Tableau 3 : Conversion en µg/m³) des valeurs des codes I8, I9, IA ; IB, IC

mz 60 (µg/m ³) (& les autres mz)	$\frac{mz\ 60\ (A) \times Org}{ZD9 \times I11 / ZD8}$
--	---

Une concentration indicative de Lévo-glucosan peut être estimée de façon empirique à partir de la concentration de la masse (m/z) 60. Il s'agit d'une formule tirée de la littérature, qui pourra évoluer avec le temps. Le calcul est reporté dans le tableau 4.

Tableau 4 : Calcul d'une estimation de la concentration de Levoglucosan

Levoglucosan (Aiken et al. 2009 Thèse JEP et al, 2012)	$\left(\frac{mz60 - 0.003 \times Org}{f60_levo} \right) / 3,3 =$ $(I8 - 0,003 \times I1) / f60_levo / 3,3$ Avec f60_levo=0.044
--	--

Codes Méthodes

Trois nouveaux codes méthodes ont été définis pour les données extraites par les ACSMs. Ils sont listés dans le tableau 5.

Tableau 5 : Code méthodes s'appliquant aux mesures ACSM

Code méthode	Méthode	Définition
510	ACSM_brut	Concentration massique (µg/m ³) mesurée ACSM, non corrigées du CE_dry (méthode de MiddleBrook).
511	ACSM_corrige_Ce_dry	Concentration massique (µg/m ³) des espèces mesurées par l'ACSM, corrigées du CE_dry (méthode de MiddleBrook)
512	PM (ACSM+AE33) corrigé_Ce_dry	PM1 reconstitué : Appliqué au code 68.

Les codes méthodes 510 et 511 s'appliquent à l'ensemble des codes du tableau 1. Le code 511 permet de corriger les données ACSM des effets de l'humidité.

En effet, l'ACSM est configuré initialement avec une efficacité de collection (CE) égale à 0,5. Un nouveau CE (noté CE_dry), prenant en compte les effets de l'humidité sur l'efficacité de collection, est calculé par le module d'exportation Igor « ACSM_Export_Panel » et intégré dans les fichiers *.csv.

Le code méthode 511 consiste donc à corriger la mesure « brute », correspondant à la méthode 510 (i.e. calculé avec CE=0.5) par sa nouvelle valeur (i.e. calculée avec CE_dry). En pratique, il n'est pas toujours nécessaire d'appliquer le code méthode 511 aux codes I8, I9, IA, IB, IC (Cf exemple Rhône Alpes, tableau 7).

Le détail du calcul est exposé dans le tableau 6 ci-dessous :

Tableau 6 : codes méthodes 510 et 511

		510 : ACSM _brut (Discriminant =1)	511 : ACSM_Corrigé_CEdry (Discriminant = 2)
Org	I1	Valeurs lues	Valeurs corrigées du CE Middlebrook (CE_dry)
SO ₄	I2		
NO ₃	I3		
NH ₄	I4		
Chl	I5		
CE_dry	I6	I11	I12 = I11 x 0,5/CE_dry
Levoglucosan	I7		
mz60	I8		
mz43	I9		
mz44	IA		
mz55	IB		
mz57	IC	IC1	I22 = I21 x 0,5/CE_dry

Note : il convient de s'assurer qu'une valeur de CE = 0.5 est bien renseignée dans l'ACSM local (« review batch »).

Enfin, une nouvelle méthode s'appliquant aux PM1 a été définie (méthode 512). Il s'agit du « PM1 reconstitué » à partir des mesures ACSM et AE33. Pour la plupart des stations le code discriminant sera égal à 1, sauf pour ceux disposant déjà d'une mesure PM1 par une autre méthode. Le calcul de cette mesure est détaillé dans le tableau suivant.

Tableau 7 : Explication du calcul du PM1 avec la méthode 512.

Mesure	Code	512 : PM corrigé_CE_dry
PM1	68	ACSM + AE 33 OM + NO₃ + NH₄ + SO₄ + Chl + BC I12 + I22 + I32 + I42 + I52 + G6

La méthode 512 peut également s'appliquer au code 39 relatif au PM2.5. Il s'agit d'une estimation du PM2.5 calculée à partir de la mesure « PM1 reconstitué » en appliquant la formule suivante $PM2.5 = 1.25 \times PM1$. Cette mesure est utilisée pour faciliter la comparaison des mesures ACSM avec les mesures réglementaires (par TEOM-FDMS ou Jauge Beta). Elle constitue une valeur indicative pouvant être faussée par la validité du coefficient utilisé (ici 1.25).

Exemple Air RA

Le tableau ci-dessous expose les codes constituants utilisés par AIR RA.

Tableau 8 : Code constituant enregistrés par AIR RHONE ALPES.

me_nmes	me_nom	me_co_ccon	co_ncon	me_unit	me_fmnl	me_meth	me_technique
401	Org - brut	I11	Matière Organiqu	microg/m3	-2	ACSM brut	0
402	SO4 - brut	I21	Sulfate	microg/m3	-2	ACSM brut	0
403	NO3 - brut	I31	Nitrates	microg/m3	-2	ACSM brut	0
404	NH4 - brut	I41	Ammonium	microg/m3	-2	ACSM brut	0
405	Chl - brut	I51	Chlore	microg/m3	-2	ACSM brut	0
406	chamber Temp.	ZD1	Param. technique	degre C	-1	ACSM brut	1
407	Airbeam (base e-9)	ZD2	Param. technique	A	-5	ACSM brut	1
408	Inlet P.	ZD3	Param. technique	Torr	-3	ACSM brut	1
409	Vap. Temp.	ZD4	Param. technique	degre C	-1	ACSM brut	1
410	Masse 60 (base e-12)	ZD9	Param. technique	A	-5	ACSM brut	0
411	Débit sècheur	ZD5	Param. technique	m/s	-3	ACSM brut	1
412	Humidité entrée	ZD6	Param. technique	%	-3	ACSM brut	1
413	Humidité sortie	ZD7	Param. technique	%	-3	ACSM brut	1
414	CE_dry - brut	I61	Effic collection	aucune	-6	ACSM brut	0
415	OM_tot - brut (e-10)	ZD8	Param. technique	A	-6	ACSM brut	0
416	Org - corrigé CE	I12	Matière Organiqu	microg/m3	-2	ACSM corrigé CEdry	0
417	SO4 - corrigé CE	I22	Sulfate	microg/m3	-2	ACSM corrigé CEdry	0
418	NO3 - corrigé CE	I32	Nitrates	microg/m3	-2	ACSM corrigé CEdry	0
419	NH4 - corrigé CE	I42	Ammonium	microg/m3	-2	ACSM corrigé CEdry	0
420	Chl - corrigé CE	I52	Chlore	microg/m3	-2	ACSM corrigé CEdry	0
421	Masse 60 PM1	I81	Masse 60 PM1	microg/m3	-6	ACSM brut	0
422	Levogluconan	I71	Levogluconan	microg/m3	-2	ACSM brut	0
423	Levogluconan corr CE	I72	Levogluconan	microg/m3	-2	ACSM corrigé CEdry	0
424	PM2.5 reconstit ACSM	398	Particule PM2.5	microg/m3	-1	PM corrigé CE_dry	0
425	PM1 reconstitue ACSM	681	Particules PM1	microg/m3	-1	PM corrigé CE_dry	0
426	NO3 / PM1 en %	ZDE	Param. technique	%	-1	PM corrigé CE_dry	0
427	Org / PM1 en %	ZDF	Param. technique	%	-1	PM corrigé CE_dry	0
428	Masse 43 (base e-12)	ZDA	Param. technique	A	-5	ACSM brut	0
429	Masse 44 (base e-12)	ZDB	Param. technique	A	-5	ACSM brut	0
430	Masse 55 (base e-12)	ZDC	Param. technique	A	-5	ACSM brut	0
431	Masse 57 (base e-12)	ZDD	Param. technique	A	-5	ACSM brut	0
432	Masse 43 PM1	I91	Masse 43 PM1	microg/m3	-6	ACSM brut	0
433	Masse 44 PM1	IA1	Masse 44 PM1	microg/m3	-6	ACSM brut	0
434	Masse 55 PM1	IB1	Masse 55 PM1	microg/m3	-6	ACSM brut	0
435	Masse 57 PM1	IC1	Masse 57 PM1	microg/m3	-6	ACSM brut	0
436	SO4+NO3+NH4+Chl	ZYI	Calcul interne	microg/m3	-6	ACSM corrigé CEdry	0

Il est proposé à l'ensemble des AASQA d'utiliser les mêmes codes discriminants que dans le tableau 7, c'est-à-dire 1 et 2 pour différencier les deux méthodes 510 et 511 respectivement. Si les codes discriminant utilisés sont différents, (il n'est a priori pas possible de choisir les codes discriminants lors des paramétrages sous XR), il est demandé d'en informer le LCSQA/INERIS pour le paramétrage des bases de données.

GEOD'AIR

Comme l'ensemble des données du dispositif national, les mesures ACSM ont vocation à alimenter la base de données nationale GEOD'AIR dès que possible.

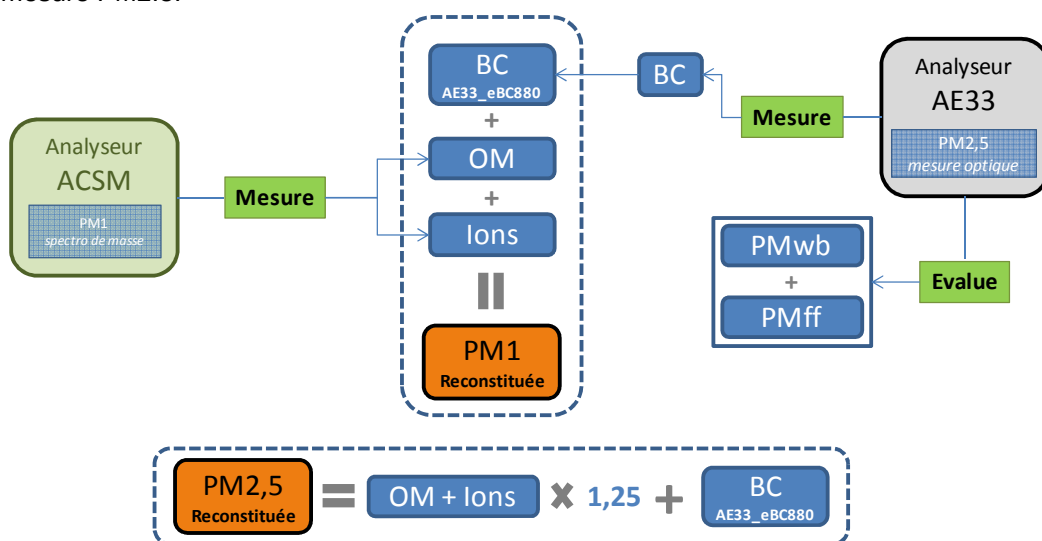
Cette base de données a été récemment paramétrée pour recevoir les données ACSM et AE33. Un test de bon fonctionnement est en cours en collaboration avec Air RHONE ALPES. A l'issu des phases de tests, l'INERIS demandera à l'ensemble des AASQA ayant intégrée les données dans leur poste centraux, d'activer le transfert des données ACSM et AE33.

Validation des données

Le processus global de validation des données ACSM reprend notamment les points étudiés lors des tests à réception et a vocation à être optimisé à l'aide des retours d'expérience AASQA. Il intègre en particulier les points suivants :

- Validation des diagnostics techniques de l'ACSM (pression, Airbeam, Température, Heater Bias Voltage, SEM voltage, Emission du filament).
- Validation du bon fonctionnement des pompes
- Vérification du bon paramétrage de IE et RIE et CE dans le « Review batch »
- Validation des RIE en ayant une pente entre l'ammonium prédit et l'ammonium mesuré de 1 à $\pm 10\%$
- Vérification de l'activation de la correction RIT avec le meilleur ajustement parmi ceux proposés.
- Validation des « PM1 reconstitués » et/ou des « PM2.5 reconstituées » par comparaison aux mesures PM2.5 réglementaires (TEOM ou Jauges Béta)

Ce dernier point est illustré à l'aide des deux graphiques d'Air RA ci-dessous. Les données ACSM ont été couplées avec les données AE33 (ou MAAP) afin de vérifier leur cohérence par rapport aux mesure PM2.5.



- ➔ Groupe **ACSM_Lyon** = matière organique + ions
- ➔ Période de visualisation : 15 jours
- ➔ Pas de temps ¼ horaire

Vérifier :

- ➔ PM2,5 reconstitué ACSM < PM2,5 FDMS
- ➔ corrélation
(PM2,5 reconstitué ACSM = OM + ions)
OM = matière organique



Les « PM1 et PM2.5 reconstitués » à partir des données ACSM et AE33 doivent servir à valider la cohérence des mesures par rapport aux mesures des mesures réglementaires en PM2.5.

La mesure « PM2.5 reconstitué » doit être considérée avec méfiance car elle est calculée à l'aide d'un facteur empirique qui n'est pas constant dans le temps et dans l'espace. Une estimation

indépendante et en temps réel du ratio PM1/PM2.5, par exemple à l'aide d'un indicateur optique, pourrait permettre de contraindre ce facteur de conversion et ainsi d'optimiser la comparaison entre PM2.5 reconstitué et PM25 réglementaire. Cette estimation permettrait également d'évaluer la part des concentrations d'espèces non-réfractaires PM2.5 non analysées par l'ACSM.

Gestion des pannes et contrat de maintenance

Air RA, Air Lorraine évoquent brièvement les quelques pannes rencontrées jusqu'ici :

- Des dysfonctionnements ont été rencontrés par le passé sur les vannes positionnées au niveau du filtre total en entrée de lentille aérodynamique. Ce problème était lié à un défaut en série sur les vannes. Celles-ci ont depuis été échangées. Ce type de problème n'a plus été rencontré.
- Air RA et Air Lorraine ont connu chacun une panne qui a nécessité l'échange d'une carte électronique. Les causes étaient différentes mais dans les deux cas le constructeur a planifié un échange complet des cartes électroniques concernées. Le démontage de ces cartes a pu être géré par l'opérateur AASQA en suivant les consignes du constructeur.

Le LCSQA demande à Air Lorraine et à Air RA s'ils ont commandé leur instrument avec une extension de garantie sur 3 ans, et si les quatre autres AASQA souhaitent prendre cette option. Les personnels AASQA présents n'ont pas de certitude sur ces points. Le LCSQA propose que des échanges spécifiques soient menés prochainement en interne du dispositif national, si les AASQA le souhaitent.

Fiche étude LCSQA QA/QC ACSM 2016

Le LCSQA en 2016 ouvre une fiche étude relative à la qualité des données ACSM.

Les actions concernant l'ACSM sont les suivantes (cf pièce jointe) :

- ✓ Accompagnement des AASQA pour la mise en œuvre des ACSM en station (rédaction d'un mode opératoire / guide de bonnes pratiques, animation du groupe d'utilisateurs, schéma de validation des données, etc ...).
- ✓ Réalisation d'étalonnages sur site.
- ✓ Optimisation du dispositif de calibration (en lien avec prog. ACTRIS et développement de l'ACMCC).
- ✓ Vérification externe du bon fonctionnement des instruments (campagnes de mesures sur filtres).
- ✓ Tests à réception des nouveaux analyseurs (le cas échéant).

Exploitation des données

- Utilisation des données lors des épisodes pollution

Comme discuté lors du « GT CARA » de mars 2015, les informations à privilégier pour l'exploitation des données et la communication lors des épisodes de pollution sont les contributions de différentes espèces mesurées par ACSM (%OM, %NO₃, %SO₄) et AE33 (PM_{wb} et PM_{ff}).

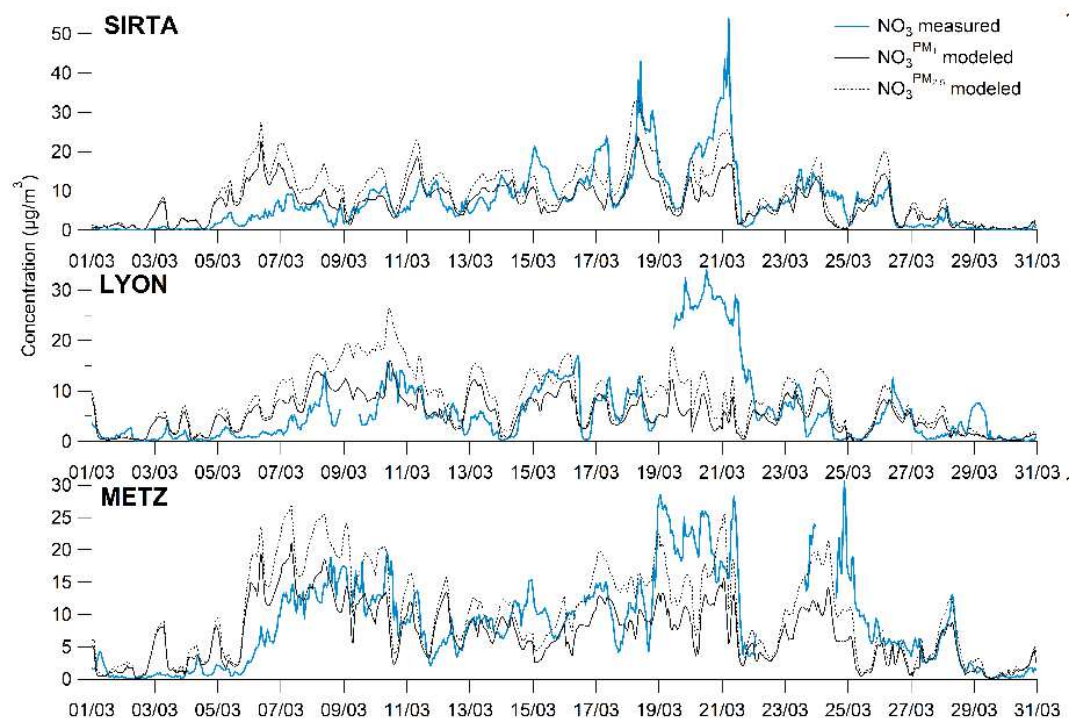
- Méthodologie corrélation avec les régimes météo

Air RA rappelle qu'il est intéressant de corréler les concentrations avec les données météo et notamment avec les rétro trajectoires de vent.

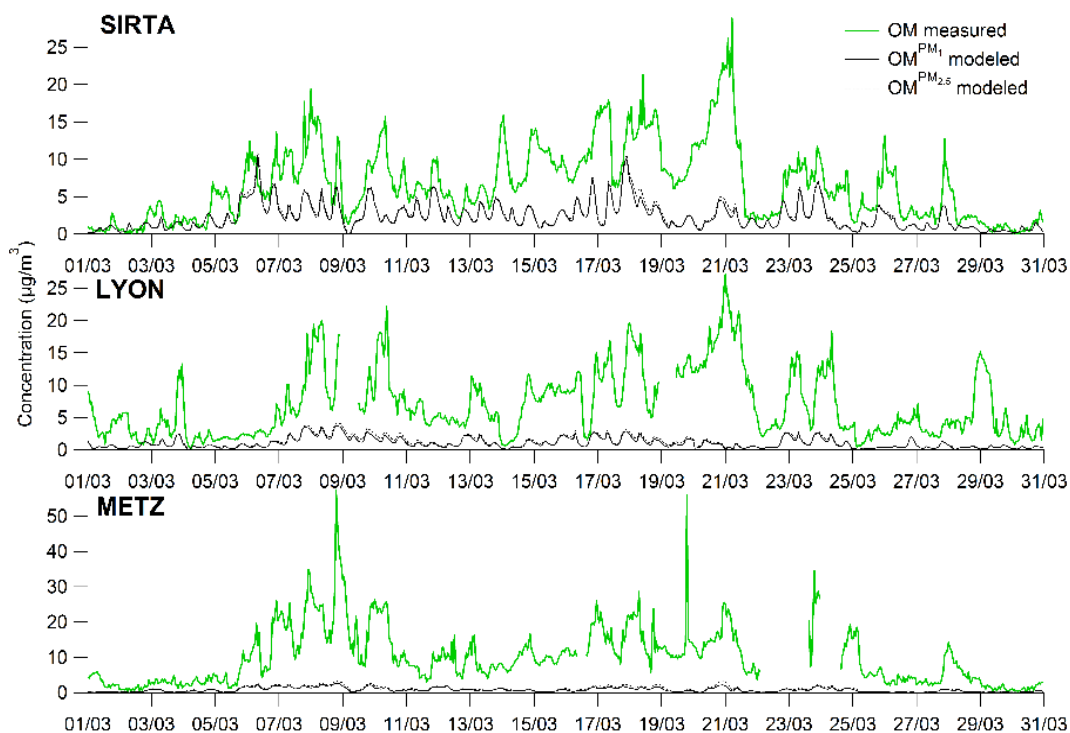
- Comparaison avec les modèles

Les données ACSM peuvent être très utiles pour valider et/ou optimiser les modèles numériques qui proposent eux aussi des données à forte résolutions temporelles.

Pour exemples, les figures ci-dessous sont issues d'une collaboration scientifique entre l'INERIS, Air Lorraine, Air RA et le LSCE. Elles représentent la comparaison entre les données mesurées par ACSM et les valeurs modélisées par le système Prev'Air au cours du mois de mars 2015 sur trois sites du dispositif de surveillance de la qualité de l'air.



Variation temporelle des concentrations mesurées et modélisées de Nitrate



Variation temporelle des concentrations mesurées et modélisées de matière organique

Méthodologie de traitement des données avancées (PMF)

Des résultats de traitement de données ACSM à l'aide d'outils statistiques de type *Positive Matrix Factorization* (PMF) ont été présentés lors de cette réunion par JE Petit, sur la base de ses récents travaux de thèse (collaboration INERIS-LSCE). Cette méthodologie permet d'obtenir des informations sur les profils des sources de PM, leur contribution relative et leurs variations temporelles.

Appliquée aux données ACSMs, cette méthode permet en premier lieu de mieux caractériser les différentes sources contribuant à la mesure de la matière organique (en particulier combustion de biomasse, de dérivés du pétrole, sources biogéniques, aérosols organiques secondaires). Les travaux de thèse réalisés par JE Petit indiquent qu'il est également possible de mieux caractériser les différentes sources de PM1 en intégrant, dans une approche de double-PMF, les mesures AE33 et les aérosols inorganiques (cf. présentation thèse de Jean Eude Petit).

Ces méthodologies de traitement de données sont actuellement appliquées *a posteriori* après obtention de séries temporelles relativement longues (typiquement 2 mois) et il n'existe pas aujourd'hui d'outil automatisé de traitement de données délivrant une estimation en temps quasi-réel de l'influence des principales sources de PM à partir des mesures ACSM. L'INERIS indique qu'il va entamer des travaux visant à développer ce type d'outils, dans le cadre de la « fiche étude CARA 2016 » et de ses programmes de recherche.

Il est par ailleurs à souligner que la PMF est un outil complexe qui implique une part de subjectivité dans le choix des solutions retenues. Le LCSQA étudie la possibilité de délivrer des formations théoriques pour l'utilisation de ce genre de méthodologie, possiblement dans le cadre des formations groupées sur les outils statistiques proposées par le LCSQA/INERIS (et réalisées par Laure Malherbe et/ou Maxime Beauchamp, ayant rejoint le GU en fin de réunion). Olivier Favez a également déjà proposé de travailler directement avec les personnels des « services études AASQA » sur leurs propres jeux de données à l'aide des outils développés par la communauté scientifique. L'achat d'une licence nécessaire à la mise en œuvre de ces logiciels est à envisager.

Enfin, un groupe utilisateur dédié à la mise en œuvre de la PMF pourra être créé si besoin.



direction et secrétariat du LCSQA

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