

Note technique

Travaux financés par le ministère chargé de l'environnement

EPISODES DE POLLUTION PARTICULAIRE DE DEBUT DECEMBRE 2016

Éléments de compréhension à partir des
mesures automatiques (période du 30
novembre au 8 décembre 2016)
9 Décembre 2016

SYNTHESE

Depuis le 30 novembre, d'importants épisodes de pollution particulaire impactent la métropole, et en particulier le bassin parisien et la zone Rhône-Alpes. La présente note synthétise un ensemble de résultats disponibles au 9 décembre à l'aide d'analyseurs automatiques de la composition chimique des PM implantés sur différentes stations du dispositif national. Cette note résulte notamment du travail et de la réactivité des équipes d'Atmo Picardie, Air Normand, Atmo Grand-Est, Atmo Auvergne-Rhône-Alpes, Atmo Nouvelle-Aquitaine, Air Pays de la Loire et du SIRTA/LSCE (site de recherche de l'Institut Pierre Simon Laplace, sur le plateau de Saclay, Essonne)

L'ensemble de ces résultats indiquent une forte influence des émissions primaires de combustion (chauffage résidentiel et transport routier), en particulier en début d'épisode (30/11-02/12) et depuis le 5 décembre. Une contribution non négligeable de nitrate d'ammonium, sous l'effet de mécanismes photochimiques, est également observée sur tous les sites étudiés, hormis pour l'agglomération bordelaise qui reste très majoritairement impactée par la combustion de biomasse.

Pour les derniers jours, on observe un accroissement notable des contributions primaires de combustion sur certaines stations (dont Poitiers, Nantes et Grenoble). Le caractère local de ces épisodes de pollution entraîne de fortes variations d'une station à l'autre, avec par exemple des maxima d'émissions de combustion à Metz dans la soirée du 8 décembre, alors que des niveaux plus faibles par rapport aux jours précédents sont observés au même moment sur le site de Saclay (SIRTA).

Les résultats présentés ici sont issus de mesures partiellement validées et seront complétés d'une analyse approfondie à l'aide de données obtenues à partir de mesures sur filtres. A noter enfin que ces résultats sont représentatifs de stations de fond (péri-)urbain. Par conséquent, ils ne correspondent pas aux endroits où sont enregistrés les maxima de concentrations, en particulier sur les stations de proximité automobile.

1. INTRODUCTION

De fortes concentrations de PM_{10} , pouvant entraîner des dépassements de la valeur limite journalière, sont régulièrement observées entre mi-novembre et mi-avril du fait de la conjonction entre les activités anthropiques (chauffage, transport, agriculture) et l'occurrence de conditions météorologiques favorables à l'accumulation et/ou à la transformation des polluants atmosphériques. Les événements de début d'hiver se développent lors de situations météorologiques stables et froides (régime anticyclonique), propices à une forte utilisation du chauffage domestique et à l'accumulation de l'ensemble des émissions primaires (dont le transport routier), entraînant une forte teneur en matière carbonée au sein des particules.^{1,2}

Le dispositif national de surveillance de la qualité de l'air (MEEM, LCSQA et AASQAs) s'est doté depuis 2008 d'un programme d'amélioration des connaissances de la composition chimique et des sources de particules (« programme CARA »). Reposant initialement sur l'analyse différée de prélèvements sur filtres, ce programme s'enrichit aujourd'hui de mesures en temps réel au sein des AASQA et au SIRTA.¹

Comme illustré par la Figure 1, depuis le 30 novembre, les régions de la moitié nord de la France, Auvergne-Rhône-Alpes, la nouvelle Aquitaine et, dans une moindre mesure, l'Occitanie, connaissent des niveaux de PM_{10} avoisinant ou dépassant les seuils d'information ($50\mu\text{g}/\text{m}^3$) et d'alerte ($80\mu\text{g}/\text{m}^3$).

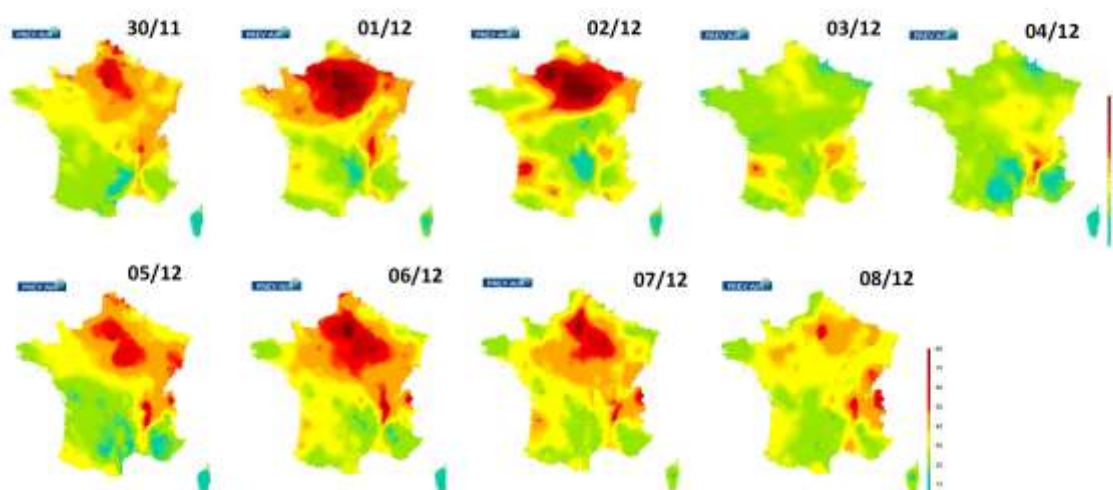


Figure 1 : Cartes PREV'AIR analysées des moyennes journalières PM_{10} depuis le 30/11/16 (simulations Chimère dans lesquelles les données d'observation sont assimilées)

La présente note permet de réaliser un premier point d'étape des ces épisodes de pollution à partir des mesures automatiques disponibles à ce jour (sur la base nationale de données Geod'Air ou transmises directement par les opérateurs de stations). Ces mesures sont réalisées sur des stations de fond (péri-)urbain de quelques grandes agglomérations françaises. A ce titre, elles aident à comprendre l'exposition générale des populations mais sont moins pertinentes pour les maxima de concentration enregistrés à proximité immédiate des sources (et notamment le trafic routier).

¹ Note LCSQA 2014: <http://www.lcsqa.org/rapport/2014/ineris/description-programme-cara-dispositif-national-surveillance-qualite-air>.

² Note LCSQA 2015: <http://www.lcsqa.org/rapport/2015/ineris/elements-comprehension-episodes-pollution-particuliere-fin-decembre-2014-debut-j>

2. MESURES EN TEMPS REEL DES ESPECES CHIMIQUES MAJEURES DES PARTICULES FINES

PM₁₀, granulométrie, origines, et compositions chimiques

Les PM₁₀ représentent la concentration massique des particules atmosphériques de diamètre aérodynamique inférieur à 10µm. Elles sont essentiellement constituées de deux modes : le mode fin et le mode grossier, dont la frontière granulométrique se situe vers 2.5µm. Ces deux modes ont des origines et donc des compositions chimiques différentes^{3,4}.

Le mode fin est principalement constitué des émissions anthropiques ainsi que d'aérosols secondaires provenant de l'oxydation et/ou de la condensation de précurseurs gazeux (COVs, NO_x, SO₂, NH₃, ...) en phase particulaire. Il contient très majoritairement :

- du carbone suie (ou *Black Carbon*), issu de la combustion incomplète d'énergies fossiles ou de biomasse, et constitué quasi-exclusivement d'atomes de carbone,
- de la matière organique (contenant des atomes de carbone, mais également de l'oxygène, hydrogène, azote, ...) primaire, i.e., émis directement dans l'atmosphère (en particulier par les mêmes processus de combustion que pour le carbone suie) ou secondaire, i.e. provenant de l'oxydation de COVs émis par les activités humaines et par la végétation,
- et des espèces inorganiques secondaires (en particulier le nitrate d'ammonium et le sulfate d'ammonium).

Le mode grossier est principalement constitué de particules d'origines naturelles : sels de mer, poussières terrigènes, débris végétaux, etc Il contient également des espèces secondaires (dont nitrate, sulfate et composés organiques, provenant de réactions acido-basiques entre espèces gazeuses et particules minérales).

En milieu urbain, le mode fin constitue la part majeure (65-90%) des PM₁₀.

Dispositif de mesure en temps réel

Les instruments de mesure mis en œuvre au cours de ces dernières années au sein du dispositif national de surveillance de la qualité de l'air permettent le suivi des espèces chimiques majeures de ce mode fin (et donc des principales influences anthropiques). Ils sont de 2 types :

- L'Aethalomètre multi-longueurs d'onde **AE33**, permettant la surveillance du *Black Carbon* (BC) en tant qu'indicateur des émissions primaires de combustion.
- L'*Aerosol Chemical Speciation Monitor (ACSM)*, basé sur la spectrométrie de masse et la quantification des espèces non-réfractaires (i.e., volatile à 600°C) au sein des PM₁. Ces espèces chimiques correspondent principalement au nitrate, au sulfate, à l'ammonium et à la matière organique.

Ces mesures sont réalisées par les AASQA volontaires sur des sites de fond urbain ou péri-urbain du dispositif national ainsi qu'au SIRTA. Cette dernière station située sur le plateau Saclay (78) fait partie de l'infrastructure européenne de recherche ACTRIS. Les mesures de composition chimique des particules y sont réalisées en continu depuis 2011 en collaboration entre le Laboratoire des Sciences du Climat et de l'Environnement (LSCE) et l'INERIS. Ce site est représentatif du fond régional urbanisé en Ile de France, mais ne reflète pas totalement les niveaux de concentrations (en particulier des émissions primaires) pouvant être atteints au sein de l'agglomération parisienne.

³ Rapport LCSQA 2011: <http://www.lcsqa.org/rapport/2011/ineris-air-normand-lsce/note-suivi-composition-chimique-journaliere-pm25-pm10-station-p>

⁴ Note LCSQA 2011 : <http://www.lcsqa.org/rapport/2011/ineris/note-methodologies-determination-composition-chimique-particules-submicroniques->

La Figure 2 présente les résultats disponibles entre les 29 novembre et 9 décembre pour les mesures couplées ACSM-AE33 sur 6 sites de fond (péri-)urbain : Creil, Saclay (SIRTA), Metz, Poitiers, Lyon, et Bordeaux.

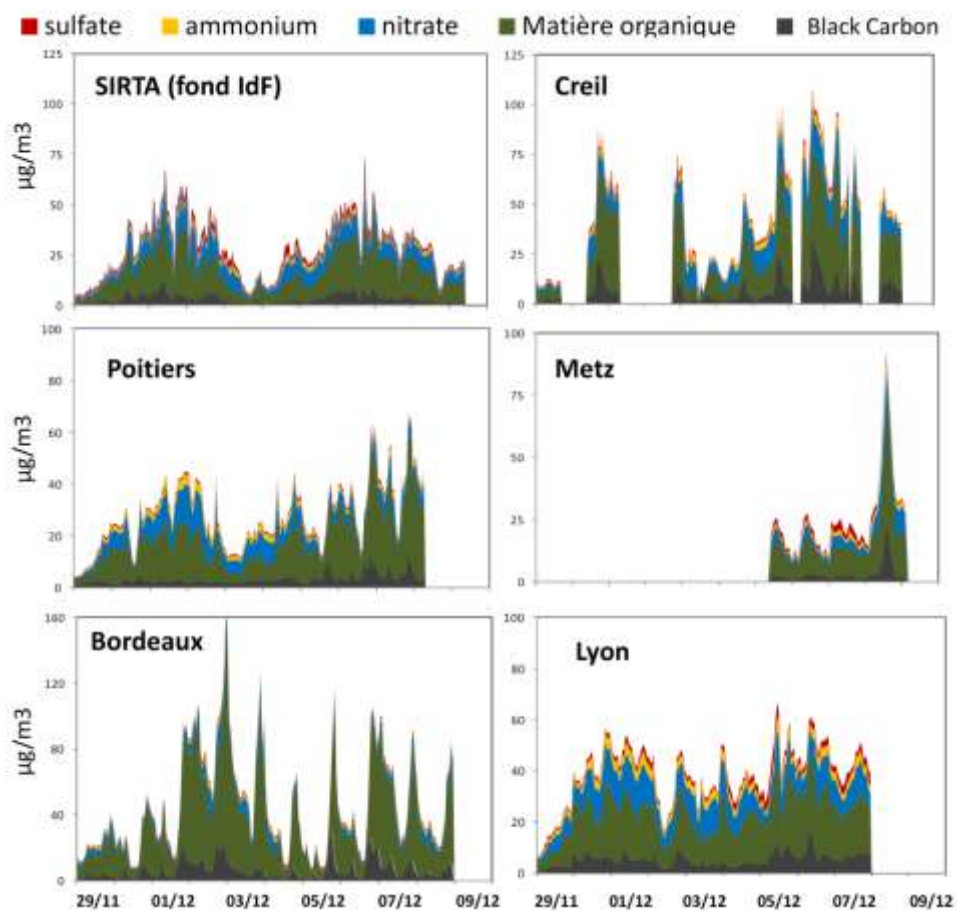


Figure 2 : variations temporelles des espèces chimiques majeures des particules fines sur 6 sites de fond (péri-)urbain. Mesures ACSM (en PM₁) et AE33 (en PM_{2.5}) (courbes empilées).

On note tout d'abord des différences notables de niveaux de concentrations et de variations temporelles entre des stations géographiquement proches (en particulier Creil - SIRTA et Bordeaux - Poitiers), confirmant **la forte influence des émissions locales sur les concentrations mesurées au niveau de chaque station.**

Parmi les différentes espèces chimiques mesurées, **la prédominance de la matière organique** est frappante. Compte tenu également des résultats détaillés des mesures AE33 (présentés ci-après), ces observations suggèrent une **forte influence des émissions primaires et donc des activités humaines.**

A Bordeaux, cette fraction organique est ultra-majoritaire depuis le début de l'épisode, avec une pointe de concentration autour de $140\mu\text{g}/\text{m}^3$ en moyenne horaire pour la somme carbone suie + matière organique le 2 décembre. Ces résultats sont à relier en premier lieu au rôle majeur joué par le chauffage résidentiel sur la qualité de l'air au sein de cette agglomération.⁵

⁵ Note LCSQA 2015 : <http://www.lcsqa.org/rapport/2015/ineris/impact-combustion-biomasse-concentrations-pm10-programme-cara-hiver-2014-2015>

Sur les 5 autres sites étudiés, on constate également **une influence non négligeable des aérosols inorganiques secondaires, et en particulier du nitrate (d'ammonium)**. Les contributions relatives de cette espèce augmentent avec la diminution des concentrations en aérosols carbonés, en particulier dans le bassin parisien les 3 et 4 décembre. Cette dernière observation est à mettre en relation avec des conditions météorologiques favorisant les processus de transformations photochimiques, permettant notamment l'oxydation des NO_x en radicaux nitrate, se combinant ensuite avec l'ammoniac. Il est à noter que de récents résultats du programme INACS (ADEME CORTEA) suggèrent que les sources de combustion (dont transport routier) pourraient jouer un rôle non négligeable dans la disponibilité de l'ammoniac lors des épisodes de début d'hiver.

3. INFLUENCE DES EMISSIONS PRIMAIRES DE COMBUSTION

Black Carbon, biomasse et hydrocarbures

L'AE33 permet de distinguer deux fractions du Black carbon que l'on peut relier à la combustion d'hydrocarbures (BC_{ff}) et à la combustion de biomasse (BC_{wb}). Ces fractions peuvent ensuite être utilisées pour estimer (à l'aide d'un facteur multiplicatif et avec une précision de l'ordre de ± 50%) les concentrations de PM₁₀ attribuables aux deux familles de sources (notées respectivement PM_{ff} et PM_{wb}), tel que :

$$PM_{ff} = a \times BC_{ff}$$

$$\text{Et } PM_{wb} = b \times BC_{wb}$$

où PM_{ff} et PM_{wb} représentent la concentration massique de particules PM₁₀ issues respectivement de la combustion d'hydrocarbures et de la combustion de biomasse. Outre le BC, PM_{ff} et PM_{wb} sont constituées principalement d'aérosols organiques primaires. Les coefficients *a* et *b* sont issus (i) de la littérature scientifique pour la contribution fossile, et (ii) d'études LCSQA précédentes pour la contribution biomasse.⁶

Il est à noter que les émissions primaires à l'échappement automobile sont comprises au sein de la fraction liée à la combustion d'hydrocarbures (PM_{ff}), mais que ces estimations n'intègrent pas les particules issues de l'abrasion de la chaussée, des pneus, des freins Elles ne tiennent pas compte non plus de l'influence de l'échappement automobile sur la formation d'aérosols secondaires à partir des émissions de précurseurs gazeux (dont les NO_x, issus à 60% du transport au niveau national).

Comme présenté par la Figure 3, l'interprétation des données AE33 indique un **impact majoritaire des émissions primaires de combustion sur les niveaux élevés de PM₁₀ enregistrés entre les 30 novembre et 2 décembre, puis à partir du 5 décembre**. Selon les sites étudiés, les combustions d'hydrocarbures et de biomasse représente alors entre 40% et 85% des PM₁₀, avec **une prépondérance des émissions liées à la combustion de biomasse (PM_{wb})**. Un accroissement notable de l'influence de l'ensemble des émissions de combustion est observable à Grenoble, Poitiers et Nantes au cours de ces derniers jours. On constate également sur les émissions issues de la combustion. Par ailleurs, le fort impact des émissions locales sur les niveaux de PM₁₀ est confirmé par les profils « en dents de scie », reflétant les périodes maximales d'émissions (pics de circulation automobile et chauffage nocturne). Cette prédominance des influences locales entraîne de fortes variations d'un site à l'autre, avec par exemple des maxima d'émissions de combustion à Metz le 8/12 au soir,

⁶ Rapport LCSQA 2015 : <http://www.lcsqa.org/rapport/2015/ineris/programme-cara-bilan-travaux-2014-2015>

contre des niveaux plus faibles que les jours précédents au sur le site de Saclay (SIRTA) au même moment.

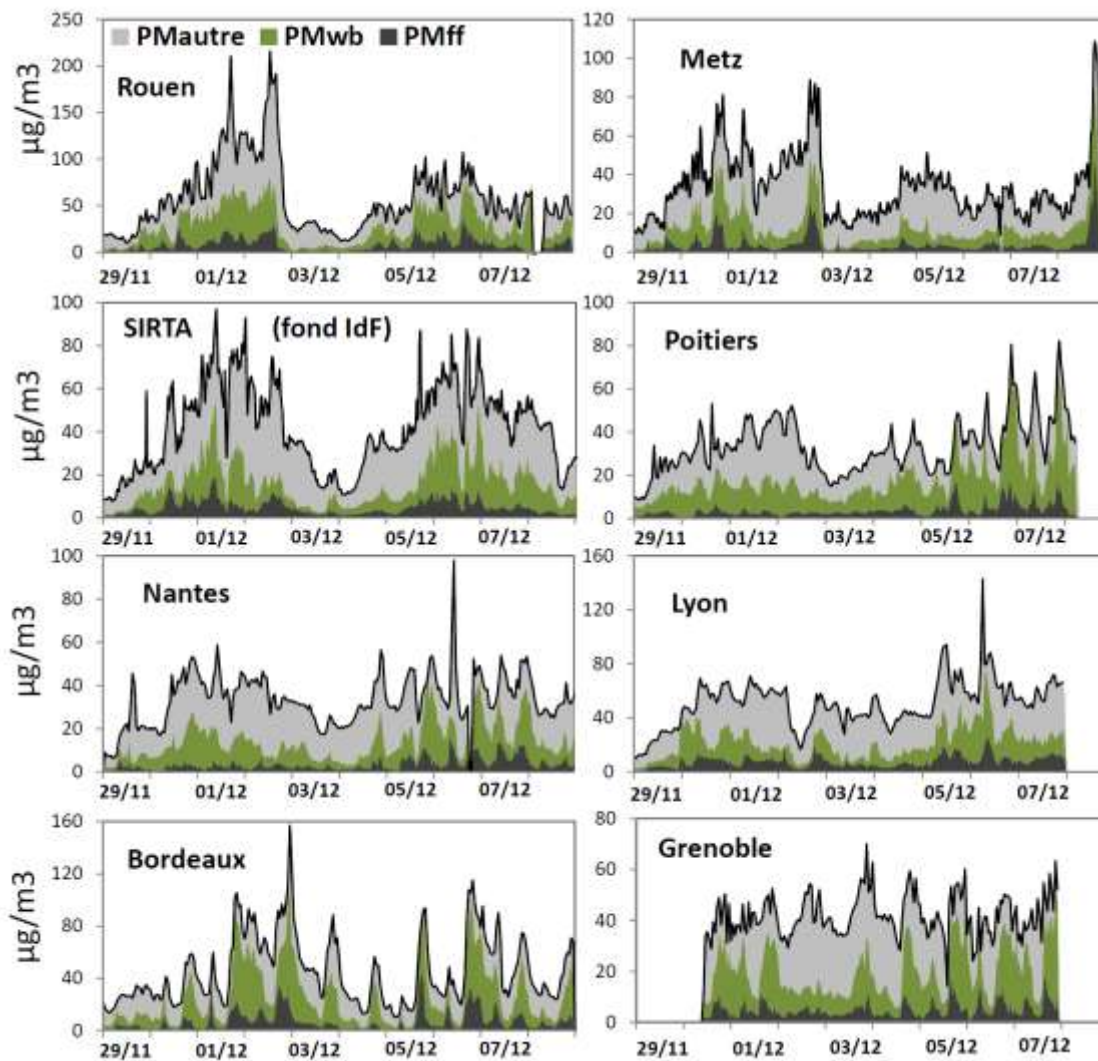


Figure 3 : suivi temporel des concentrations PM_{10} et estimations des fractions issues des émissions primaires liées à la combustion d'hydrocarbures (PM_{ff}) et de biomasse (PM_{wb}) sur différents sites de fond (péri-)urbain (courbes empilées).

4. ESTIMATION DES PRINCIPAUX CONSTITUANTS DES PM_{10}

Règles appliquées pour l'estimation

L'objectif ici est d'estimer la composition des PM_{10} à partir des mesures ACSM et AE33. On évalue d'abord PM_{ff} et PM_{wb} à partir des résultats AE33, comme indiqué précédemment. On reconstruit ensuite les concentrations de nitrate d'ammonium et de sulfate d'ammonium à partir des mesures ACSM de nitrate, de sulfate et d'ammonium et en respectant la stœchiométrie moléculaire. Puis, en considérant que la majeure partie du sulfate d'ammonium, du nitrate d'ammonium et des aérosols organiques secondaires est essentiellement présente au sein de la fraction $PM_{2.5}$, il est possible d'extrapoler les données ACSM (en PM_1) pour déduire une concentration de ces dernières espèces dans la fraction PM_{10} . Pour ce faire, on multiplie les concentrations obtenues par l'ACSM par le ratio $PM_{2.5}/PM_1$. Les concentrations de nitrate d'ammonium et de sulfate d'ammonium dans la fraction PM_{10} sont alors considérées comme égales aux concentrations mesurées par l'ACSM corrigées de ce

ratio. Les aérosols organiques secondaires (AOS), quant-à eux, peuvent être estimés par différence entre la matière organique totale issue des données ACSM corrigée par ce même ratio et l'estimation des contributions organiques primaires à partir des mesures AE33.

Les mesures de concentration totale de PM_{10} ne sont pour l'instant disponibles en temps réel que pour le site de Saclay (SIRTA). Ainsi, seuls les résultats obtenus pour ce site sont présentés sur la Figure 4. Cette dernière permet de compléter les interprétations précédentes, en mettant en évidence que les mécanismes photochimiques à l'origine de des concentrations significatives du nitrate d'ammonium semblent également favoriser la formation d'AOS

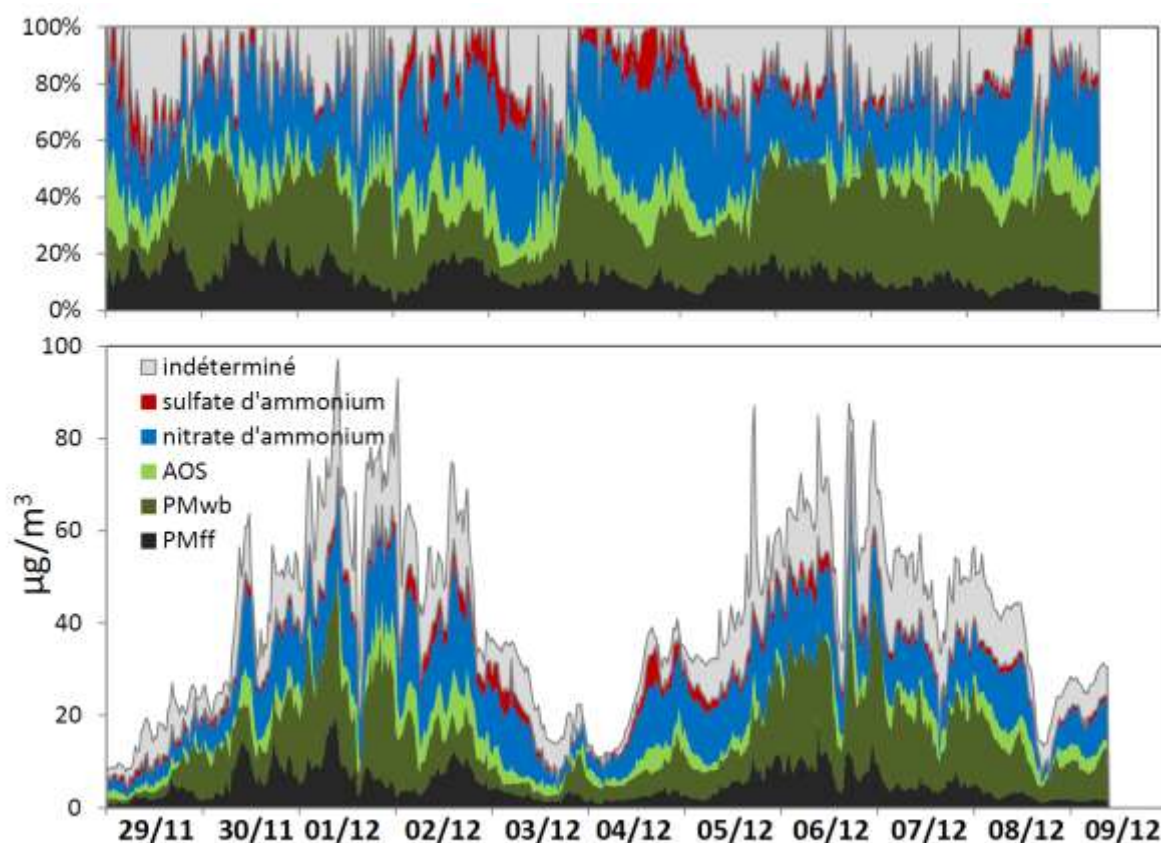


Figure 4 : suivi temporel des concentrations PM_{10} et résultats issus de l'estimation des concentrations de PMff, PMwb, AOS, nitrate d'ammonium et sulfate d'ammonium au SIRTA (courbes empilées)

On note également une part importante d'espèces chimiques indéterminées. Ces espèces appartiennent à la fraction grossière des particules (dont sels de mer et poussières terrigènes) et ne peuvent être quantifiées via les instruments de mesure automatique utilisés aujourd'hui au sein du dispositif CARA.

5. ET ENSUITE ...

Les éléments présentés au sein de cette note sont issus d'un dispositif de mesure opérationnel en temps quasi-réel unique en Europe. La mise en œuvre de ce dispositif

résulte de collaborations étroites entre les AASQA volontaires, le LCSQA et des équipes de recherche universitaires, avec le soutien du MEEM. Ce dispositif est en cours de consolidation, notamment via l'équipement en ACSM et/ou AE33 de nouvelles stations et une veille technologique sur de nouveaux analyseurs automatiques pour l'identification d'autres espèces chimiques et traceurs de sources (en particulier les éléments métalliques).

Une analyse plus approfondie de l'épisode étudié ici est en cours. Elle nécessite notamment l'obtention des résultats de caractérisation chimique différée à l'aide des filtres PM₁₀ prélevés au sein du dispositif CARA.