



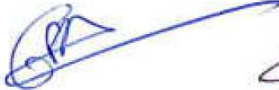
Programmes de recherche expérimentaux pour l'étude des sources de PM en air ambiant

Laboratoire Central de Surveillance de la Qualité de l'Air

PROGRAMMES DE RECHERCHE EXPERIMENTAUX POUR L'ETUDE DE SOURCES DE PM EN AIR AMBIANT

Tanguy AMODEO et Olivier FAVEZ (INERIS)
Jean-Luc JAFFREZO (IGE)

Décembre 2017

	Rédaction	Vérification	Approbation
NOM	Olivier FAVEZ	Tanguy AMODEO	Marc DURIF
Qualité	Ingénieur de l'Unité CIME Direction des Risques Chroniques	Ingénieur de l'Unité CIME Direction des Risques Chroniques	Responsable du Pôle CARA 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 l'IMT Lille Douai, de l'INERIS et du LNE. Il mène depuis 1991 des études et des recherches à la demande du Ministère chargé de l'environnement, et en concertation avec les Associations Agréées de Surveillance de la Qualité de l'Air (AASQA). Ces travaux en matière de pollution atmosphérique ont été financés par la Direction Générale de l'Énergie et du Climat (bureau de la qualité de l'air) du Ministère chargé de l'Environnement. Ils sont réalisés avec le souci constant d'améliorer le dispositif de surveillance de la qualité de l'air en France en apportant un appui scientifique et technique au ministère et aux AASQA.

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

TABLE DES MATIERES

RESUME	7
1. INTRODUCTION	8
2. PROGRAMMES PERENNES EUROPEENS ET NATIONAUX.....	9
2.1 Programme EMEP et réseau MERA.....	9
2.2 Programme ACTRIS	13
2.3 Programme CARA.....	17
3. PROJETS DE RECHERCHE A L'ECHELLE NATIONALE	24
3.1 PARTICUL'AIR	24
3.2 INACS.....	27
4. PROJETS DE RECHERCHE A L'ECHELLE REGIONALE.....	32
4.1 Nord de la France : projet JOAQUIN	32
4.2 Région Ile de France	34
4.2.1 PARTICULES	34
4.2.2 MEGAPOLI	38
4.2.3 FRANCIPOL.....	40
4.2.4 PREQUALIF(-IZNOGOUUD-BARC) puis REBECCA	42
4.3 Zones Rhône-Alpes et PACA.....	47
4.3.1 Projet FORMES	47
4.3.2 Projets ALCOTRA	48
5. PROJETS DE RECHERCHE LIES A LA COMBUSTION DE BIOMASSE	51
5.1 Impact de la source chauffage au bois sur la commune de Lanslebourg.....	51
5.2 DECOMBIO	53
6. PROJETS DE RECHERCHE LIES AUX SOURCES VEHICULAIRES	57
6.1 Impact du Salage sur les concentrations de PM ₁₀ en Rhône-Alpes.....	57
6.2 MOCOPo & PM-DRIVE	59
7. PROJETS DE RECHERCHE LIES AUX SOURCES INDUSTRIELLES.....	63
7.1 VALLEE DES PAILLONS & PACTES	63
7.2 APICE	64
8. PROJETS DE RECHERCHE LIES AUX SOURCES MARINES	67
ECUME	67

9. CONCLUSIONS ET PERSPECTIVES.....	70
10. REFERENCES.....	74

La compréhension de la pollution atmosphérique et l'amélioration de la qualité de l'air nécessitent l'identification et la quantification des contributions des principales sources d'émission. Pour ce faire, deux grands types de méthodologies sont principalement utilisées : (i) celles se basant sur l'utilisation de modèles numériques permettant de simuler le devenir des polluants dans l'atmosphère à partir de cadastres d'émission et de la paramétrisation des conditions météorologiques et des processus physico-chimiques de (trans-)formation des PM ; (ii) celles se basant sur la mesure de la composition chimique (et/ou de la granulométrie) des particules sur un site récepteur et l'utilisation de traceurs spécifiques aux différentes sources étudiées. Si les modèles numériques doivent permettre d'apporter des informations en tout point du territoire et selon des échelles temporelles aussi larges que souhaité, leur validation nécessite des comparaisons avec les résultats obtenus par la mise en œuvre de méthodologies expérimentales. En raison de leur coût, ces dernières ne peuvent être que ponctuelles (dans l'espace et/ou dans le temps). Néanmoins, basées sur l'observation, elles rendent compte de situations réelles et constituent une étape importante pour une meilleure maîtrise de ces outils.

Le présent document constitue une mise à jour du rapport de veille bibliographique sur les études scientifiques visant l'identification et la quantification des sources de particules fines dans l'air ambiant (PM₁₀ et PM_{2,5}) en France. Plus spécifiquement, il traite des travaux de recherche impliquant des AASQA et/ou le LCSQA, et met l'accent sur la mise en œuvre de méthodologies de traitement de données expérimentales pour l'amélioration des connaissances sur les sources anthropiques en milieu urbain au cours des dix dernières années. Ce travail est également intégré au projet SOURCES, co-financé par l'ADEME (2014-2017) et mis en œuvre par les auteurs du présent rapport.

Parmi les points marquants de ce travail de veille, et d'un point de vue méthodologique, on notera que :

- l'ensemble des projets décrits ici mettent en œuvre des méthodologies de traitement de données relativement élaborées, dépassant l'utilisation des approches mono-traceurs ;
- les différents programmes et projets de recherche mis en œuvre ces dernières années ont permis à la France de combler son retard dans l'utilisation de l'outil PMF (*Positive Matrix Factorization*) par rapport à ses voisins européens ;
- les approches basées sur la mesure des isotopes stables de différents constituants de la phase particulaire restent encore trop peu utilisées, en raison des coûts élevés d'analyse et de la faible disponibilité des quelques chaînes analytiques dédiées à ce type de mesures ;
- les méthodologies basées sur la mesure automatique de la composition chimique des PM se développent rapidement.

Les principales conclusions concernant les contributions des sources majeures de PM sont également mises en exergue pour chacune des études répertoriées ici.

1. INTRODUCTION

Les particules fines (PM) constituent une des classes de polluants atmosphériques les plus préoccupantes en matière de santé publique, entraînant le renforcement de la législation européenne sur les niveaux de PM ainsi que l'élaboration d'objectifs nationaux ambitieux pour l'amélioration de la qualité de l'air (e.g., PNSE2). La réalisation de ces objectifs nécessite un effort important de réduction des émissions des principales sources anthropiques, ces dernières devant être préalablement identifiées et quantifiées aussi finement que possible.

L'élaboration de plans d'action efficaces présente un intérêt d'autant plus important pour les pouvoirs publics que la France se trouve toujours confrontée à un contentieux européen pour non-respect des valeurs limites de PM₁₀ sur différentes zones du territoire national au cours des dernières années.

La mesure des propriétés physico-chimiques des PM sur un ou plusieurs site(s) récepteur(s) permet une meilleure connaissance de la nature des particules issues d'une multitude de sources d'émission et/ou de mécanismes de transformations atmosphériques. Un nombre croissant de travaux internationaux portent également sur l'utilisation de ce type d'informations expérimentales pour estimer la contribution relative des principales sources ou classes d'aérosols secondaires.¹⁻² Certains de ces outils ont été mis en œuvre en France depuis une dizaine d'années dans le cadre de différents programmes et projets de recherche.

Le présent document constitue une mise à jour du rapport de veille bibliographique sur les études scientifiques visant l'identification et la quantification des sources de particules fines dans l'air ambiant (PM₁₀ et PM_{2,5}) en France. Plus spécifiquement, il traite des travaux de recherche impliquant des AASQA et/ou le LCSQA, et porte l'accent sur la mise en œuvre de méthodologies de traitement de données expérimentales pour l'amélioration des connaissances sur les sources anthropiques en milieu urbain au cours des dix dernières années.

Il est à noter qu'un travail de synthèse bibliographique de ce type ne peut se prétendre exhaustif. Le présent rapport rend compte des programmes et projets de recherche pour lesquels suffisamment d'informations ont été mises à disposition par les responsables scientifiques et/ou financeurs ayant pu être identifiés.

2. PROGRAMMES PERENNES EUROPEENS ET NATIONAUX

2.1 Programme EMEP et réseau MERA

Objectifs

EMEP (European Monitoring and Evaluation Programme) est un programme créé en lien avec la convention sur la pollution transfrontière longue distance (Convention on Long Range Transboundary Air Pollution : CLRTAP) signée en 1979. Basé sur une coopération des différents états européens, il est le support scientifique de cette convention pour résoudre les problèmes de pollution transfrontière. Etablissant un cadre d'action coopérative et de négociation entre les différents états membres, cette convention constitue un moyen de protection de l'environnement, travaillant à la réduction des impacts de la pollution atmosphérique sur la santé des populations. Ainsi, le principal objectif d'EMEP est de fournir régulièrement les informations scientifiques nécessaires à la mise en place et à l'évaluation des politiques de réduction des émissions. Initialement tourné vers la détermination du transport transfrontalier de l'acidification et de l'eutrophisation, les centres d'intérêt du programme EMEP se sont élargis aux questions liées la formation d'ozone, aux polluants organiques persistants (POP), aux métaux lourds, et aux PM.

Mise en œuvre

Le programme EMEP se décline en trois volets : (i) la collecte de données d'émission, (ii) la mesure de la qualité de l'air et des précipitations ; (iii) la modélisation du transport et du dépôt des polluants. Le réseau EMEP est constitué d'un grand nombre de sites ruraux de mesure répartis sur toute l'Europe et regroupant 38 pays.

Les sites Français sont intégrés au réseau MERA (Mesure des Retombées Atmosphérique), coordonné par le LCSQA et géré par Mines Douai. Ce dispositif national est constitué de 13 stations rurales non influencées localement, choisies pour une bonne représentativité régionale. Ces stations sont instrumentées pour la détermination de tout ou partie des paramètres définis dans les recommandations de la stratégie de surveillance EMEP et pour les besoins de la directive 2008/50/CE. Le programme de mesure concerne les retombées humides (composés inorganiques, métaux lourds, HAP), les composés gazeux (O₃, NO₂, Composés Organiques Volatils) et particuliers (métaux lourds, HAP, PM₁₀, PM_{2,5}, ...), et les paramètres météorologiques. Les méthodes de prélèvement et d'analyse découlent de normes ou de recommandations et prescriptions du programme européen EMEP définies dans des ateliers dédiés.

Les stations rurales de fond doivent respecter les critères d'implantation suivants :

- < 50 km de sources importantes de pollution (ville, autoroute...)> 100 m de petites installations chauffages (bois, charbon, fuel,..)
- > 2 km de zones d'épandage, étables, écuries...
- > 500 m de pâturages ou de routes principales (< 500 véhicules/j)
- > 100 m de routes à faible trafic (<50 véhicules/j) ou de petites installations de chauffage.

Les données sont reportées annuellement et accessibles via le site EBAS (<http://ebas.nilu.no/>). En outre, 3 sites du dispositif pour la mesure d'espèces gazeuses réactive sont intégrés au réseau d'observation ACTRIS (cf. ci-dessous).

En hiver 2012 et été 2013, des sites MERA ont été instrumentés spécifiquement pour prendre part aux campagnes intensives EMEP axées sur la chimie des aérosols.

MERA constitue également un support à différents projets de recherche nationaux, tels que les projets PRIMEQUAL/PREDIT « Longue distance » SESAME et DEMO sur les dépôts atmosphériques ou encore CARBOSOR pour les COVs. Concernant les sources de PM, les prélèvements sur les sites ruraux nationaux (SNR) ont permis la réalisation du projet CAMERA, financé par l'ADEME et géré par l'IGE (<http://www.ige-grenoble.fr/recherche/equipes/chimie-atmospherique-chianti/projets/>). Cette étude a été menée à l'aide des filtres prélevés sur les stations EMEP de Revin et Peyrusse-Vieille entre 2011 et 2013. Elle a également été couplée à une autre étude (financée par l'ANDRA) pour l'exploitation de filtres collectés à l'OPE (Observatoire pérenne de l'Environnement, Bures) suivant les mêmes méthodologies de prélèvement et d'analyses (http://www.ige-grenoble.fr/IMG/pdf/rapport_ope_andra_2016_jl_jaffrezo.pdf), afin d'estimer la contribution et l'évolution des sources de PM_{2.5} en fond rural à l'aide de deux approches : « mono-recepteur » et « Positive Matrix Factorization » (PMF). Pour ce faire, outre l'analyse des fractions carbonées - i.e. carbone élémentaire (EC) et carbone organique (OC) - et des espèces inorganiques solubles majeures (Cl⁻, NO₃⁻, SO₄²⁻, Na⁺, NH₄⁺, K⁺, Mg²⁺, Ca²⁺) préconisée par la Directive 2008/50/CE (Annexe IV), les espèces chimiques suivantes ont été quantifiées :

- traceurs combustion de biomasse (levoglucosan, mannosan, galactosan)
- glucose et polyols (arabitol, sorbitol, mannitol)
- une série d'Hydrocarbures Aromatiques Polycycliques (HAP)
- 30 alcanes et 10 hopanes
- une série de métaux (Al, As, Ba, Ca, Cd, Ce, Co, Cr, Cs, Cu, Fe, K, La, Li, Mg, Mn, Mo, Na, Ni, Pb, Pd, Pt, Rb, Sb, Sc, Se, Sn, Sr, Ti, Tl, V, Zn, Zr).

A noter enfin que, depuis 2013, l'observatoire MERA a été intégré au SOERE (Systèmes d'Observation et d'Expérimentation au long terme pour la Recherche en Environnement) ORAURE (Observations en Réseaux des Aérosols à Usage de Recherches Environnementales), ce dernier étant actuellement en cours d'intégration à l'infrastructure de recherche ACTRIS-Fr (cf. ci-dessous).

Exemples de résultats

L'étude des séries temporelles des concentrations de PM sur différent sites européens montre que, malgré des variations interannuelles importantes, une baisse générale des concentrations massiques est observée en Europe sur la dernière décennie. Cette baisse est estimée en moyenne à 0.29 µg/m³ par an et imputable à la baisse des émissions primaires et des précurseurs des particules secondaire.⁴

L'exploitation des campagnes intensives de 2012-2013 souligne notamment l'importance de la contribution des poussières sahariennes aux PM₁₀ dans le sud et le centre de l'Europe, alors que les niveaux de poussières minérales dans le reste de l'Europe sont plutôt attribués à des sources régionales telles que la resuspension due au transport routier et/ou aux activités agricoles.⁵ Par ailleurs, l'analyse de métaux a montré l'influence de source anthropique spécifique à l'échelle régionale : les émissions du transport maritime (tracé par V, Ni et SO₄²⁻) dans les régions méditerranéenne, l'industrie métallurgique (Cr, Ni, Mn) en Europe centrale et de l'est, et des émissions de charbon (As, Se, SO₄²⁻) dans les pays les plus à l'est.

L'étude CAMERA « élargie », i.e., intégrant également les résultats obtenus pour l'OPE, constitue, à ce jour, la seule étude française pour la caractérisation des sources de PM_{2.5} en fond rural à l'échelle pluriannuelle en France. Bien que les concentrations y soient relativement faibles en moyennes annuelles (de l'ordre de 10-15 µg/m³ pour l'ensemble des PM_{2.5}), différents épisodes de pollution ont pu être étudiés. Ces épisodes ont eu lieu plutôt durant les périodes hivernales. Les niveaux de concentrations des polluants sont plus bas sur le site de Peyrusse-Vieille et assez semblables entre Revin et Andra-OPE. Les concentrations chimiques moyennes des espèces majeures se trouvent alors dans la gamme des valeurs reportées pour des sites ruraux Européen.

Comme illustré par la Figure 1, des cycles annuels bien marqués ont été observés pour différentes espèces chimiques, avec des maxima hivernaux pour les traceurs de la combustion de la biomasse (OC, K⁺, Levoglucosan ...) et des maxima estivaux pour les traceurs de sources biogéniques primaires (Arabitrol, Mannitol) et ainsi que les espèces qui se forment par des processus secondaires (e.g., MSA).

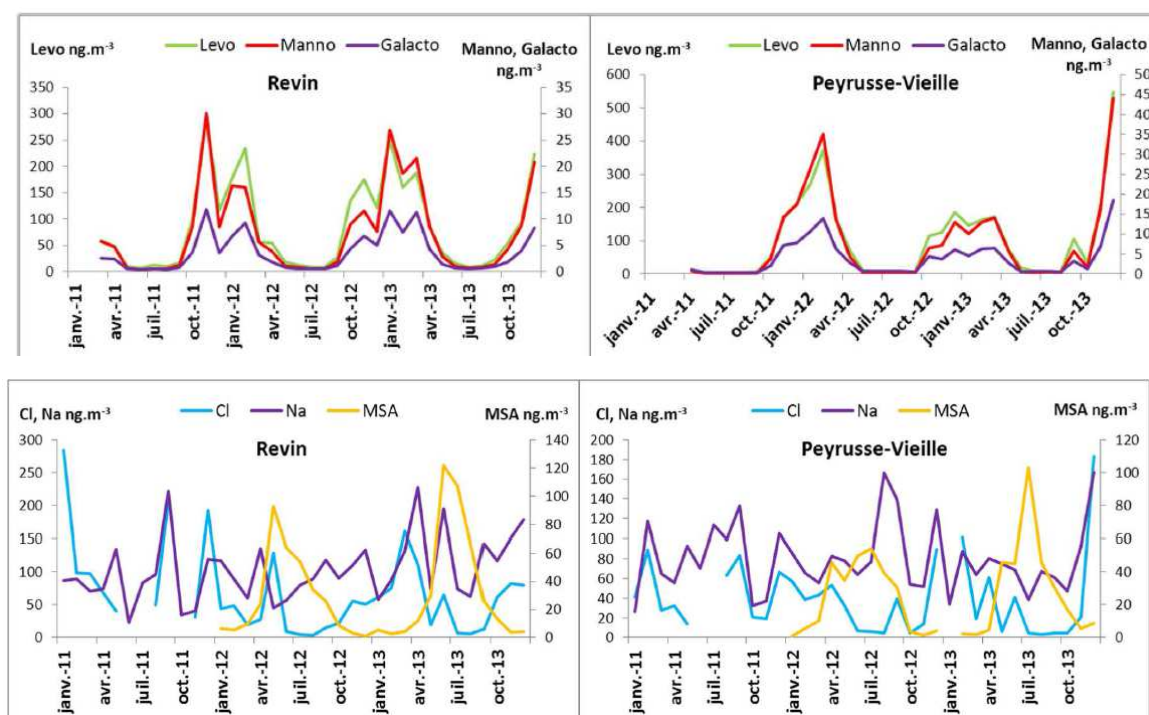


Figure 1 : Evolution temporelle des concentrations mensuelles de de Levoglucosan, Mannosan, Galactosan Cl, Na et MSA (ng/m³) à Revin et Peyrusse-Vieille de 2011 à 2013

Comme illustré par la Figure 2, les méthodes d'estimation des sources selon l'approche PMF (mise en œuvre à l'aide de l'outil PMF3 de l'US EPA) ont mis en évidence :

- des contributions de la combustion de la biomasse en % par rapport aux PM_{2.5} (de l'ordre de 10% des PM_{2.5} en moyenne annuelle) globalement équivalentes sur les 3 sites ruraux,
- des espèces secondaires (sulfate, nitrate et organiques) représentant de façon générale plus de 50% de la masse totale des PM_{2.5} et pour les 3 sites de mesures,
- une nette prédominance du nitrate d'ammonium à l'Andra-OPE, alors que les sites de Peyrusse-Vieille et Revin sont plus influencés le sulfate d'ammonium,
- une contribution des sels de mers qui varie de 3 à 7% se trouve dans la marge des valeurs reportées dans la littérature,
- une importante contribution des sources biogéniques primaires, e.g., de l'ordre de 20% à Peyrusse-Vieille. A noter néanmoins, pour ce dernier site, une variation temporelle non typique des émissions biogéniques primaires et des pics hivernaux. Cette dernière observation est probablement due à des événements particuliers nécessitant de plus amples investigations,
- une contribution des sources marines biogéniques (de l'ordre de 5% des PM_{2.5}), constituant l'un des aspects les plus novateurs de cette étude,
- un cycle annuel marqué des poussières crustales, avec des maxima printaniers.

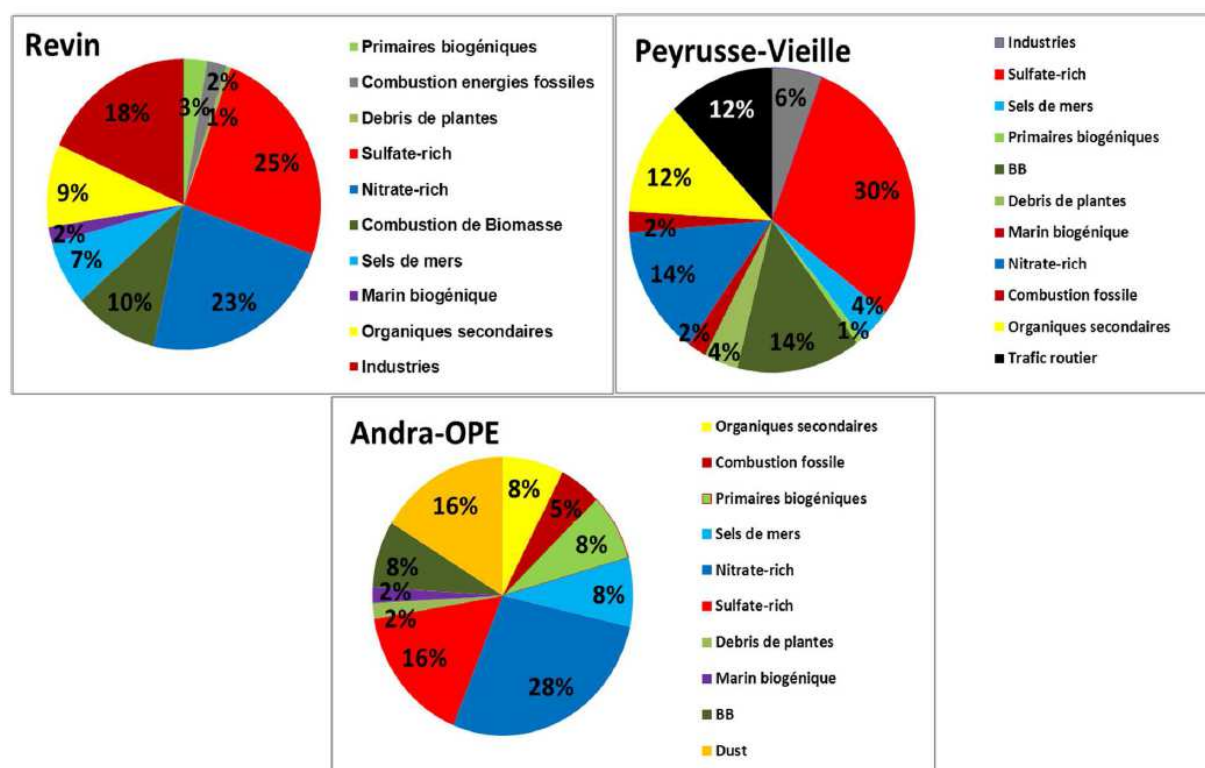


Figure 2 : Contributions relatives des sources de PM_{2.5} à Revin, Peyrusse-vieille et Andra-OPE (2011-2013)

A noter également que la comparaison des deux approches de catégorisation des sources a mis en évidence une surestimation de la combustion de la biomasse par l'approche mono-traceur. Cette surestimation est plutôt liée au choix du ratio OC/Levoglucosan, qui peut être fortement influencé par le choix du profil de sources. Par ailleurs, la sous-estimation des sources « sels de mers » et « poussières crustales » par l'approche mono-traceur par rapport à l'approche PMF (en particulier à Revin) est due à l'utilisation d'un traceur univoque tel que le Cl^- ou le Ca^{2+} pour l'estimation des sources.

Enfin, l'utilisation de nombreuses espèces organiques (HAP, Hopanes, alcanes wax et non-wax) a permis de mieux appréhender certaines sources telles que les sources primaires biogéniques, et d'identifier des sources supplémentaires telle que la combustion d'énergies fossiles. Néanmoins, la stabilité statistique des sorties PMF semble légèrement moins satisfaisante que celle obtenue lors des essais sans ces traceurs organiques.

2.2 Programme ACTRIS

Objectifs

Depuis quelques années, la communauté de recherche européenne structure ses infrastructures d'observation des particules et espèces gazeuses réactifs atmosphériques et des nuages par la mise en place d'ACTRIS (*Aerosols, Clouds, and Trace gases Research InfraStructure network*). Le premier volet de ce programme a été mis en œuvre via un projet de recherche EU FP7 (ACTRIS, 2011-2015), permettant de mettre en réseau des stations de recherche européennes équipées d'instruments de mesure au sol et/ou de moyens de télédétection. ACTRIS-2 (<http://actris2.nilu.no/>, 2015-2019) est la continuation de ce projet, dans le cadre H2020, et reprend donc ces principaux objectifs :

- Fournir une base de données d'observation à long terme produite par des procédures standardisées ou comparables à travers l'ensemble du réseau européen.
- Faciliter les échanges scientifiques, l'émergence de nouveaux projets de recherche, la formation des jeunes chercheurs et le développement de nouvelles techniques de mesures.
- Développer de nouveaux outils d'intégration pour exploiter la multiplicité des techniques mises en œuvre et améliorer la paramétrisation des modèles de qualité de l'air.
- Ouvrir des installations d'étalonnage et des plateformes d'observation transnationale, accessibles à la communauté d'utilisateurs (issus du monde de la recherche, mais également acteurs de la surveillance opérationnelle et industriels).

En parallèle, une organisation se met en place pour évoluer vers une infrastructure de recherche (IR) pérenne (ACTRIS-RI) à l'horizon 2020. Cet IR représente l'évolution logique des programmes de recherche structuraux précédents, dont les succès ont conduit le comité européen ESFRI (*European Strategy Forum for Research Infrastructures*) à accepter fin 2015 l'inscription d'ACTRIS-RI sur la feuille de route des grands projets à venir. La France, par l'intermédiaire du ministère de la recherche, soutient activement cette initiative, notamment via la création d'ACTRIS-Fr, intégrant les acteurs français impliqués

dans les travaux ACTRIS et restructurant le paysage scientifique national autour de ce projet.

Mise en œuvre

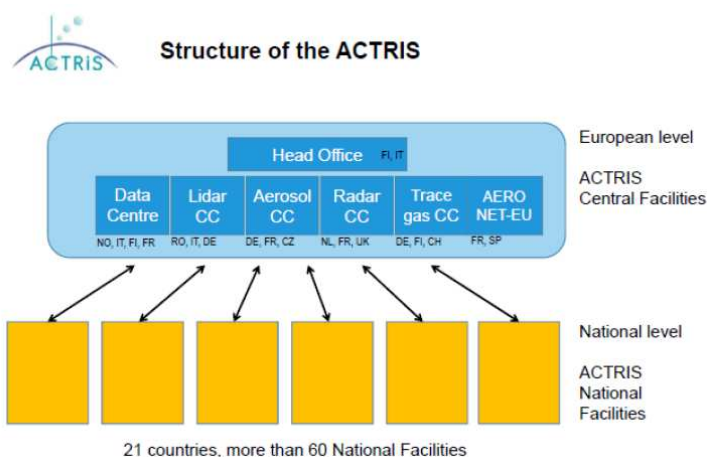


Figure 3 : Organisation de l'infrastructure ACTRIS

La Figure 3 présente l'organisation de l'IR ACTRIS. Les stations d'observations de recherche constituent les *national facilities*, qui peuvent également inclure d'autres moyens d'investigations nationaux (e.g., gros instruments, chambres de simulation, ...). Généralement, ces stations font également partie du programme EMEP, en tant que sites de niveau 3 (i.e., plateformes d'observation orientées vers les activités de recherche). En France, 3 observatoires font actuellement partie d'ACTRIS : le SIRTa (en région parisienne), l'observatoire du Puy de Dôme (à proximité de Clermont-Ferrand) et l'observatoire du Maïdo (Ile de la Réunion). La cohérence et la qualité des données sont assurées par le travail des centres de calibration (CC), chargés notamment de la définition de protocoles standards d'étalonnage et de mise en œuvre des instruments, d'audits métrologiques, et de la réalisation d'exercices d'intercomparaisons. Pour la caractérisation physico-chimique des particules à l'aide de mesure *in situ*, le centre de calibration se divise en trois entités :

- WCCAP (*World Calibration Center for Aerosol Physics*), basé en Allemagne (TROPOS, Leipzig) et chargé des instruments de mesures des propriétés physiques (granulométrie, comptage en nombre, propriétés optiques)
- ERLAP (*European Reference Laboratory for Air Pollution*), géré par le *Joint Research Center* (Ispra, Italie) et chargé du contrôle qualité des mesures EC-OC sur filtres.
- Et ACMCC (*Aerosol Chemical Monitor Calibration Center*), opéré au SIRTa par le CNRS et l'INERIS, et chargés des analyseurs automatiques de la composition chimique des PM, i.e., uniquement ACSM (*Aerosol Chemical Speciation Monitor*) à ce stade.

Pour l'étude des sources d'aérosols dans la couche limite, les travaux ACTRIS se concentrent essentiellement sur l'étude de traceurs organiques et l'interprétation des jeux de données ACSM. Ce type d'étude est actuellement proposé à l'échelle européenne dans le cadre du programme COST action COLOSSAL (2017-2020), se voulant complémentaire à ACTRIS et favorisant les échanges de connaissance et de savoir-faire entre les groupes de recherche européens travaillant sur les sources de particules fines.

Exemples de résultats

Concernant les traceurs organiques de sources, ils sont mesurés sur filtres et font l'objet d'exercices de comparaison inter-laboratoires (CIL). Ainsi, l'analyse chimique du levoglucosan, déjà largement utilisé comme traceur de combustion de biomasse, a pu être démontrée comme robuste lors de l'unique CIL portant sur les traceurs de sources de PM dans le cadre d'ACTRIS-1 et co-organisée par l'INERIS et l'IGE en 2013.⁶ La mesure systématique de ce composé pour des stations impliquées dans le programme ACTRIS-2 permettra une meilleure détermination de l'impact de la combustion de biomasse sur les niveaux de fond à l'échelle européenne.

Pour la mesure des propriétés chimiques des aérosols, le programme ACTRIS se base principalement sur son réseau de mesures *in situ* par spectrométrie de masse à l'aide d'*Aerosol Chemical Speciation Monitor* (ACSM). Une CIL, organisée fin 2013 par le LSCE (Laboratoire des Sciences du Climat et de l'Environnement, CNRS-CEA-UVSQ) et l'INERIS, a permis de confirmer la cohérence des mesures réalisées par ces instruments (14 d'entre eux étaient présents)⁷, tant du point de vue des concentrations absolues de NR-PM₁ (somme des espèces chimiques non-réfractaires mesurées par ACSM) ainsi que de la composition chimique de cette fraction de l'aérosol, comme illustré par la Figure 4.

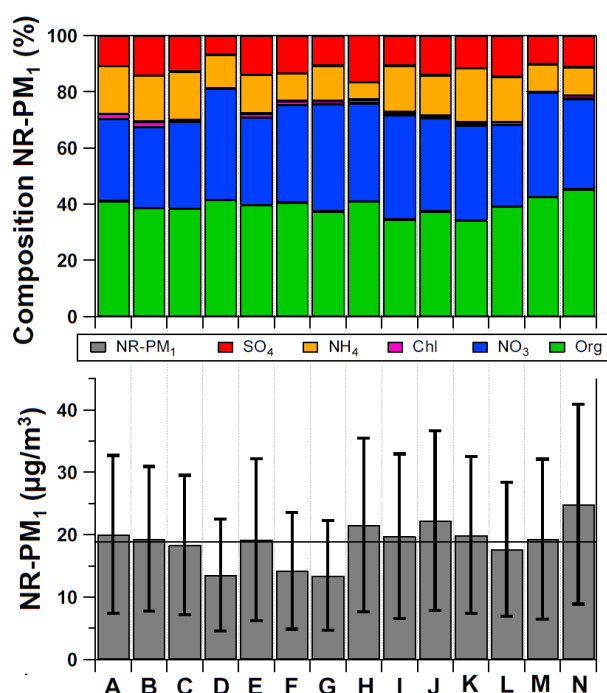


Figure 4 : concentrations moyennes en NR-PM1 et contribution des différentes espèces chimiques mesurées par chaque ACSM lors de la CIL ACTRIS-1 de fin 2013.

Le traitement statistique de ces mesures a permis de déterminer une incertitude relative élargie (Ur) pour la mesure de chacune des principales espèces chimiques (à l'aide d'une approche de type « Z-scores ») :

	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 PM_{10}). 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 parfois significatifs d'un instrument à l'autre. Ce résultat est illustré ici par la Figure 5, 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-surcharge i et $\Sigma m/z$ représente la concentration totale en matière organique.

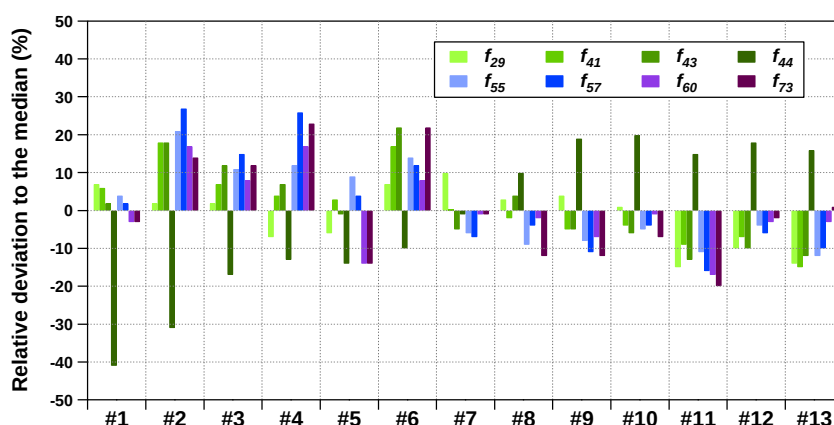


Figure 5 : déviations de chaque ACSM de type quadrupôle par rapport à la valeur médiane pour certains fragments relatifs à la matière organique lors de la CIL ACTRIS-1.

Ces écarts sont principalement dus aux différences observées pour le fragment relatif à m/z 44, indicateur de la mesure de la matière organique oxydée au sein des particules. 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.⁸

Le développement de ce type d'outil statistique est réalisé dans le cadre d'ACTRIS par le Paul Scherrer Institute (PSI, Suisse) sur la base d'une approche PMF adaptée au traitement des données obtenues par spectrométrie de masse.

A ce jour, seules les données obtenues lors des campagnes EMEP 2008 et 2009 ont pu faire l'objet d'une étude intégrative à l'échelle européenne permettant d'appliquer ce type d'outil statistique sur des mesures par spectrométrie de masse provenant d'un large panel de stations d'observation. Cette étude concerne donc essentiellement des sites de fond ruraux, représentatifs du transport à longue distance. Comme illustré par la Figure 6, on constate la prédominance des aérosols organiques secondaires très oxydés (LV-OOA)

ou semi-volatils (LV-OOA) au sein de la matière organique. Néanmoins, la somme des émissions primaires par combustion d'hydrocarbures (HOA) et combustion de biomasse (BBOA), voire même issues des activités de cuisson (COA), peut représenter jusqu'à 50% de la fraction organique selon les sites étudiés (en particulier sur le site urbain de Barcelone).

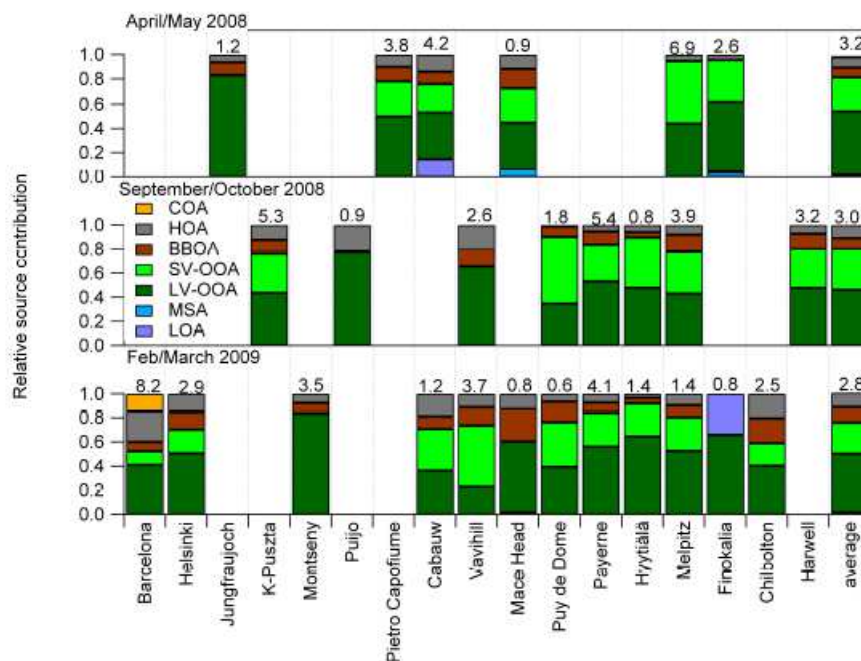


Figure 6 : Contributions relatives de différentes familles de composés organiques au sein de la matière organique mesurée par spectrométrie de masse lors des campagnes EMEP de 2008 et 2009.⁹

2.3 Programme CARA

Objectifs

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 et a pour objectifs :

- 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 : i) à partir de prélèvements sur filtres PM₁₀ sur différentes stations (urbaines, majoritairement) du dispositif national et ii) à l'aide d'analyseurs automatiques (sur le même type de stations).¹⁰

Mise en œuvre

Depuis son lancement, 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 en compter aujourd'hui une vingtaine, essentiellement en fond urbain. Les prélèvements sont réalisés par les AASQA volontaires, principalement en PM₁₀. 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 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).

Le développement d'analyseurs automatiques dimensionnés pour la surveillance en routine de la composition chimique des PM permet aujourd'hui de compléter ce 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 », eBC), en tant qu'indicateur pertinent de l'impact sanitaire des particules anthropiques, mais également l'estimation des contributions respectives des sources de combustion de biomasse et de dérivés du pétrole sur les niveaux de PM.
- L'Aerosol Chemical Speciation Monitor (ACSM) : cet instrument permet le suivi des concentrations des espèces chimiques majeures non réfractaires de l'aérosol submicronique (matière organique, nitrate, sulfate, ammonium, ...) ainsi que la réalisation d'étude de sources de l'aérosol organique.

Exemples de résultats

Episodes de pollution : La majorité des épisodes de pollution de grande ampleur apparaissent sur le territoire métropolitain entre mi-novembre et mi-avril. Comme illustré ci-dessous (Figure 7), 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 $PM_{10} > 50 \mu g/m^3$) à Petit-Quevilly (fond urbain, Air Normand):

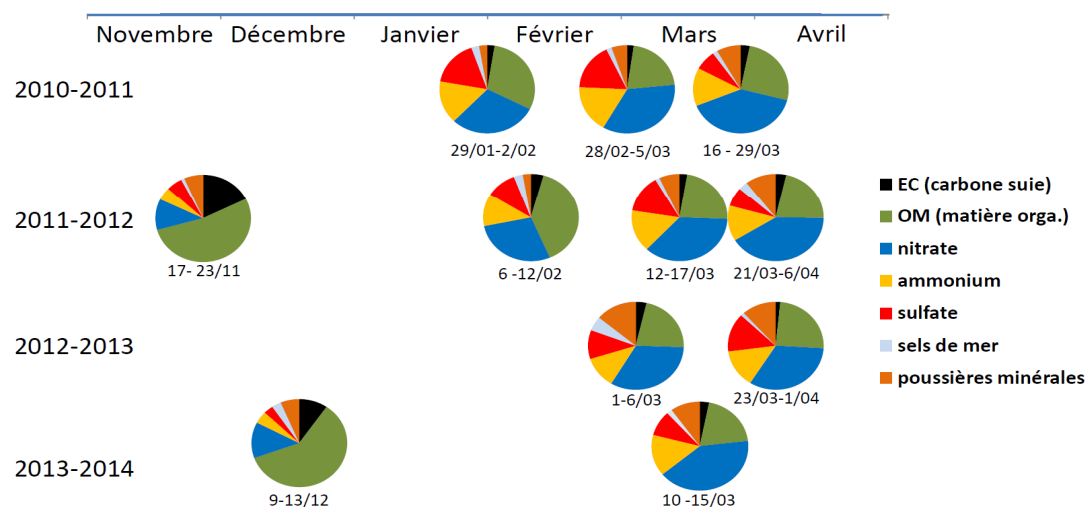


Figure 7 : nature chimique des principaux épisodes de pollution observés à Rouen entre 2010 et 2014.

A titre d'illustration, l'épisode de début décembre 2013 (Figure 8) peut être considéré comme typique des épisodes de début d'hiver. Ces épisodes se développent lors de situations météorologiques stables (régime anticyclonique) propices à l'accumulation des polluants, combinées à des températures faibles conduisant à une importante utilisation du chauffage résidentiel. Cette conjonction induit une forte teneur en matière carbonée dans les particules. Malgré le caractère global des conditions météorologiques, des spécificités locales expliquent de fortes variations observées d'une station de mesure à l'autre, et d'une région à une autre. Un épisode similaire a été plus récemment observé au début du mois de décembre 2016.¹¹

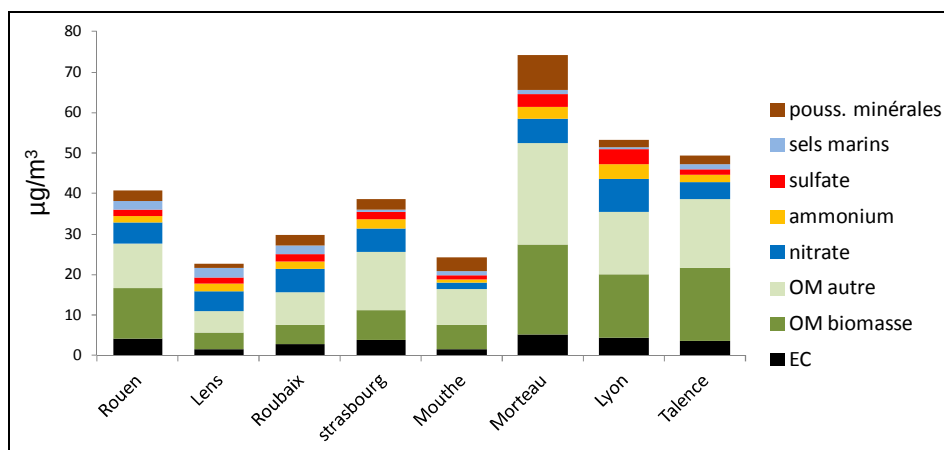


Figure 8 : composition chimique moyenne des PM_{10} observée dans le cadre du programme CARA lors de l'épisode de début décembre 2013.

Les épisodes printaniers sont, pour leur part, généralement très riches en nitrate d'ammonium (Figure 9), aérosol secondaire issu de la combinaison entre les produits d'oxydation des NO_x (majoritairement émis par le transport routier) et l'ammoniac (majoritairement émis par les activités agricoles). Ainsi, les mesures visant à abaisser les concentrations de ce composé passent notamment par une meilleure régulation des émissions de composés gazeux azotés liées à la fois aux activités agricoles (dont fabrication et épandage d'engrais) et au transport routier.

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

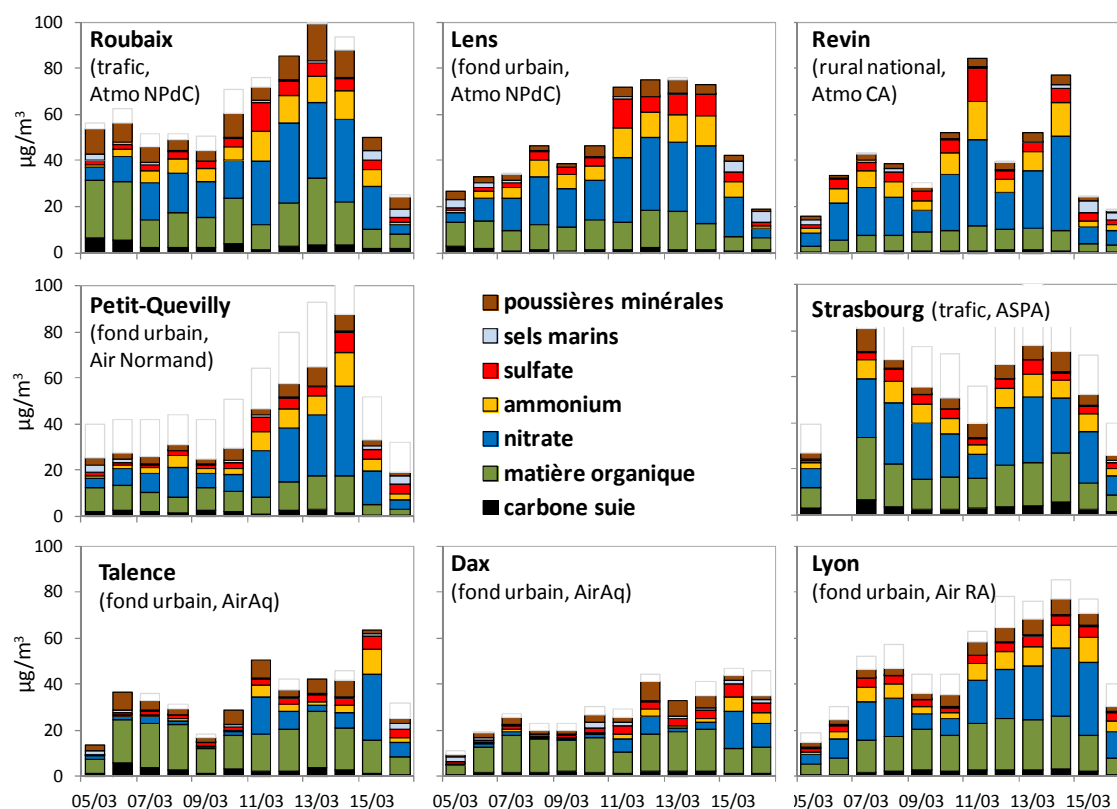


Figure 9 : exemple d'épisode de pollution printanier observé par le programme CARA

Etudes de sources intégrées : l'exploitation de prélèvements journaliers sur filtres à l'échelle (pluri-)annuelle permet de réaliser des études de sources, notamment à l'aide d'outils statistiques de type *Positive Matrix Factorization* (PMF). Cette méthodologie est utilisée depuis 2011 pour l'exploitation des données issues du programme CARA et des travaux sur les HAPs.¹⁰⁻¹⁵ Une dizaine de sites du dispositif national de surveillance de la qualité de l'air (à Rouen, Lens, Lyon, Bordeaux, Poitiers, Strasbourg, Nogent sur Oise, Roubaix, Revin, Grenoble) ont ainsi pu être étudiés au cours des 5 dernières années. Les graphiques ci-dessous illustrent la situation pour les sites de Lyon Centre (Atmo Auvergne- Rhône-Alpes) et Talence (agglomération bordelaise, Atmo Nouvelle-Aquitaine) en 2012-2013. En cohérence avec les résultats présentés ci-dessus, on retrouve en particulier de fortes contributions de la combustion de biomasse et des aérosols secondaires pour les journées les plus polluées (définies ici comme présentant des concentrations en PM₁₀ supérieures à 35µg/m³ - au lieu de 50µg/m³ – pour des raisons de représentativité statistique).

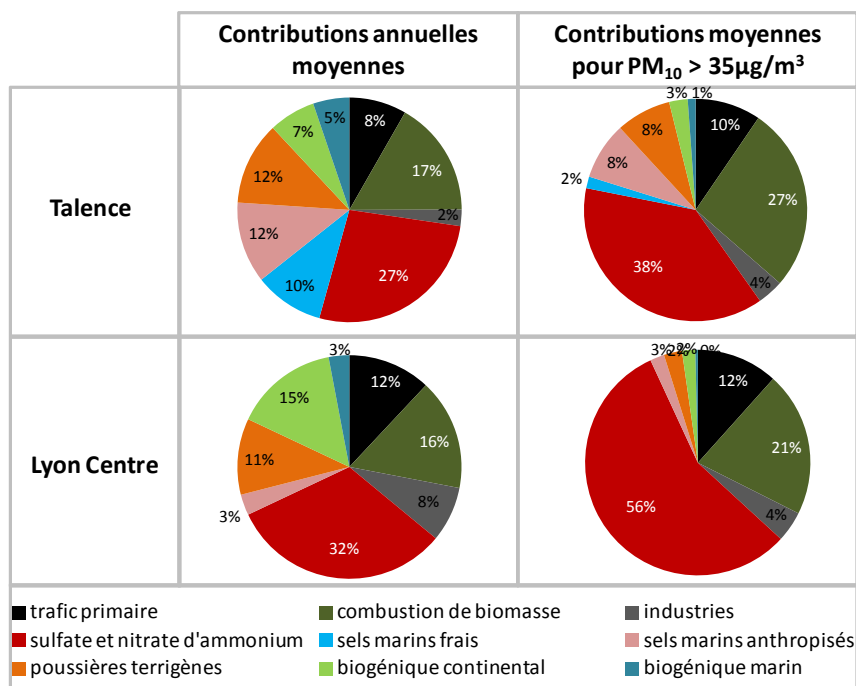


Figure 10 : Contributions annuelles moyennes et contributions moyennes pour les jours les plus pollués à Talence et Lyon centre

Ainsi, les travaux du programme CARA indiquent notamment que le chauffage résidentiel au bois, en tant que source de particules primaires, peut constituer un levier d'action efficace pour une réduction des niveaux de pollution lors de certains épisodes de pollution. Une étude spécifique a récemment été menée à l'échelle nationale sur cette même source. Pour ce faire, des filtres prélevés simultanément sur dix stations de fond urbain du programme CARA ont été analysés pour leur contenu en lévoglucosan pour une période hivernale élargie s'étendant de mi-novembre 2014 à mi-avril 2015.¹⁶

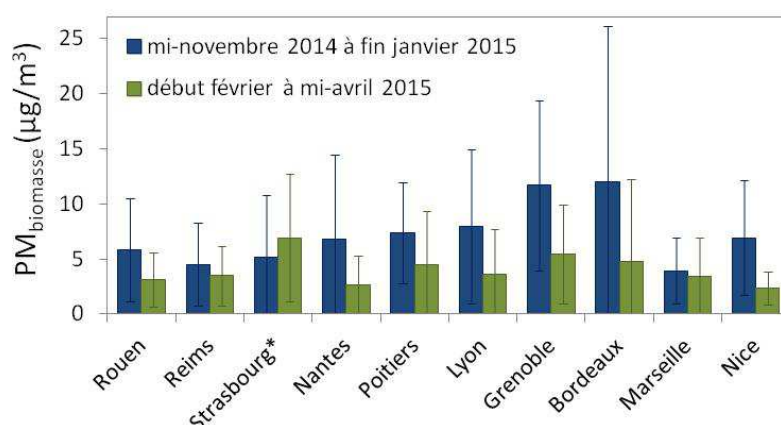


Figure 11 : Moyennes et écart-types des concentrations de $PM_{biomasse}$ obtenues sur chaque site pour le début et la fin de la période d'étude. * Pour Strasbourg, ces deux plages de temps correspondent respectivement à fin décembre 2014-fin janvier 2015 et début février-fin mars 2015.

Comme illustré par la Figure 11, les concentrations journalières moyennes de PM liées à la combustion de biomasse (PM_{biomasse}) estimées à partir de ces mesures varient d'environ 2 à 10 $\mu\text{g}/\text{m}^3$, représentant entre 18% et 36% des niveaux moyens de PM_{10} . 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 tout au long de l'hiver.

La Figure 12 présente une dernière illustration de résultats obtenus dans le cadre du programme CARA. Entre janvier 2013 et juin 2014, plusieurs stations du nord de la France (Nogent/Oise, Roubaix, Lens, Rouen et Revin) ont fait l'objet de prélèvements et d'analyses chimiques en vue d'une étude PMF multi-sites. 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).

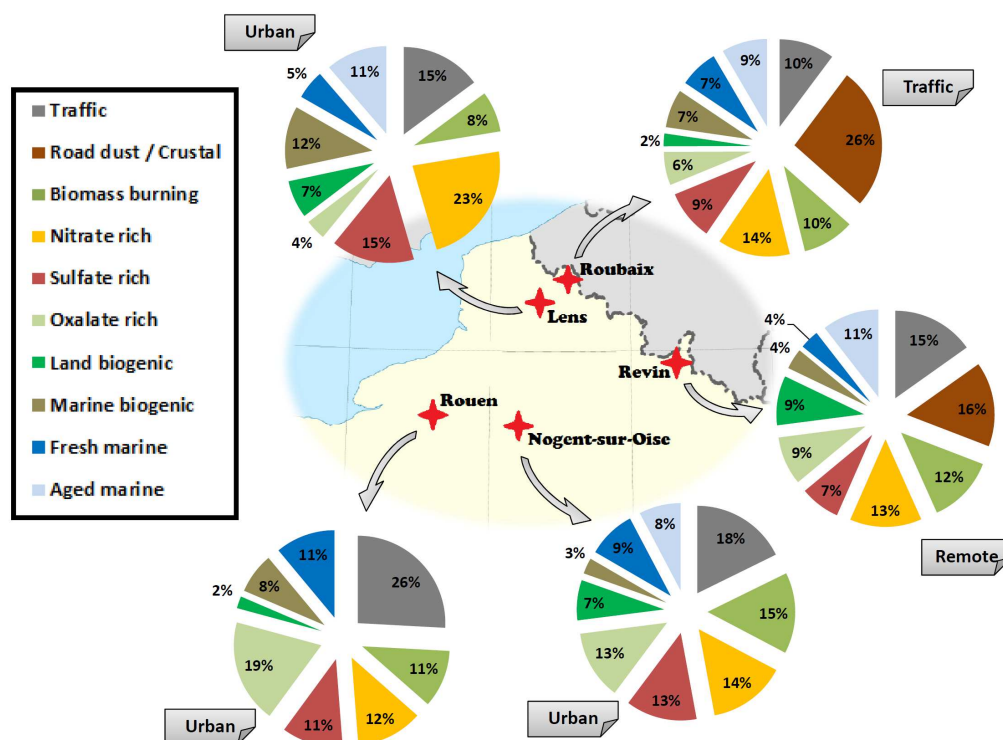


Figure 12 : résultats de l'étude PMF multi-sites dans le nord de la France (2013-2014, Thèse de Diogo Oliveira)

Ainsi, ces résultats obtenus mettent notamment 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. ci-dessus) ;

- 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 PM₁₀ en moyenne annuelle selon le site étudié.

3. PROJETS DE RECHERCHE A L'ECHELLE NATIONALE

3.1 PARTICUL'AIR

	Projet ADEME « Etude inter-régionale de la pollution particulaire en zone rurale » (PARTICUL'AIR)
Partenaires	Atmo Nouvelle Aquitaine, Atmo Normandie, Atmo Auvergne-Rhône-Alpes, Atmo Franche Comté, Air Breizh, Lig'Air, IGE, LCME
Dates	2009-2011
Références	Rapport final disponible sur : http://www.ige-grenoble.fr/recherche/equipes/chimie-atmospherique-chianti/projets/article/particul-air Thèse de Christine Piot, « Polluant atmosphérique Organiques particulaires en Rhône Alpes : caractérisation chimique et sources d'émissions », 2011, Université de Grenoble, disponible sur : http://tel.archives-ouvertes.fr/tel-00661284
Contact	Agnès HULIN (Atmo Nouvelle Aquitaine) : ahulin@atmo-na.org

Objectifs

- Caractérisation chimique de la pollution particulaire
- Caractérisation des sources de PM ; étude des traceurs de la combustion de biomasse (dont le chauffage au bois), source potentiellement importante de particules et de HAP.

Méthodologie

Les sites de prélèvement sont représentés sur la Figure 13. Ils ont été choisis en fonction de l'importance estimée de l'utilisation du bois comme source de chauffage et de leur niveau de ruralité (commune regroupant moins de 7000 habitants). La nature du parc d'appareil de chauffage au bois sur les sites de prélèvement a été considérée sur la base de données d'enquête spécifique IPSOS. De plus, la consommation annuelle de bois sur les sites étudiés a été estimée à partir de deux méthodes : une enquête spécifique IPSOS et la méthode du Centre d'études et de recherches économiques sur l'énergie (CEREN). Les inventaires d'émissions en PM10 et PM2.5 ont également été considérés.

Des prélèvements journaliers étaient organisés sur les neuf sites en simultané pendant une semaine chaque mois (en mars, juillet, Aout, Septembre, octobre, novembre, décembre 2009 et janvier et février 2010). Sur ces filtres (prélevés par DA80), les concentrations en HAP, EC/OC, lévoglucosan et anions/cations ont été déterminées. Sur certains de ces filtres, une analyse de métaux et d'un plus grand nombre de traceurs organiques a été réalisée.

AASQA	Région	Type de site	Commune
Air C.O.M.	Basse Normandie	MERA	La Coulonche (61)
Air de l'Ain et des Pays de Savoie	Rhône-Alpes	Rural exposé	Lescheraines (73)
Air Breizh	Bretagne	Site IV ^{ème} Directive	Guipry (35)
		Rural exposé	Sarzeau (56)
Atmo Franche-Comté	Franche-Comté	Rural exposé	Maïche (25)
Atmo Auvergne	Auvergne	Rural exposé	Les Martres de Veyre (63)
Lig'Air	Centre	Site IV ^{ème} Directive	Verneuil (18)
Atmo Poitou-Charentes	Poitou-Charentes	Rural exposé	Nanteuil en Vallée (16)
LimAir	Limousin	Rural exposé	Eymoutiers (87)

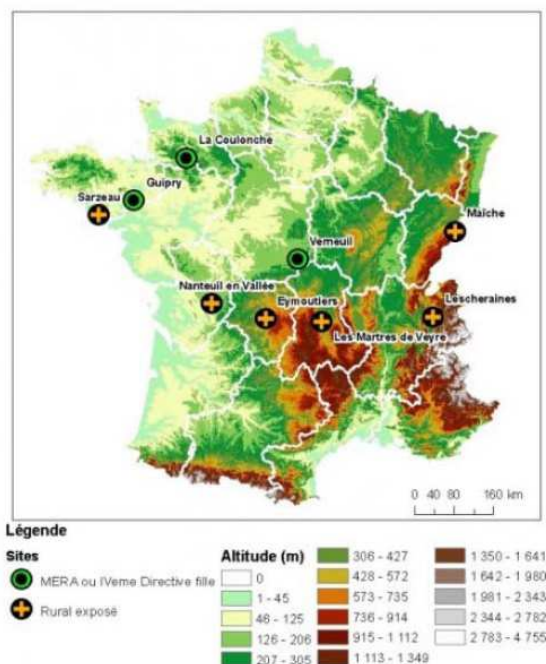


Figure 13 : caractéristiques et localisation des sites de mesure du programme Particul'Air.

Principaux résultats

Les concentrations en PM₁₀ sur l'ensemble des sites sont relativement homogènes et restent inférieures à la valeur limite annuelle de 40 µg m⁻³, et seul un site (Lescheraines, Air APS) dépasse la valeur cible de 1 ng/m³ en B[a]P fixée par la Directive 2004/107/CE. C'est également ce site qui présente les concentrations en PM₁₀ les plus élevées. Village de fond de vallée où la source combustion du bois a clairement été identifiée, Lescheraines ne présente pas une situation géographique favorisant la dispersion des polluants.

L'homogénéité des mesures a montré que les épisodes sont plus gouvernés par des transports à grande échelle avec des influences locales plus ou moins variées. Ces travaux ont pu mettre en évidence des variations saisonnières et spatiales de la composition chimique des PM₁₀. L'ensemble des composantes des PM₁₀ présentent des variations en fonction de la période de l'année et des sites avec globalement des concentrations plus fortes en hiver liées à l'ajout de la source chauffage et des conditions climatiques plus défavorables à la dispersion atmosphérique.

Les concentrations en matière organique sont plus importantes en hiver et à l'est du pays. L'importance de la source chauffage au bois peut expliquer ces variations. Cette source compte en effet pour 30 à 65 % de la masse totale des PM₁₀ à cette période de l'année. Ce n'est pas elle cependant qui est responsable des principaux dépassements mais les ions nitrates, ammonium et sulfate, hormis pour le site savoyard qui se distingue par une nette augmentation de la fraction de matière organique (dont HAP) lors de tels épisodes.

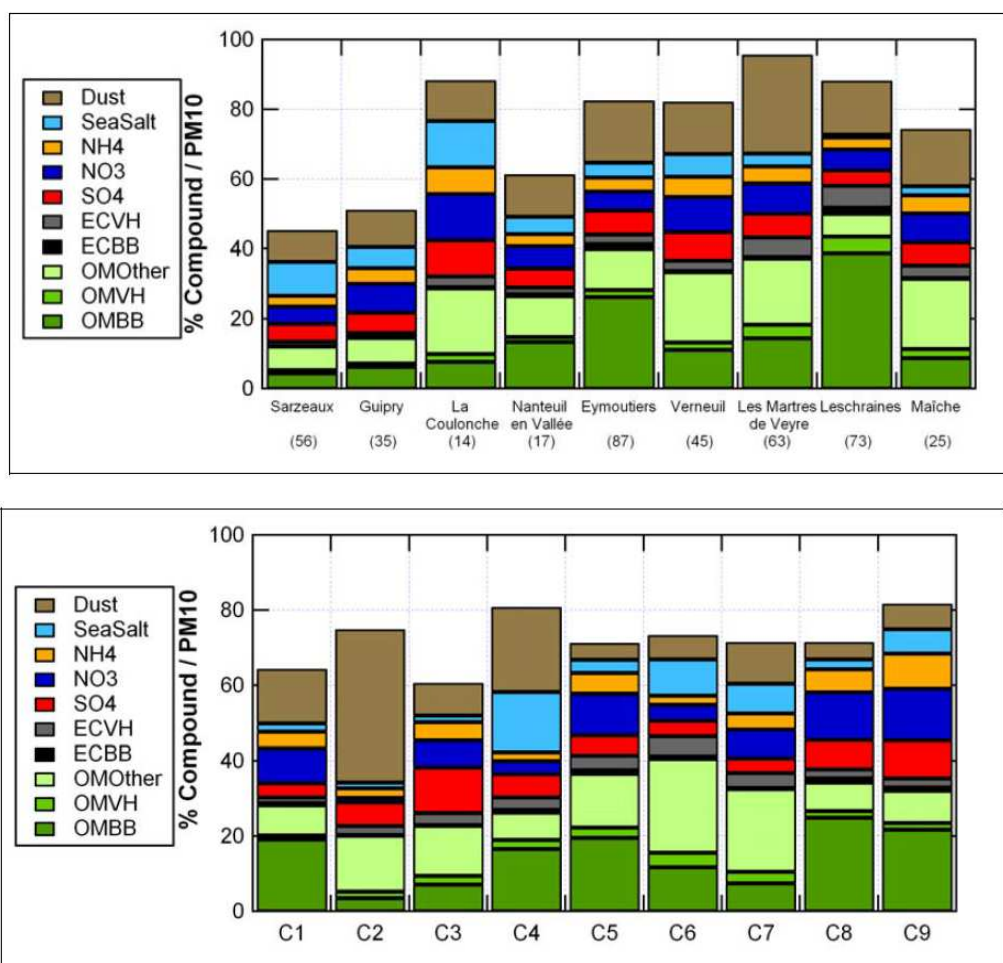


Figure 14 : Evolution spatiale (en haut) et saisonnière (en bas) de la composition chimique de PM₁₀ sur les 9 campagnes de mesure Hiver = C1, C5, C6, C7, C8, C9 ; Eté = C2, C3, C4

Les sources liées aux émissions véhiculaires et la combustion de biomasse participent fortement à l'apport de matière organique. Le rôle accru des émissions véhiculaires sur le carbone élémentaire a été mis en évidence et ce, même en période hivernale. En revanche, la combustion de biomasse influence très fortement la charge en matière organique mais avec des amplitudes assez variables suivant les sites.

La part secondaire de l'aérosol apparaît également particulièrement importante sur la majorité des sites étudiés même en période hivernale et peut représenter jusqu'à plus de 50% de la masse des PM. L'hypothèse de l'influence majeure du fond régional à grande échelle sur les taux de particules observés sur les sites ruraux semble donc être confirmée par cette observation.

L'étude spécifique via une approche CMB réalisée lors des campagnes hivernales fait également apparaître une contribution importante à la fraction organique issue de sources indéterminées. Si une partie de cette matière organique peut être associée à l'aérosol organique secondaire, elle peut également avoir pour origine des sources primaires supplémentaires non prises en compte dans la méthodologie CMB. Des travaux ultérieurs sur l'acquisition de nouveaux profils d'émissions s'avèrent nécessaires.

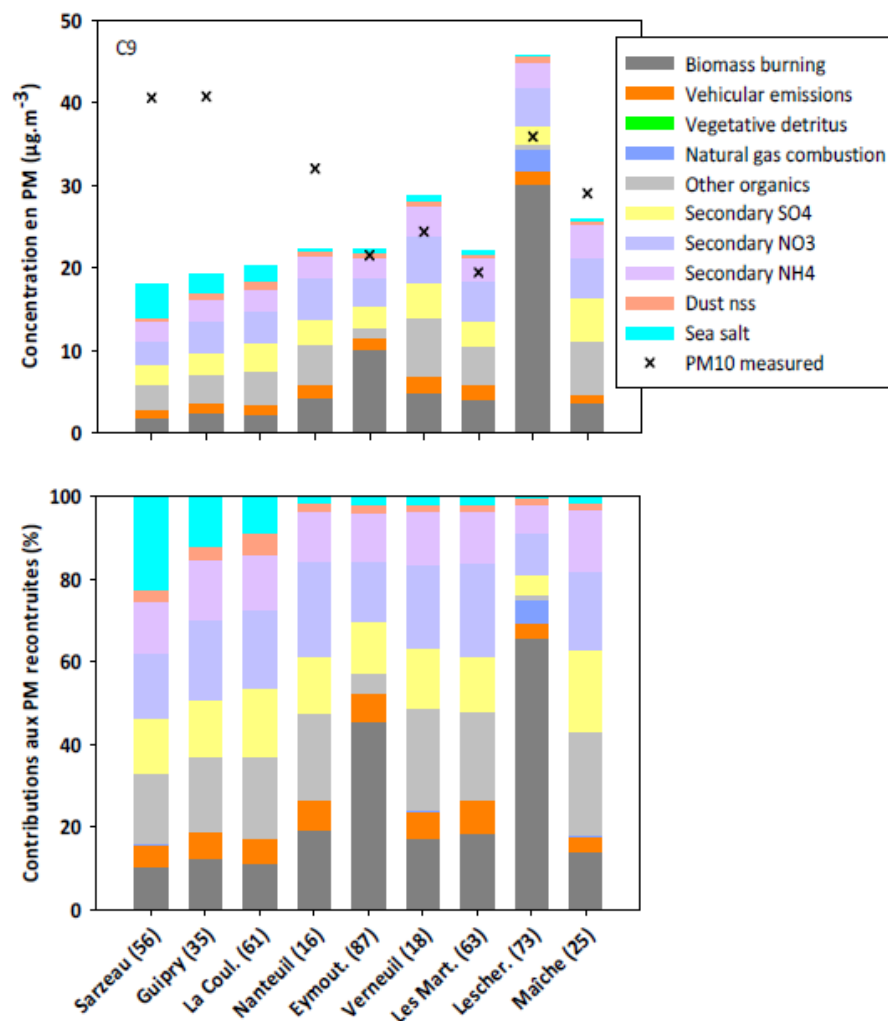


Figure 15 : Contributions moyennes des sources à la masse des PM10 pour la période hivernale

3.2 INACS

	« Isotopie du nitrate d'ammonium : compréhension des sources » Programme ADEME CORTEA
Partenaires	IGE, INERIS, INRA (ECOSYS)
Dates	2012-2016
Références	Rapport Final "Composition and source apportionment of PM10" (Novembre 2015)
Contact	Jean-Luc JAFFREZO (IGE) : jean-luc.jaffrezo@univ-grenoble-alpes.fr

Objectifs

De nombreux résultats (dont ceux du programme CARA en France) ont montré que les épisodes de dépassements des valeurs réglementaires de PM10 au printemps étaient liés

à de très grandes quantités de nitrate d'ammonium dans ces PM. Le nitrate et l'ammonium étant des composés secondaires formés dans l'atmosphère à partir des composés primaires émis sous forme gazeuses (ammonium et oxydes d'azote), des études de déconvolution des sources classiques (de type PMF) sont impuissantes pour déterminer les sources particulières. L'hypothèse de travail des programmes INACS est que les signatures isotopiques des atomes constitutifs (N et O) pourraient permettre de remonter à ces sources initiales.

Les objectifs principaux des programmes INACS-1 et -2 ont donc été :

- d'évaluer dans quelle mesure les méthodes isotopiques permettaient de préciser les sources primaires des constituants du nitrate d'ammonium,
- puis de développer une climatologie sur des échantillons issus de nombreux sites et saisons en France,
- et enfin de développer une méthodologie de traitement des données isotopique associées à des données chimiques, qui permettent de déterminer les contributions des sources primaires de ces espèces secondaires dans l'aérosol.

Méthodologie

Une première phase du travail a consisté à évaluer la faisabilité de la méthode générale

- en complétant le développement des méthodes de mesures des isotopes de N et O à bas niveaux, indépendamment sur le nitrate et l'ammonium, et leurs précurseurs gazeux,
- en réalisant des mesures sur les prélèvements aux sources pour déterminer si les rapports isotopiques étaient différents selon les sources,
- en réalisant des mesures préliminaires sur quelques séries de filtres de PM10 collectés pendant des épisodes de dépassement et hors épisodes.

Une seconde phase a consisté à effectuer des mesures sur un grand nombre de séries, issues entre autres du programme CARA, qui permettent une vision à la fois des épisodes de printemps sur une large portion du territoire national, et sur les évolutions annuelles.

La troisième partie du projet a consisté à développer une méthodologie incluant les mesures isotopiques et les mesures chimiques pour une quantification des sources. Ceci a conduit à mettre en place un traitement par approche Monte Carlo, permettant la séparation de l'ammonium en trois catégories en fonction de sa source d'émission, à savoir véhiculaire, engrais agricole et combustion de biomasse.

Principaux résultats

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 16 pour 8 sites distincts, 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.

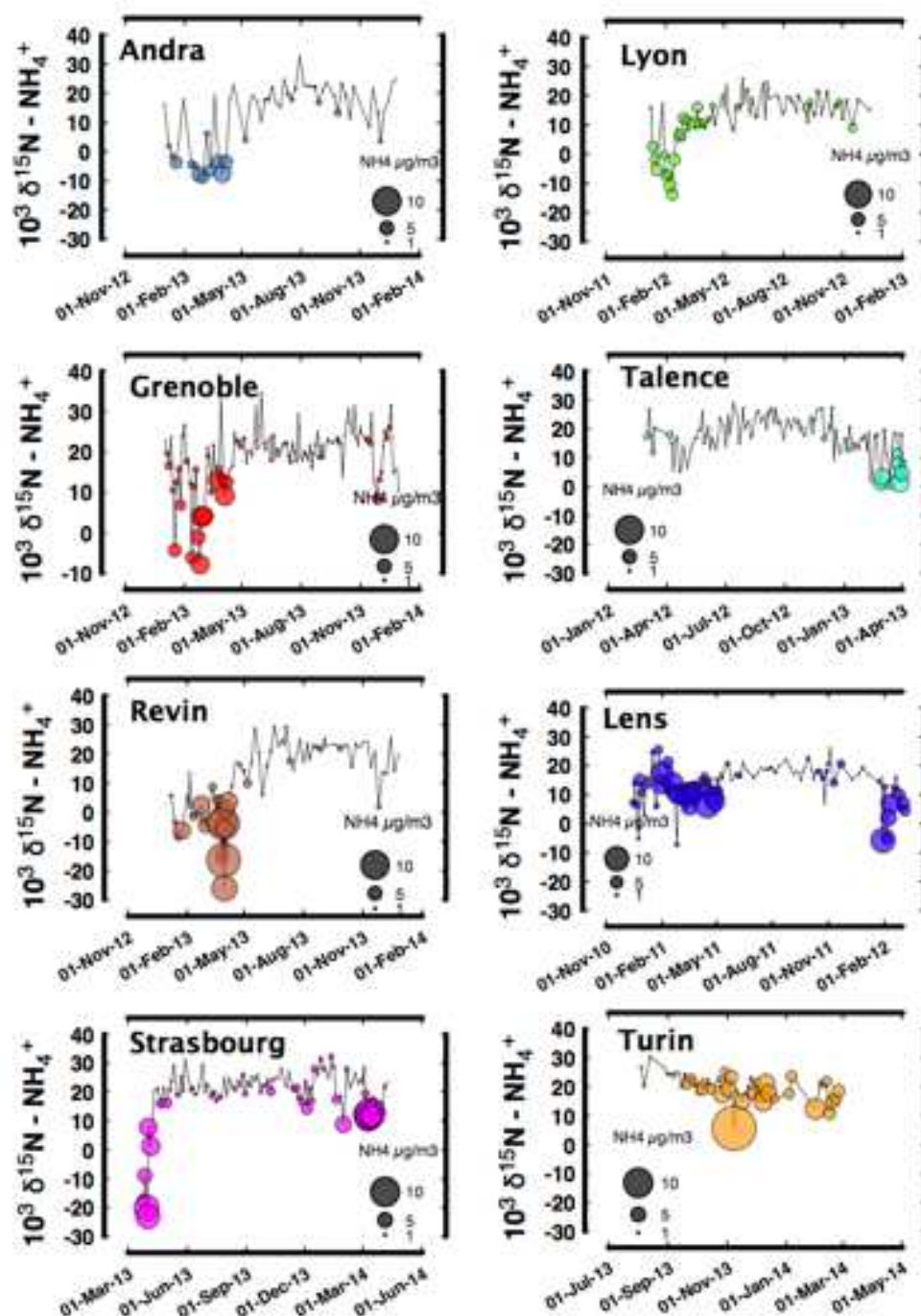


Figure 16 : Séries annuelles du $\delta^{15}\text{N}$ (NH_4^+) sur les sites de l'Andra - OPE (2013), Lyon (2012), Grenoble - Frenes (2013), Talence (2012-2013) Revin(2013), Lens (2011), Strasbourg (2013-2014) et Turin (2013 - 2014).

Les 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 17), 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).

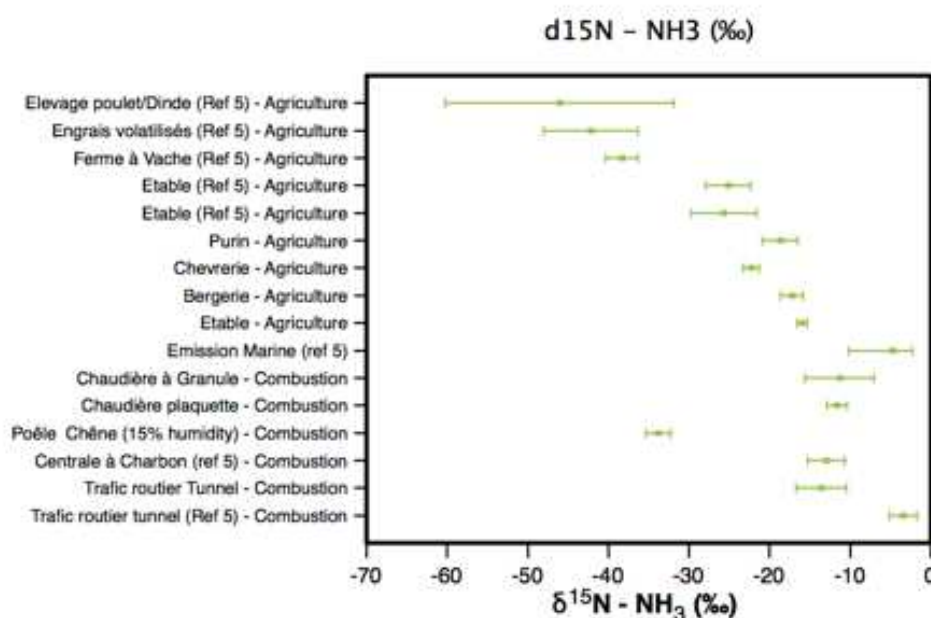


Figure 17 : Composition isotopique de l'ammoniac issue de différentes sources

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, l'utilisation des données isotopiques a non seulement permis d'identifier cette source comme étant d'origine agricole (utilisation de fertilisants) au cours des épisodes de pollution printaniers, mais également améliorer l'estimation de sa contribution. En termes de contribution massique aux PM, et pour exemple (Figure 18), sur le site rural de l'ANDRA, c'est jusqu'à plus de $20 \mu\text{g}/\text{m}^3$ de PM par jours qui proviennent la source agricole. Au total, durant le mois de mars 2013, plus de 66 % de la masse des PM est apportée par cette source sur ce site.

Les résultats obtenus durant les programmes INACS ouvrent donc 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.

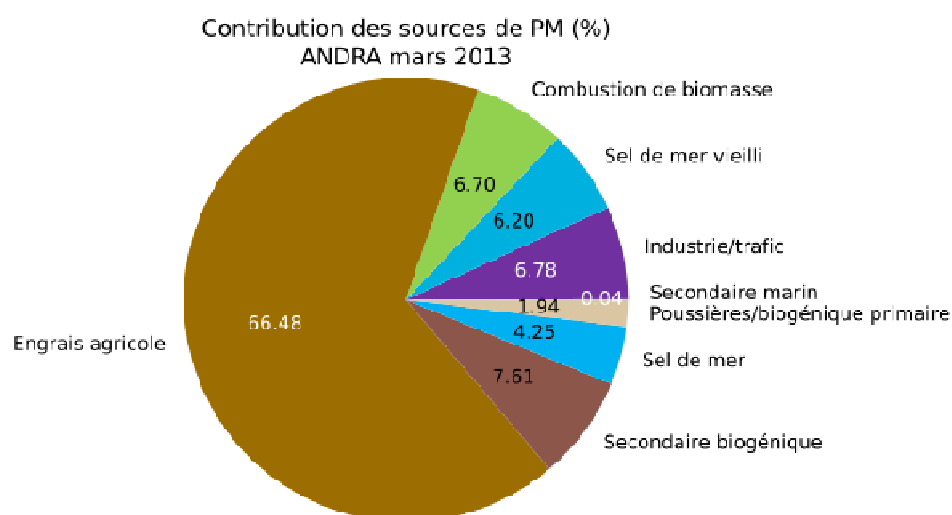


Figure 18 : contribution massique des sources de PM sur le site de l'ANDRA OPE durant le mois de mars 2013.

4. PROJETS DE RECHERCHE A L'ECHELLE REGIONALE

4.1 Nord de la France : projet JOAQUIN

	Programme INTERREG IVB Europe du Nord-Ouest Joint Air Quality Initiative (JOAQUIN) Volet “composition and source apportionment of PM₁₀”
Partenaires	Flanders Environment Agency (VMM, Belgique), National Institute of Public Health and the Environment (RIVM, Pays-Bas), Public Health Service of Amsterdam (GGD, Pays-Bas), Energy research Centre of the Netherlands (TNO, Pays-Bas), University of Leicester (Grande Bretagne), Atmo Nord Pas-de-Calais,
Dates	2010 - 2015
Références	JOAQUIN - JOINT AIR QUALITY INITIATIVE, Work Package 1 Action 2 and 3, Composition and source apportionment of PM ₁₀ , FINAL REPORT, Novembre 2015. Disponible sur : https://www.ecn.nl/publications/PdfFetch.aspx?nr=ECN-E--15-079
Contact (Fr)	Nathalie DUFOUR (Atmo Hauts de France) : n.dufour@atmo-hdf.fr

Objectifs

Ce projet coopératif européen avait pour but de soutenir une politique visant à réduire l'impact de la pollution de l'air sur la santé, en développant la recherche de paramètres de mesure de l'impact de la pollution de l'air sur la santé et en recherchant à quelle échelle spatiale on doit appliquer les mesures de réduction. Ce projet se découpe en 3 thèmes :

- Etat des lieux des connaissances et travaux de recherche sur les moyens innovants de la mesure de l'impact de la pollution de l'air sur la santé et des sources de cette pollution. Les travaux de recherche mis en œuvre dans le cadre ce thème se décomposent en 4 actions :
 - ✓ La mise en place de moyen de mesure des propriétés physico-chimiques et des impacts toxicologiques des polluants atmosphériques.
 - ✓ La caractérisation des sources de PM₁₀
 - ✓ La validation de moyens de surveillance mobile de la pollution de l'air.
 - ✓ La création d'un observatoire nord-ouest européen de la pollution de l'air.
- Comparaison des différents moyens existants pour déterminer les meilleurs critères sur lesquels se reposer pour la mise en place de plan d'action et la prise de décision politique pour réduire la pollution de l'air.

- Communication pour les autorités et le grand public autour de l'impact de la pollution de l'air sur la santé.

Méthodologie (pour la caractérisation des sources de PM₁₀)

Campagne de prélèvements : filtres journaliers bas volume sur 5 sites d'Europe du Nord-Ouest pendant 14 mois (avril 2013-Mai 2014). Les 5 sites sont Amsterdam, Anvers, Lille et Leicester (4 sites de fond urbain) et Wijk aan Zee (site industriel).

Mesures gravimétriques des filtres prélevés

Détermination de la composition chimique des PM₁₀ pour 1 filtre/6 par site (+17 filtres par site lors d'épisodes de pollution).

Analyse des éléments traces métalliques, lévoglucosan et ses isomères, EC/OC, ions, potentiel oxydant.

Etude PMF (US EPA PMF5) à l'aide des filtres soumis à analyses chimiques

Principaux résultats :

Le tableau ci-dessous présente les résultats de contributions de sources obtenus à l'aide de l'approche PMF pour chacun des sites du projet.

Source profiles	Contribution to PM ₁₀ ($\mu\text{g}/\text{m}^3$)				
	AD1S	AP1S	LE1S	LL1S	WZ1S
Secondary aerosol	12.1	12.9	8.4	13.6	12.6
Nitrate-rich secondary aerosol	9.1	9.9	5.8	8.8	10.9
Sulphate-rich secondary aerosol	3.0	3.0	2.6	3.8	2.7
Furnace slacks, road wear, construction	1.7	4.5	1.7	5.3	3.4
Sea spray	4.3	3.9	4.3	3.4	6.3
Aged sea spray	2.5	2.5	2.4	2.8	1.9
Sea spray	1.8	1.4	2.0	3.4	1.5
Mineral dust	1.6	1.9	2.0	1.5	1.1
Biomass burning	0.8	1.3	0.7	2.3	0.8
Industrial activities	1.3	1.7	0.5	0.6	2.7
Metal industry/chemical processing (Cr)	1.1	1.3	0.4	1.1	0.4
Steel industry (Fe)	0.2	0.4	0.2	1.6	0.2
Metal industry (As, Cd, Pb)	0.0	0.0	0.0	0.0	0.0
Traffic emissions and brake wear	1.2	3.2	1.7	2.7	0.7
Traffic emissions	0.5	1.6	0.9	0.5	1.2
Brake wear	0.7	1.5	0.8	0.2	1.5
Residual oil combustion	0.5	0.4	0.2	0.5	1.1
Unexplained	1.6	1.0	1.5	0.0	1.0
Total measured PM ₁₀	25.0	30.8	21.1	29.8	29.6

Ainsi pour le site de fond urbain de Lille (LL1S), comme illustré par la Figure 19, en moyenne annuelle, les PM₁₀ étaient majoritairement constituées :

- d'une fraction secondaire riche en nitrate et en sulfate d'ammonium ;
- d'une fraction minérale provenant de chantiers, remise en suspension par le transport routier et rejets de hauts fourneaux ;
- d'embruns marins et de sels de mer anthropisés.

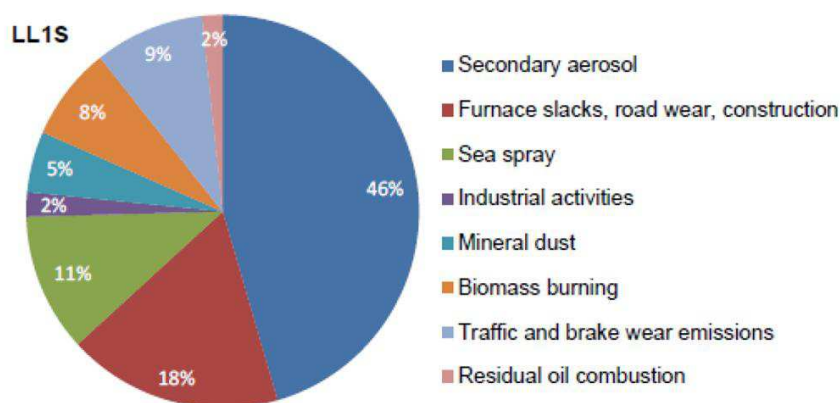


Figure 19 : résultats de l'analyse PMF réalisée pour la station de fond urbain de Lille dans le cadre du projet JOAQUIN

4.2 Région Ile de France

4.2.1 PARTICULES

	« Origine des particules en Ile de France » Ville de PARIS, Région IdF
Partenaires	LSCE, AIRPARIF
Dates	2009-2011
Références	http://www.airparif.asso.fr/_pdf/publications/rapport-particules-110914.pdf Thèse M. Bressi, 2011, Université de Versailles Saint-Quentin-en-Yvelines
Contact	Véronique GHERSI (AIRPARIF) : veronique.ghersi@airparif.fr

Objectifs

Le programme « Particules » répondait à un objectif de meilleure connaissance de la composition chimique de l'aérosol fin (PM_{2.5}) en région parisienne, de ses sources et origines géographiques.

Méthodologie

Ce programme s'est appuyé sur des prélèvements journaliers sur filtres entre septembre 2009 et septembre 2010 sur cinq sites de différentes typologies : proximité automobile, en fond urbain, suburbain et rural (Figure 20).

L'analyse en masse (PM), les fractions ioniques (anions et cations majeurs), carbonées (carbone organique et élémentaire) et traces (sucres et métaux) ont été déterminées sur chacun des filtres et des sites de prélèvements.

Une étude de source par analyse de type PMF a pu être conduite sur les résultats de spéciation chimique obtenus pour le site de fond urbain.

Par ailleurs, une approche de déconvolution des sources de PM selon leur origine locale vs. advectée a été appliquée à la fois aux mesures chimiques et à des sorties de modèles (Prev'Air). Cette approche, de type « Lenschow », consiste à étudier les différences de concentrations entre sites de différentes typologies. Ainsi, les contributions régionales et/ou importées sont considérées comme égales aux concentrations mesurées sur les sites de fond alors que les contributions locales en un point donné sont estimées par différence entre les concentrations y étant mesurées et les concentrations mesurées sur un site de fond. Cette approche simpl(ist)e néglige les mécanismes de dispersion et de dynamique verticale atmosphérique (e.g., variation de la hauteur de couche limite d'un site à l'autre) et de transformations physico-chimiques. Néanmoins, son application à des zones de topographie très plane, telle que le bassin parisien, permet une première estimation de l'import de polluants par le transport longue distance.

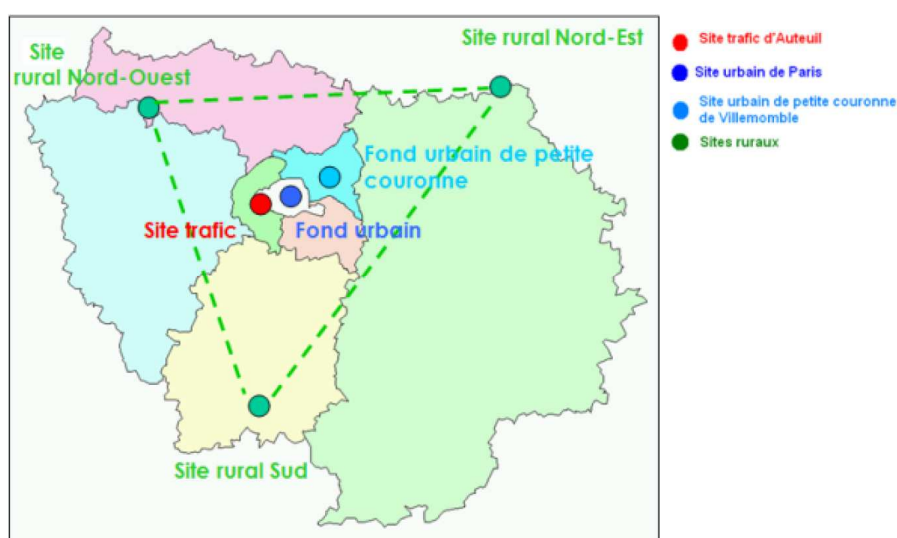


Figure 20 : Emplacement des sites de mesure pendant la campagne PARTICULES

Principaux résultats

L'interprétation des données issues de l'analyse des filtres a notamment fait l'objet de la thèse de doctorat de Michael Bressi soutenue au LSCE fin 2012. Quelques résultats obtenus dans le cadre de cette thèse sur la nature chimique et sur les sources de $PM_{2.5}$ sont illustrés par les Figures 21 et 22. On retiendra une forte similitude de la composition chimique des $PM_{2.5}$ sur l'ensemble des sites étudiés, la fraction organique et celle liées aux aérosols inorganiques secondaires (nitrate et sulfate d'ammonium) y représentant chacune environ 40% à 50% des particules. En termes de sources d'émissions primaires, si l'influence des sources primaires liées au transport routier et à la combustion de biomasse est cohérente avec les connaissances actuelles relatives aux émissions du territoire, l'importance de la source « combustion de fioul lourd » suggérée par ces résultats reste à expliquer.

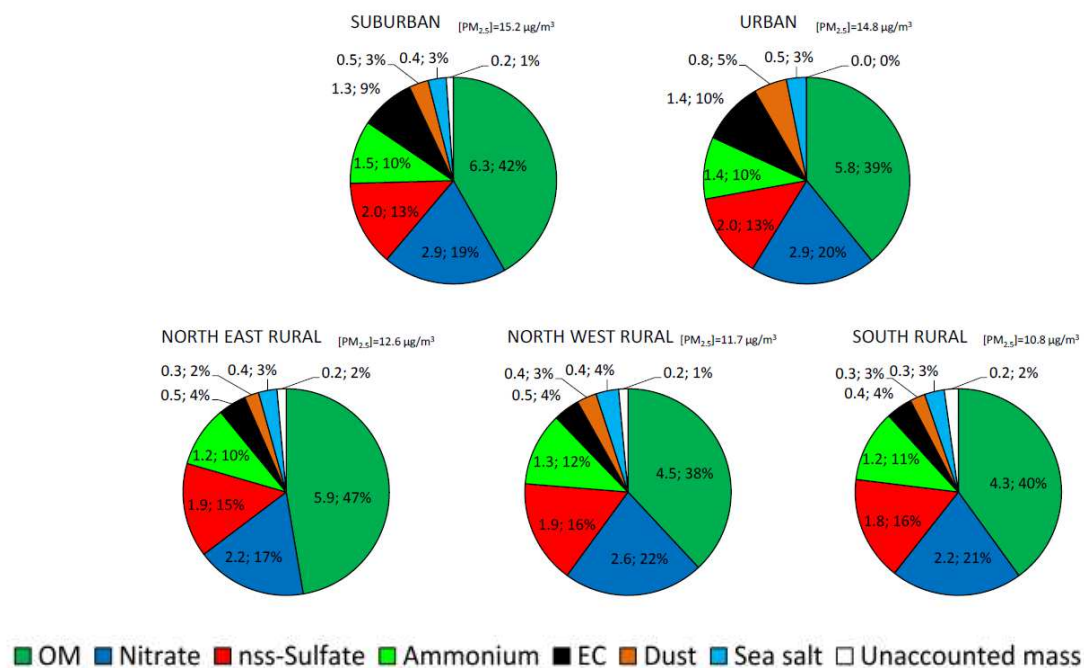


Figure 21 : Composition chimique moyenne (1an) de l'aérosol de fond péri-urbain et urbain parisien ($PM_{2.5}$).¹⁷

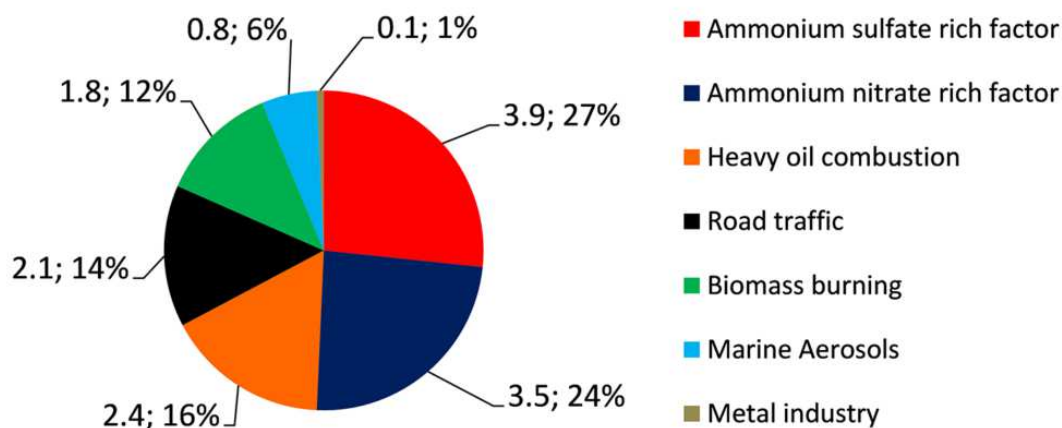
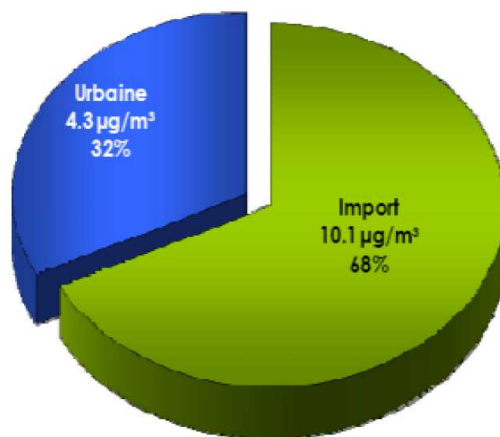


Figure 22 : Evaluation des sources de l'aérosol de fond urbain parisien ($PM_{2.5}$) par analyse PMF.¹⁸

Par ailleurs, les résultats obtenus par utilisation de l'approche de type « Lenschow » indiquent qu'environ 2/3 des concentrations moyennes de $PM_{2.5}$ en fond urbain sont issus de l'import (Figure 23), suggérant que des actions locales visant à réduire les $PM_{2.5}$ auraient somme toute un impact assez limité sur les niveaux de fond.



PM2.5 PARIS = 14.4 µg/m³

Figure 23 : Origine géographique des PM2.5 sur un fond urbain parisien en moyenne annuelle. Extrait de « Particules en IdF, AirPARif, 2011 »

Comme illustré par la Figure 24, la quasi-totalité des espèces secondaires (sulfate et nitrate d'ammonium, ainsi qu'une partie de la matière organique) est considérée comme importée.

L'application de la même méthodologie aux sorties de modèles conduit à des résultats similaires, avec toutefois une contribution des émissions et processus locaux légèrement plus importants pour le modèle que pour les mesures (Figure 24).

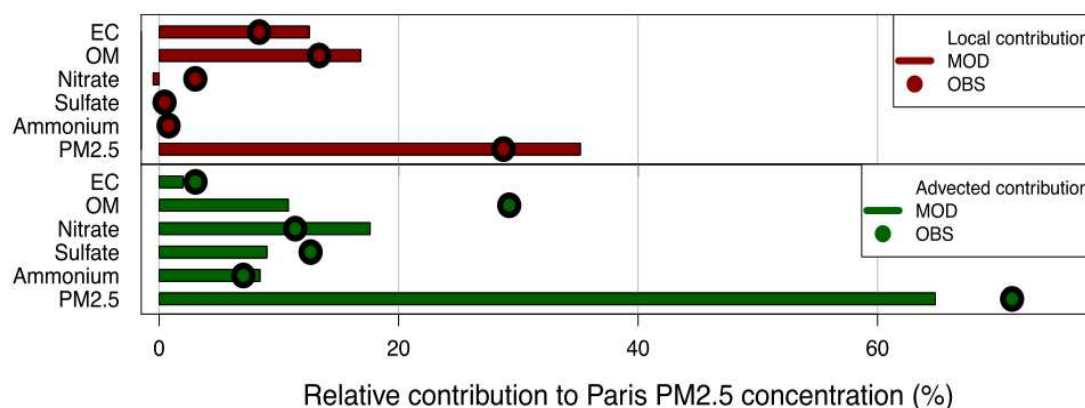


Figure 24 : Contribution relative (%) des sources locales en agglomération parisienne (en haut) en advectées (en bas) des constituants chimiques des PM2.5 (en condition de fond urbain). Comparaison entre les données mesurées et la modélisation (CHIMERE)

Enfin, sur le site de proximité automobile, la part des PM2.5 provenant de l'import a été estimée à seulement 40% (en moyenne annuelle), en raison de l'impact direct des émissions de particules primaires par le transport routier (aérosols carbonés à l'échappement, remise en suspension, débris de pneus, de freins, etc) sur ce type de site.

4.2.2 MEGAPOLI

	Programme Européen FP7-Env-2007 <i>“Megacities : Emissions, urban, regional and Global Atmospheric POLLution and climate effects, and Integrated tools for assessment and mitigation” (MEGAPOLI)</i>
Partenaires (Fr)	LISA, LSCE, IGE, LCE, LCME, LaMP, AIRPARIF, GAME, ...
Dates	2009-2011
Référence	Rapports d'étude disponibles sur : http://megapoli.dmi.dk
Contact (Fr)	Matthias BEEKMAN (LISA) : matthias.beekman@lisa.univ-paris12.fr

Objectifs

Ce programme avait pour objectif d'apporter une description globale, qualitative et quantitative, de l'impact présent et futur des mégapoles sur la qualité de l'air, la chimie atmosphérique et le climat, aux échelles locale, régionale et globale. Les moyens mis en oeuvre vont de la mesure à l'élaboration de modèles numériques et s'organisent selon huit grands groupes de travail ou Work Package (WP). La France était en charge du « WP3 Megacity Plume case study », coordonné par Mathias Beckmann (LISA) et consistant à l'organisation de campagnes intensives de terrain à Paris.

Méthodologie

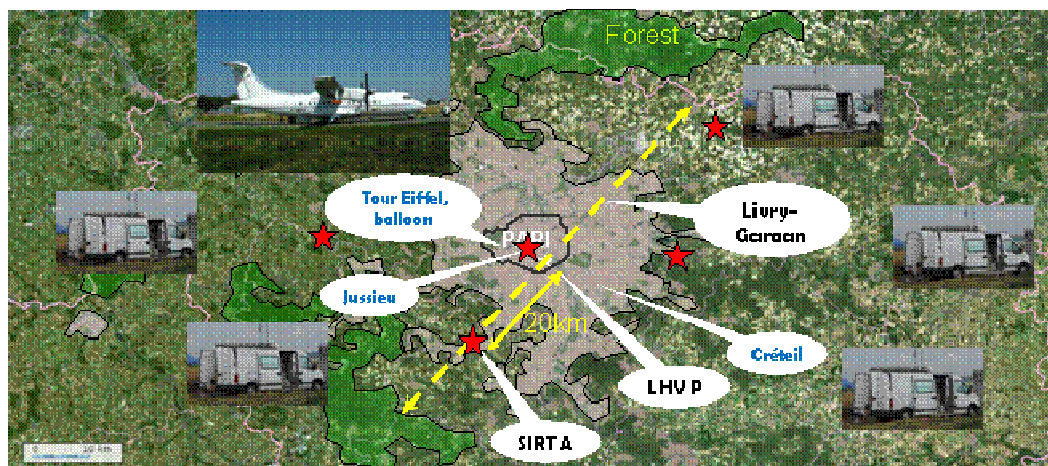


Figure 25 : Moyens déployés au cours des campagnes. En noir, sites primaires, en bleu, sites secondaires, étoiles rouges, mesures LIDAR supplémentaires.

Le programme MEGAPOLI a consisté – pour le volet expérimental – en deux campagnes intensives : une pendant l'été 2009, l'autre en hiver 2010. Elles ont été mises en oeuvre sur trois sites en Ile de France (au Nord-Est, au centre-ville et au Sud-Ouest de Paris). Cette disposition géographique en diagonale, et suivant les secteurs de vent majoritaires influençant la région parisienne, a permis l'évaluation, en été et en hiver, de l'influence du panache de pollution parisien et de l'import suprarégional.

Le dispositif mis en place dans le cadre des deux campagnes de mesures comprend :

- Des mesures à partir de 6 sites fixes (dont 3 principaux, en noir sur la Figure 25), urbains et périurbains afin d'étudier les variabilités spatiale et temporelle des polluants dans l'agglomération,
- L'utilisation d'un réseau de mesures par télédétection active (notamment lidars) et passive (par spectrométrie) pour la détermination de la distribution verticale de certains polluants au-dessus de la région.
- Des observations aéroportées, avec une dizaine de vols de l'avion français ATR-42, pour l'évaluation de la dynamique de la formation des aérosols organiques secondaires dans le panache de l'agglomération et des observations à partir d'un ballon captif, afin d'étudier l'homogénéité verticale de la pollution.

Principaux résultats

Comme pour PARTICULES, les résultats mis en avant soulignent l'importance de l'advection d'aérosols secondaires notamment lors d'épisodes de pollution.¹⁹⁻²⁰ Cette caractéristique est tout particulièrement marquée pour les espèces inorganiques; comme illustré par la Figure 26.

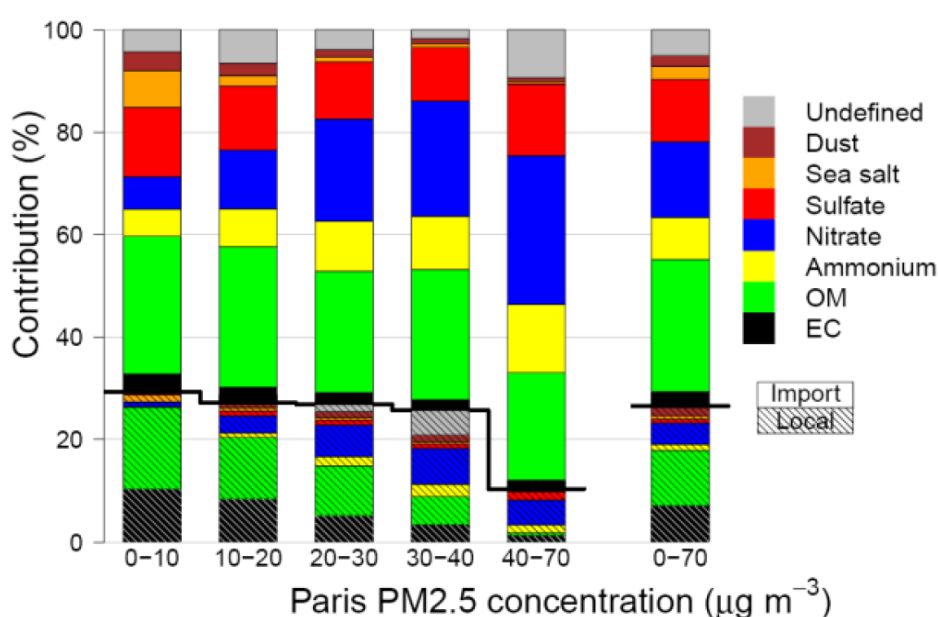


Figure 26 : Composition chimique des PM_{2.5} à Paris (fond urbain) en fonction des tranches de concentrations de PM_{2.5}. Une estimation des parts locale et advectée est également proposée.¹⁹

Les deux campagnes de mesures intensives ont également permis de mettre à profit les atouts des techniques de l'AMS (*Aerosol Mass Spectrometer*) pour la caractérisation des sources majeures de la matière organique particulaire et ses différents états d'oxydation. Tout d'abord, l'analyse statistique de ces données, combinée à des mesures de ¹⁴C permet de suggérer que l'aérosol organique oxygéné (OOA), utilisé dans ces études comme un proxy d'AOS, est, en été, peu impacté par les émissions anthropiques locales, et est principalement d'origine biogénique et importée. L'hiver présente néanmoins une caractéristique différente du fait de la contribution des émissions de chauffage au bois, et pose la question de l'origine locale, régionale ou importée des émissions de cette source de chauffage au bois. Les mesures AMS ont également mis en lumière l'importance d'une

source liée à la cuisson des aliments, contribuant à environ 30% de la matière organique du PM1 à Paris intra-muros (LHVP, à proximité de la place d'Italie) à certaines heures de la journée. Si ces résultats sont en accord avec ceux obtenus dans quelques autres villes européennes (notamment Barcelone et Londres), la contribution de la cuisson aux PM n'a en revanche pas pu être mise en évidence sur le site de fond du Nord-Est Parisien. La Figure 27 illustre en partie ces résultats obtenus sur l'aérosol carboné en été/hiver, sur son origine (moderne/fossile) et sur ses sources.

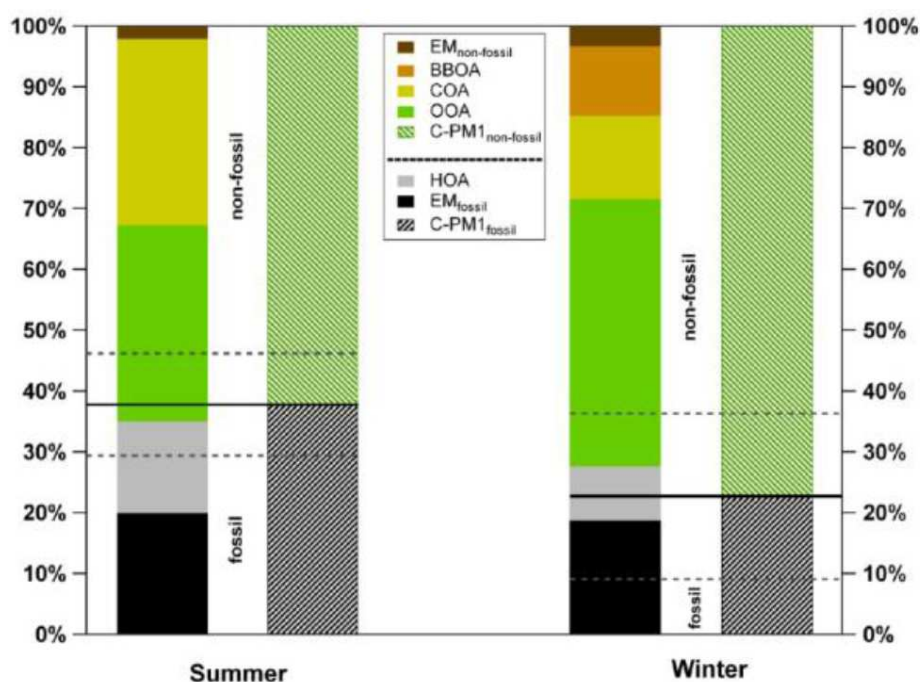


Figure 27 : Contribution relative des différentes sources submicroniques d'aérosols organiques et des fractions modernes/fossiles du carbone à Paris (fond urbain) en été/hiver. ²⁰

Sur le volet modélisation, le programme MEGAPOLI a permis une meilleure prise en compte des composés organiques semi-volatiles au sein du modèle CHIMERE.²¹

4.2.3 FRANCIPOL

	Programme PRIMEQUAL «Impact de la pollution longue distance sur les particules et leurs précurseurs gazeux à Paris et Ile-de-France » (FRANCIPOL)
Partenaires	LSCE, AIRPARIF
Dates	2009-2013
Référence	Rapports d'étude disponibles sur : http://primequal.suhali.net/ http://www.rst.developpement-durable.gouv.fr/IMG/pdf/Primequal_FRANCIPOL_cle0219e7.pdf
Contact	Valérie GROS (LSCE) : valerie.gros@lsce.ipsl.fr

Objectifs

Le projet FRANCIPOL avait pour objectif de caractériser les précurseurs gazeux (organiques et inorganiques) des particules fines et ainsi d'en déterminer les niveaux, variabilités, sources et origines géographiques (locale ou importée). Ces mesures ont également permis une évaluation du modèle CHIMERE pour ces espèces gazeuses.

Pour les sources de PM, ce programme a également permis de tester la méthodologie de « source apportement » de BC en exploitant des mesures d'Aethalomètres multi-longueur d'ondes (modèles AE31).²²

Méthodologie

Un an de mesures a été réalisé dans une station urbaine de fond à Paris (LHVP), complété par quelques mesures complémentaires dans un site de fond rural « sentinelle » (station Rural Nord Est d'Airparif) de mars 2010 à mars 2011. Sur le site principal, un spectromètre de masse (Proton Transfer Mass Spectrometry, PTR-MS) a été déployé pour les COV, ainsi qu'un système WAD-IC de laboratoire (Wet Annular Denuder Ion Chromatography) pour HNO_3 et SO_2 et un instrument commercial AiRRmonia pour NH_3 . En complément, sur les deux sites, ont également été installés des instruments de mesure de monoxyde carbone (CO), et de carbone suie (BC). Enfin, des mesures d'oxydes d'azote et d'hydrocarbures non méthaniques étaient effectuées par Airparif sur la station de fond urbain des Halles. La résolution temporelle des mesures était de 5 à 15 minutes permettant d'avoir un suivi temps-réel de ces composés et d'obtenir des informations pertinentes sur leur variabilité à différentes échelles de temps (diurne & saisonnière).

En ce qui concerne la modélisation, les simulations ont été réalisées avec la plate-forme de prévision opérationnelle ESMERALDA qui couvre le Nord de la France et considère trois domaines imbriqués dont la résolution la plus fine est de 3 km.

Principaux résultats

Pour le carbone suie, l'application d'une approche de type « Lenschow » indique une contribution locale d'environ 65% aux concentrations mesurées en fond parisien. Le « modèle Aethalomètre » permettant de faire la distinction entre combustion d'hydrocarbures et combustion de biomasse donne des résultats très cohérents en termes de saisonnalité des émissions, avec notamment des maxima sur la période hivernale pour la combustion de biomasse (Figure 28).

Pour l'origine des précurseurs gazeux, on retiendra ici des maxima de concentration d'ammoniac (NH_3) au printemps, en accord avec des sources essentiellement agricoles. Néanmoins, certaines régions voisines fortement émettrices (Bretagne, Benelux) influencent peu ou pas les niveaux mesurés à Paris, et la co-variation du NH_3 avec les concentrations de BC au LHVP suggère une source additionnelle de NH_3 liée au trafic qui pourrait représenter près d'un tiers des concentrations en fond urbain à l'échelle de l'année. Enfin, la combinaison mesures-modèle montre que l'ammoniac n'est à aucun moment l'espèce limitante dans la formation de NH_4NO_3 .

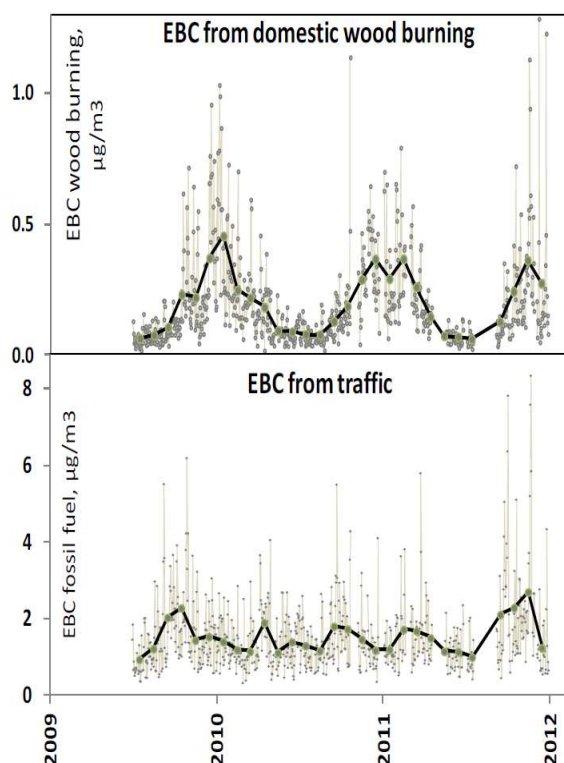


Figure 16 : Variations saisonnières d'« Equivalent Black Carbon » (eBC) issu du trafic et du chauffage au bois en fond urbain à la station du LHVP

4.2.4 PREQUALIF(-IZNOGOU-BARC) puis REBECCA

	Programme Primequal ZAPA « Programme Pluridisciplinaire de REcherche sur la QUALité de l'air en Ile de France (PREQUALIF). Impacts des Zapa : NOUvelle Génération d'OUtils de Diagnostic (IZNOGOU<u>D</u>) et évaluation des Bénéfices sanitaires et économiques Attribuables aux Restrictions de Circulation (BARC) » « Réseau Equivalent Black Carbon : Evolution des Concentrations et des Contributions inter Annuelles » (REBECCA)
Partenaires	LSCE, AIRPARIF, INERIS, CETE-IdF, INRIA, Geovariance
Dates	2011-2014 et 2013-2016
Références	<i>Rapport ADEME PRIMEQUAL PREQUALIF-REBECCA</i>
Contact	Véronique GHERSI (AIRPARIF) : veronique.ghersi@airparif.fr

Objectifs

Le projet PRIMEQUAL « PREQUALIF » constitue la phase initiale d'un programme axé sur l'étude des bénéfices attribuables aux ZAPA. Il se compose d'un assemblage de disciplines scientifiques construit sur 3 Work Packages (WP) répartis tout au long de la chaîne de

connaissance allant des émissions du trafic routier à leurs impacts environnementaux (qualité de l'air), sanitaires, et économiques :

- WP1 : études expérimentales en chimie atmosphérique permettant de mieux quantifier l'impact sur la qualité de l'air des mesures prises sur le trafic dans les deux ZAPA d'île de France (Ville de Paris et Plaine Commune).
- WP 2 : spatialisation et quantification de l'impact des ZAPA sur le trafic et la qualité de l'air en ile de France (modélisation)
- WP 3 : évaluation des bénéfices sanitaires et économiques dans un package méthodologique en lien direct avec les données produites dans les deux précédents WP pour l'Ile-de-France.

Seul le WP1 est concerné par le présent projet. Il s'organise selon :

AXE 1. Etude des sources de $PM_{2.5}$ et PM_{10} et de leur origine géographique en IdF

AXE 2. Distribution spatiale/temporelle des PM_{trafic} (fraction $PM_{2.5}$) sur l'IdF

AXE 3. Contribution de la fraction PM_{trafic} dans le PM_{10} .

Méthodologie

Ce programme de recherche s'inscrit dans la continuité des méthodologies mises en œuvre dans le cadre des programmes précédents (PARTICULES, MEGAPOLI et FRANCIPOL). Le suivi des niveaux de fond régionaux réalisé sur les 12 mois d'observations du prog PREQUALIF (Mars 2012 – Avril 2013) s'est notamment appuyé sur l'infrastructure du SIRTa (20km au sud-ouest de Paris) et sur l'utilisation d'un *Aerosol Chemical Speciation Monitor* (ACSM) permettant le suivi en temps réel, sans artéfacts et avec une résolution sub-horaire des composantes chimiques majeures des PM_{10} .

En parallèle, un réseau dense de mesure automatique de BC a été mis en place sur une douzaine de stations d'Airparif (et au SIRTa). A l'issue du projet PREQUALIF et dans l'attente de la mise en place de ZAPA, le projet REBECCA a permis le maintien et l'optimisation de ce réseau de mesure de BC en Ile de France sur 18 mois supplémentaires (Avril 2013 – Septembre 2014), permettant notamment d'étudier les variabilités saisonnières et interannuelles de ce marqueur des sources de combustion.

Enfin, des campagnes de mesures intensives spécifiques ont été mises en œuvre pour affiner la caractérisation des émissions liées au transport routier (e.g., mesures en tunnel pour les émissions à l'échappement, et études en bordure de périphériques pour les émissions primaires hors échappement).

Principaux résultats

Le travail d'observations long terme de la chimie des aérosols submicroniques par ACSM et AE33, réalisé dans le cadre de la thèse de doctorat de Jean-Eudes Petit, a montré la pertinence et robustesse de ce dispositif expérimental dans un contexte de surveillance opérationnel.²³ De plus, La méthode PMF appliquée au donnée ACSM a montré de bonnes performance à identifier les différentes sources d'aérosols organiques (HOA lié au trafic, BBOA lié au chauffage au bois ; OOA proxy des aérosols organique secondaire). Cette méthode a permis de caractériser finement la saisonnalité des différentes sources de la matière organique (OM) et notamment 1) la forte présence (sur toute l'année) de la fraction organique secondaire, 2) la contribution importante des émissions de chauffage bois en hiver (Figure 29).

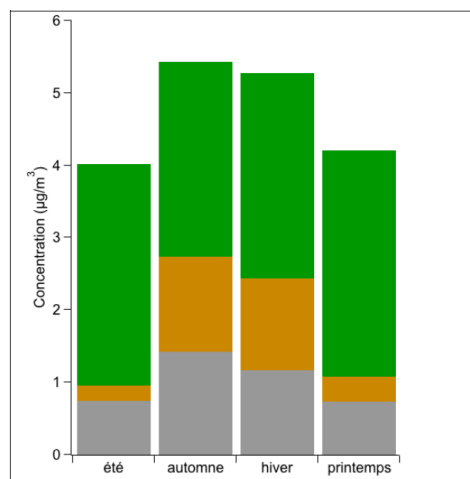


Figure 29 : Saisonnalité des principales sources de matière organique au Sirta entre septembre 2011 et février 2013 (gris = combustion d'hydrocarbures, marron= combustion de biomasse, vert = aérosols organiques secondaires).

Pour le BC, des concentrations homogènes ont été mesurées sur les différentes stations de fond urbain, avec des minima en été et des maxima entre septembre à novembre, et une tendance globale à la baisse depuis 2009 (Figure 30).

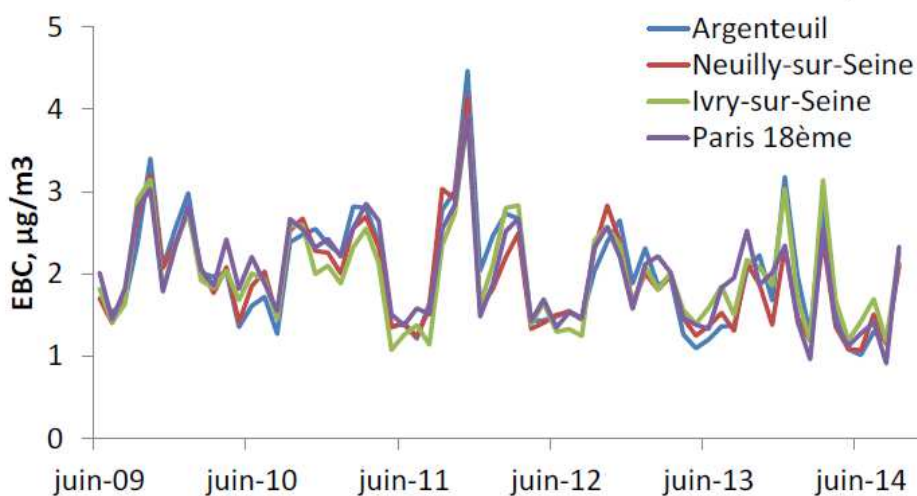


Figure 30 : Comparaison des moyennes mensuelles de BC sur 4 stations de fond urbain

Comme illustré par la Figure 31, les résultats de ce projet confirment également que la mesure de BC permet une amplification du signal trafic par rapport à la mesure PM (cette dernière représentant des sources plus diverses).

Ainsi l'application de l'approche Lenschow indique une origine principalement locale aux niveaux de BC mesurés en proximité automobile et en fond urbain parisien. Ces résultats sont confirmés par les mesures de EC sur filtres, en bon accord également avec les résultats obtenus lors des projets précédents (Figure 32). Pour comparaison, les concentrations en carbone organique (OC) sont, elles, plutôt dominées par le fond régional (Figure 32).

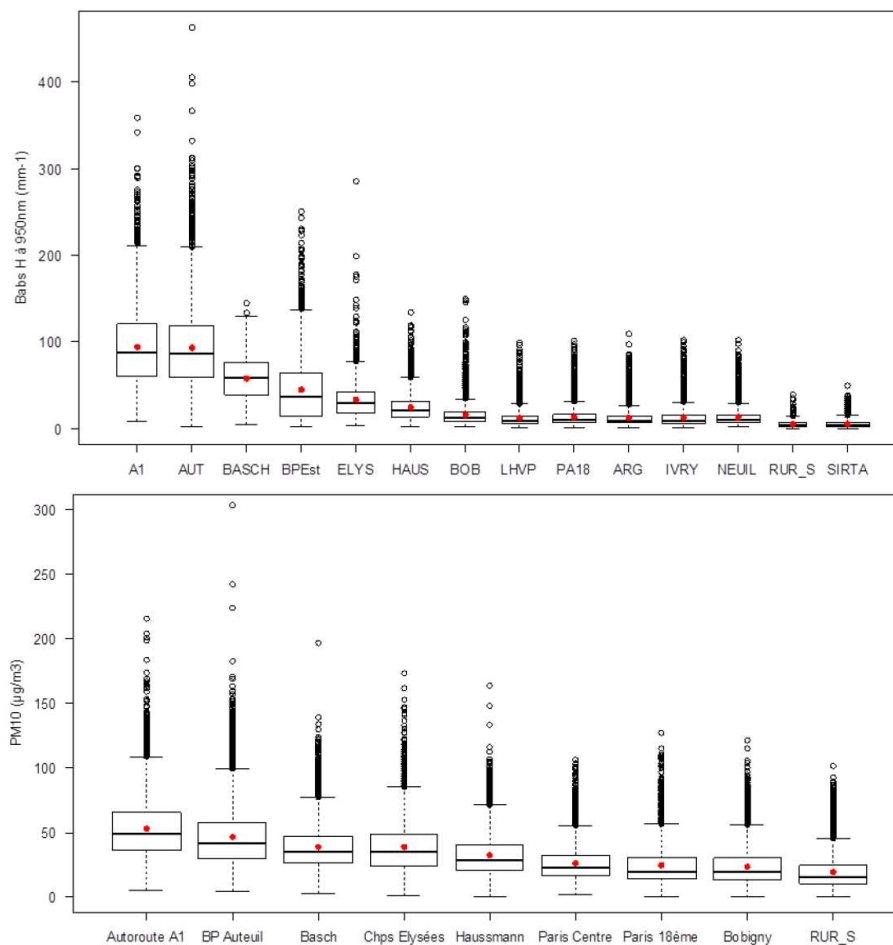


Figure 31 : Distribution spatiale des valeurs moyennes d'absorption (Babs, mesures brutes réalisées par les Aethalomètres) et de PM10 sur différentes stations d'AIRPARIF classées selon leur typologie (à gauche : proximité automobile, à droite : fond rural et/ou régional).

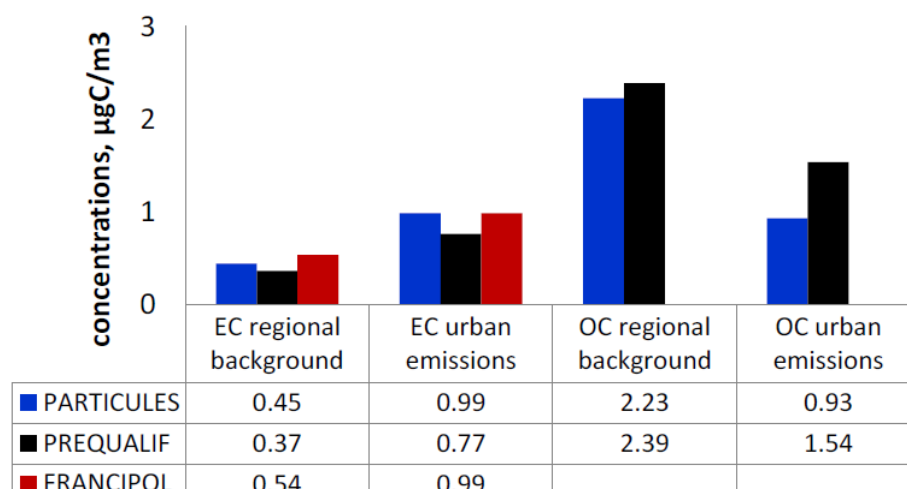


Figure 32 : Moyenne annuelle des contributions locales et régionales d'EC et OC mesurées pendant les programmes PARTICULES, FRANCIPOL et PREQUALIF

Outre la formation d'aérosols organiques secondaires, les plus fortes concentrations d'OC en fond régional s'expliquent par la distribution spatiale des sources de combustion sur le territoire francilien. En effet, si l'influence du trafic automobile (premier émetteur de BC et EC) est plus marquée au niveau de l'agglomération parisienne, l'impact du chauffage résidentiel au bois (dont les émissions sont particulièrement riches en matière organique) est plus diffus sur l'ensemble de la région (Figure 33). Au total, ces deux sources primaires contribuent ensemble à 15-20% des PM_{2.5} en moyenne annuelle sur les sites de fond parisien.

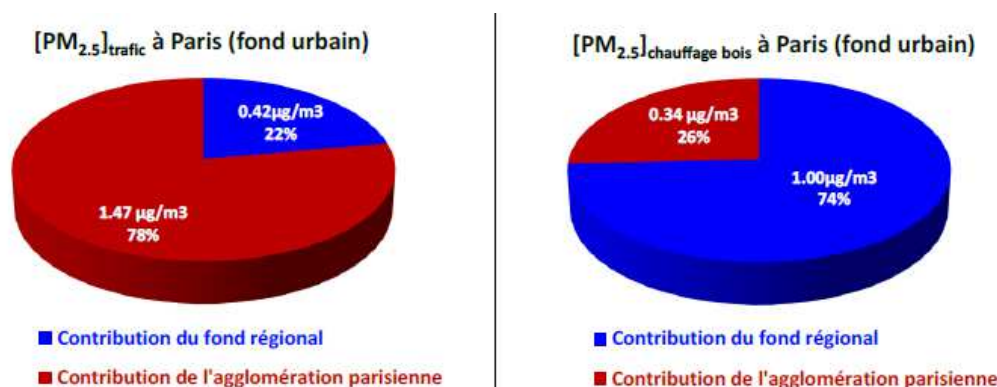


Figure 33 : Contributions annuelles moyennes du fond régional et de l'agglomération parisienne aux concentrations de PM_{2.5} issu du trafic et du chauffage au bois mesurées à Paris.

Enfin, le trafic routier est également susceptible de générer d'importantes émissions de particules plus ou moins grossières via des phénomènes d'abrasion (freins, pneus, chaussée, ...) et/ou de remise en suspension (particules atmosphériques déposées sur la chaussée, salage/sablage, ...).

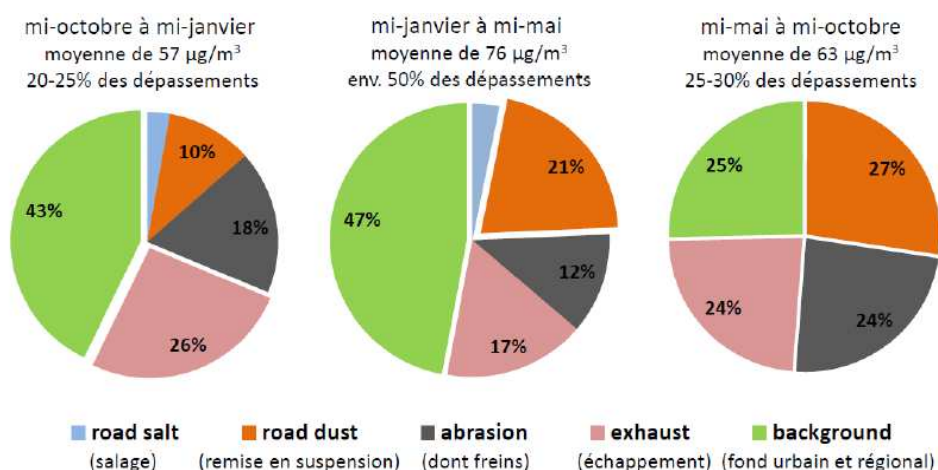


Figure 34 : Contributions aux dépassements de seuil journalier fixé pour le PM₁₀ (>50 µg/m³) des différentes sources liées au transport routier à Auteuil (périphérique parisien)

Les zones de proximité automobile étant les plus impactées par les dépassements des valeurs réglementaires fixées pour la surveillance des PM, il est nécessaire de mieux caractériser l'influence de ces émissions primaires hors échappement. Dans le cadre du projet PREQUALIF, ce type de sources a pu être étudié à l'aide de prélèvement à même la chaussée (lors d'une campagne spécifique) et de mesures sur filtres (1 jour sur 3) au

niveau du périphérique. Les résultats obtenus illustrent leurs influences sur les dépassements du seuil de 50 µg/m³ (Figure 34). On note en particulier l'augmentation de la contribution des émissions primaires liée à la remise en suspension au printemps et en été.

4.3 Zones Rhône-Alpes et PACA

4.3.1 Projet FORMES

	Programme RIMEQUAL « Fraction organique des aérosols – Méthodologie d'estimation des sources » (FORMES)
Partenaires	Air PACA, Atmo Auvergne-Rhône-Alpes, IGE, LCME, LCE, LaMP
Dates	2007-2010
Référence	Rapport final disponible sur demande auprès de l'IGE
Contact	Jean-Luc JAFFREZO (IGE) : jean-luc.jaffrezo@univ-grenoble-alpes.fr

Objectif

Ce projet de recherche visait une meilleure connaissance des origines des aérosols organiques dans des environnements urbains et conditions météorologiques et photochimiques très différenciés : Marseille l'été, et Grenoble l'hiver, avec pour objectifs spécifiques de :

- Déterminer quantitativement l'évolution des contributions relatives des principales sources primaires de l'aérosol organique par une approche de type CMB.
- Evaluer la contribution des processus secondaires par confrontation de plusieurs approches (chimiques et physiques) permettant de prendre en compte les principales caractéristiques des particules atmosphériques.
- Proposer une méthodologie simplifiée d'étude des sources de matière organique à la fois primaires et secondaires, opérationnelle pour une large gamme de sites.

Méthodologie

Tout d'abord, il était proposé que la spéciation des sources primaires soit réalisée au moyen de l'approche CMB (Chemical Mass Balance), méthode de référence pour l'US EPA, qui s'appuie principalement sur des traceurs organiques (hopanes, stéranes, lévoglucosan, alcanes linéaires, acides carboxyliques, HAP, ...) mesurés sur filtres.

Cette méthodologie a également été contrainte par d'autres approches complémentaires : étude des isotopes du carbone, analyses PMF sur les jeux de données obtenus par AMS (*Aerosol Mass Spectrometer, Aerodyne Res. Inc.*), et « modèle Aethalomètre ».

Principaux résultats

On retiendra, parmi les principaux résultats :²⁴⁻²⁵

- Un bon accord entre les méthodes de quantification des sources, bien que basées sur des concepts sensiblement différents ; souvent opposées dans la littérature ces approches ont montré leur complémentarité ;
- L'impact prépondérant des processus photochimique en été, à Marseille, ainsi qu'un impact significatif des émissions industrielles, particulièrement en considérant le nombre de particules et non la masse de l'aérosol ;
- L'impact prépondérant des combustions de biomasse en hiver, à Grenoble ;
- En termes méthodologiques pour le CMB,
 - i) une réduction du nombre de marqueurs organiques et métalliques à un jeu d'une quinzaine de composés, pouvant être analysés sur un même échantillon ;
 - ii) la définition de profils de sources adaptés aux agglomérations françaises, ce jeu devant être affiner en fonction des spécificités locales ;
- L'apport de la méthode optique dans des situations hivernales simples, pour évaluer la contribution de la combustion de biomasse à la masse des matériaux organiques ;
- La nécessité de coupler les approches AMS/PMF et CMB pour tenter de mieux appréhender la fraction secondaire organique, et particulièrement distinguer l'aérosol organique secondaire (AOS) du vieillissement de la fraction primaire ;
- L'intérêt de ces approches en site récepteur pour la modélisation déterministe.

4.3.2 Projets AERA, PART'AERA, puis SH'AIR

	Programme ALCOTRA « Air Environnement Régions ALCOTRA », « Système d'échange atmosphérique inter-régional »
Partenaires	Air PACA, Atmo Auvergne-Rhône-Alpes, DREAL PACA, Région Ligure, Piémont et Val d'Aoste, les provinces de Cuneo et de Torino et l'ex.-région Rhône Alpes, IGE, LCME
Dates	2007-2015
Référence	Rapports d'étude disponible notamment sur : http://www.partaera.eu/fr/ http://www.shair-alcotra.eu/fr/
Contact (Fr)	Alexandre ARMENGAUD (Air PACA) : alexandre.armengaud@airpaca.org

Objectifs

Les projets AERA, PART'AERA et SH'AIR s'inscrivent dans le programme Européen ALCOTRA, qui vise les problématiques liées à l'amélioration de la qualité de l'air dans un cadre transfrontalier.

Plus précisément, ces projets avaient comme objectif prioritaire d'approfondir et d'harmoniser la connaissance sur les méthodes de mesure et sur l'analyse de l'origine de la pollution particulaire, afin de fournir aux responsables des politiques publiques des

informations utiles pour identifier et maîtriser des outils d'action efficaces au sein de régions présentant de nombreuses analogies en termes de sources de pollution (trafic des véhicules, production d'énergie), d'orographie, et de conditions climatiques. En effet, l'espace alpin de ces régions subit, chaque hiver, des épisodes de pollution significatifs à cause de la grande quantité d'émissions de particules dans l'atmosphère, favorisés par une météo et une orographie défavorables à la dispersion.

Méthodologie

Pour les volets concernant la caractérisation des propriétés physico-chimiques des particules, chaque partenaire a instrumenté une station pour la mesure de la pollution de l'air représentant une vaste zone de fond rurale ou urbaine du territoire d'appartenance. Les mesures ont été effectuées conformément à la Directive Européenne 2008/50/CE sur une période d'un an. Ils concernent :

- Mesures de PM₁₀ avec méthode gravimétrique (norme NF EN 12341), un filtre par jour,
- Mesures de PM₁₀ et PM_{2.5} avec méthode automatique (TEOM-FDMS ou radiomètre Beta) en continu,
- Mesures de composants particuliers des particules, notamment :
 - Carbone organique et élémentaire (EC/OC),
 - Ions principaux (nitrates, sulfates et chlorures),
 - Une série étendue d'espèces métalliques,
 - Le lévoglucosan comme traceur des combustions de biomasses,
 - Hopanes et steranes comme potentiels traceurs des émissions à l'échappement automobile,
 - HAPs.

Les jeux de données obtenus à l'aide de ces spéciations chimiques ont notamment été utilisés pour réaliser des outils de sources de particules à l'aide de l'outil PMF.

Principaux résultats

La Figure 35 présente les résultats obtenus par application de la PMF sur les jeux de données obtenus pour chacune des régions en 2013-2014.

Les points principaux qui peuvent être retenus au terme de cette étude sont :

- Le site d'Air RA (vallée de l'Arve) semble plus fortement impacté par des sources locales comme la combustion du bois et un facteur industriel qui représentent respectivement 18% et 19% des concentrations moyennes annuelles de PM observées.
- Les émissions du trafic sont majoritaires sur le site d'Arpa-Piémont avec une contribution annuelle de 22% des PM. Par comparaison, ces émissions n'atteignent « que » 15% sur le site de fond urbain (Aix en Provence) d'Air PACA.
- Sur l'ensemble de ces sites urbains, une contribution significative des émissions biogéniques est mise en évidence à l'aide de traceurs organiques spécifiques comme les polyols ou le MSA. Cette étude montre que ces émissions peuvent représenter de 17 à 29% des concentrations de PM mêmes en milieu urbain. En particulier les émissions

biogéniques marines impactent visiblement l'ensemble des sites même ceux en régions alpines et plus éloignés du littoral.

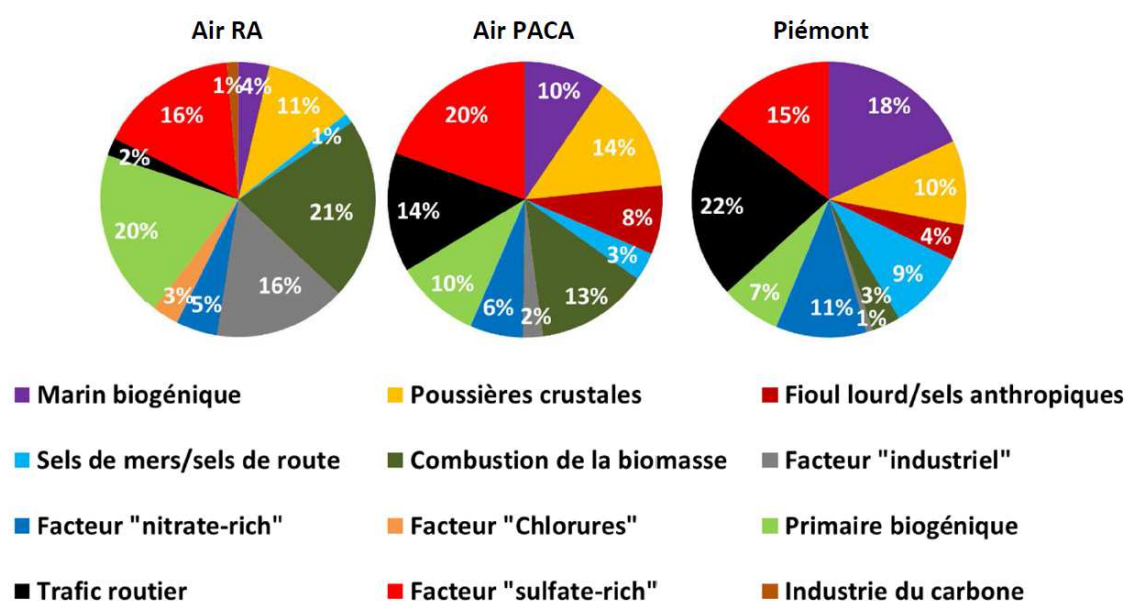


Figure 35 : contributions des différentes sources de PM10 obtenues par analyse PMF sur 3 sites du projet Part'Aera

5. PROJETS DE RECHERCHE LIES A LA COMBUSTION DE BIOMASSE

5.1 Impact de la source chauffage au bois sur la commune de Lanslebourg

	« Détermination des sources de PM en vallée Alpine » (Lanslebourg)
Partenaires	LCME, IGE, Atmo Auvergne-Rhône-Alpes, INERIS
Dates	2010-2014
Références	Rapport d'étude disponible sur : http://www.atmo-auvergnerhonealpes.fr/sites/ra/files/publications_import/files/rapport_lanslebourg_chauffage_au_bois_2014.pdf
Contact	Jean-Luc BESOMBES (LCME) : Jean-Luc.Besombes@univ-savoie.fr

Objectifs

Ce projet financé par l'ADEME avait pour but la détermination des sources de PM en vallée Alpine, à partir du cas d'étude de la commune de Lanslebourg particulièrement touchée par des dépassements des valeurs limites fixées pour les concentrations en particules et en HAP. Ce programme a débuté en février 2010, et avait pour objectif de mieux comprendre l'origine des épisodes de pollution, et d'estimer l'impact du chauffage au bois sur la qualité de l'air.

Méthodologie

Dans un premier temps, 15 jours de prélèvement ont été réalisés à chaque saison, sur un site situé en plein coeur de la commune de Lanslebourg. Des analyses des PM₁₀ et PM_{2.5} ont été menées avec en particulier l'étude de 13 HAP, du lévoglucosan, et de EC/OC. La méthode CMB a été appliquée aux données de spéciation chimique détaillée des PM afin d'en attribuer les sources.

Dans la deuxième phase de l'étude, un suivi en continu a été mis en place durant 2 ans, sur deux sites du village de Lanslebourg, comprenant la mesure simultanée à haute fréquence (15 min) à la fois de la concentration massique en PM₁₀ (TEOM FDSMS) et de la concentration atmosphérique en BC (Aethalomètre 7 longueurs d'onde, Magee Scientific, modèle AE-31).

Principaux résultats

Les résultats d'analyse des traceurs organique ont été exploités par une approche CMB. La Figure 36 illustre l'importance de la combustion de la biomasse sur la masse de PM₁₀ (57%), du même ordre de grandeur que ce qui peut être observé sur les autres sites de

vallée alpine (58 % à Lescheraines (PARTICUL’AIR), 42 % à Grenoble (FORMES). En revanche, la contribution du trafic, s’élevant à 31 %, dépasse celles observées sur ces mêmes sites (6 % à Lescheraines, 10 % à Grenoble).

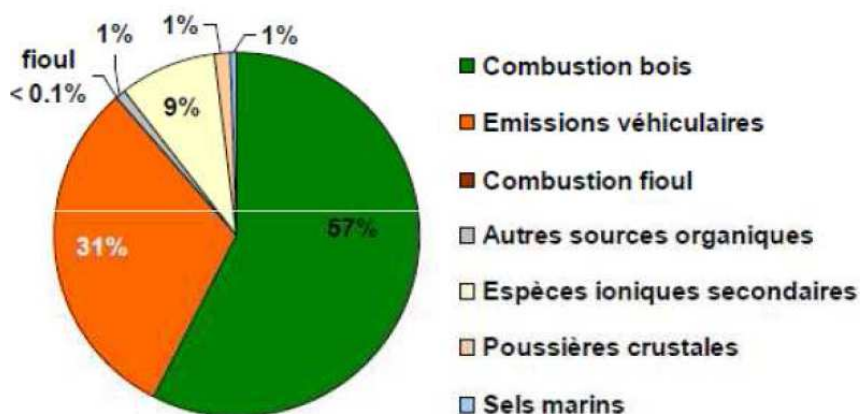


Figure 36 : Contribution moyenne des principales sources primaires aux PM10 (%) sur l'ensemble de la campagne réalisée à Lanslebourg en janvier 2010.

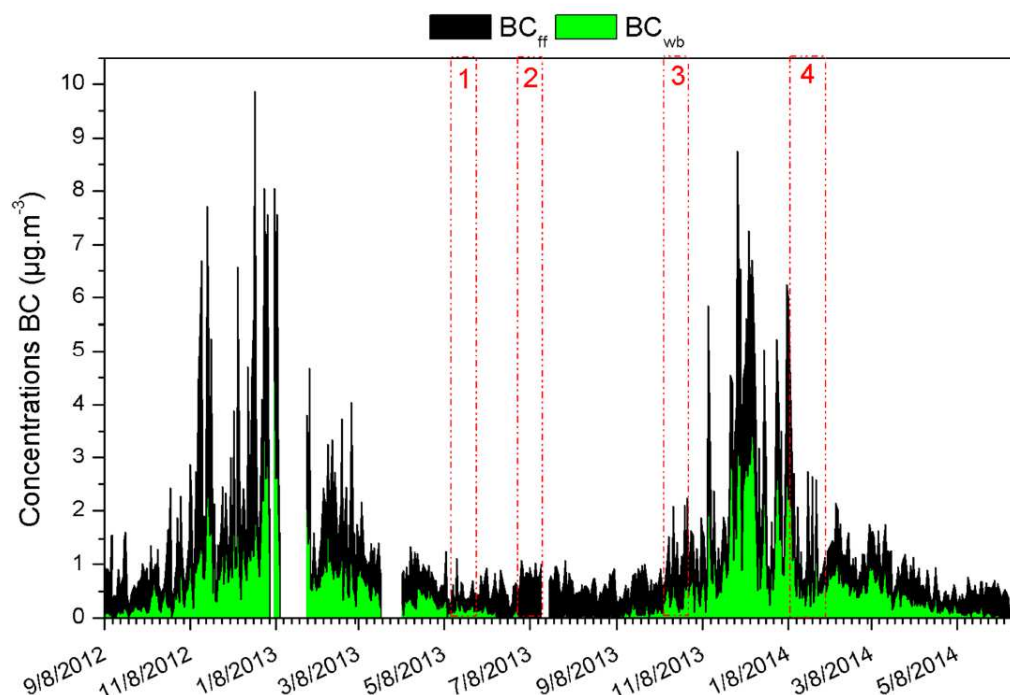


Figure 37 : Evolution des concentrations en BC en moyenne journalière et répartition des sources (trafic et bois) par le modèle Aethalomètre à Lanslebourg entre septembre 2002 et Aout 2014.

Les données Aethalomètre enregistrées pendant deux ans, ont été décomposées en deux composantes : une première issue des combustions de biomasse BC_{wb} et une deuxième issue de la combustion d'hydrocarbures BC_{ff} . La Figure 37 montre très clairement la forte

variabilité saisonnière des concentrations de ces deux fractions de BC. Les concentrations globales de BC des niveaux pouvant être mesurés dans les grandes métropoles et/ou sur des sites de proximité trafic. Les pics de concentration observés ici sont liés à des épisodes d'inversion thermique qui favorisent l'accumulation des polluants. On note également une forte contribution du chauffage au bois pendant l'hiver (en moyenne d'environ 50% avec des maxima dépassant les 75%).

5.2 DECOMBIO

	PRIMEQUAL Vallée de l'Arve « DEconvolution de la contribution de la COMbustion de la BIOmasse aux PM10 dans la vallée de l'Arve » (DECOMBIO)
Partenaires	IGE, LCME, LCE, Atmo Auvergne-Rhône-Alpes, Aerosol d.o.o.
Dates	2013-2017, continuation sur 2018 et 2019.
Références	Thèse de Florie Chevrier, « Chauffage au bois et qualité de l'air en Vallée de l'Arve : définition d'un système de surveillance et impact d'une politique de rénovation du parc des appareils anciens ». 2016, Université de Grenoble Alpes. Disponible sur : https://tel.archives-ouvertes.fr/tel-01527559
Contact	Jean-Luc JAFFREZO (IGE) : jean-luc.jaffrezo@univ-grenoble-alpes.fr

Objectifs

La vallée de l'Arve, comme de nombreuses vallées alpines, est régulièrement soumise à des dépassements des valeurs limites fixées pour les PM₁₀. Sa topographie encaissée, les conditions météorologiques particulières et la concentration des activités humaines en fond de vallée favorisent l'accumulation des polluants, en particulier l'hiver. Dans ce contexte, un Plan de Protection de l'Atmosphère (PPA) spécifique y a été mis en place afin, notamment, de réduire les émissions des PM₁₀ liées au chauffage au bois. Une action de très large envergure a été établie via le projet Fonds Air Bois visant à inciter le renouvellement des dispositifs de chauffage au bois les moins performants sur l'ensemble de la zone du PPA (3 200 changements envisagés sur un effectif estimé à 11 000 appareils non performants, sur une période de 4 ans). Il est estimé que cette action doit conduire à abaisser de 25 % les émissions de particules du chauffage au bois individuel.

Le projet DECOMBIO a été mis en place afin de mettre en œuvre des moyens adaptés pour mesurer les impacts de cette politique de rénovation des dispositifs de chauffage sur la qualité de l'air. Les objectifs du projet sont donc :

- la mise en place d'un dispositif de surveillance d'un traceur de la combustion (le Black Carbon) par des mesures on-line par aethalomètre

- la validation des méthodologies de mesures et d'attribution des contributions des sources de polluants issus de combustions de biomasse à partir des mesures on-line en continu
- la mise en relation des éventuels changements des concentrations avec les avancées des remplacements de dispositifs de chauffage.

Méthodologie

Trois sites de fond urbain de la vallée de l'Arve (Figure 38) ont été instrumentés pour ce projet, à savoir les sites de Marnaz (505 m), Passy (583 m) et Chamonix (1035 m). Des Aethalomètres multi-longueurs d'onde (AE33) ont été implémentés sur chaque site depuis octobre 2013. Des prélèvements de la phase particulaire ont eu lieu de novembre 2013 au 31 octobre 2014. Ces derniers ont été réalisés un jour sur trois à Marnaz et Chamonix et deux jours sur trois à Passy à l'aide de DA80. Les filtres prélevés ont été traités et analysés pour un très large panel de composés chimiques (EC, OC, HULIS, métaux, HAPs, Alcanes, C^{14} , ions, sucres) et permettent l'attribution des sources de PM par analyse statistique de type PMF ainsi que la quantification de ces sources de combustion.

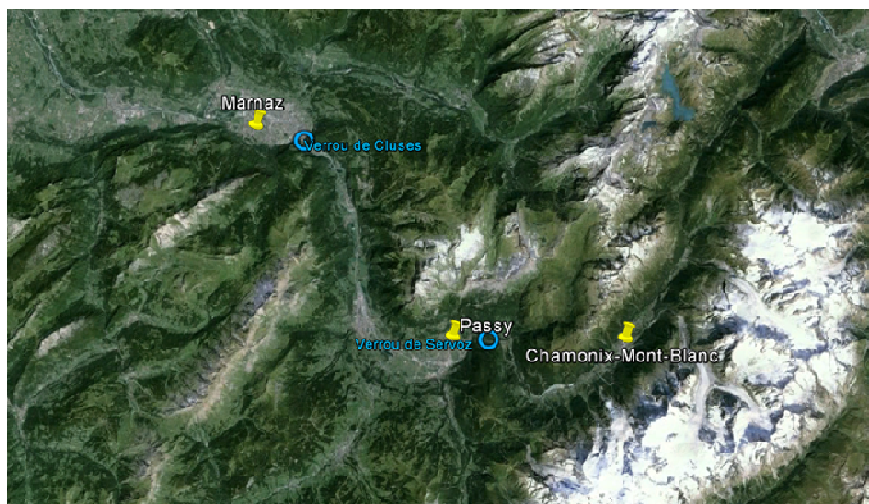


Figure 38 : Localisation des sites de mesure du projet DECOMBIO

Une campagne intensive de mesure on line s'est déroulée du 14 Février 2014 au 28 Février 2014 sur le site de Passy. Cette campagne a mobilisé des outils permettant l'analyse à haute résolution temporelle des phases particulaire et gazeuse de la pollution de l'air, en particulier un spectromètre de masse pour aérosols haute résolution (HR-AMS) et un spectromètre de masse à transfert de protons pour l'étude des Composés Organiques Volatils (PTR-MS).

Principaux résultats

L'étude menée sur la première année du programme, avec des prélèvements de PM₁₀ sur les 3 sites 1 jour sur 3 pendant 1 an et des analyses poussées de la composition chimique, a permis de réaliser des déconvolutions des sources des PM, et des comparaisons entre différentes méthodologies plus ou moins avancées :

- PMF 5.0 « classique » : en utilisant un jeu de traceurs comparable à ceux rencontrés communément dans la littérature

- PMF 5.0 « étendue » : avec un jeu de traceurs incluant en particulier de plus nombreuses espèces organiques
- PMF5.0 ME2 : en ajoutant des jeux de contraintes modérées sur les espèces entrant dans les facteurs de source
- PMF5.0 AE33 : en utilisant une décomposition du BC issue des mesures par AE33 (BCwb et BCff)
- PMF5.0 AE33 + 14C : en utilisant des contraintes généralisées sur les fractions OCwb générées par les mesures de 14C obtenues sur les sites de Passy et Chamonix.

La figure 39 présente les résultats des contributions des sources obtenues pour la période hivernale pour les 3 sites et pour ces différentes approches. On montre que les résultats sont assez peu différents pour toutes ces approches, avec des sources identifiées identiques, et des contributions ne variant pas de plus de 5 à 10 % maximum. La combustion de la biomasse est le contributeur principal sur tous les sites, la somme des facteurs secondaires nitrate rich et sulfate rich arrivant en seconde position. En particulier, la source véhiculaire est peu présente, ce qui correspond parfaitement aux résultats des analyses isotopiques sur la matière carbonée.

La figure 40 ci-dessous présente les résultats obtenus pour la période estivale, avec une vision obtenue pour les source très différente. A cette période, les sources principales ont les sources biogéniques (primaires et secondaires) et les sources inorganiques secondaires (nitrate et sulfate-rich). Les poussières crustales et la source véhiculaire ont un poids plus important qu'en hiver. Là encore, les résultats sont assez similaires entre les différentes méthodes, même si les méthodes les plus avancées permettent d'identifier de façon plus fiable une source industrielle à Marnaz.

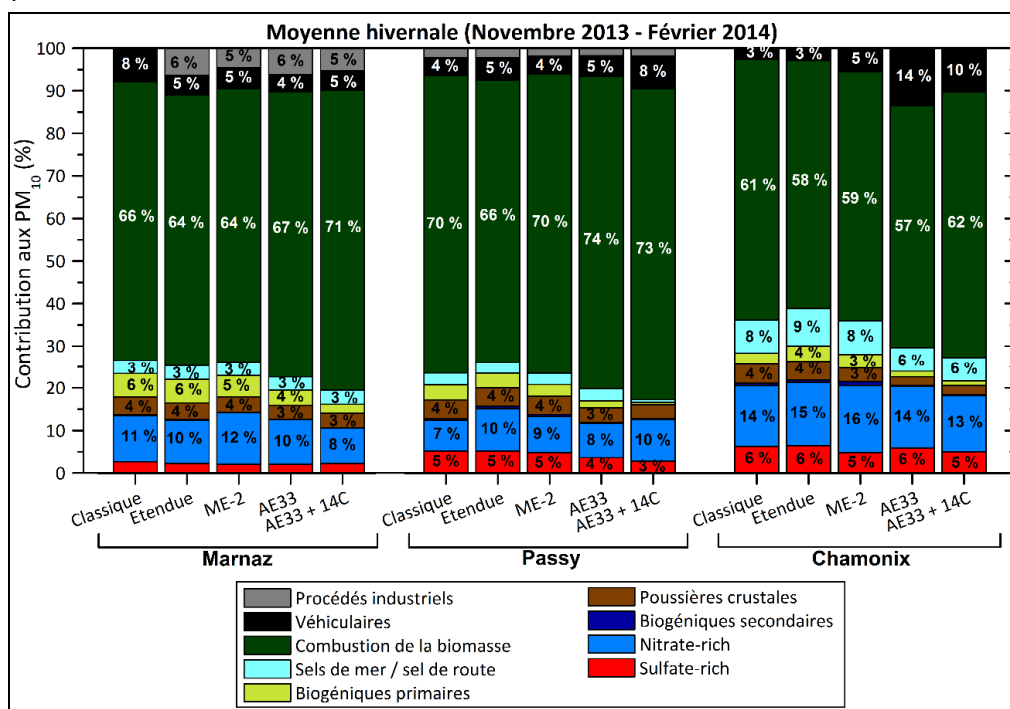


Figure 39 : Contributions des principales sources de particule obtenues à l'aide de différentes approches PMF sur les 3 sites DECOMBIO pour la période hivernale.

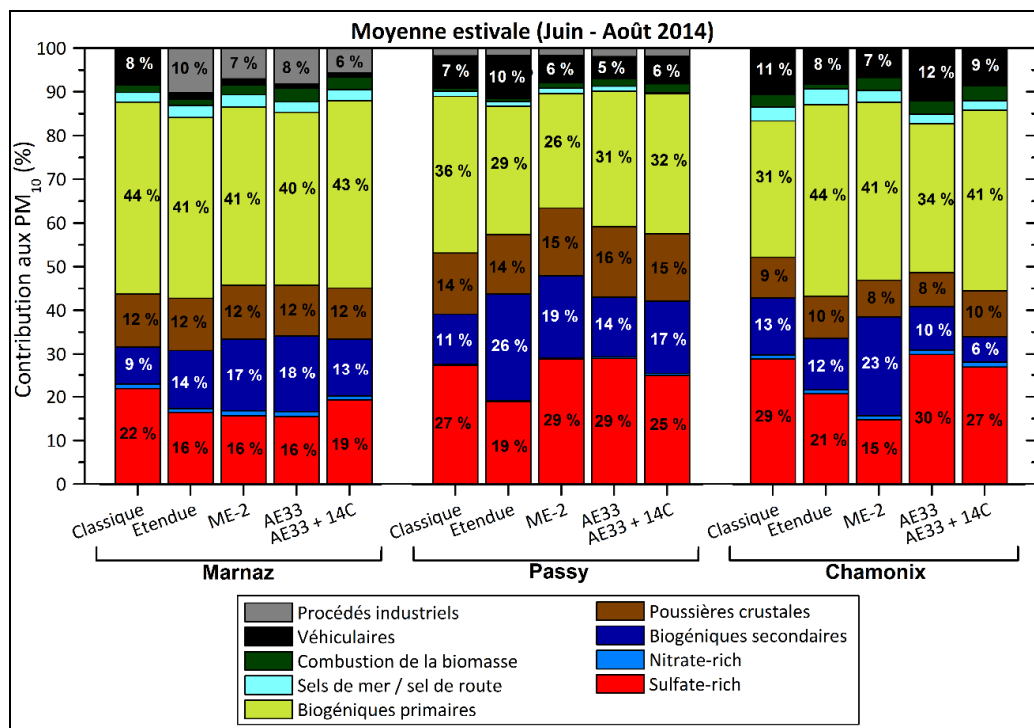


Figure 40 : Contributions des principales sources de particule obtenues à l'aide de différentes approches PMF sur les 3 sites DECOMBIO pour la période estivale.

Au-delà de ces résultats sur la composition des PM et les sources associées, DECOMBIO permet de bien montrer que l'influence de la météorologie locale est fondamentale pour la modulation des concentrations au sol (Figure 41).

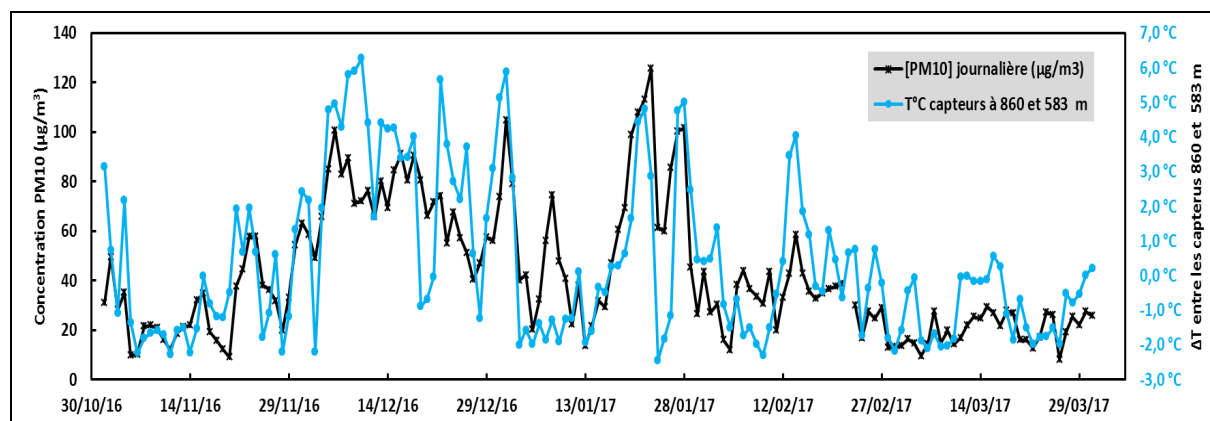


Figure 41: Evolution des concentrations moyennes journalières des PM10 et de la différence de température moyenne journalière entre les sites au sol (583msal) et en altitude (860 masl) à Passy, pour l'ensemble de l'hiver 2016-2017.

6. PROJETS DE RECHERCHE LIES AUX SOURCES VEHICULAIRES

6.1 Impact du Salage sur les concentrations de PM₁₀ en Rhône-Alpes

	Contribution des pratiques de salage sur les niveaux de PM₁₀ en zone Rhône-Alpes
Partenaires	Atmo Auvergne-Rhône Alpes, IGE, LCSQA
Dates	2012-2013
Références	Rapport d'étude disponible sur: http://www.ige-grenoble.fr/recherche/equipes/chimie-atmospherique-chianti/projets/article/influence-du-salage-des-routes-sur Rapport LCSQA 2012, Synthèse des travaux 2012 du programme CARA
Contact	Alexandre THOMASSON (Atmo AuRA) : AThomasson@atmo-aura.fr

Objectifs

Parmi les particules susceptibles d'être remise en suspension par le trafic automobile, celles liées directement au salage et/ou sablage des routes peuvent être déduites des concentrations mesurées de PM en vue de l'examen du respect des valeurs limites. Cette étude avait pour objectif la mise en œuvre de méthodologies basées sur la mesure pour l'estimation de l'influence de cette source sur les niveaux de PM en proximité automobile.

Méthodologie

La commission européenne a mis en ligne en 2011 un guide méthodologique décrivant des modalités d'estimation de l'impact des concentrations du salage et du sablage sur les concentrations de PM₁₀. Ce guide stipule que cette estimation doit être réalisée par la mesure sur site, les inventaires d'émission et modèles de proximité étant jugés trop incertains. En particulier, pour le salage, il préconise de :

- collecter les informations sur les propriétés chimiques du sel épandu sur les routes à côté du site de mesures ;
- réaliser l'analyse chimique du chlorure, ou des autres composés chimiques pertinents correspondant au sel épandu, dans les échantillons de PM₁₀ ;
- s'assurer que les concentrations élevées de ces composés ne proviennent pas d'autres sources ;
- soustraire la fraction de sel estimée de la concentration de PM₁₀.

Le choix du chlorure comme traceur des sels de route peut être sujet à discussion. En effet, il est connu que cette espèce est susceptible d'être « remplacée » par d'autres espèces (en particulier sulfate et nitrate) au cours du vieillissement des sels dans

l'atmosphère, mais également sur le filtre après prélèvement. D'autres traceurs, tel que le sodium couramment utilisé comme traceur des sels marins, peuvent s'avérer plus appropriés.

Cette étude a ainsi permis de réaliser des tests de sensibilité de différentes modalités de calcul. Elle est basée sur des prélèvements journaliers continus pendant 2 mois (février et mars) sur trois sites : les deux sites de proximité automobile : *Le rondeau* et *Bossons*, ainsi qu'un site de fond urbain l'agglomération grenobloise (*Les Frênes*). Différentes méthodologies pouvant satisfaire aux recommandations du guide EU ont été testées.

Principaux résultats

Une bonne homogénéité a été constatée entre les méthodes testées, en particulier pour les fortes concentrations (Figure 42). Les modalités de prises en compte des autres sources potentielles (de chlorure ou de sodium) et le caractère minimisant de certaines hypothèses (i.e. impact négligeable de la remise en suspension sur les sites de fond urbain) expliquent les écarts relatifs plus importants observés pour les concentrations les plus faibles.

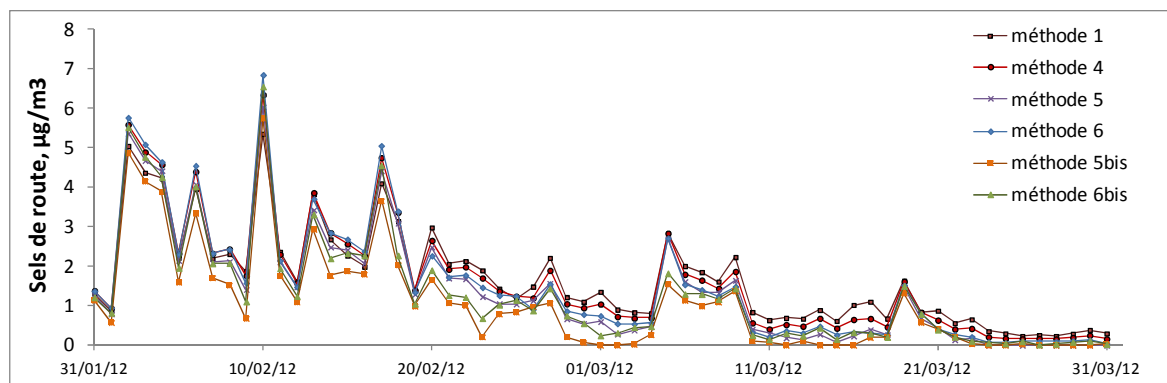


Figure 42 : Comparaison de différentes méthodologies d'estimation de l'impact du salage sur le site de proximité automobile du *Rondeau* en février-mars 2012.

Quelle que soit la méthode de calcul envisagée, le salage a un impact relativement faible sur le nombre de dépassements du seuil journalier fixé pour les PM_{10} au Rondeau. En effet, sur les 24 dépassements enregistrés lors de la campagne, seuls 1 à 5 (selon la méthodologie) sont « attribuables » au salage. Il est intéressant de constater que les jours concernés ne sont pas ceux où la concentration de sel dans les PM_{10} est la plus élevée (Figure 43a), renforçant la nécessité de bien contraindre l'incertitude associée au choix méthodologique. En revanche, les résultats obtenus pour le site des *Bossons* indiquent une influence beaucoup plus importante du salage sur les dépassements du seuil journalier (Figure 43b) dans le cas d'un site de proximité automobile localisé sur une route de montagne fortement fréquenté par des poids lourds.

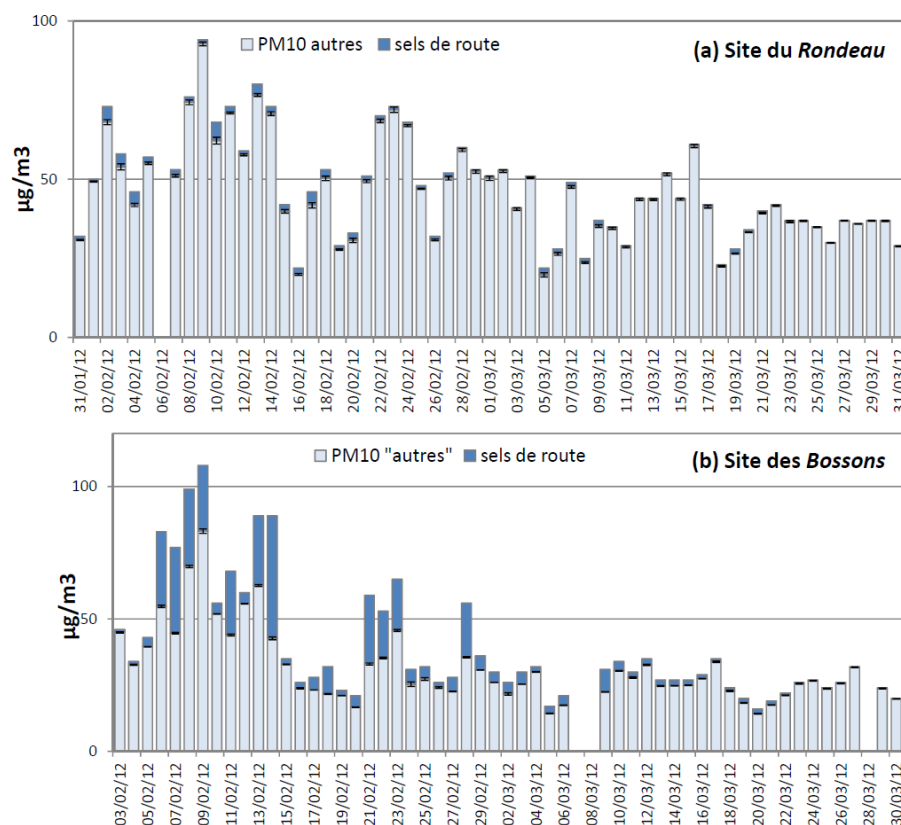


Figure 43: Influence du salage sur les niveaux de PM₁₀ enregistrés sur les sites de proximité automobile du Rondeau et des Bossons (Air Rhône-Alpes) en février et mars 2012.

6.2 MOCOPo & PM-DRIVE

	Programmes PRIMEQUAL PREDIT & ADEME CORTEA « Mesure et modélisation de la congestion et de la pollution » (MOCOPo) « Emissions particulaires directes et indirectes du trafic routier » (PM DRIVE)
Partenaires	IFSTTAR, IGE, LCME, LCE, CERE, Atmo Auvergne-Rhône-Alpes
Dates	2011-2013
Références	Thèse de doctorat de Lucie Polo-Rehn, « Caractérisation et impacts des émissions de polluants du transport routier : Apports méthodologiques et cas d'études en Rhône-Alpes », Université de Grenoble, 2013. Disponible sur : https://tel.archives-ouvertes.fr/tel-00876623 Article de la revue « Pollution Atmosphérique » - 2014 - N° 221, Janvier-mars 2014.
Contact	Aurélien CHARRON (IFSTTAR) : aurelie.charron@ifsttar.fr

Objectifs

L'objectif principal de MOCOPO était d'améliorer la compréhension de la congestion automobile et ses impacts sur la pollution urbaine. La rocade sud de Grenoble a été choisie comme étant très représentative des phénomènes de congestion du trafic. Le projet PM-Drive est un projet financé par l'ADEME dans le cadre de l'appel à projet CORTEA et adossé au projet MOCOPO, avec pour principal objectif de développer les connaissances relatives aux émissions particulières et nanoparticulaires des véhicules motorisés ainsi que de leurs contributions aux concentrations atmosphériques en particules en milieu urbain. Les objectifs de PM-Drive se déclinent en trois points :

- 1) La quantification des émissions particulières et nanoparticulaires primaires des transports routiers, dont celles qui sont le plus difficile à évaluer, les émissions hors échappement.
- 2) Le développement des connaissances sur les évolutions physico-chimiques des émissions véhiculaires en champs proche (fraction correspondant à l'aérosol organique secondaire en atmosphère contrôlée et en atmosphère réelle),
- 3) La détermination et la modélisation des mécanismes de formation des particules à l'échappement automobile en rassemblant les connaissances sur les propriétés physico-chimiques de ces particules.

Méthodologie

Ces projets étaient notamment basés sur la réalisation d'une campagne de mesure in situ (du 9 au 23 septembre 2011). Deux sites particuliers de prélèvements ont été instrumentés pour cette étude : Grenoble-Échirolles, représentatif d'un site de proximité automobile, et Grenoble-Les Frênes, représentatif des conditions de fond urbain. Le site non permanent d'Échirolles est placé à une dizaine de mètres du bord de la rocade sud de Grenoble. Cette rocade contourne Grenoble du sud-ouest au nord-est, reliant l'A80 en direction de Lyon ou Marseille et l'A41 en direction de Chambéry. La station des Frênes est une station fixe du réseau d'Atmo Auvergne-Rhône-Alpes, caractéristique du fond urbain. Elle est placée sur le toit d'une école maternelle située dans un parc. Les deux sites sont éloignés de 2,5 km l'un de l'autre à vol d'oiseau. Sur les deux sites, les mesures des polluants réglementés en continu ont été effectuées simultanément, de même que les prélèvements de la matière particulaire sur filtres par un appareil DA80 (High Volume Aerosol Sampler) équipé d'une tête PM₁₀. Les pas de temps choisis pour les prélèvements des filtres sont de 4h (7h30-11h30 et ainsi de suite), découpant ainsi la journée en 6 créneaux horaires. Ceux-ci ont été choisis de façon à distinguer l'évolution du trafic routier durant les périodes « chargées » et « creuses » de la journée.

Un important parc instrumental a été mis en oeuvre sur le site d'Échirolles dans le cadre de cette campagne. La plate-forme mobile MASSALYA (<http://lce.univ-amu.fr/massalya.html>) a été mise en place par le LCE (Laboratoire Chimie Environnement, Marseille), contenant des instruments pour des mesures on-line, tels que HR-ToF-AMS (High-Resolution Time-of-Flight Aerosol Mass Spectrometer), MAAP (Multi Angle Aerosol Photometer), SMPS (Scanning Mobility Particle Sizer), PTR-ToF-MS (Proton- Transfer-Reaction Time-of-Flight Mass Spectrometer).

Sur ce même site, des caméras (permettant la reconnaissance de plaques d'immatriculations, non utilisée dans cette étude) et des boucles électromagnétiques

(donnant les comptages des véhicules par classes de taille) étaient également disponibles, afin d'obtenir des informations détaillées sur le trafic.

Les particules PM₁₀ ont été collectées sur des filtres en quartz. Les filtres issus de la deuxième semaine (17/09- 23/09) de la campagne ont été analysés pour les deux sites permettant de quantifier les espèces carbonées (carbone élémentaire EC et carbone organique OC), des ions majeurs, des alcanes linéaires, des Hydrocarbures Aromatiques Polycycliques (HAP), un monosaccharide anhydre (lévoglucosan) et des métaux en trace. Un complément d'analyses (du 11/09 au 16/09) concernant les métaux, EC/OC, n-alcanes, hopanes, HAP et lévoglucosan, a été fait sur les filtres du site trafic de manière à avoir une base de données suffisante pour la discrimination des sources par analyse PMF sur ce site.

Principaux résultats

La comparaison des évolutions des concentrations des espèces chimiques sur les deux sites étudiés durant le créneau d'heure de pointe du trafic a permis de mettre en évidence de très bons indicateurs des émissions véhiculaires tels que Cu, Fe, Sb, Mn et Sn. Le modèle source-récepteur utilisé pour identifier et quantifier les différentes sources contribuant aux PM₁₀ sur le site trafic est le modèle PMF. Une solution à 7 facteurs a été retenue comme solution la plus pertinente, qui permette une bonne reconstruction des concentrations de la plupart des espèces chimiques (Figure 44).

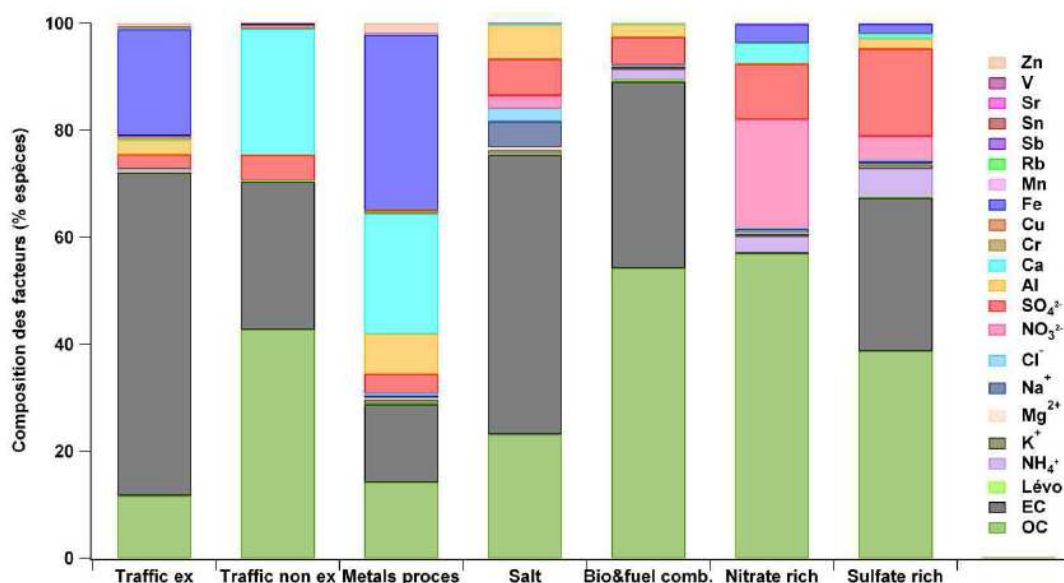


Figure 44 : Composition chimique des 7 facteurs d'émission trouvés à l'aide du modèle PMF (EPA PMF v3.0)

Ces facteurs sont :

- les émissions à l'échappement,
- les émissions hors échappement (dont les particules remises en suspension par le trafic routier),
- l'usure des pièces métalliques,

- la combustion de la biomasse et d'énergie fossile,
- un facteur secondaire dominé par le sulfate d'ammonium,
- un autre facteur secondaire dominé par le nitrate d'ammonium,
- et enfin un facteur caractérisé par des sels.

Deux points particulièrement importants sont à souligner parmi les résultats obtenus :

- La somme des contributions des sources à l'échappement et hors échappement à l'ensemble des PM₁₀ est de 34% en moyenne sur la période d'étude, avec une contribution des émissions véhiculaires à l'échappement de seulement 17%.
- La différence marquante de la contribution aux PM₁₀ des émissions véhiculaires totales entre la période de pointe du trafic (57%) et la période «creuse» de la nuit (14%), comme illustré par la Figure 45.

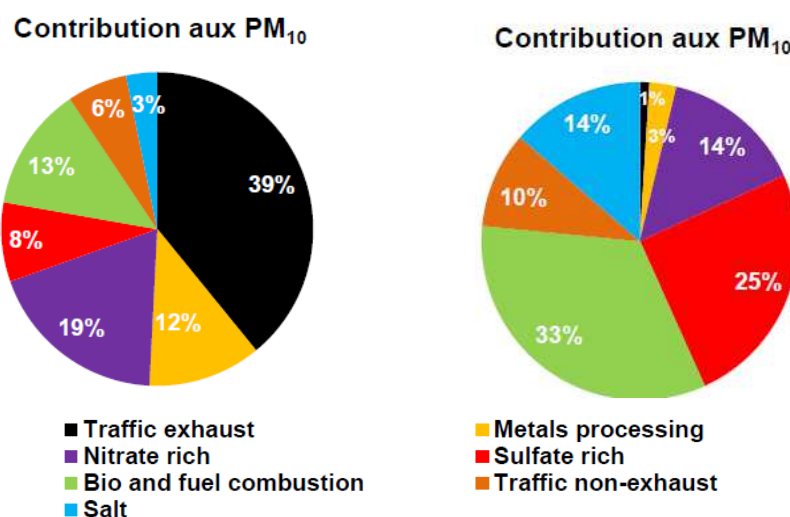


Figure 45 : Contributions moyennes des sources aux PM₁₀ de 7h30 à 11h30 (à gauche) et de 23h30 à 3h30 (à droite) pour le site trafic d'Echirrolles.

7. PROJETS DE RECHERCHE LIES AUX SOURCES INDUSTRIELLES

7.1 VALLEE DES PAILLONS & PACTES

	Financés par la DREAL PACA & ANSES « Les vallées des Paillons, Caractérisation chimique et contribution des sources »
Partenaires	Air PACA, IGE, LCE, CEREGE
Dates	2008-2013
Référence	Rapport d'étude disponible sur : http://www.spppi-paca.org/arkotheque/client/spppi_paca/depot_arko/articles/143/2010-rapport-particules-vallees-paillons-airpaca_doc.pdf
Contact	Alexandre ARMENGAUD (Air PACA) : alexandre.armengaud@airpaca.org Yves NOACK (CEREGE): noack@cerege.fr

Objectifs

Cette étude visait notamment à améliorer les connaissances sur les sources des PM₁₀ en région PACA et à identifier les causes des dépassements réguliers des seuils réglementaires en PM₁₀ en particulier pour la contribution des sites industriels de Contes et Peillon, situés dans l'arrière-pays niçois.

Méthodologie

Des prélèvements PM₁₀ ont été réalisés à l'aide de préleveurs haut débit (DA80) sur des pas de temps de 12h, sur des sites de différentes typologies (deux sites périurbains : Contes et Peillon, un site de proximité automobile : Borghéas, et un site de fond rural : Escarène). Un choix de filtres a ensuite été réalisé sur la base des concentrations horaires mesurées par TEOM/FDMS, pour cibler les périodes de dépassement, des périodes présentant des profils caractéristiques des sites étudiés, des journées atypiques. Ainsi, environ 150 filtres ont été soumis à des analyses anions/cations et EC/OC, de traceur de la source bois (lévoglucosan) et de carbone organique soluble. Parmi ces filtres, une deuxième sélection (38 filtres) a été effectuée pour analyses complémentaires en traceurs organiques et éléments métalliques, permettant de réaliser une étude statistique Chemical Mass Balance (CMB) pour les sites périurbains de Contes et Peillon.

A noter que des mesures LIDAR ont également été réalisées par la société Leosphère (financée ici par l'ADEME) sur ces sites permanents de Contes et de Peillon.

Principaux résultats

L'étude des contributions et des concentrations en particules met en évidence des phénomènes complexes et variables en fonction des saisons, des conditions

météorologiques et des activités locales épisodiques, récurrentes et permanentes. Ainsi :

- Le trafic routier représente de 11 à 19 % de la masse des particules. Cette source est plus importante pendant les jours ouvrés.
- Les activités de la cimenterie hors four (carrière, roulage des véhicules, stockage et transport des matières), contribuent aux très fortes contributions de poussières crustales (30-50% des PM₁₀) mesurées à Peillon et à Contes.
- La combustion du four des cimenteries est quasiment permanente. Du fait de l'absence d'empreintes chimiques précises, la contribution n'a pas pu être mise clairement en évidence. Toutefois, une source « combustion de fioul lourd », incluant vraisemblablement ces émissions, peut jusqu'à 18 % de la masse des particules.
- Le chauffage au bois représente environ 18% de la masse des particules en hiver.
- Le brûlage de déchets verts représente ponctuellement et localement une source très importante de PM₁₀ (jusqu'à 45 % certains jours).

A ces sources d'émissions s'ajoute l'influence des conditions météorologiques défavorables dans les vallées. Le régime de brises thermiques associé aux inversions thermiques importantes en toutes saisons favorise l'accumulation des polluants, en particulier en hiver.

7.2 APICE

	Programme MED financé par l'Union Européenne « Influence des activités portuaires sur la qualité de l'air de 5 grands ports méditerranéens » (APICE)
Partenaires (Fr)	LCE, Air PACA, IGE
Dates	2010-2012
Références	http://www.apiceproject.eu/ Thèse de Dalia Salameh, « Impacts atmosphériques des activités portuaires et industrielles sur les particules fines (PM _{2.5}) à Marseille », 2015, Université Aix-Marseille. Disponible sur : http://www.theses.fr/2015AIXM4732
Contact (Fr)	Nicolas MARCHAND (LCE) : nicolas.marchand@univ-amu.fr

Objectifs

Les ports représentant un potentiel significatif pour le développement économique des zones côtières, ils ont souvent un impact environnemental fort, parfois plus important qu'un parc industriel de taille moyenne. L'objectif de cette étude est d'évaluer l'impact des pollutions portuaires sur la qualité de l'air de cinq grands ports méditerranéens (Marseille, Barcelone, Gènes, Venise et Thessalonique). Cette étude s'intègre dans le programme transnational de coopération territoriale européenne, MED, financé par l'Union européenne dans le cadre de sa politique régionale, et s'inscrivant dans la continuité des programmes de coopération européens (anciennement appelés Interreg),

au sein de l'objectif « Coopération territoriale européenne » de la période de programmation 2007-2013.

Le projet APICE, réalisé dans cinq grandes cités-ports, s'organise en trois phases :

- Des campagnes de mesure, comparaison et modélisation pour quantifier l'impact des sources spécifiques des polluants sur la qualité de l'air dans chaque ville.
- L'identification de facteurs de risques et l'évaluation de vulnérabilité afin d'établir des scénarii d'intervention et des stratégies pour réduire les effets de pollution de l'air.
- L'intégration au cadre local de stratégies jointes pour améliorer les capacités de gouvernance dans les zones côtières du projet et promouvoir des interventions efficaces pour anticiper/faciliter la mise en œuvre des Directives Européenne.

Méthodologie

Des prélèvements journaliers sur filtres ont été mis en œuvre sur les cinq sites sur une période d'un an (02/2011-01/2012). La contribution des différentes sources d'émission - à la fois anthropiques et naturelles - a été mise en évidence par deux approches différentes : les modèles de type source-récepteurs et les modèles numériques. Ces deux techniques de répartition des sources ont été appliquées en même temps dans les cinq villes afin de répondre à ces questions :

- Quelles sont les émissions qui affectent principalement les concentrations PM_{10} et $PM_{2.5}$?
- Quel est le poids de la présence du port dans les villes étudiées en termes de concentration PM_{10} et $PM_{2.5}$?

Deux approches de répartition de sources ont été testées : des modèles récepteurs d'un côté, plus adapté à signaler les sources d'émissions par la prise en compte de traceurs spécifiques, et, de l'autre côté, un modèle de chimie transport (CTM), qui prends en compte la formation d'aérosols secondaires, à travers les émissions de précurseurs gazeux de particules.

Par ailleurs, trois modèles récepteurs ont été testés dans le cadre de la thèse de D.Salameh (2015) à partir des données de Marseille : le CMB, la PMF et la PMF/ME2 qui permet de contraindre certains profils de sources.

Principaux résultats

Les campagnes de prélèvement dans chaque zone d'étude produit une image assez détaillée de la composition et des sources de PM. Même si les résultats ne sont pas directement comparables, car ils dépendent partiellement de la position des sites d'échantillonnage, dans quatre villes l'impact des émissions des zones portuaires a été détecté à des niveaux comparables et significatives (entre 10% -20% du total PM). De manière générale, les contributions de la matière organique, des sulfates d'ammonium et les poussières minérales dominant. Néanmoins, ces émissions ne sont pas les déclencheurs principaux des épisodes de pollution rencontrés dans le bassin méditerranéen. En effet, ceux-ci sont plus attribuables aux nitrates (inorganiques secondaires) et à la matière organique issue des processus de combustions.

Comme illustré par la Figure 46, les résultats de l'analyse PMF-ME2 sur les données de Marseille montrent que lors des dépassements ($PM_{2.5} > 25 \mu g/m^3$), la masse des $PM_{2.5}$ se

caractérise principalement par une contribution substantielle de la source de combustion de biomasse qui représente 33% pendant les épisodes contre 16% hors épisodes. Les épisodes de dépassement du seuil de $25 \mu\text{g}/\text{m}^3$ n'intervenant qu'en automne et en hiver ce résultat est attendu. La source trafic présente le même comportement. Au cours des épisodes de pollution, elle représente 23% des $\text{PM}_{2.5}$ contre seulement 15% hors épisodes. Pour le sulfate d'ammonium, la situation est plus complexe. Si pendant les épisodes sa contribution absolue augmente significativement ($10.1 \pm 9.4 \mu\text{g}/\text{m}^3$ contre $4.8 \pm 4.6 \mu\text{g}/\text{m}^3$ hors épisodes), sa contribution relative diminue légèrement (29% contre 32%). Ce comportement reflète la nature même de cette fraction typiquement caractéristique d'un aérosol âgé et relativement homogène, en termes de concentrations, à une échelle régionale. En revanche, l'aérosol industriel, les poussières minérales et l'aérosol marin présentent des concentrations moyennes comparables pendant et hors épisodes de pollution, et donc des contributions relatives plus faibles pendant les épisodes.

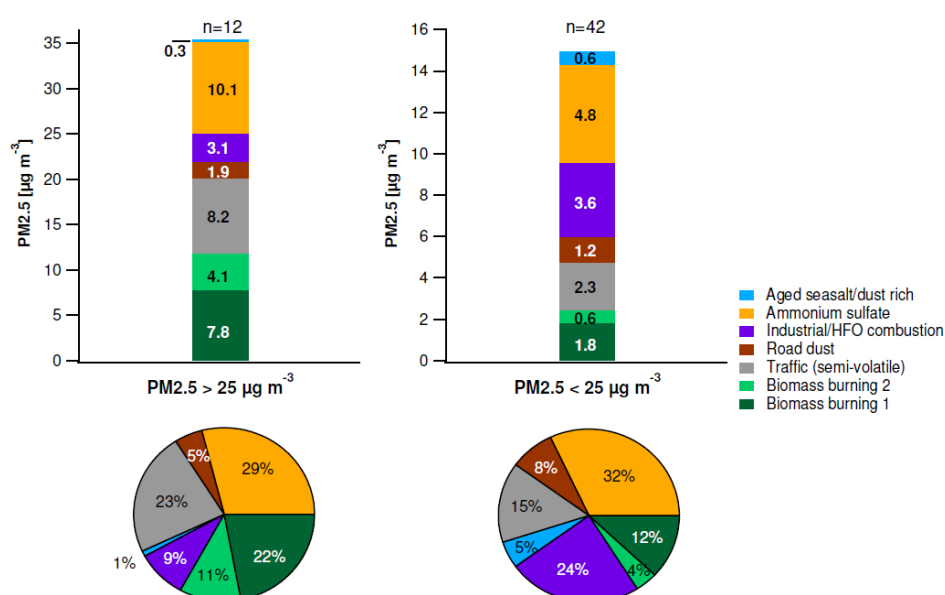


Figure 46 : Contributions ($\mu\text{g}/\text{m}^3$; %) des sources estimées par l'approche ME-2, pendant les épisodes de pollution ($\text{PM}_{2.5} > 25 \mu\text{g}/\text{m}^3$), et hors épisodes de pollution ($\text{PM}_{2.5} < 25 \mu\text{g}/\text{m}^3$)

La comparaison des trois modèles (CMB, PMF et PMF/ME2) indique que :

- L'évaluation des sources combustion de biomasse et trafic sont assez équivalentes traduisant l'utilisation de profil d'émission assez représentatif.
- La source industrielle semble mal prise en compte par la méthode CMB par rapport aux méthodes PMF. En effet, les profils de composition chimiques sont mal connus, en raison du manque de caractérisation des émissions à la source. L'utilisation du Calcium comme traceur des poussières minérales a contribué à surestimer cette source au détriment des émissions industrielles.
- Les concentrations de sulfates d'ammonium estimé par les approches PMF sont plus importantes que celles obtenues par CMB. En effet, les facteurs des méthodes PMF renferment une proportion importante d'OC et d'autre espèce chimique majeures.

8. PROJETS DE RECHERCHE LIES AUX SOURCES MARINES

ECUME

	Financement DREAL Nord Pas de Calais « Etude de l'évaluation de la contribution des sources maritimes sur la teneur en PM10 en Région Nord Pas de Calais » (ECUME)
Partenaires	ULCO, Atmo Hauts de France, INERIS
Dates	2011-2014
Références	Rapport d'étude disponible sur : http://www.hauts-de-france.developpementdurable.gouv.fr/IMG/pdf/rapport_ecume_2013-2015.pdf Thèse de Cloé Roche, « Etude des concentrations et de la composition des PM ₁₀ sur le littoral du nord de la France – Evaluation des contributions maritimes de l'espace Manche-Mer du Nord », 2016, Université du Littoral Côte d'Opale
Contact	Dominique COURCOT (ULCO) : Dominique.Courcot@univ-littoral.fr

Objectifs

Cette étude visait à acquérir une meilleure connaissance de l'origine des PM10 sur le littoral de la région Nord pas de Calais et évaluer la contribution des sources maritimes sur la teneur en PM10. Elle comportait notamment une phase d'échantillonnage de PM10 réalisée sur l'ensemble de l'année 2013, la détermination de leur composition chimique et une phase de recherche de la contribution de sources identifiées par l'utilisation d'un modèle récepteur de factorisation matricielle non négative (NMF).

Méthodologie

L'échantillonnage des particules a été réalisé sous forme de prélèvements journaliers (24h) à l'aide d'un collecteur DIGITEL DA80 fonctionnant à un débit de 30 m³/h. La campagne s'est déroulée de janvier 2013 à juin 2014 au Cap Gris-Nez. La position géographique de ce site est très intéressante, car il est éloigné de toutes les sources majeures de PM10 (villes, industries, grands axes routiers) et est au plus proche de la mer et d'une voie majeure de trafic maritime (déroit du Pas de Calais, près de 20% du trafic mondial).

Une campagne de prélèvement a également été réalisée début 2014 dans le port de Calais.

Les analyses chimiques comprenaient notamment :

- Le carbone organique et élémentaire (OC/EC),
- Ions principaux (dont nitrate, sulfate, chlorure, ammonium, ...),

- Une série étendue d'espèces métalliques,
- Des traceurs organiques, tels que le lévoglucosan et le MSA (traceurs de la combustion de biomasse et des aérosols secondaires biogéniques marins).

Principaux résultats

Sur le site du Cap Gris-Nez en 2013, l'évolution des niveaux de PM₁₀ est similaire à celle observée en région, reflétant la fluctuation du fond atmosphérique. Les espèces majoritaires sont nitrate, sulfate, ammonium, chlore, sodium, et matière organique, représentant ensemble 69% de la masse de PM₁₀. La proportion de ces espèces varie selon la saison et les conditions météorologiques (température, vitesse et direction de vent). Les situations de fortes teneurs en PM₁₀ sont caractérisées par une plus grande proportion des aérosols secondaires, et en particulier le nitrate d'ammonium (Figure 47).

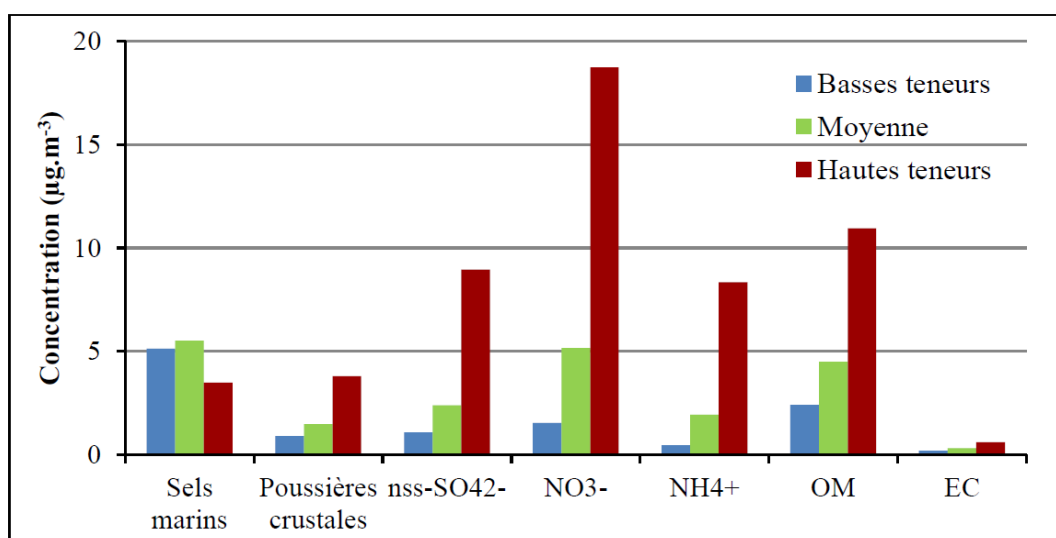


Figure 47 : concentrations moyennes des espèces chimiques majeures au cap Gris-Nez pour l'année 2013 selon les basses (< 15 µg/m³), moyennes (15 < 50 µg/m³) et hautes (> 50 µg/m³) teneurs de PM₁₀.

Les données recueillies sur le site de Calais ont permis de montrer que les émissions du trafic maritime ont pour effet d'augmenter le nombre de particules ultrafines dans l'atmosphère. Sous cette influence, les concentrations en NO_x et SO₂ apparaissent plus élevées, ainsi que celle des espèces V, Ni et Co qui peuvent être proposées comme traceurs du trafic maritime.

L'utilisation de la factorisation matricielle (NMF) a permis d'identifier 10 sources de particules et d'en estimer les contributions (Figure 48). Ainsi, en moyenne en 2013 au Cap Gris-Nez, 41% des PM₁₀ sont issus des aérosols inorganiques secondaires, 37% des sels marins naturels (frais et « anthropisés ») et 10% de la combustion de biomasse. Pour cette dernière, la contribution peut atteindre 17% en hiver. Enfin, le trafic maritime (principal émetteur de résidus de combustion de fioul lourd) contribue davantage à la concentration de PM₁₀ que le trafic routier (5% vs. 2%, respectivement).

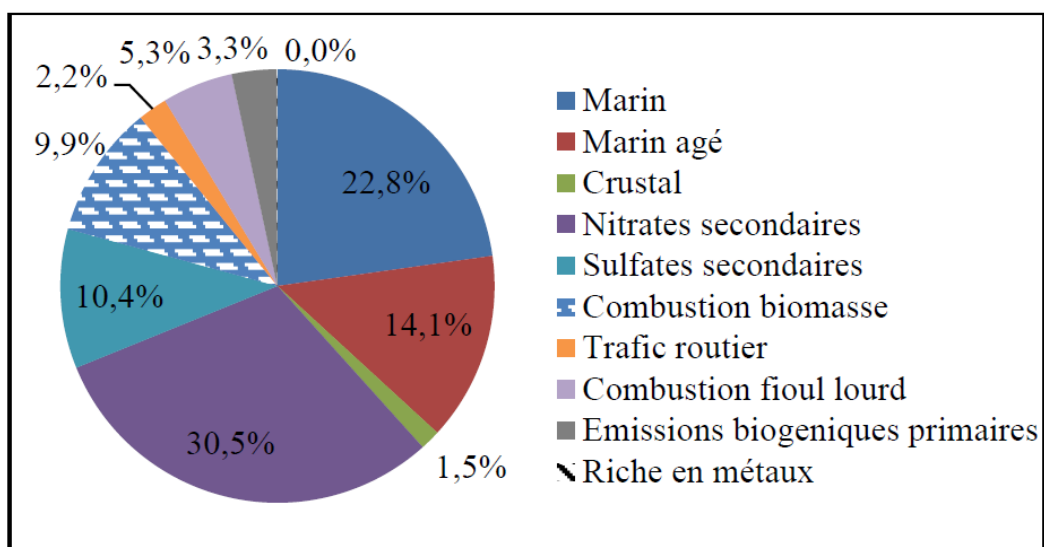


Figure 48 : contributions annuelles moyennes (2013) des profils de sources identifiés par NMF pour le cap Gris-Nez.

9. CONCLUSIONS ET PERSPECTIVES

Ce travail de recensement des programmes et projets de recherche et de leurs principaux résultats permet de dresser un bilan des pratiques méthodologiques concernant l'étude des sources de PM via l'étude de leur composition chimique. Le tableau ci-dessous synthétise les différents outils mis en œuvre dans le cadre des projets de recherche décrits en section 2. A noter que la quasi-totalité de ces méthodologies ont également été appliquées à des jeux de données de chacun des programmes européens et nationaux EMEP/MERA, ACTRIS et CARA.

	Analyses chimiques différées (filtres)				Précurseurs gazeux	Mesures automatiques « Modèle Aethalo »	
	CMB	PMF sans contraintes	PMF avec contraintes	Isotopes		PMF-AMS	
Particul'Air							
INACS				N, O			
JOAQUIN							
PARTICULES							
MEGAPOLI				C			
FRANCIPOLE							
PREQUALIF							
FORMES							
ALCOTRA							
Lanslebourg							
DECOMBIO				C			
SALAGE							
PM Drive							
PAILLONS							
APICE							
ECUME							

On constate tout d'abord que l'ensemble de ces projets mettent en œuvre des méthodologies de traitement de données relativement élaborées, dépassant l'utilisation des approches mono-traceurs (se focalisant sur une source unique d'émission). Ces méthodologies incluent notamment la détermination très étendue des constituants de la matière particulaire, via la détermination d'une grande diversité de traceurs spécifiques, suivie de l'utilisation d'outils statistiques. Ces derniers sont basés soit sur une connaissance a priori des principales sources locales/régionales et de leur profil d'émission (par ex. CMB : « Chemical Mass Balance »), soit sur une détermination a posteriori de ces sources à l'aide de profils d'émission déterminés par ailleurs (PMF sans/avec contraintes). Si l'outil CMB est historiquement le plus utilisé, les projets les plus récents ont plutôt tendance à se baser sur les approches de type PMF. Ces dernières présentent l'avantage de ne pas dépendre de la robustesse d'hypothèses de départ sur le nombre et la nature des sources à quantifier.

Compte-tenu de l'importance des coûts d'obtention des jeux de données d'entrée les études mettant en œuvre la PMF ne peuvent être que ponctuelles (dans l'espace et/ou dans le temps). Néanmoins, comme illustré par la Figure 49, les différents programmes et projets de recherche mis en œuvre ces dernières années ont permis à la France de combler son retard dans l'utilisation de l'outil PMF par rapport à ses voisins européens.

A ce stade, il convient de souligner que les informations fournies par les approches de type CMB ou PMF sont facilement exploitables (et communicables) sur les sources primaires de particules (e.g., combustion de biomasse, émissions directes à l'échappement automobile, sels de mer, ...). En revanche les sorties PMF incluent également des facteurs correspondant à différentes familles d'aérosols secondaires (absentes des analyses CMB), provenant de précurseurs gazeux dont les sources restent à déterminer. En outre, comme les processus de transformations secondaires ne sont généralement pas linéaires, les polluants émis par les différentes sources (anthropiques ou naturelles) réagissent tous entre eux selon des processus que les modèles récepteurs ne peuvent pas réellement discriminer ni quantifier. Pour exemple, les sorties PMF permettent d'estimer la contribution des émissions directes de particules par le transport routier, mais n'apportent pas d'information chiffrée sur l'influence réelle de cette source dans la formation d'aérosols secondaires (en particulier le nitrate d'ammonium et aérosols organiques secondaires).

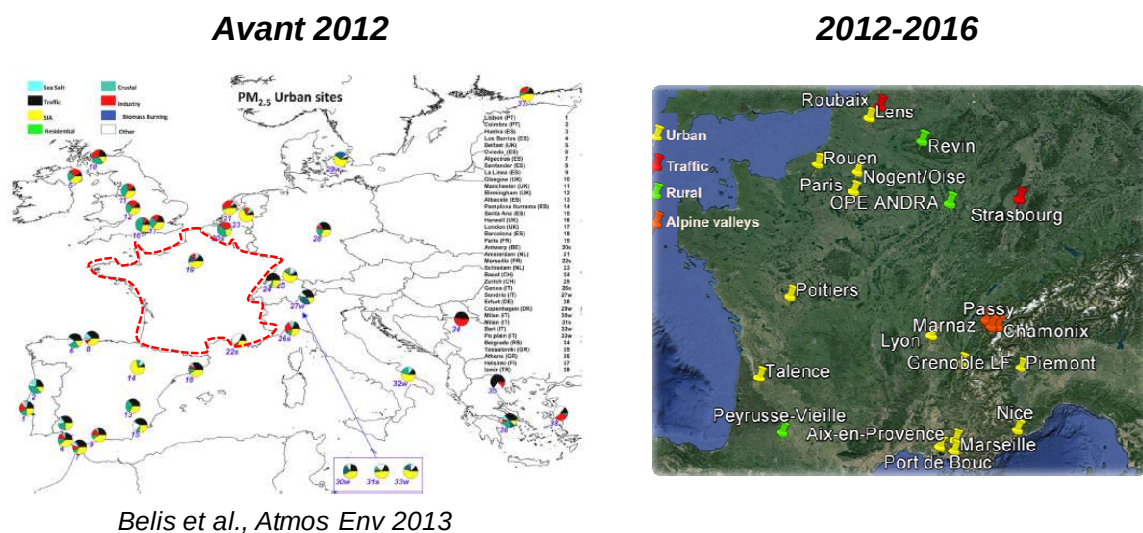


Figure 49 : localisation des sites récepteurs français instrumentés (avant/après 2012) pour la réalisation d'études de sources via des approches de type PMF à partir de la caractérisation chimique de prélèvements sur filtres.

Les mesures des isotopes stables de différents constituants de la phase particulaire (e.g., ^{14}C ou ^{15}N , comme dans le cas de DECOMBIO et d'INACS respectivement) permettent d'apporter des informations sur la nature des précurseurs gazeux ayant conduit à la formation des aérosols secondaires. Néanmoins, en raison des coûts élevés d'analyse et de la faible disponibilité des quelques chaînes analytiques dédiées à ce type de mesures, ces méthodologies ne sont encore que trop peu utilisées.

On note également la fréquence d'utilisation des méthodologies basées sur la mesure automatique, i.e., fractions du Black Carbon via le modèle Aethalomètre, et analyse PMF sur les spectres de masse de la matière organique analysée à l'aide d'*Aerosol Mass Spectrometer* (AMS) ou d'*Aerosol Chemical Speciation Monitor* (ACSM).

Le succès du modèle Aethalomètre repose notamment sur sa facilité de mise en œuvre (instrumentation simple et robuste, coûts d'investissement et de maintenance limités),

ainsi que sur son aptitude à bien rendre compte de l'influence des certaines activités humaines (en particulier combustion de biomasse). En revanche, il n'apporte aucune information sur les autres sources d'émission primaires (e.g., discrimination des activités industrielles, poussières naturelles) ni sur l'importance des mécanismes de formation secondaire (en particulier la fraction inorganique).

Si les mesures AMS permettent de documenter les espèces majeures de l'aérosol submicronique (classe de taille fortement influencée par les émissions anthropiques) et d'obtenir de précieuses informations sur les différentes familles d'aérosols organiques (primaires et secondaires), l'utilisation de cet instrument reste limitée à des campagnes intensives (e.g., MEGAPOLI, FORMES, DECOMBIO, PM Drive) en raison de son coût de mise en œuvre. Ainsi, les informations tirées de cet instrument concernent des périodes assez limitées dans le temps (de l'ordre de quelques semaines) et ne permettent de documenter les contributions annuelles moyennes et tendances. L'émergence et le déploiement des mesures par ACSM (plus robuste et moins onéreux, mais moins sensible, que l'AMS), notamment dans le cadre des programmes ACTRIS et CARA, permet aujourd'hui de dépasser ces limitations. Cependant, le traitement de données par approche PMF sur de très grands jeux de données n'est pas trivial et nécessite une utilisation optimisée des outils statistiques disponibles. Ce travail de développement méthodologique est aujourd'hui en cours au sein de la communauté scientifique internationale.

Il est également important de souligner que :

1) L'ensemble des méthodologies décrites ici ne permettent pas d'étudier directement l'origine géographique des principales sources d'émissions identifiées. Néanmoins, le couplage des résultats obtenus avec une analyse des conditions météorologiques et/ou de rétro-trajectoires des masses d'air peuvent permettre d'apporter des informations qualitatives sur ces origines géographiques.

Par ailleurs, l'étude combinée de différentes typologies de sites (e.g., fond urbain vs. fond régional et/ou vs. zone source), telles que les méthodes dites de « Lenschow » ou « twin-sites » peuvent permettre de renseigner sur l'origine géographique des polluants (e.g., projet Particules). Cependant, cette dernière approche ne peut être raisonnablement appliquée que sur des territoires très peu accidentés (topographie plane sur une large échelle spatiale, comme dans le cas du bassin parisien), afin de s'affranchir notamment des influences de la dynamique atmosphérique verticale.

2) Compte-tenu de la non-linéarité des mécanismes atmosphériques, les estimations de contributions de sources réalisées à l'aide des méthodologies expérimentales ne peuvent être utilisées simplement pour la réalisation de scénarii pour l'étude d'impacts de l'efficacité de telle ou telle mesure de réduction des émissions.

Dans les deux cas discutés ci-dessus (i.e., étude des origines géographiques et efficacité réelle de la réduction des émissions sur les niveaux de concentrations de PM en air ambiant), le recours à la modélisation numérique (non-traitée ici) - basée sur les inventaires d'émission, une bonne condition de la météorologie et de la dynamique atmosphérique, et la paramétrisation des phénomènes de (trans-)formation des aérosols - apparait comme prioritaire. La validation de ce type d'approche passe cependant par la

comparaison des résultats obtenus aux données de composition chimique et de contributions de sources primaires déterminées à l'aide des méthodologies expérimentales étudiées dans le cadre du présent projet. En effet, basées sur l'observation, ces méthodologies expérimentales rendent compte de situations réelles, auxquelles les simulations numériques doivent pouvoir se confronter.

En parallèle de l'expansion rapide au sein de la communauté scientifique des outils statistiques de traitement de données expérimentales pour l'étude des sources de PM, cette thématique a récemment (mi-2014) été retenue comme nouveau sujet de travail du comité européen de normalisation (CEN TC 264). Egalement sous l'impulsion du Joint Research Center (JRC), le forum FAIRMODE (réunissant la communauté de modélisateurs à l'échelle européenne) intègre désormais l'organisation d'exercices d'intercomparaisons de résultats issus de modèles récepteurs. De même, les programmes EMEP et ACTRIS articulent certaines de leurs activités autour du développement et/ou de l'évaluation de méthodologies expérimentales d'attribution de sources (e.g., campagnes de mesure axées sur le modèle Aethalomètre à l'hiver 2017-2018, méthodologies de traitement de données ACSM, ...). Néanmoins, il n'existe à ce jour aucune méthodologie normalisée d'estimation des sources de PM en air ambiant.

Outre les différences pouvant être observées d'une approche à l'autre (cf. par exemple l'ambiguïté autour de l'influence significative des sources de cuisson et/ou industrielles, mises en évidence respectivement par les projets MEGAPOLI et Particules, mais non identifiées par les autres études scientifiques à Paris), l'exploitation d'un même jeu de données à l'aide de la même méthode ne garantit pas l'obtention de résultats similaires par différents utilisateurs.²⁶ En effet, l'utilisation des outils statistiques décrits ici revêt une part de subjectivité, notamment liée au choix des hypothèses de départ et/ou de la solution finalement retenue. Ainsi, la comparaison de résultats issus de différentes études basées sur une même approche contient une part d'incertitude liée aux inhomogénéités de traitement de données. Dans ce contexte, une ré-analyse PMF par traitement harmonisé de jeux de données disponibles à l'échelle nationale a été proposée et réalisée dans le cadre du projet SOURCES. Les jeux de données correspondants et résultats obtenus pour cette nouvelle étude seront repris au sein de deux rapports LCSQA à paraître.

10. REFERENCES

- ¹ Viana et al. 2008: "Source apportionment of particulate matter in Europe: a review of methods and results", Journal of Aerosol Science, 39 (10), 827-849.
- ² Belis et al. 2013: "Critical review and meta-analysis of ambient particulate matter source apportionment using receptor models in Europe", Atmospheric Environment, 69, 94-108.
- ³ Rapport LCSQA 2012: Caractérisation chimique des particules – Veille sur les études de caractérisation des PM. <https://www.lcsqa.org/rapport/2012/ineris/caracterisation-chimique-particules-veille-etudes-caracterisation-pm>
- ⁴ Rapport EMEP 2014: http://emep.int/publ/reports/2014/EMEP_Status_Report_1_2014.pdf
- ⁵ Alastuey et al. 2016: "Geochemistry of PM₁₀ over Europe during the EMEP intensive measurement periods in summer 2012 and winter 2013", Atmospheric Chemistry and Physics, 10, 6107-6129.
- ⁶ Rapport LCSQA 2013a: Comparaison inter laboratoires organisée pour les laboratoires européens impliqués dans l'analyse du lévoglucosan et de ses isomères
- ⁷ Crenn et al. 2015: "ACTRIS ACSM intercomparison: part I - Reproducibility of concentration and fragment results from 13 individual Quadrupole Aerosol Chemical Speciation Monitor (Q-ACSM) and consistency with co-located instruments", Atmospheric Measurement Techniques, 8, 5063-5087.
- ⁸ Fröhlich et al. 2015: "ACTRIS ACSM intercomparison: part II - Intercomparison of ME-2 organic source apportionment results from 15 individual, co-located aerosol mass spectrometers", Atmospheric Measurement Techniques, 8, 2555-2576.
- ⁹ Crippa et al. 2013: "Organic Aerosol components derived from 25 AMS data sets across Europe using a consistent ME-2 based source apportionment approach", Atmospheric Chemistry and Physics, 14, 6159-6176.
- ¹⁰ Note LCSQA 2014: Description du programme CARA du dispositif national de surveillance de la qualité de l'air. <http://www.lcsqa.org/rapport/2014/ineris/description-programme-cara-dispositif-national-surveillance-qualite-air>
- ¹¹ Rapport LCSQA 2012b: Synthèse des travaux 2012 du programme CARA. <http://www.lcsqa.org/rapport/2012/ineris/metrologie-particules-pm10-pm25-caracterisation-chimique-particules-synthese-tra>
- ¹² Rapport LCSQA 2012c: 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). <http://www.lcsqa.org/rapport/2012/ineris/mise-oeuvre-modele-recepteur-type-pmf-positive-matrix-factorization-identificati>
- ¹³ Rapport LCSQA 2013a: Synthèse des travaux 2013 du programme CARA. <http://www.lcsqa.org/rapport/2013/ineris/synthese-travaux-2013-programme-cara>
- ¹⁴ Rapport LCSQA 2013b: Mise en œuvre d'une méthodologie d'estimation des sources de HAP par modèle récepteur. Application de la Positive Matrix Factorization (PMF). <http://www.lcsqa.org/rapport/2013/ineris/mise-oeuvre-methodologie-estimation-sources-hap-modele-recepteur-application-pos>
- ¹⁵ Rapport LCSQA 2015a: Synthèse des travaux 2014-2015 du programme CARA. <http://www.lcsqa.org/rapport/2015/ineris/programme-cara-bilan-travaux-2014-2015>
- ¹⁶ Rapport LCSQA 2015b: Impact de la combustion de biomasse sur les concentrations de PM₁₀ dans 10 agglomérations du programme CARA au cours de l'hiver 2014-2015.

<http://www.lcsqa.org/rapport/2015/ineris/impact-combustion-biomasse-concentrations-pm10-programme-cara-hiver-2014-2015>

¹⁷ Bressi et al. 2013: "A one-year comprehensive chemical characterization of fine aerosol (PM_{2.5}) at urban, suburban and rural background sites in the region of Paris (France)", *Atmospheric Chemistry and Physics*, 13, 7825-7844.

¹⁸ Bressi et al. 2014: "Sources and geographical origins of fine aerosols in Paris (France)", *Atmospheric Chemistry and Physics*, 14, 8813-8839.

¹⁹ Beekmann et al. 2014: "In-situ, satellite measurement and model evidence on the dominant regional contribution to fine particulate matter levels in Paris megacity", *Atmospheric Chemistry and Physics*, 15, 9577-9591.

²⁰ Freutel et al. 2013: "Aerosol particle measurements at three stationary sites in the megacity of Paris during summer 2009: meteorology and air mass origin dominate aerosol particle composition and size distribution", *Atmospheric Chemistry and Physics*, 13, 933-959.

²¹ Couvidat et al. 2013: "Modeling secondary organic aerosol in an urban area: application to Paris, France", *Atmospheric Chemistry and Physics*, 13, 2, 983-996.

²² Drinovec et al. 2014: "The "dual-spot" Aethalometer: an improved measurement of aerosol black carbon with real-time loading compensation", *Atmospheric Measurements and Techniques Discussion*, 7, 10179-10220.

²³ Petit et al. 2015: "Two years of near real-time chemical composition of submicron aerosols in the region of Paris using Aerosol Chemical Speciation Monitor (ACSM) and multi-wavelength Aethalometer", *Atmospheric Chemistry and Physics*, 15, 2985-3005.

²⁴ Favez et al. 2010: "Inter-comparison of source apportionment models for the estimation of wood burning aerosols during wintertime in an Alpine city (Grenoble, France)", *Atmospheric Chemistry and Physics*, 10, 5295-5314.

²⁵ El Haddad et al. 2013: "Towards a better understanding of the origins, chemical composition and aging of oxygenated organic aerosols: case study of a Mediterranean industrialized environment, Marseille", *Atmospheric Chemistry and Physics*, 13, 7875-7894.

²⁶ Belis et al. 2013: "Results of the European Intercomparison of exercise for Receptor Model 2011-2012" JRC Scientific and Policy reports.

<http://source-apportionment.jrc.ec.europa.eu/>



direction et secrétariat du LCSQA

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