

Note de synthèse du LCSQA

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

OLIVIER FAVEZ, EVA LEOZ-GARZIANDIA (INERIS)

RESUME

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

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

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

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

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

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

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

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

Points faibles : coûts d'investissement, sélectivité des mesures

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

1. OBJECTIFS

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

2. ORGANISATION

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

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

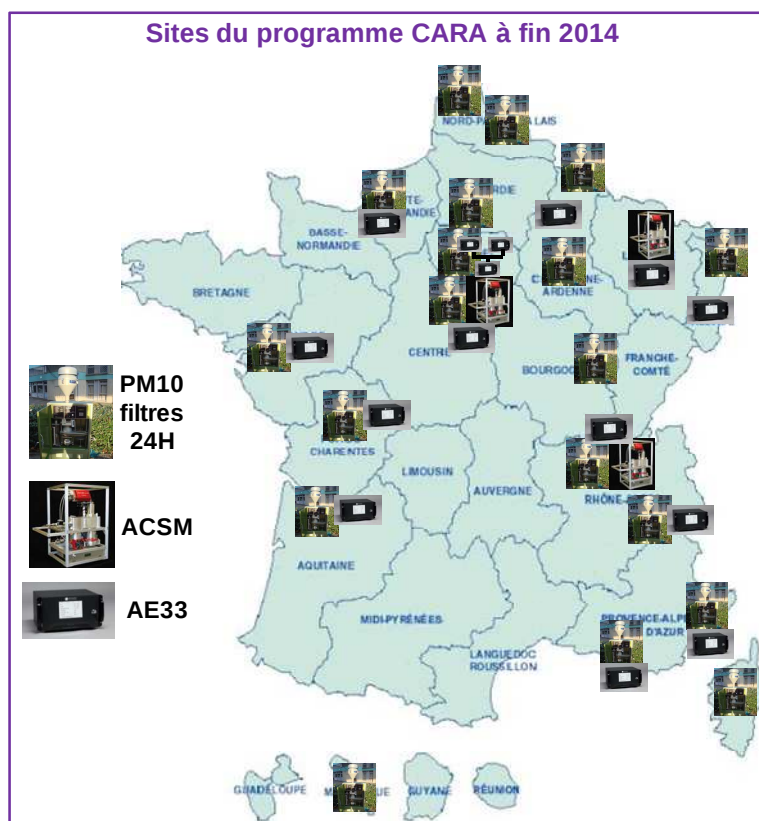
Le LCSQA prend directement en charge les aspects logistiques et méthodologiques, ainsi qu'une partie des analyses chimiques. Il est également responsable de la coordination de l'ensemble du programme, de l'interprétation scientifique des données, et de la diffusion des résultats obtenus. Ces derniers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

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

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

bénéficie de transferts de connaissances et de compétences issues des programmes de recherche nationaux et européens (ex : thèse INERIS-LSCE de Jean-Eudes Petit, programme ACTRIS, ...).

3. DISPOSITIFS DE MESURE SUR FILTRES ET AUTOMATIQUE



3.1 Prélèvement sur filtres et analyses chimiques au laboratoire

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

Les prélèvements sont réalisés par les AASQA volontaires, principalement en PM₁₀ et sur sites de fond urbain. Ces prélèvements sont effectués de façon quasi-continue (typiquement, en alternance avec les filtres pour la surveillance réglementaire des HAP) tout au long de l'année, mais ne sont analysés qu'en fonction de leur intérêt (« situations d'urgence », ou utilisation dans le cadre d'une étude ou d'un programme de recherche).

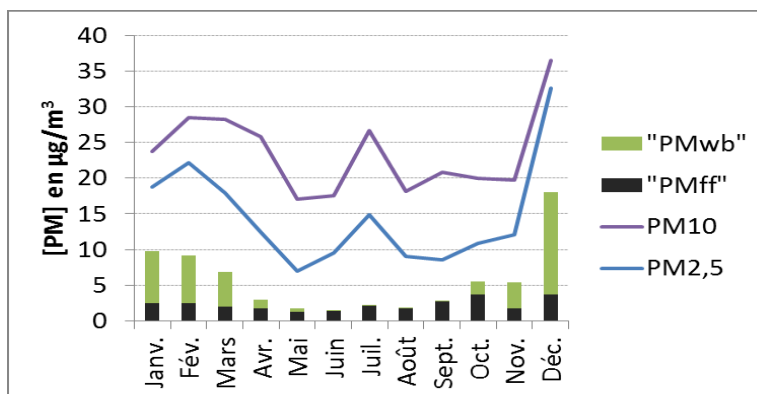
Les analyses chimiques, réalisées directement par le LCSQA ou confiées à des laboratoires universitaires partenaires, portent sur les espèces majeures des PM (fractions carbonées et anions/cations) ainsi que sur différents traceurs de sources organiques et métalliques (selon les situations étudiées).

Ce dispositif a notamment démontré sa capacité à jouer un rôle d'outil de gestion des épisodes de pollution dans le cadre de la situation exceptionnelle générée par l'éruption du volcan Eyjafjallajökull au cours du mois d'avril 2010, en permettant d'évaluer rapidement l'impact des émissions volcaniques sur la qualité de l'air. Ce type de déclenchement des prélèvements et analyses « sur alerte » a depuis été réédité à quelques reprises, en particulier lors d'épisodes de pollution printaniers. Néanmoins, le besoin grandissant d'une détermination en temps quasi-réel de la composition chimique des PM ne peut raisonnablement être basée sur l'utilisation exclusive de prélèvements sur filtres et l'analyse différée. Il requiert la mise en œuvre d'analyseurs automatiques de la composition chimique des PM. Une réflexion sur l'utilisation de ce type d'instrumentation au sein du dispositif national a été initiée dès 2011.

3.2 Mesures automatiques

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

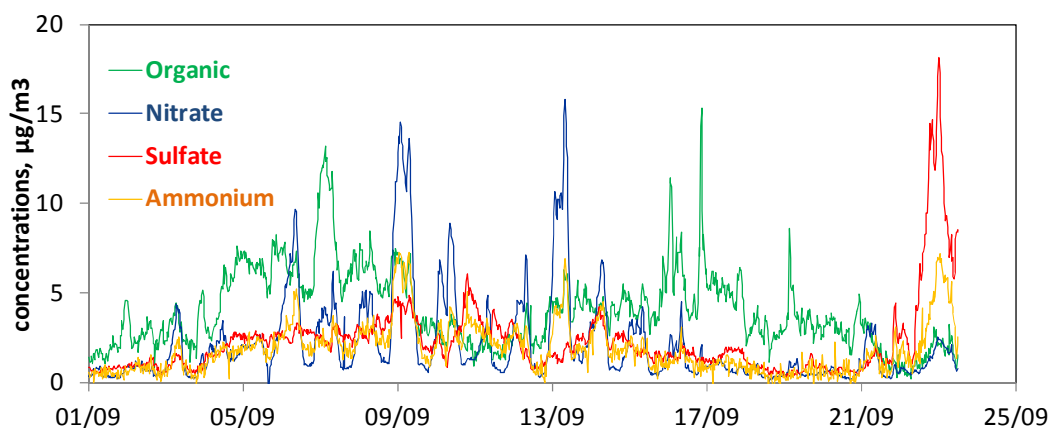
- L'aethalomètre AE33 : cet instrument permet non seulement le suivi des concentrations de carbone suie (ou « Black Carbon »), en tant qu'indicateur pertinent de l'impact sanitaire des particules anthropiques, mais également l'estimation de l'impact des sources de combustion de biomasse et de dérivés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



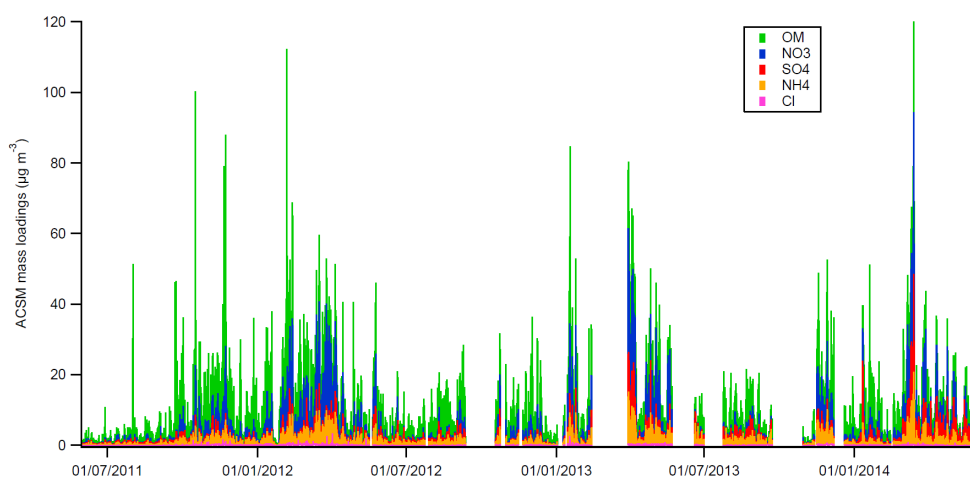
Compte-tenu de sa robustesse, de ses coûts d'investissement et fonctionnement limités, et du caractère local des composés qu'il mesure, il semble pertinent et raisonnable d'envisager l'équipement en AE33 de 1 ou plusieurs stations par AASQA (pour répondre à la fois aux besoins nationaux et régionaux).

- L'Aerosol Chemical Speciation Monitor (ACSM) : cet instrument permet le suivi des concentrations des espèces chimiques majeures de l'aérosol submicronique (matière organique, nitrate, sulfate, ammonium, ..). Pour l'exemple, la figure ci-dessous présente les résultats obtenus par mesure ACSM au SIRTAL-LSCE (Essonne) au cours

du mois de septembre 2014. Après une alternance d'épisodes influencés par la matière organique et le nitrate d'ammonium lors de la première quinzaine, l'import de sulfate d'ammonium issu de l'oxydation des composés soufrés émis par les émissions volcaniques islandaises peut être observé en fin de mois.



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



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

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

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

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

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

4. EXEMPLES D'INFORMATIONS RECUEILLIES

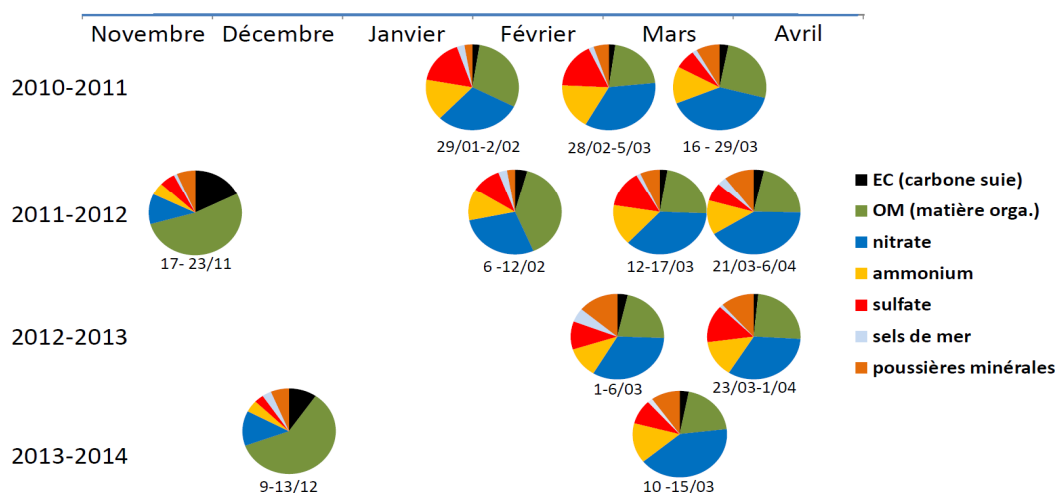
La présente section permet d'illustrer différentes applications du programme CARA (de l'analyse rapide des épisodes de pollution à l'étude de sources sur le long terme), par une série d'exemples récents.

Episodes de pollution

Nature chimique

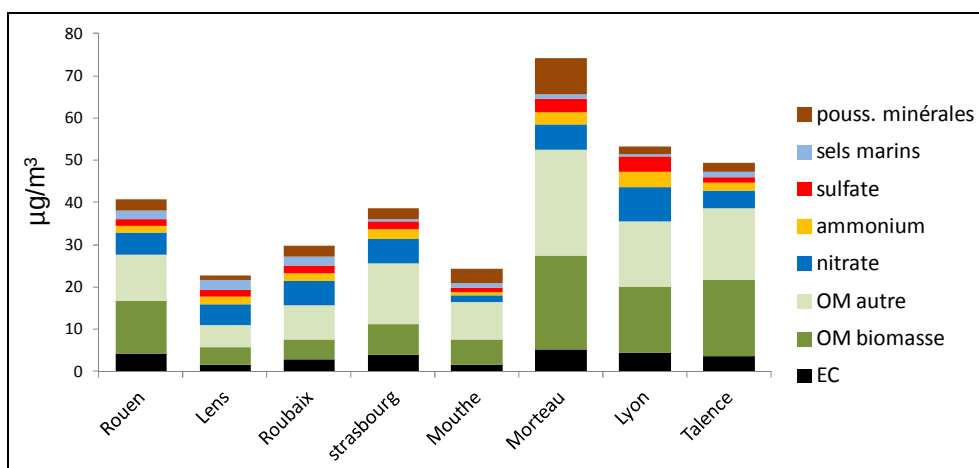
La majorité des épisodes de pollution de grande ampleur apparaissent entre mi-novembre et mi-avril. Ils sont très fortement influencés par les émissions de combustion (chauffage, transport) en début d'hiver, puis par la formation de particules secondaires à partir de précurseurs gazeux (NH₃, SO₂, NO_x,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

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



Episode de début décembre 2013

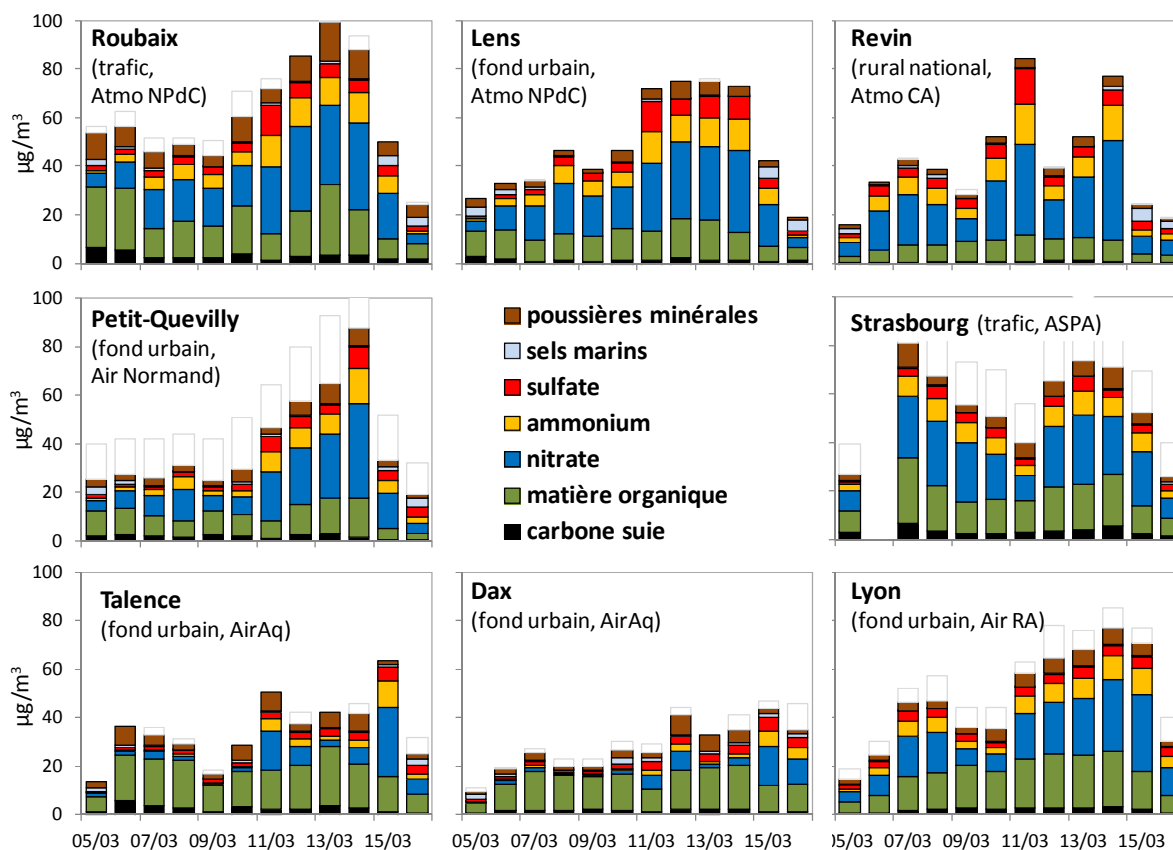
En décembre 2013, la plupart des régions françaises ont été impactées par des concentrations élevées de PM₁₀. Le programme CARA a mis en évidence la forte influence des sources de combustion, dont chauffage bois, au sein des particules



Episode de mars 2014 :

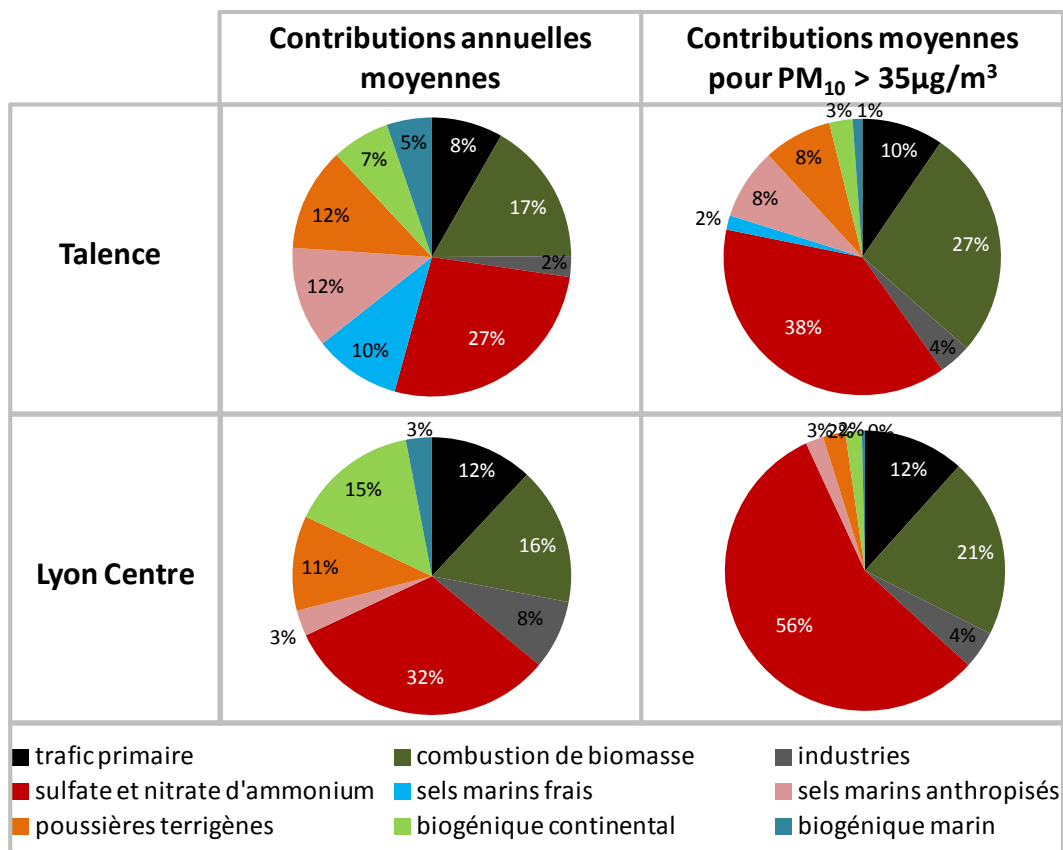
En mars 2014, la France a connu un épisode important de particules dont les analyses ont montré qu'il était dominé par le nitrate d'ammonium.

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

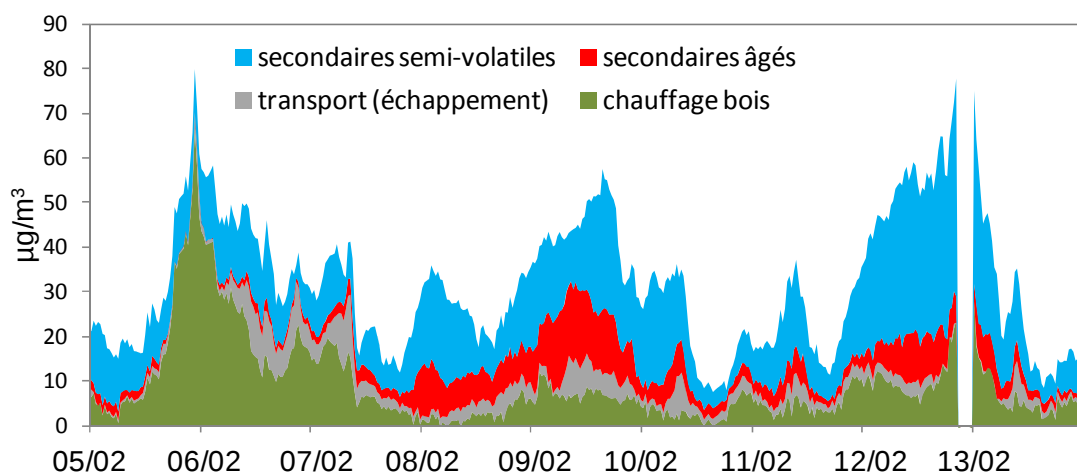


Etudes de sources

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



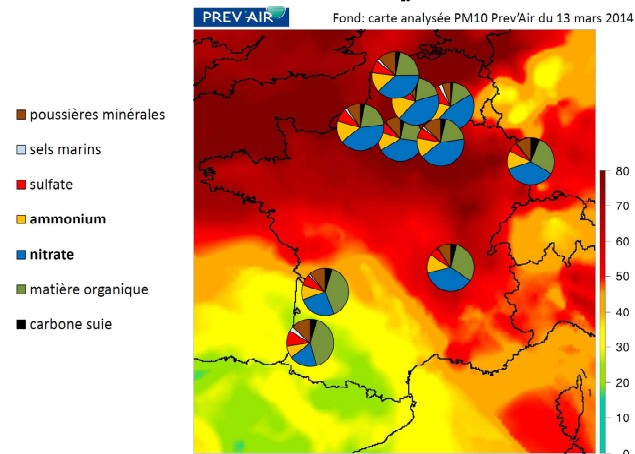
Avec des traitements similaires sur les données recueillies à l'aide des analyseurs automatiques, par exemple par couplage des mesures AE33 et ACSM, il est possible de préciser, en continu, les sources principales de particules. Le graphe ci-après présente les résultats lors d'un épisode de pollution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



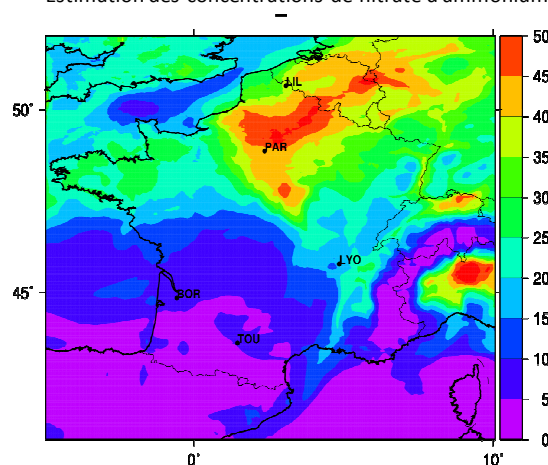
Comparaisons mesure/modèle

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

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



Estimation des concentrations de nitrate d'ammonium



Contentieux

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

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

Particules en suspension (PM ₁₀) Conformité aux valeurs limites fixées par la Directive 2008/50/CE					Particules en suspension (PM ₁₀) Conformité aux valeurs limites fixées par la Directive 2008/50/CE				
ANNEE	2008	2009	2010	2011	ANNEE	2008	2009	2010	2011
Moyenne annuelle					Nombre maximal de dépassements du seuil journalier sur la station BON après retranchement de la contribution minimale des embruns marins par estimation objective				
Bons Enfants	44	48	46	36	Bons Enfants	≤ 15	≤ 30	≤ 28	≤ 5
Luther King	28	31	30	22	Moyenne annuelle maximale estimée pour la station BON après retranchement de la contribution minimale des embruns marins (µg/m ³) par estimation objective				
Nombre de dépassements du seuil journalier de 50 µg/m ³					Bons Enfants	≤ 36	≤ 40	≤ 38	≤ 29
Bons Enfants	82	128	85	41					
Luther King	1	8	13	1					
Avant retranchement					Après retranchement				

5. PRINCIPAUX POINTS D'AMÉLIORATION ET PERSPECTIVES

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

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

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

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

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

6. ELEMENTS FINANCIERS

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

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

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