

Quantification des sources de l'aérosol en site récepteur par « Chemical Mass Balance » (CMB): cas de l'épisode de Janvier 2009 (Lyon et Rouen)

N. Marchand¹

Labo associés

J.L. Jaffrezo², J.L. Besombes³

1. Laboratoire Chimie Provence (UMR 6264), Universités d'Aix-Marseille I, II et III-CNRS

2. Laboratoire de Glaciologie et Géophysique de l'Environnement (UMR 5183), Université Joseph Fourier-CNRS

3. Laboratoire de Chimie Moléculaire et Environnement, Polytech'Savoie- Université de Savoie

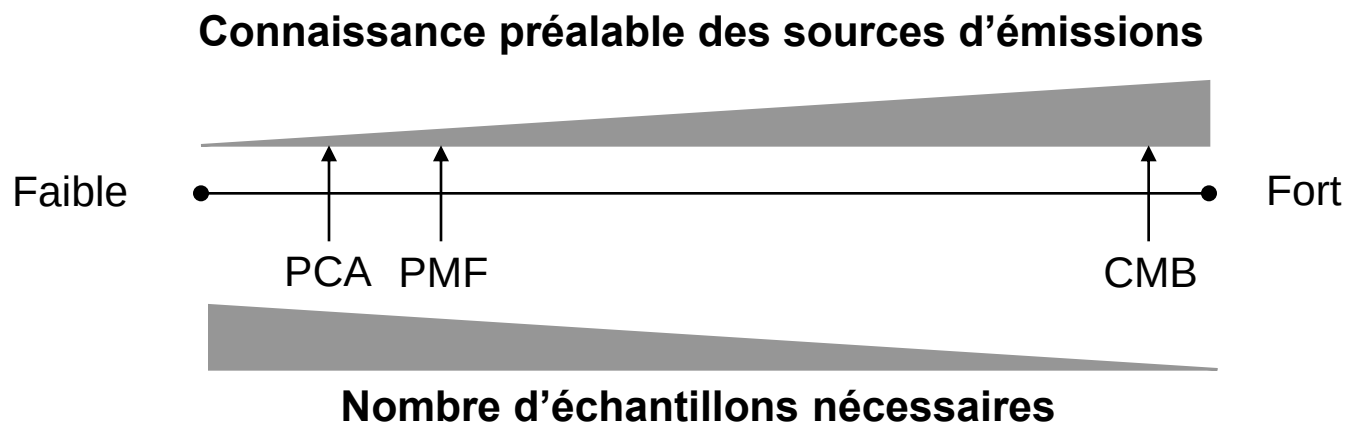
Méthodes de « source apportionnement »

**Quantifier l'influence relative des sources de l'aérosol en milieu récepteur
demeure une question complexe...**

Pas de méthodes absolues/Problématique de recherche

Il existe plusieurs approches....

... basées sur la déconvolution des propriétés chimiques (globales ou non) de l'aérosol



Chemical Mass Balance (CMB)

$$C_{ik} = \sum_{j=1}^m f_{ijk} \cdot a_{ij} \cdot S_{jk}$$

Profil à l'émission: $\left(\frac{I}{OC} \right)_{Source, j}$

équations de bilan de matière :
C_{ik} = concentration d'un composé i .

Contribution de la source j à OC

Postulats de départ:

- ❑ Toutes les sources des traceurs considérés sont incluses dans la modélisation et sont représentées par des **profils représentatifs et connus**.
- ❑ Les **traceurs considérés sont stables** vis-à-vis de la volatilisation et de l'oxydation dans l'atmosphère.

Conceptuellement :

Ne s'appuie pas (très peu) sur les caractéristiques chimiques globales de l'OA
L'approche CMB est aveugle au vieillissement chimique de l'OA (contrairement aux autres approches)
La fraction secondaire (SOA) est traitée comme un apport de Carbone

Quels marqueurs? Quelles sources et quels profils?



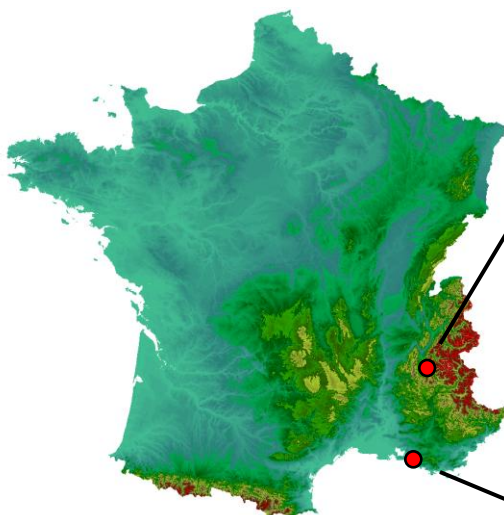
Partenaires ext.



Objectives :

To study the sources of particles and to compare source apportionment approaches (organic tracers –CMB-/AMS-PMF/Aethalometer)

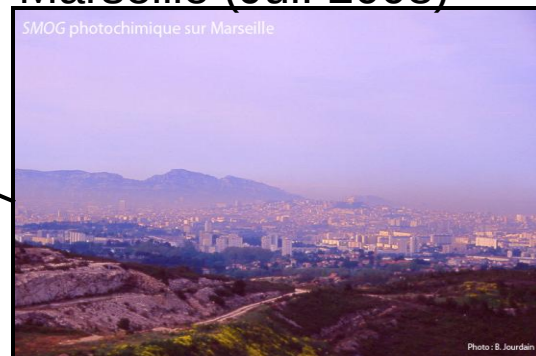
→ 2 intensive field campaigns were performed in 2 contrasted urban environments



Grenoble (Jan. 2009)



Marseille (Jul. 2008)

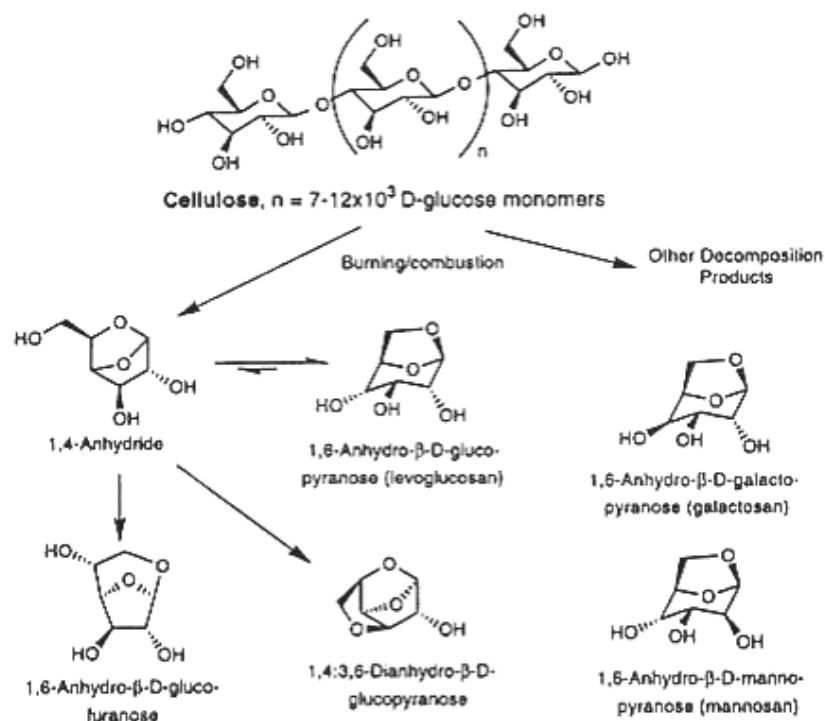


Chemical Mass Balance (CMB)

Quels marqueurs? Pas ou peu réactifs et non volatils

Traceurs « univoques » :

Levoglucosan (produit de dégradation thermique de la cellulose et hemicellulose)



Combustion de biomasse (bois, lignite, papier...)

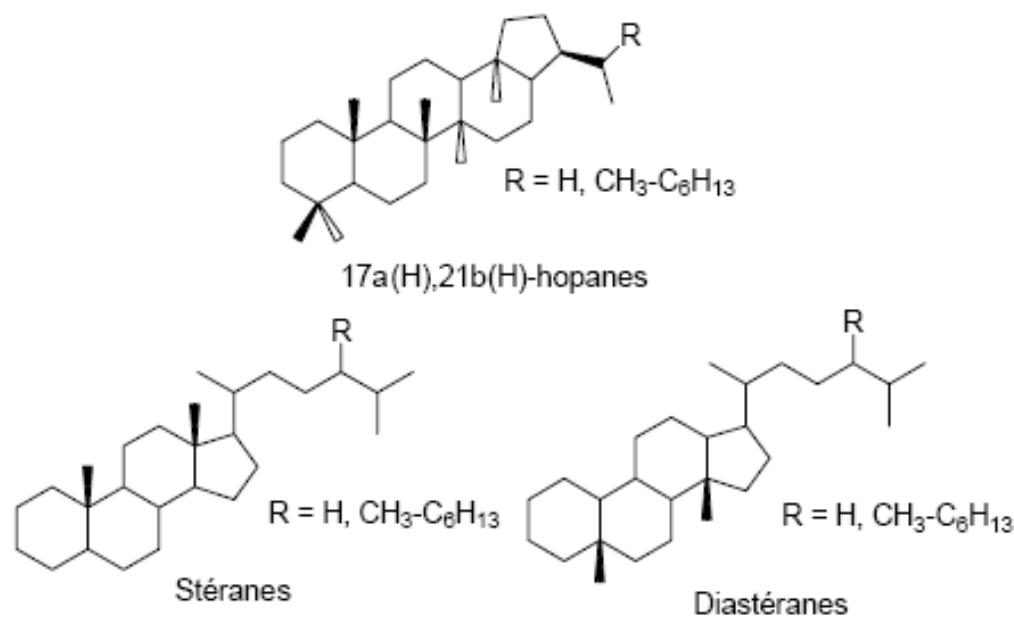
Chemical Mass Balance (CMB)

Quels marqueurs?

Traceurs « univoques » :

Levoglucosan (produit de dégradation thermique de la cellulose et hemicellulose)

Hopanes/stéranes (rejets d'huiles moteurs imbrulées)



Chemical Mass Balance (CMB)

Quels marqueurs?

- Traceurs « univoques » :

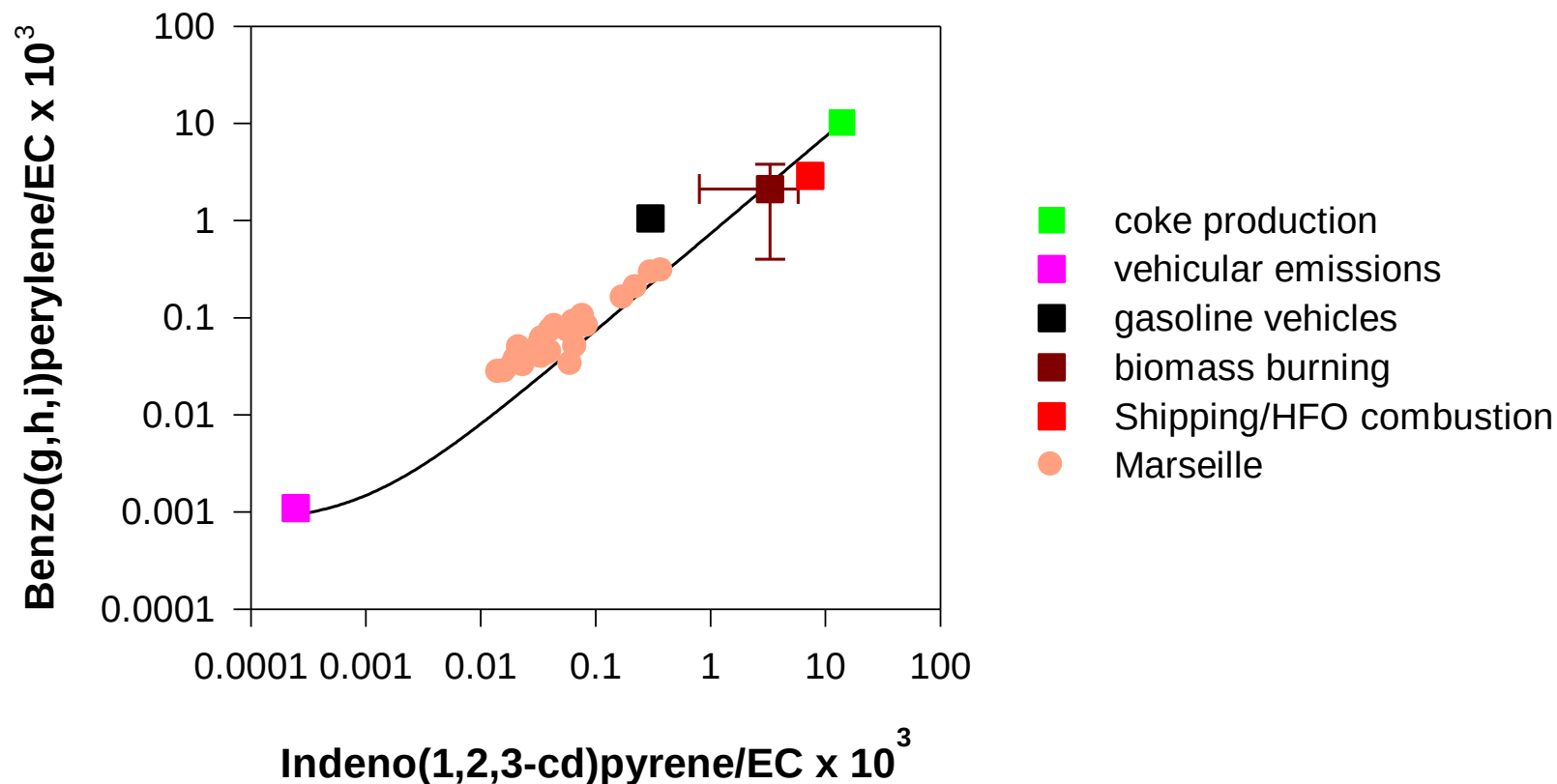
Levoglucosan (produit de dégradation thermique de la cellulose et hemicellulose)

Hopanes/stéranes (rejets d'huiles moteurs imbrulées)

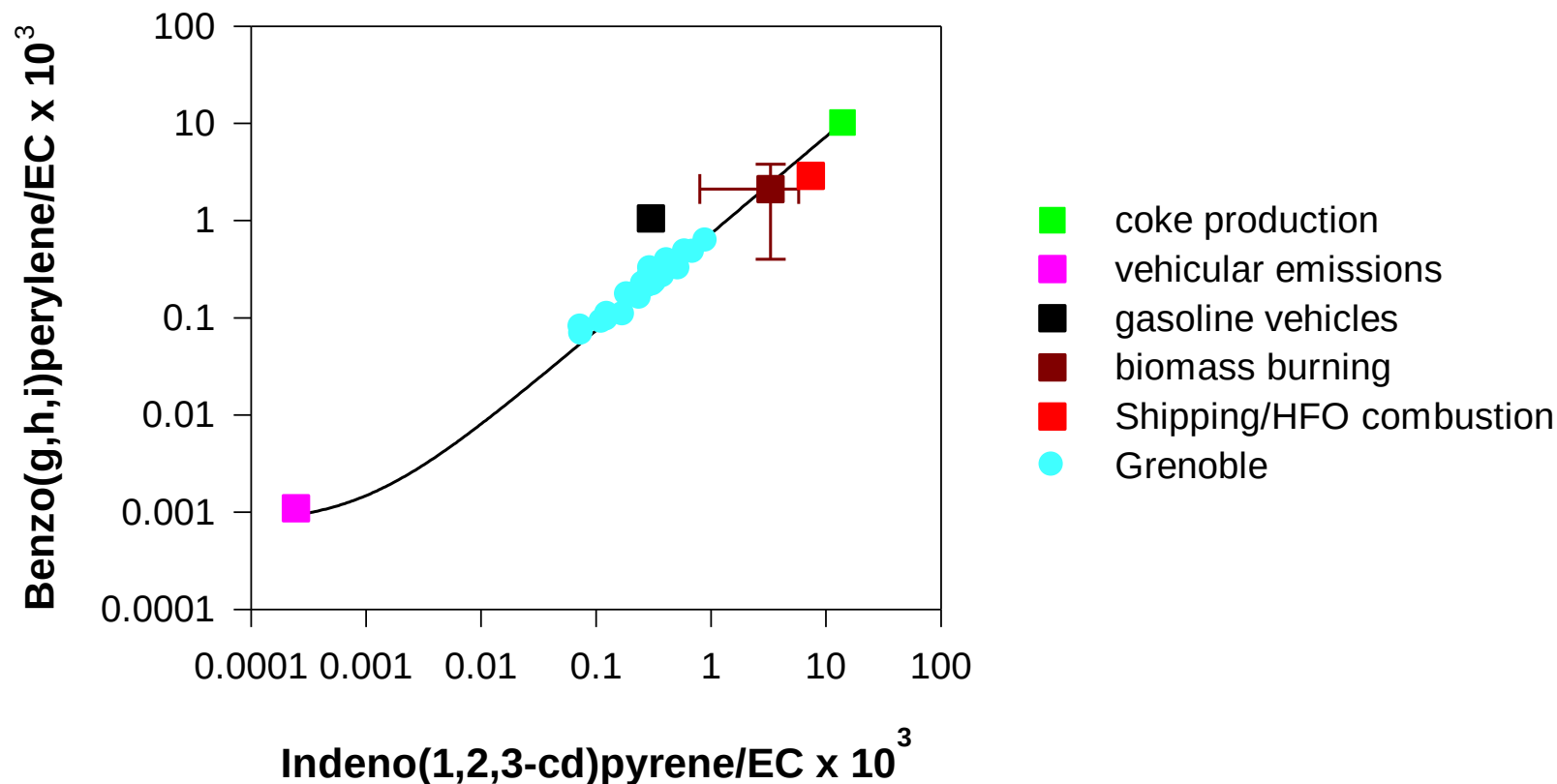
- Familles chimiques :

HAP (émis par toutes les combustions)

Quelques mots sur les HAPs...



Quelques mots sur les HAPs...



Chemical Mass Balance (CMB)

Quels marqueurs?

- Traceurs « univoques » :

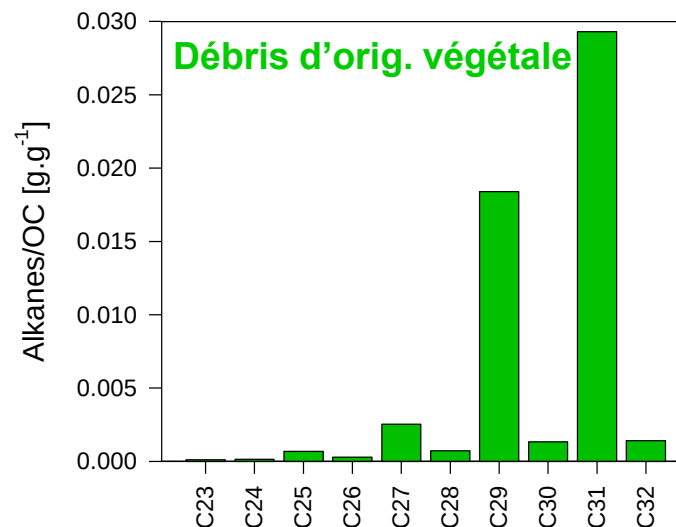
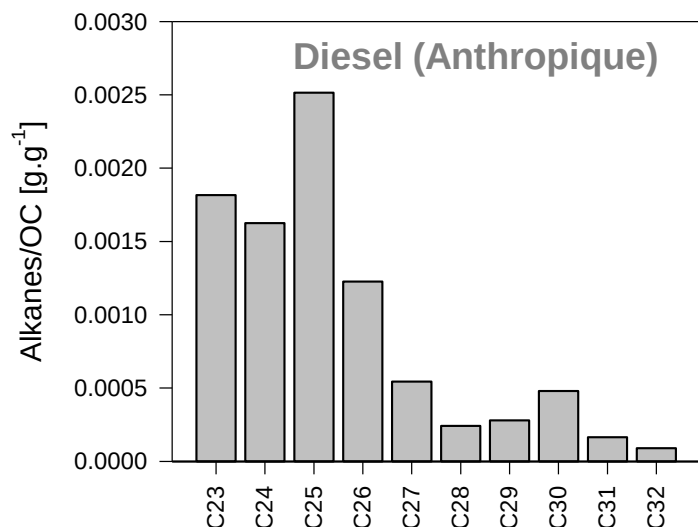
Levoglucosan (produit de dégradation thermique de la cellulose et hemicellulose)

Hopanes/stéranes (rejets d'huiles moteurs imbrulées)

- Familles chimiques :

HAP (émis par toutes les combustions)

Alcanes linéaires (combustion et biogénique primaire)



Chemical Mass Balance (CMB)

Quels marqueurs?

- Traceurs « univoques » :

Levoglucosan (produit de dégradation thermique de la cellulose et hemicellulose)

Hopanes/stéranes (rejets d'huiles moteurs imbrulées)

- Familles chimiques :

HAP (émis par toutes les combustions)

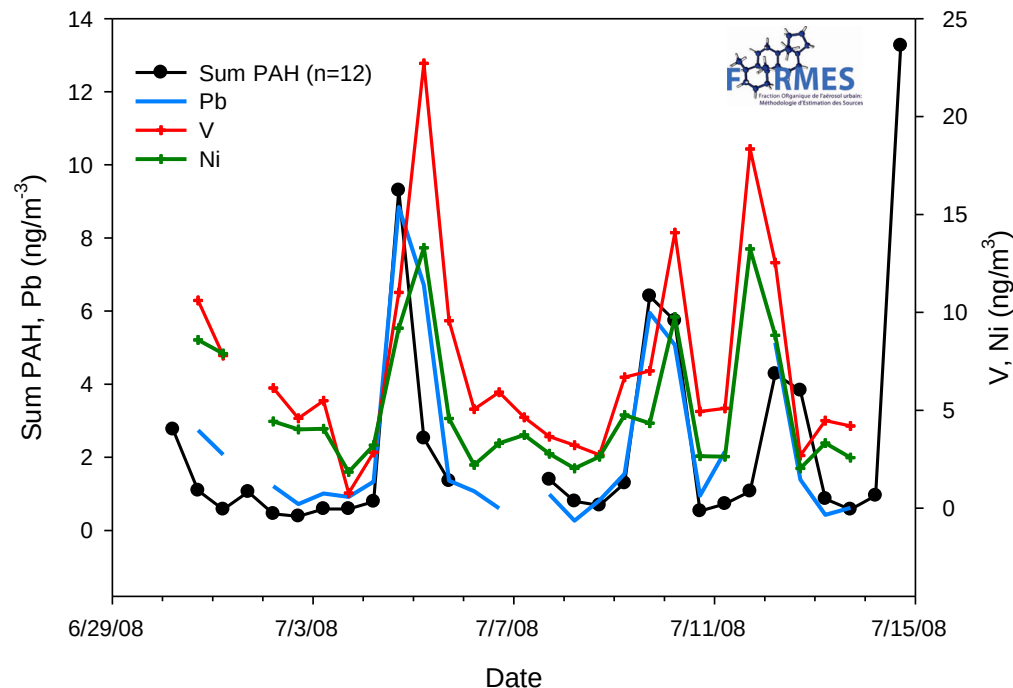
Alcanes linéaires (combustion et biogénique primaire)

- **Carbone élémentaire (EC)** (émis par toutes les combustions)

- **Métaux (Pb, V, Ni,...)** (indispensables pour contraindre les sources industrielles)

Chemical Mass Balance (CMB)

Quels marqueurs? Quelles sources? Quels profils?



Cas de Marseille (Eté, 2008 – FORMES)

Sources industrielles...

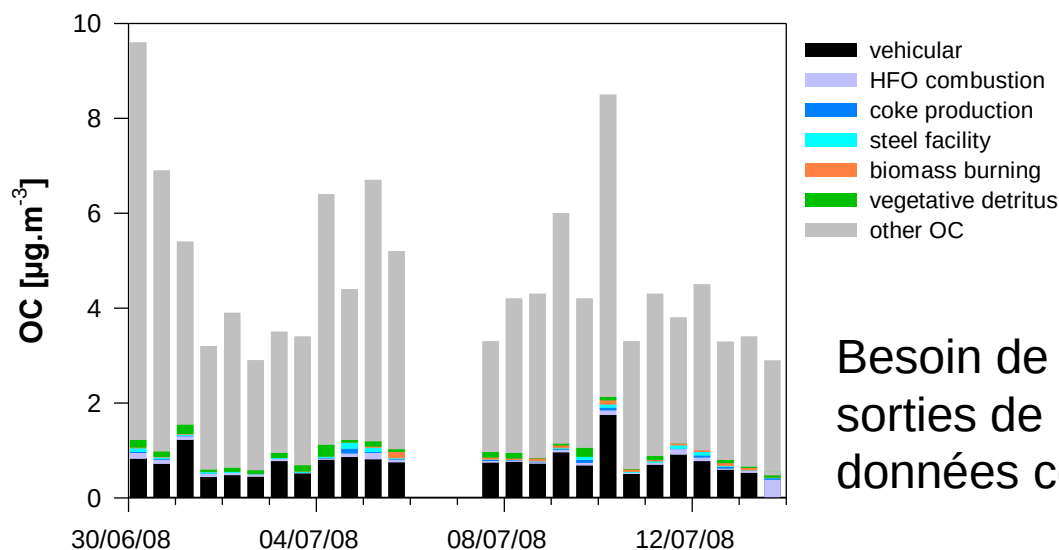
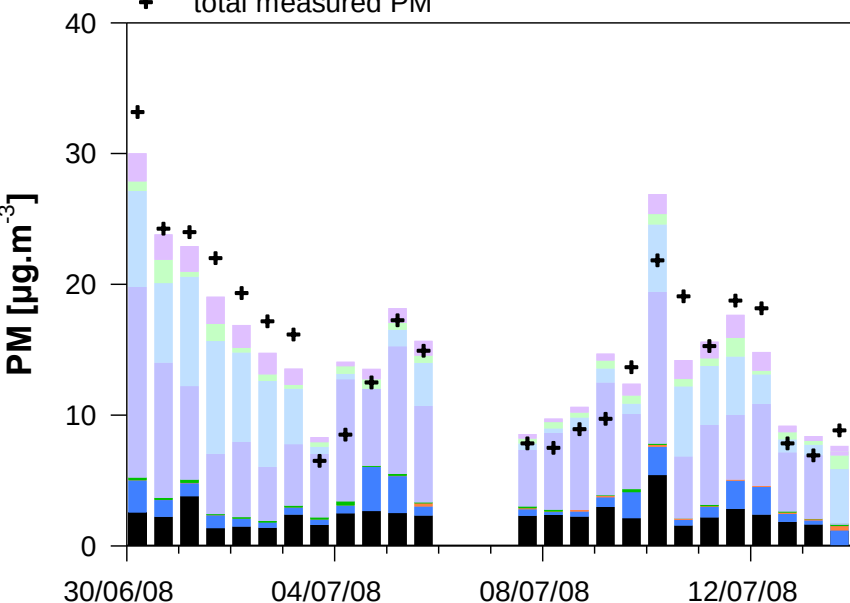
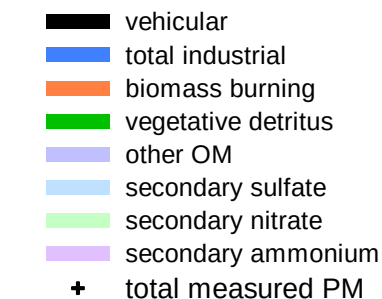
Structure complexe des épisodes

Nécessité de faire des choix

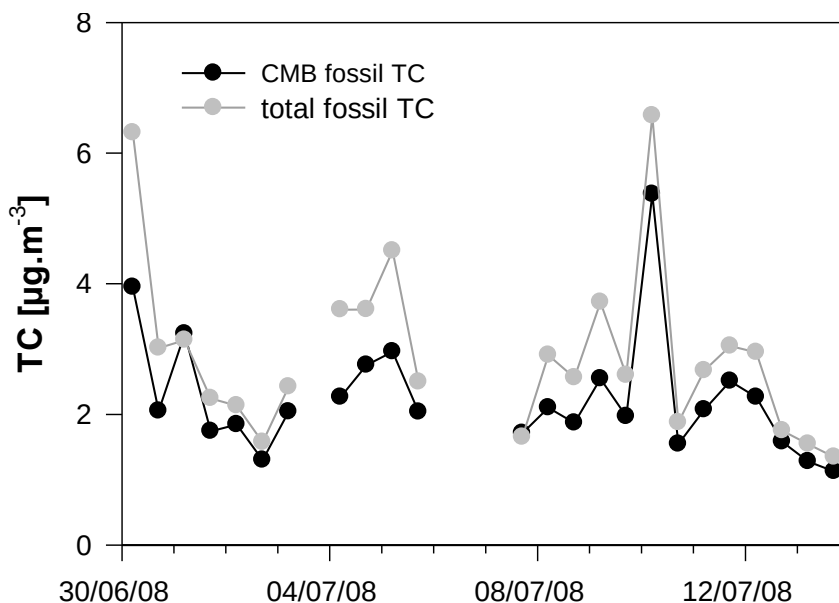
Choix basés sur l'examen des séries temporelles, de ratios annexes, des process industriels environnants, des profils disponibles dans la littérature, et de tests de sensibilités et de réponse du modèle (statistique et capacité à reproduire les concentrations mesurées).

Ici, choix de trois sources (HFO, cockerie de sidérurgie, laminage à chaud) et de trois métaux (Pb, Ni, V) pour les données d'entrée CMB

Chemical Mass Balance (CMB)



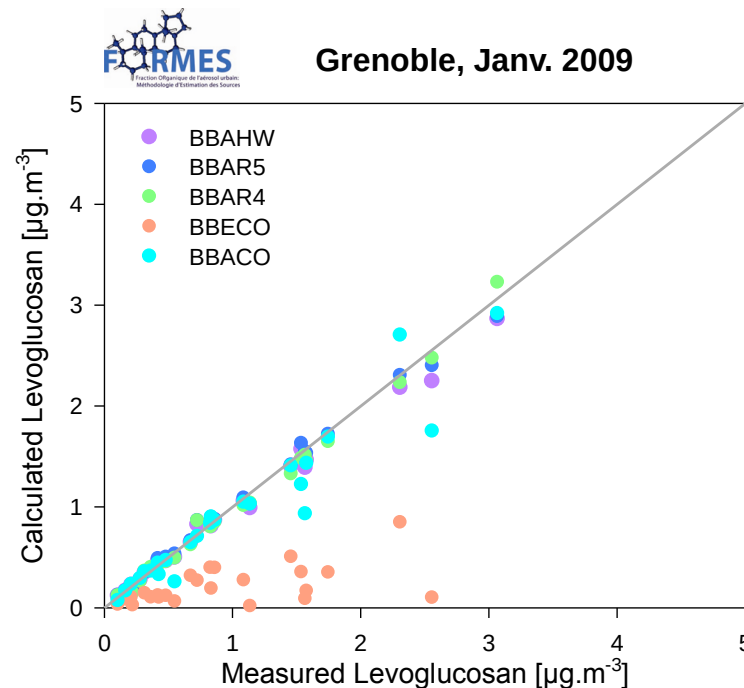
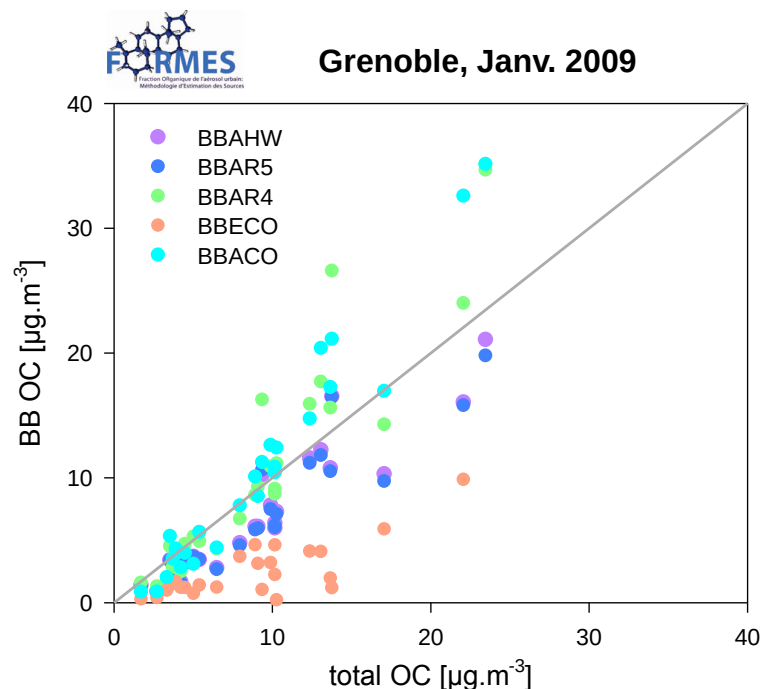
Besoin de contraindre les sorties de modèle avec des données complémentaires



Episode de Janvier 2009

Quels profils? Exemple de la combustion de biomasse

De nombreux profils dans la littérature depuis ces dernières années



**Là encore un choix
s'impose :**

- indicateurs statistiques du modèle
- cohérence des sorties avec les observations
- données annexes (^{14}C , autres approches..)
- cohérence avec la littérature
- homogénéité des techniques analytiques (OC/EC)

Episode de Janvier 2009

PM10 / 24h { Rouen : 7 au 11 Janv. 2009 (5 Echantillons)
Lyon : 8 au 13 Janvier 2009 (6 Echantillons)

Concentration moyenne mesurée						
	PM10 ($\mu\text{g.m}^{-3}$)	PM2.5 ($\mu\text{g.m}^{-3}$)	OC ($\mu\text{g.m}^{-3}$)	EC ($\mu\text{g.m}^{-3}$)	BaP (ng.m^{-3})	EC/O C
Lyon	113,3 [64 - 170] ^a	nd	29,9 ^b [8,50 - 49,00] ^a	6,4 ^b [2,84 - 8,69] ^a	3,68 [0,96 - 6,10] ^a	0,21
Rouen	79,4 [42 - 113] ^a	nd	19,4 ^b [8,20 - 28,30] ^a	4,3 ^b [1,72 - 5,96] ^a	2,91 [1,09 - 5,35] ^a	0,22
Grenoble	32,6 [3,3 - 62,5] ^a	30,2 [5,9 - 52,7] ^a	9,0 ^c [1,75 - 24,00] ^a	1,5 ^c [0,46 - 4,18] ^a	1,17 [0 - 5,37] ^a	0,17

Analyse CMB

Composés organiques :

- **3 hopanes** : 17 α (H)-Trisnorhopane, 17 α (H)-21 β (H)-Norhopane, 17 α (H)-21 β (H)-Hopane .
- **alcane linéaires (C27 à C31)**:
n-Heptacosane , n-Octacosane , n-Nonacosane ,
n-Triacontane , n-Hentriacontane.
- **HAP**: Benzo-e-pyrene.
- **Sucre**: Levoglucosan.

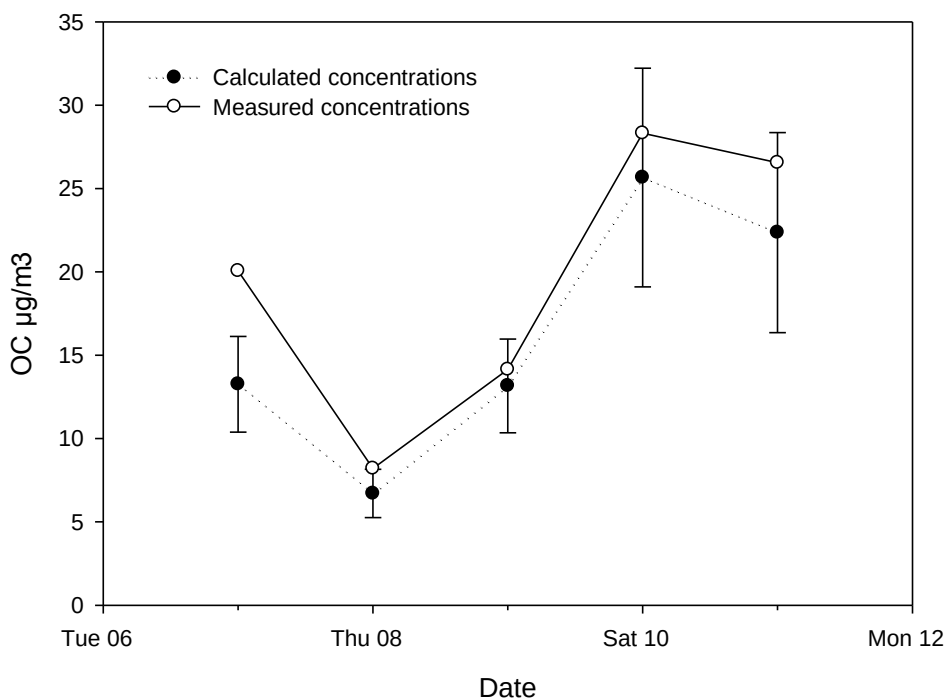
Profils retenus :

- **Emissions véhiculaires** : El Haddad et al. (2009).
- **Débris végétaux** : Rogge et al. (1993b).
- **Combustion de gaz naturel** : Rogge et al. (1993a).
- **Combustion de bois** : Fine et al. (2002) .
- **Cuisson de viande** : Schauer et al. (1999).

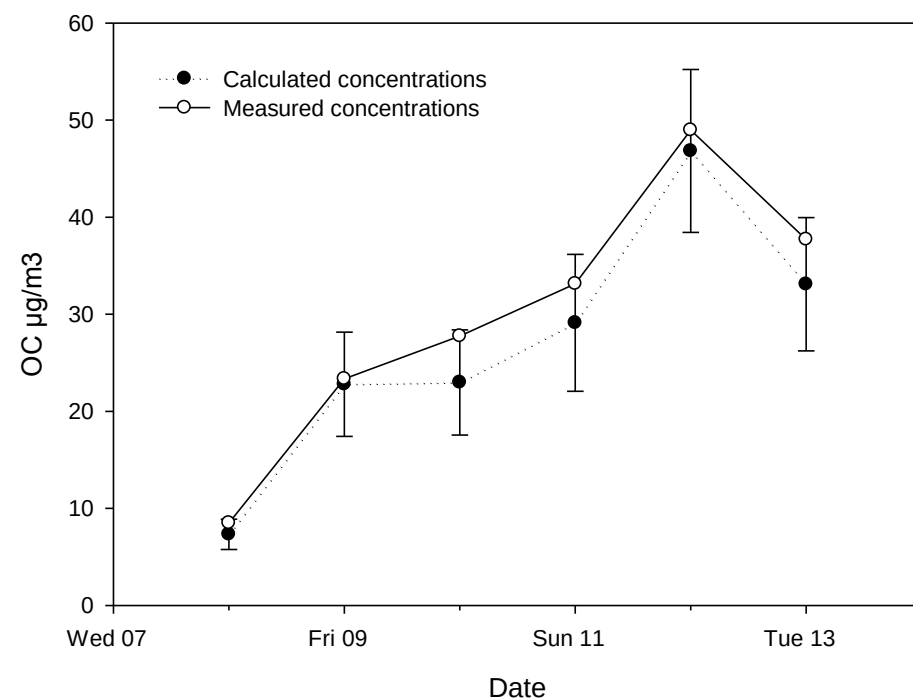
Episode de Janvier 2009

Modèle vs mesures

Rouen



Lyon

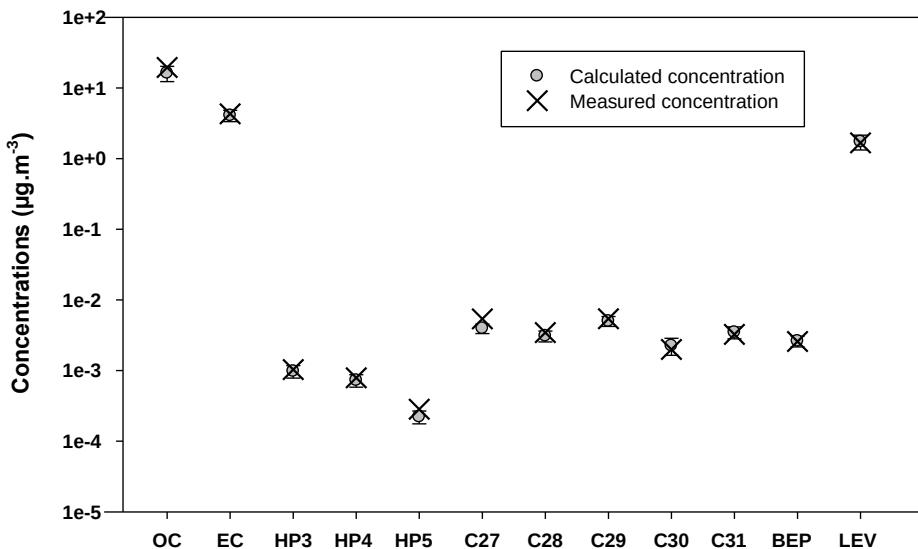


% OC expliqué { 83 % Rouen
86% Lyon

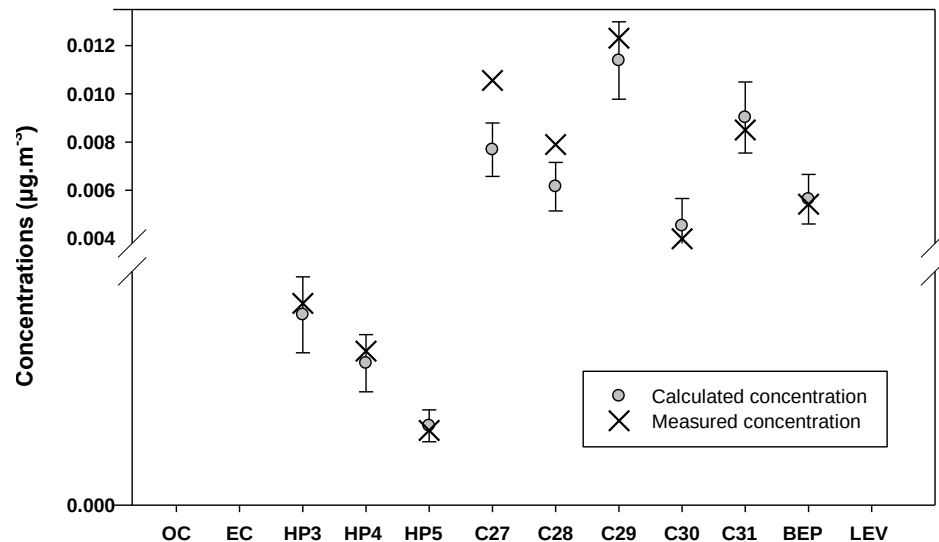
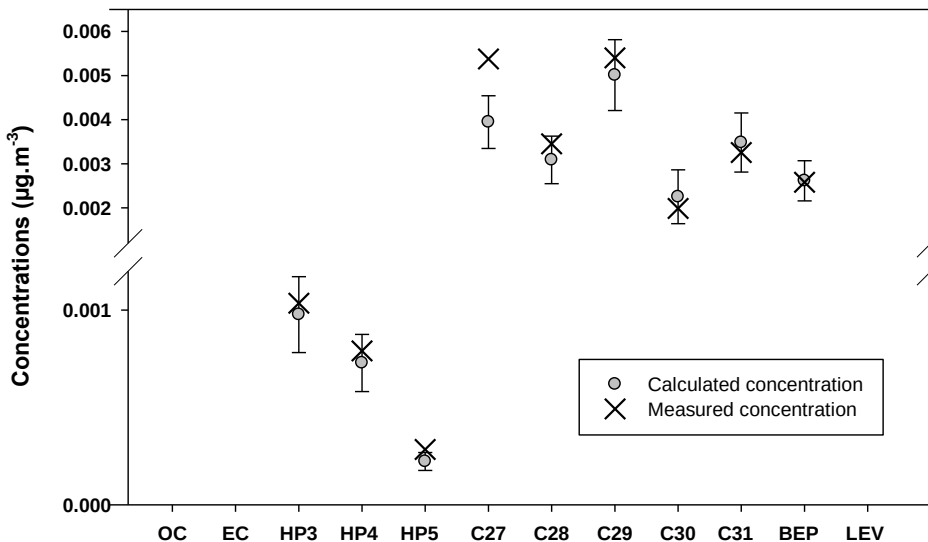
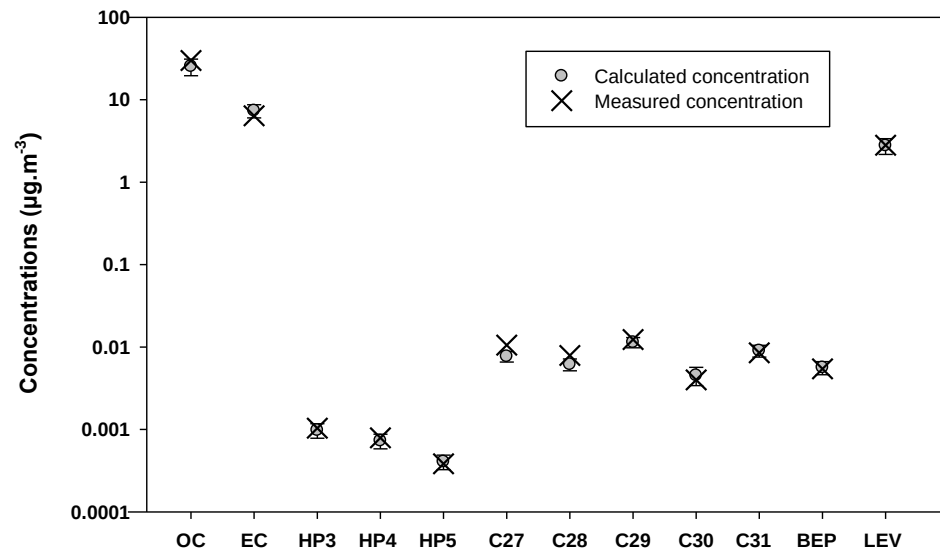
Episode de Janvier 2009

Modèle vs mesures

Rouen



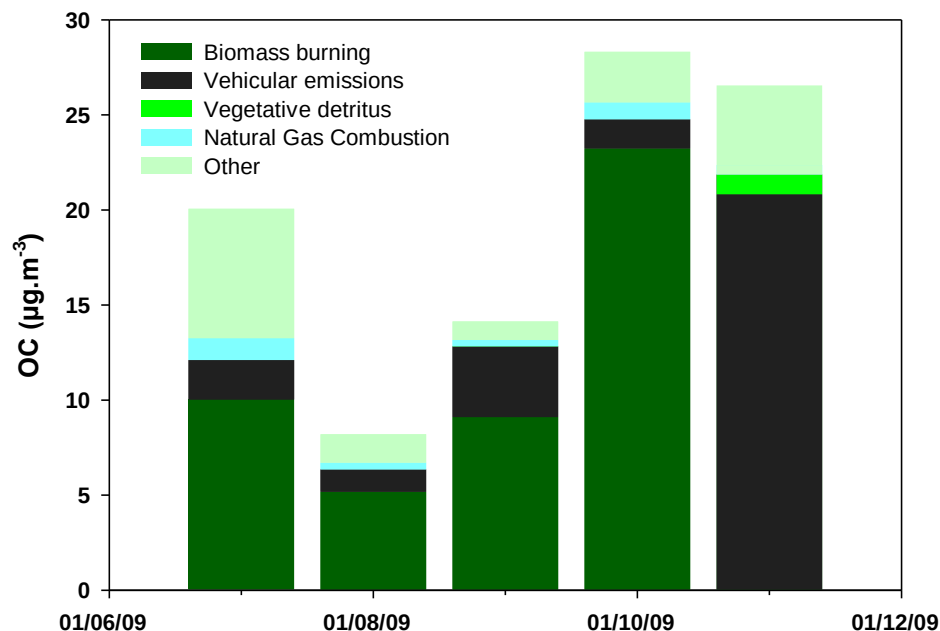
Lyon



Episode de Janvier 2009

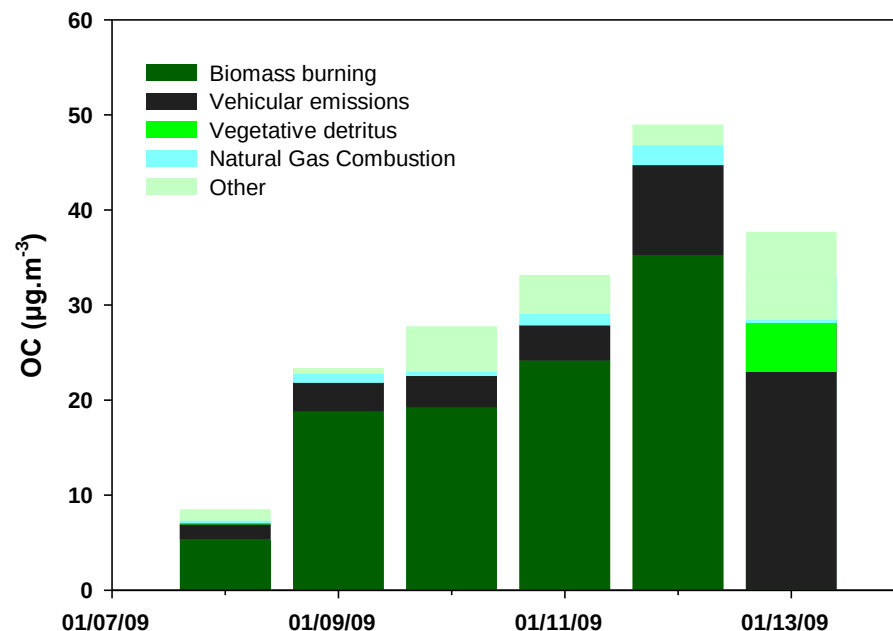
Bilan de masse du carbone organique (OC)

Rouen



% Comb. Biomasse : $66 \pm 10\%$
% Emissions Véhiculaires : $12 \pm 5\%$
% « other OC » : $16 \pm 6\%$

Lyon



% Comb. Biomasse : $69 \pm 12\%$
% Emissions Véhiculaires : $15 \pm 7\%$
% « other OC » : $10 \pm 8\%$

Episode de Janvier 2009

Bilan de masse du carbone organique (OM)

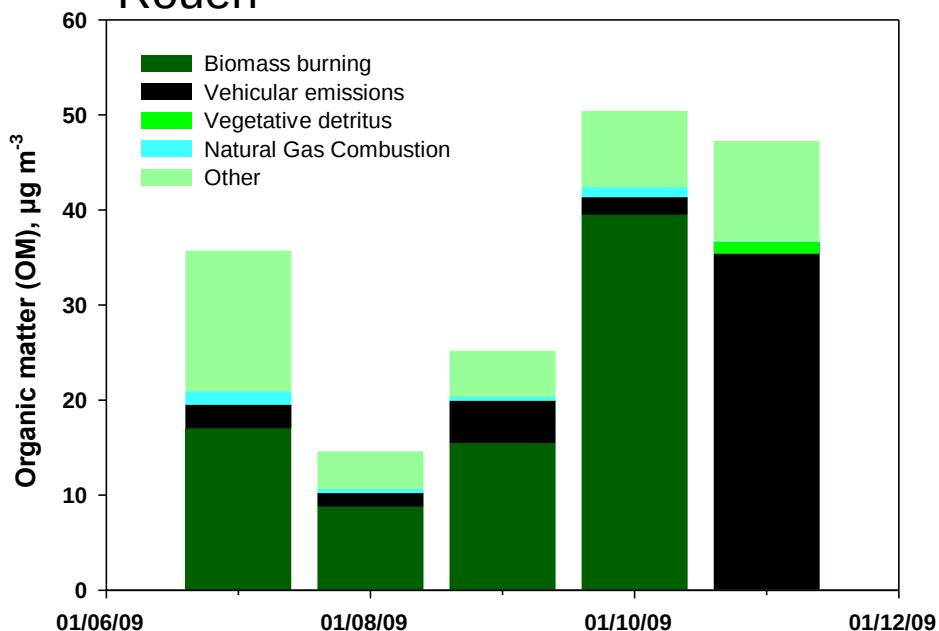
Ratio OM-to-OC

Global : **1.78** (cf FORMES Grenoble – OC_{Dkti} vs OM_{AMS})

Comb. Biom. : **1.7** / Em. Véh., Veg Detr., NGC : **1.2**

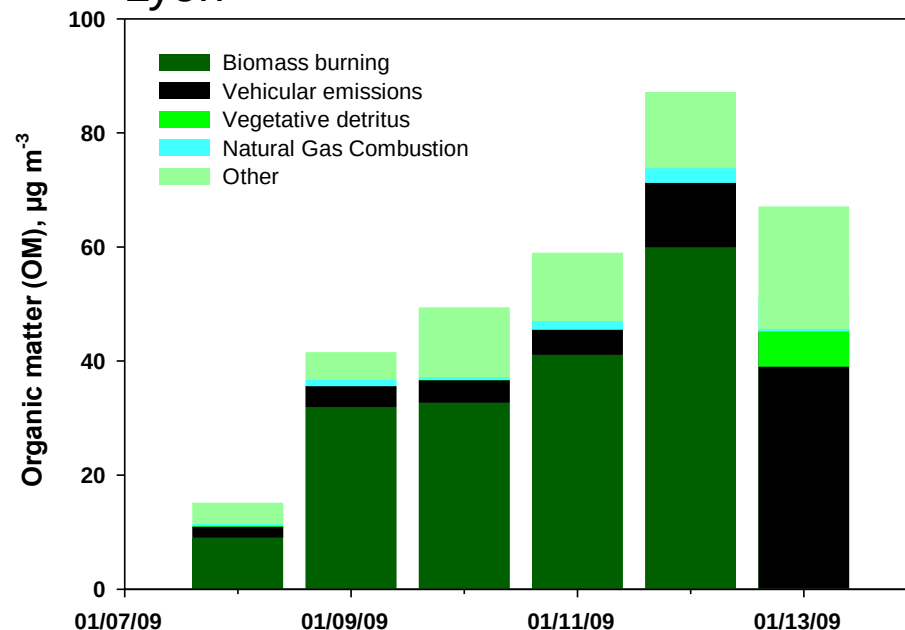
→ « other » OM : **2.7** (un peu élevé..)

Rouen



% Comb. Biomasse : 63%
% Emissions Véhiculaires : 8%
% « other OC » : 21%

Lyon

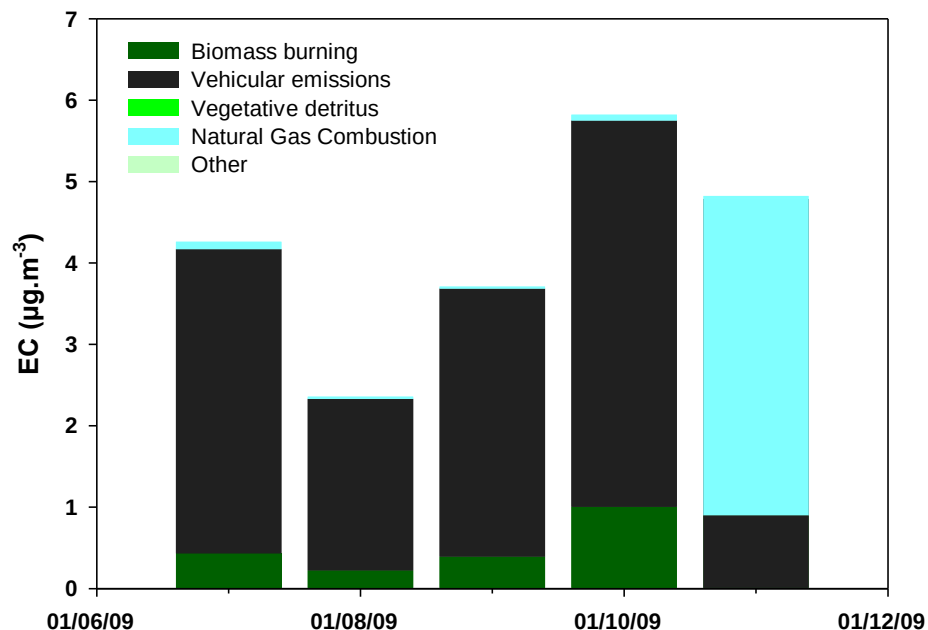


% Comb. Biomasse : 66%
% Emissions Véhiculaires : 10%
% « other OC » : 20%

Episode de Janvier 2009

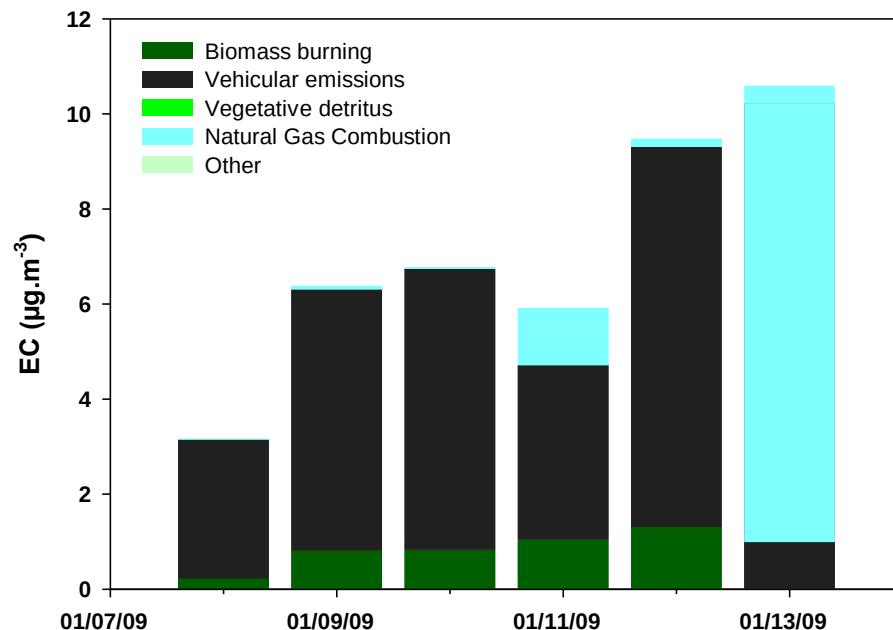
Bilan de masse du carbone élémentaire (EC)

Rouen



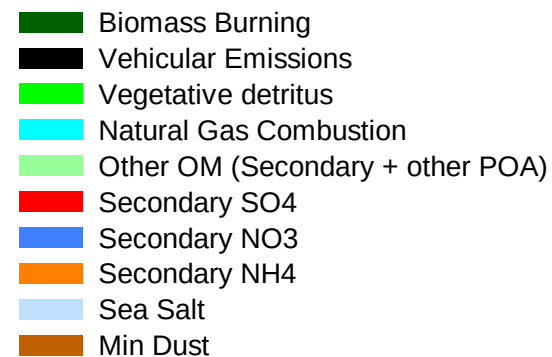
% Comb. Biomasse : $13 \pm 7\%$
% Emissions Véhiculaires : $80 \pm 12\%$

Lyon

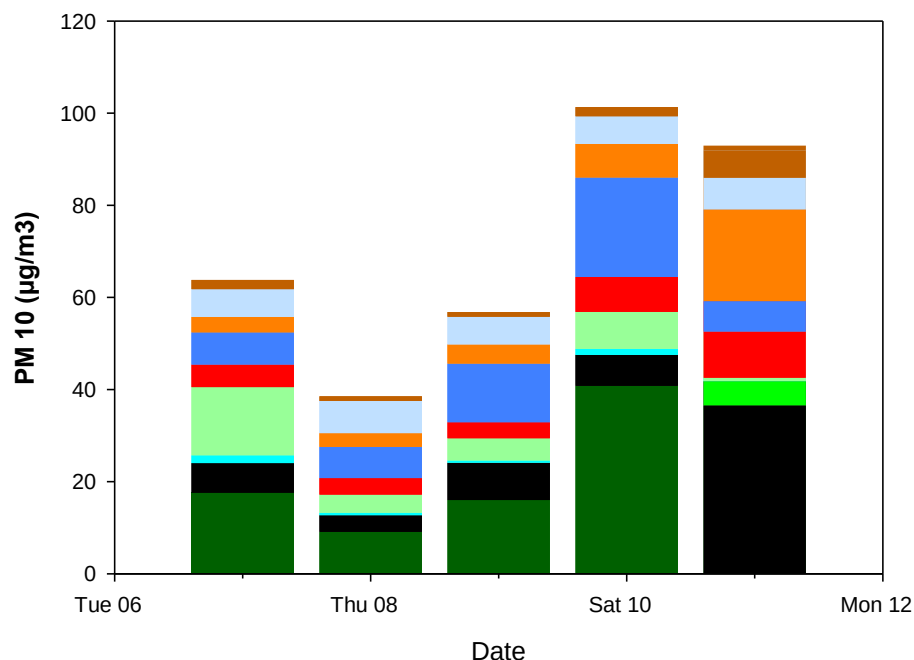


% Comb. Biomasse : $10 \pm 6\%$
% Emissions Véhiculaires : $85 \pm 14\%$

Episode de Janvier 2009 Bilan de masse des PM

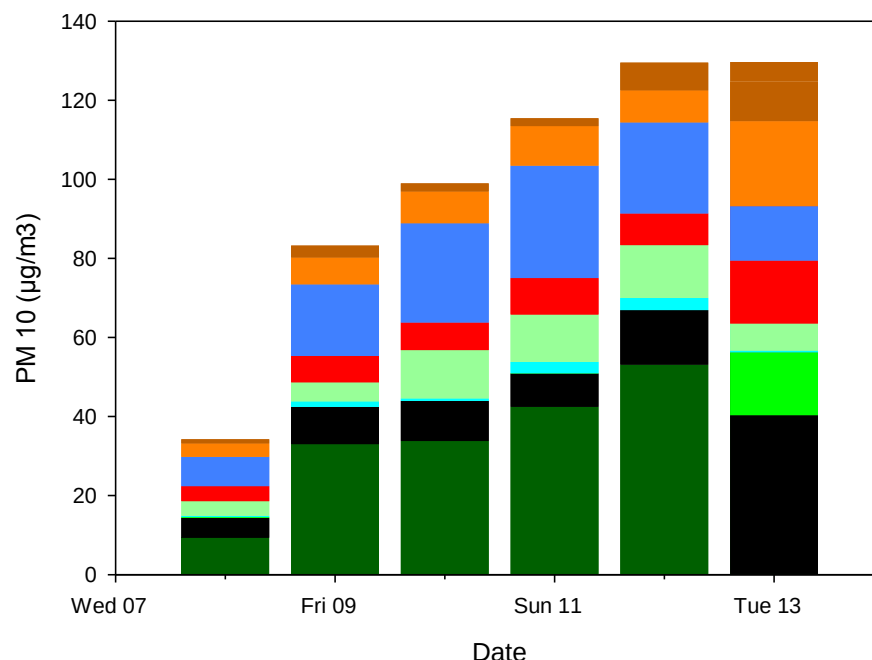


Rouen



% Comb. Biomasse : $32 \pm 8\%$ *
 % Emissions Véhiculaires : $10 \pm 3\%$
 % Other OM : $12 \pm 6\%$
 % « ions second. » : $33 \pm 5\%$
 % Crustaux : $2 \pm 1\%$
 % Sels marins : $8 \pm 5\%$

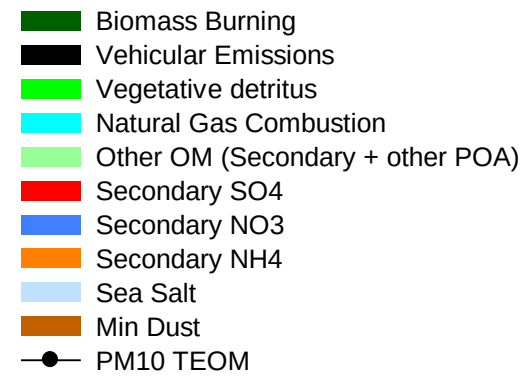
Lyon



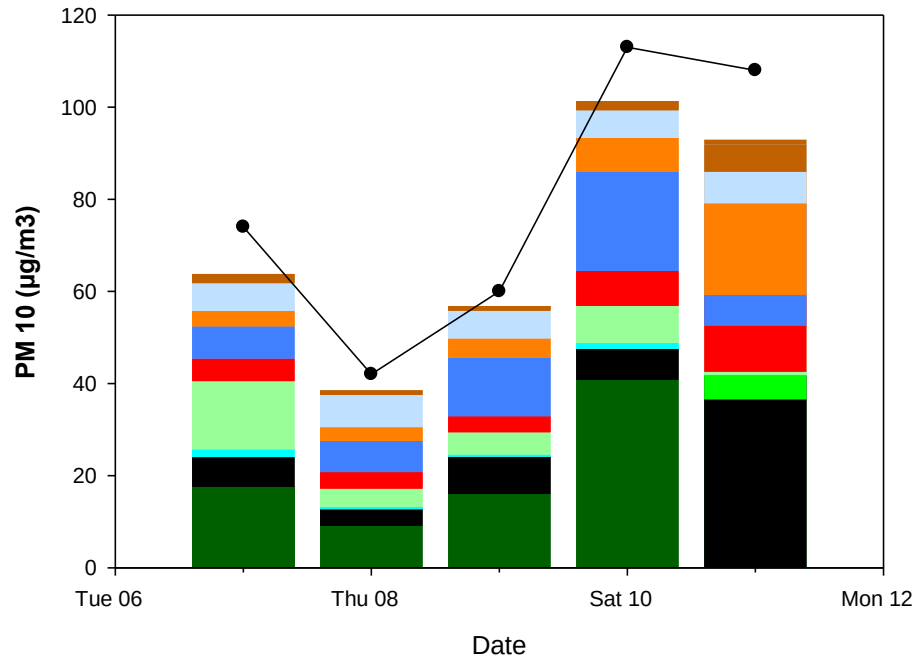
% Comb. Biomasse : $35 \pm 5\%$
 % Emissions Véhiculaires : $11 \pm 2\%$
 % Other OM : $10 \pm 6\%$
 % « ions second. » : $38 \pm 5\%$
 % Crustaux : $3 \pm 1\%$

*Ecart type

Episode de Janvier 2009 Bilan de masse des PM

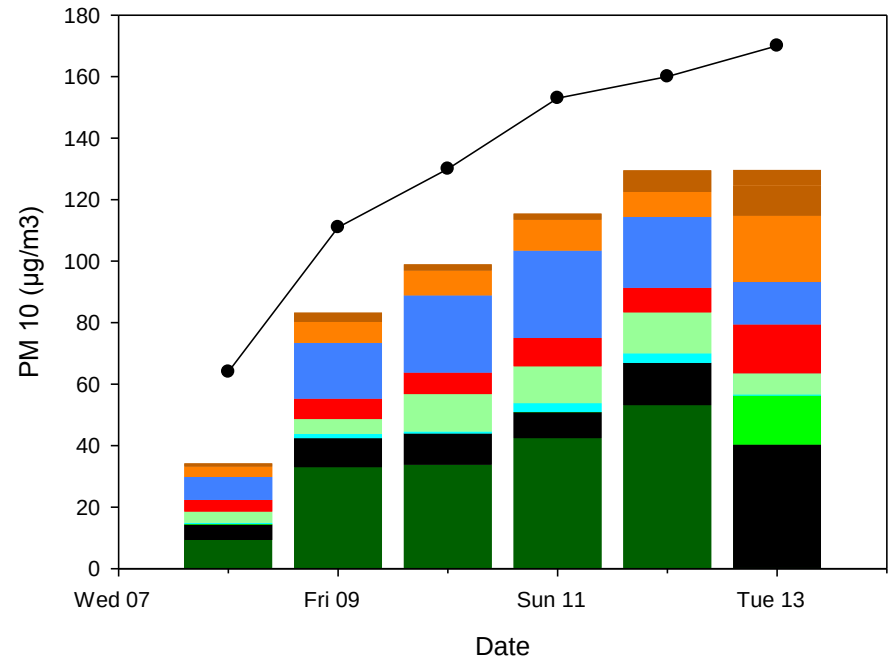


Rouen



% PM expliqué : $87 \pm 3\%$

Lyon



% PM expliqué : $73 \pm 10\%$

Autres sources (industrielles..), ratio OM-to-OC, homogénéité des mesures (OC/EC

Conclusions épisode de Janvier 2009



- 1/** La combustion de biomasse représente entre 30 et 35 % des PM₁₀ (42% des PM_{2.5} à Grenoble)
- 2/** Les émissions véhiculaires (primaires) représentent ~10 % des PM₁₀ (10% des PM_{2.5} à Grenoble)
- 3/** Fortes contributions de la fraction ionique secondaire ~30-40% des PM₁₀ (30% des PM_{2.5} à Grenoble)
Probable qu'il en soit de même à l'échelle régionale
- 4/** Grande homogénéité des contributions relatives entre les villes
- 5/** Idem au sein d'une même ville pendant l'épisode (augmentation des PM plus liée à des phénomènes dynamiques que des effets de sources)

Synthèse et quelques réflexions

1/ Le CMB est un outil à manier avec précautions...

2/ Nécessité d'une homogénéité des méthodes d'analyses

Avec intégration des (futures) préconisations européennes : EUSAAR2, lévoglucosan, autres traceurs, ..

- lien fort avec recherche
- nombre limité de labo + intercomparaisons

3/ Nécessité de travailler sur les profils chimiques de sources

Recherche Amont : travaux en cours dans nos laboratoires

4/ Nécessité de travailler sur la stabilité des traceurs/conservation du carbone au cours du transport atmosphérique

Recherche Amont : travaux en cours dans nos laboratoires

Synthèse et quelques réflexions (cont')

5/ Méthodologies de valorisation des données

Qui intègrent modélisation déterministe et approche CMB (pas les mêmes informations, mais recoupements sur certains points : complémentarité)

- Travaux en commun sur programmes
- Développements convergents à faire

6/ Nécessité d'un « réseau » avec différents types de sites (sites de fond, ruraux, d'altitude, urbains, ...)

CARA + MERA + Site Observations INSU PAES + programmes d'opportunité (type Particul'Air, MEGAPOLI, Charmex, etc ...)

Comité de coordination / d'orientation ??