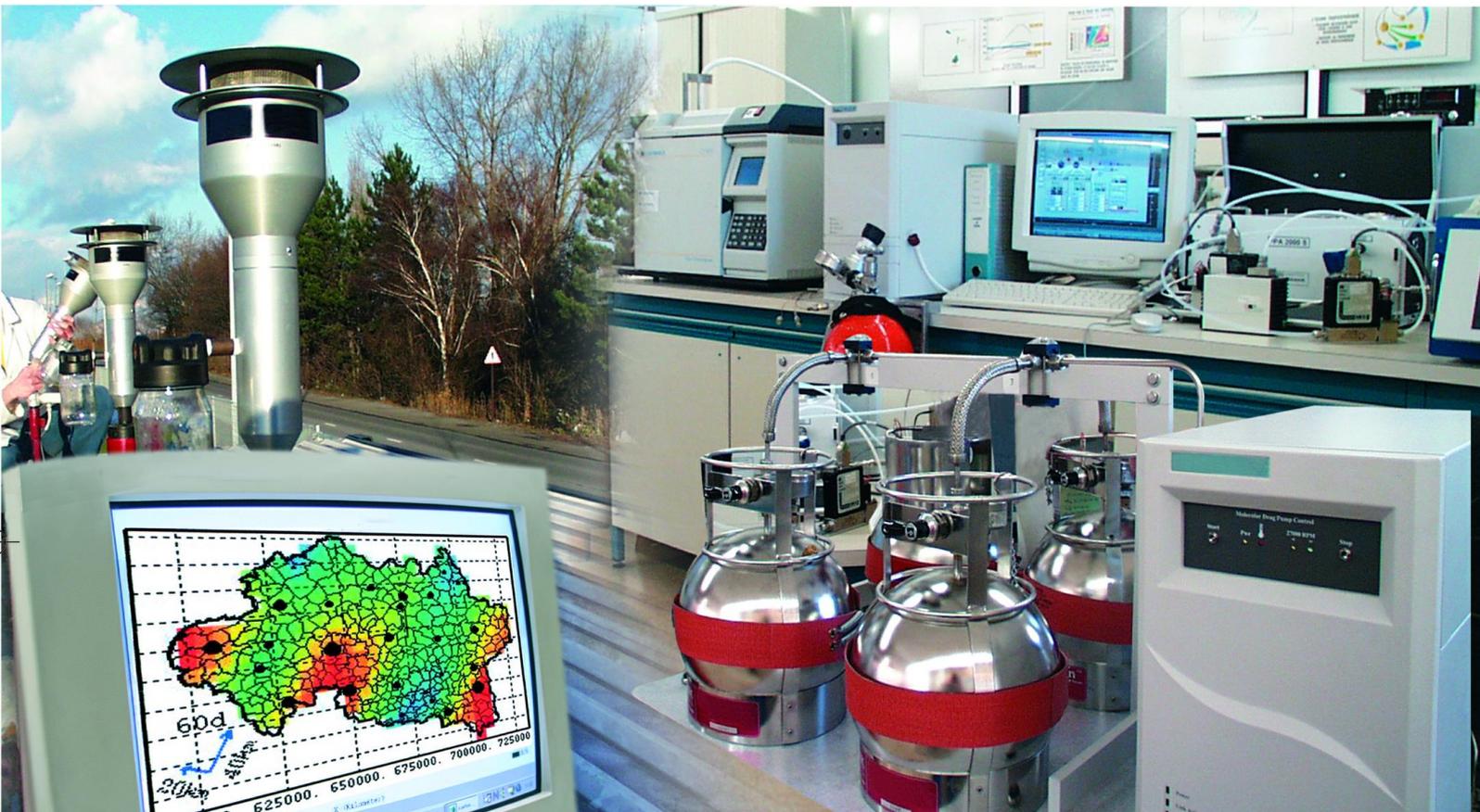




Laboratoire Central de Surveillance de la Qualité de l'Air



Métrologie des polluants non réglementés

Connaissance de la pollution par les particules
submicroniques

Décembre 2008

Programme 2008

O. LE BIHAN, L. MALHERBE





PREAMBULE

Le Laboratoire Central de Surveillance de la Qualité de l'Air

Le Laboratoire Central de Surveillance de la Qualité de l'Air est constitué de laboratoires de l'École des Mines de Douai, de l'INERIS et du LNE. Il mène depuis 1991 des études et des recherches finalisées à la demande du Ministère chargé de l'environnement, sous la coordination technique de l'ADEME et en concertation avec les Associations Agréées de Surveillance de la Qualité de l'Air (AASQA). Ces travaux en matière de pollution atmosphérique supportés financièrement par le Ministère de l'Écologie, de l'Énergie, du Développement durable et de la Mer 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 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.



Connaissance de la pollution par les particules submicroniques

Laboratoire Central de Surveillance
de la Qualité de l'Air

Thème : Métrologie des polluants non réglementés

Programme financé par le
Ministère de l'Écologie, de l'Énergie, du Développement durable et de la Mer
(MEEDDM)

2008

INERIS : O. LE BIHAN, L. MALHERBE, A. USTACHE, R. AUJAY.

AIRPARIF : H. MARFAING, C. HONORE

Ce document comporte 74 pages

	Rédaction	Vérification	Approbation	
NOM	O. LE BIHAN L. MALHERBE	O. AGUERRE	D. GOMBERT	M. RAMEL
Qualité	Ingénieurs à la DRC	Responsable de l'unité NOVA	Responsable du pôle CARA	Responsable du LCSQA/INERIS
Visa				

TABLE DES MATIÈRES

RESUME	7
REMERCIEMENTS	9
1. INTRODUCTION	10
2. SUIVI DANS LE TEMPS	10
2.1 Principe : rappel	10
2.2 Difficultés rencontrées lors de l'exercice 2008	11
2.2.1 Identification de caractéristiques inhabituelles.....	11
2.2.2 Schéma de contrôle.....	11
2.2.3 Tests approfondis	12
2.2.4 Perspectives	12
2.2.5 Conclusion.....	12
2.3 Description de la base de données	13
2.3.1 Campagnes de mesure étudiées.....	13
2.3.2 Composition de la base	14
2.3.3 Remarques sur les variables	15
2.3.3.1 Variables de comptage.....	15
2.3.3.2 Hauteur de couche limite.....	15
2.3.3.3 Variables d'émission	16
2.4 Résultats	16
2.4.1 Caractéristiques générales des données de concentration	17
2.4.1.1 Vue d'ensemble des campagnes	17
2.4.1.2 Granulométrie.....	18
2.4.2 Influence des émissions et de la météorologie : étude des variations temporelles	18
2.4.2.1 Influence du trafic automobile et du chauffage urbain	18
2.4.2.2 Influence de la météorologie	20
2.4.2.3 Comparaison entre les saisons	23
2.4.2.4 Comparaison avec d'autres polluants	28
2.4.2.5 Comparaison avec un autre site.....	29
2.4.3 Influence des émissions et de la météorologie : corrélations et ACP	29
2.4.4 Etude de la granulométrie.....	32
2.5 Conclusion	39

3. TYPOLOGIE	41
3.1 Rappel concernant la campagne de la mède et les résultats obtenus en 2006	41
3.2 Objectifs des travaux complémentaires menés en 2008	44
3.3 Etude par polluant	44
SO ₂	44
PM10.....	48
Oxydes d'azote	51
3.4 Comparaison entre la concentration en nombre et les autres polluants.....	54
Suivi temporel, rose des vents	54
Evènements particuliers	57
3.5 Discussion.....	60
Retour d'expérience d'AIRFOBEP	61
3.6 Conclusion.....	62
4. VEILLE, PROSPECTIVE	64
4.1 Normalisation CEN.....	64
4.2 Réseau EUSAAR	64
5. CONCLUSION ET PERSPECTIVES	65
6. REFERENCES.....	67
7. LISTE DES ANNEXES	68
ANNEXE 1 : ANALYSE STATISTIQUE DES DONNEES DE GENNEVILLIERS. FIGURES COMPLEMENTAIRES.....	69
ANNEXE 2 : PARTICIPATION AU PROGRAMME FORMES.....	71
ANNEXE 3 : DETAIL DES ACTIVITES EUSAAR	74

RESUME

Le risque sanitaire lié à la présence de particules submicroniques dans l'air ambiant a conduit au lancement dès 2003 d'une action spécifique du dispositif français de surveillance de la qualité de l'air, par le biais de travaux pluri-annuels confiés au LCSQA. Ceux-ci comportent différentes activités complémentaires.

Depuis 2003, la concentration en nombre et la distribution en taille des particules de diamètre compris entre 10 nm et 20 µm sont étudiées grâce à la réalisation de campagnes de mesure de 5 semaines. Une défaillance importante sur l'un des appareils installés par le LCSQA a été constatée pour la première fois en 2008.

En ce qui concerne la qualité de la mesure, deux actions nouvelles doivent être signalées : un groupe de normalisation consacré au mesurage « taille et nombre » dans l'« air ambiant », auquel participera le LCSQA / INERIS, a été lancé ; d'autre part, le LCSQA s'est rapproché des membres du projet européen EUSAAR afin de participer à leurs travaux communs sur la métrologie des particules (nombre, taille), et tout particulièrement à des exercices d'intercomparaison.

Le volet « typologie » de ce programme porte sur la caractérisation des particules submicroniques dans des sites de typologie particulière. En 2008, il a été consacré à deux actions :

- Le LCSQA a participé à la première campagne du projet FORMES. Ce programme nous permet de collaborer avec la communauté française de recherche spécialisée dans le développement d'outils d'analyse en temps réel des caractéristiques physico-chimiques des particules submicroniques.
- Nous avons également réalisé une analyse complémentaire de la campagne de mesure menée à la station AIRFOBEP de « La Mède » : cette station, placée dans une zone résidentielle sous influence industrielle, se révèle soumise à des caractéristiques d'exposition extrêmement variables. Cette variabilité concerne aussi bien l'évolution temporelle des concentrations que l'origine géographique des particules. Le contraste est saisissant par rapport à la station de Gennevilliers qui est caractérisée par des profils de concentration relativement répétables d'une campagne de mesure à une autre. Des situations types ont été identifiées, dont certaines correspondaient à un niveau d'exposition extrême. Ces résultats posent la question de l'existence de situations à risque, ainsi que d'événements nocturnes. Ils nous appellent à poursuivre ce travail, en cherchant tout d'abord à étoffer la base de données.

Enfin, et il s'agit ici du fait le plus marquant de cette année, une analyse statistique des données recueillies depuis 2003 sur le site de fond de Gennevilliers a pu être réalisée à partir du travail préparatoire effectué en 2007. Rappelons que celui-ci a permis la constitution d'une base de données destinée à être enrichie au fil du temps. Des variables complémentaires ont été introduites en 2008, notamment issues des travaux récents d'AIRPARIF en matière d'inventaire d'émissions.

De cette analyse nous avons pu tirer pour le site de Gennevilliers un descriptif particulièrement intéressant des facteurs d'influence que sont le chauffage urbain, le trafic, et la météorologie (notamment la hauteur de couche limite).

Les perspectives qui s'ouvrent sont les suivantes :

Nous sommes désormais engagés dans une démarche de consolidation de ce qui pourrait devenir un véritable protocole commun QA/QC, basé d'une part sur les nouveaux travaux normatifs, et d'autre part sur les discussions techniques et les intercomparaisons du projet EUSAAR.

Le programme FORMES comprend une seconde campagne sur le site de Grenoble, en janvier 2009.

L'étude conduite à « La Mède » suggère la création d'un nouveau type d'intervention : dans le cas d'une problématique locale très spécifique, notamment dans des cas d'influences industrielles où l'on s'interroge sur l'origine et les circonstances de pics de concentration, il s'agirait de mettre en œuvre une action de mesurage sur plusieurs mois afin de faciliter le traitement de la question posée.

L'analyse statistique des données recueillies depuis 2003 à la station de Gennevilliers a permis de caractériser les concentrations numériques de particules submicroniques sur un site urbain de fond et d'en comprendre la variabilité temporelle. Il conviendra, à l'occasion de l'exercice 2009, d'établir un bilan des résultats obtenus par rapport aux travaux menés en parallèle et aux données bibliographiques.

REMERCIEMENTS

Le LCSQA remercie AIRPARIF (volet suivi dans le temps), AIRFOBEP (volet typologie / La Mède), ATMO PACA et ATMO Rhône-Alpes (volet typologie / FORMES) ainsi que les membres du programme FORMES.

1. INTRODUCTION

Depuis 2003, le LCSQA réalise des travaux prospectifs sur le thème des particules submicroniques.

Cette action répond à la demande de différents acteurs (OMS, programme CAFE, toxicologues, etc.), pour lesquels le suivi des PM10 et PM2,5 nécessite d'être complété par une démarche spécifique pour les particules inférieures au micron, et notamment celles inférieures à 0.1 µm (100 nm), les particules ultrafines.

L'approche proposée consiste à mener une étude sur la variabilité des concentrations :

- dans le temps (volet « suivi dans le temps ») : chapitre 2 et 3 ;
- dans l'espace (volet « typologie ») : chapitre 4 et 5 ;
- tout en réalisant une veille sur le sujet, notamment en ce qui concerne la métrologie : chapitre 6.

2. SUIVI DANS LE TEMPS

2.1 PRINCIPE : RAPPEL

Le principe de cette activité est de conduire de manière systématique, chaque année, une campagne de mesure sur le même site et à la même période. L'objectif est, sans avoir recours à une surveillance permanente, de disposer d'une information qui s'en approche et qui permette ainsi de déterminer la stabilité ou l'évolution des caractéristiques de l'aérosol au cours du temps et d'une année à l'autre. Le site étudié est celui de la station de surveillance urbaine de Gennevilliers (AIRPARIF).

Ce site a fait l'objet d'une validation spécifique [Le Bihan 2004]. Les résultats de cinq campagnes hivernales (2003, 2004, 2005, 2006, 2007) et d'une campagne estivale (2005) sont désormais disponibles.

Matériels de mesure

Les moyens mis en œuvre sont 2 appareils de la marque TSI :

- un granulomètre laser de type SMPS (cf. principe de fonctionnement en annexe) pour une gamme de diamètre de 10 à 500 nm, assurant la continuité et la cohérence des données depuis la campagne de l'hiver 2003 ;
- un granulomètre optique de type APS pour une gamme de taille de 500 à 20 000 nm, assurant la continuité et la cohérence des données depuis la campagne de l'hiver 2004.

Analyse statistique

Depuis 2003, la réalisation de campagnes de mesure a permis de constituer et d'enrichir une base de données expérimentale, comme il est décrit ci-dessus.

Par une exploitation statistique de cette base, notre objectif est de déterminer les facteurs qui agissent de façon prépondérante sur les concentrations de particules ultrafines.

En 2007, une première analyse exploratoire a fait ressortir le trafic automobile, la vitesse de vent et la hauteur de couche limite atmosphérique comme de possibles sources et facteurs d'influence. En été, la photochimie semble également jouer un rôle notable. Ces résultats sont cohérents mais les informations alors disponibles étaient insuffisantes pour conclure fermement.

Nous cherchons cette année à confirmer ou infirmer ces hypothèses, grâce aux données d'émission et de météorologie plus récemment acquises.

La synthèse réalisée au sein de ce chapitre (à partir de la partie 2.3) présente et illustre les résultats les plus significatifs de ce travail. Elle porte principalement sur le site urbain de Gennevilliers (Ile-de-France), le seul des sites d'étude à avoir bénéficié d'un suivi sur plusieurs années. Les données de l'année 2008 ne sont pas prises en compte (c.f.2.2). Les données de la campagne automnale de Douai (2004) servent à étayer certaines conclusions.

2.2 DIFFICULTES RENCONTREES LORS DE L'EXERCICE 2008

2.2.1 IDENTIFICATION DE CARACTERISTIQUES INHABITUELLES

La granulométrie moyenne obtenue pour la campagne 2008 est très proche des résultats observés depuis 2003, et tout particulièrement lors de la campagne de 2004, avec toutefois à une exception notable : on observe une remontée très forte des valeurs au dessous de 20 nm.

Nous avons alors considéré deux hypothèses, l'une portant sur de nouvelles caractéristiques de l'aérosol, l'autre sur un problème instrumental.

En ce qui concerne la première hypothèse, AIRPARIF a mené une réflexion spécifique, et n'a pas noté de changement particulier des caractéristiques influençant le site de Gennevilliers (immeubles environnants, événements dans le quartier) ni des caractéristiques de la station elle-même (conception de la station, polluants mesurés sur le site).

La seconde hypothèse est traitée dans les paragraphes suivants.

2.2.2 SCHEMA DE CONTROLE

Notre schéma de contrôle est le suivant :

- le débit de prélèvement est contrôlé, avant, pendant et après chaque campagne ;
- un passage sur banc permet de vérifier la mesure en taille avec des particules NIST de latex, à 80 et 200 nm ;
- enfin, des comparaisons sont faites avec d'autres appareils (compteurs de particules, granulomètres de type SMPS ou ELPI), pour vérifier le suivi temporel de la concentration en nombre, et la distribution en taille. Cette dernière partie joue un rôle clé car elle complète les vérifications spécifiques à un paramètre (cf. ci-dessus) par une comparaison englobant la totalité du système.

Ce schéma, appliqué en amont et en aval de la campagne de Gennevilliers 2008, a été concluant. Nous avons alors cherché à réaliser des tests spécifiques au problème détecté.

2.2.3 TESTS APPROFONDIS

En ce qui concerne la seconde hypothèse, nous avons repris avec attention les résultats des contrôles que nous effectuons au cours de l'année, notamment avant et après chaque campagne. Puis nous avons effectué des tests complémentaires au cours de l'automne : démontage approfondi, passage sur des sources maîtrisées (particules de sel, de latex), comparaison avec un autre granulomètre, mesurage en continu en air intérieur, etc.

Le démontage approfondi a mis en évidence une insuffisance dans la procédure de nettoyage d'une partie de l'appareil.

Cependant, ce point réglé, nous avons continué à observer un comportement anormal dans la partie inférieure à 20 nm du spectre :

- Le passage sur banc de génération a montré un manque de répétabilité dans cette gamme, notamment en début d'essai, et ce malgré des temps de purge importants ;
- Le mesurage en continu en air intérieur a montré un comportement anormal dans la gamme inférieure à 20 nm, et ce de manière aléatoire (par exemple de manière isolée, en pleine nuit, en l'absence de source).

Le constructeur, à ce jour, n'a pu apporter de réponse à ce problème avéré.

2.2.4 PERSPECTIVES

Une révision approfondie est planifiée tout au long du mois de janvier 2009, dans un laboratoire spécialisé (société ITS, Rennes). Un travail spécifique sera mené sur le système de gestion du champ électrique.

Cette révision se conclura par une comparaison avec un appareil analogue en tous points, chez le laboratoire spécialisé, et sur des durées analogues à celles pour lesquelles le problème à caractère aléatoire a été observé.

En l'attente d'éléments de compréhension du problème rencontré, nous avons opté pour une invalidation des données recueillies en 2008, ce qui inclut également les données SMPS de la campagne de FORMES.

2.2.5 CONCLUSION

La granulométrie obtenue lors de la campagne de Gennevilliers 2008 présente une remontée suspecte dans la gamme inférieure à 20 nm.

L'explication la plus probable est celle d'un problème instrumental, et ce malgré la mise en œuvre régulière de procédures de contrôle.

Un travail approfondi est mené sur ce sujet depuis l'automne, en collaboration avec divers spécialistes dont le constructeur.

Jusqu'à nouvel ordre, les données 2008 (Gennevilliers et FORMES) sont **invalidées**.

2.3 DESCRIPTION DE LA BASE DE DONNEES

2.3.1 CAMPAGNES DE MESURE ETUDIEES

La base de données a été découpée en sept sous-bases, chacune constituée des données d'une campagne (Tableau 1). Selon l'objectif (comparaison entre campagnes ou recherche de caractéristiques moyennes), ces sous-bases sont traitées séparément ou fusionnées en totalité ou en partie.

Tableau 1 – Liste des campagnes de mesure réalisées depuis 2003

Base	Date de début (HL : heure locale)	Date de fin
Gennevilliers* 2003 Hiver	21/02/2003 16h00 HL	04/04/2003 10h00 HL
Gennevilliers* 2004 Hiver	02/03/2004 15h00 HL	05/04/2004 11h00 HL
Gennevilliers* 2005 Hiver	11/03/2005 11h00 HL	25/04/2005 13h00 HL
Gennevilliers* 2005 Eté	18/07/2005 10h00 HL	10/08/2005 11h00 HL
Gennevilliers* 2006 Hiver	10/02/2006 13h00 HL	17/03/2006 09h00 HL
Gennevilliers* 2007 Hiver	07/02/2007 14h00 HL	19/03/2007 00h00 HL
Gennevilliers*♦ 2008 Hiver	22/02/2008 17h00 HL	19/03/2008 12h00 HL
Douai** 2004 Automne	04/11/2004 18h00 HL	06/12/2004 12h00 HL
La Mède***♦ Eté	22/06/2006 14h00 HL	08/08/2006 09h00 HL

* site urbain

** site ouvert sous influence du trafic

*** site sous influence industrielle

♦ campagne exclue de cette analyse

2.3.2 COMPOSITION DE LA BASE

La base de données se compose de quatre catégories de variables recensées dans le tableau suivant (Tableau 2). Ces variables sont directement issues de mesures ou résultent de calculs de modélisation.

Tableau 2 – Types de variables inclus dans la base de données

Nature des variables	Description	Source des données : mesure directe ou calcul
Concentration	Concentrations numériques : comptage par canal granulométrique [p/cm^3]	Mesure
	Concentrations massiques de particules PM ₁₀ et PM _{2.5} (TEOM, FDMS) [$\mu g/m^3$]	Mesure
	Concentrations massiques d'autres polluants [$\mu g/m^3$]	Mesure
Météorologie	Diverses variables observées (origine des données pour Gennevilliers : station Météo-France du Bourget, et dans quelques cas, de Roissy)	Mesure

Nature des variables	Description	Source des données : mesure directe ou calcul
	Hauteur de couche limite atmosphérique extraite de MM5 (valeur interpolée)	Calcul
Concentration reconstituée par mode	La concentration numérique totale est supposée être la somme de trois modes indépendants pour chacun desquels la concentration en nombre a été reconstituée selon un algorithme génétique (Le Bihan O., 2005) Paramètres associés à chaque mode reconstitué (diamètre central moyen, écart-type)	Calcul
Emissions	Pour le site de Gennevilliers : Emissions du trafic (données d'AIRPARIF) dans un rayon de 500 m autour du site. Modulation théorique des émissions du chauffage (données d'AIRPARIF)	Calcul

Une liste ordonnée de ces variables a été définie. Elle est présentée dans le tableau en annexe 1. Pour chaque campagne, les colonnes de la base reprennent exactement cette liste, que des données soient ou non disponibles. **Ce format de base sera conservé pour le traitement de toute campagne future.**

2.3.3 REMARQUES SUR LES VARIABLES

2.3.3.1 VARIABLES DE COMPTAGE

Les appareils SMPS et APS fournissent des concentrations en nombre de particules pour 159 fractions granulométriques (cf. annexe 1). Celles-ci ont été regroupées en trois grandes classes granulométriques :

- **N1** est le nombre de particules de diamètre **compris entre 10 et 100 nm**
- **N2** est le nombre de particules de diamètre compris **entre 100 et 500 nm**
- **N3** est le nombre de particules de diamètre compris **entre 500 et 20000 nm**.

N, somme de **N1** et **N2**, constitue notre principale variable de travail.

Nt désigne la somme de N1, N2 et N3.

2.3.3.2 HAUTEUR DE COUCHE LIMITE

La couche limite atmosphérique est la basse couche de l'atmosphère influencée par la surface terrestre et dans laquelle le vent est soumis à de fortes fluctuations.

Son épaisseur et sa structure varient au cours de la journée et dépendent des conditions atmosphériques. Haute de 1 à 2 km en situation instable, elle ne dépasse pas quelques dizaines de mètres en situation stable.

La hauteur de la couche limite atmosphérique est un paramètre particulièrement difficile à évaluer. Nous utilisons ici les estimations du modèle météorologique MM5 obtenues dans le cadre de PREV'Air¹.

2.3.3.3 VARIABLES D'EMISSION

Un cercle de 500 m de rayon autour de la station a été considéré. Les données fournies par AIRPARIF sont les **émissions horaires du trafic** - estimées par AIRPARIF à partir des comptages automobiles horaires - sur les 22 brins routiers qui coupent ce cercle.

Pour chaque polluant ou groupe de polluants (CO, NOx, particules, CO₂, SO₂, CH₄, COV non méthaniques, benzène) la donnée d'émission introduite dans la base est la somme des émissions sur les 22 brins.

S'agissant du chauffage urbain, AIRPARIF ne dispose pas, comme pour le trafic, de données chronologiques horaires des émissions mais d'une donnée moyenne, qu'AIRPARIF module selon un profil temporel théorique. Deux profils ont été respectivement définis par AIRPARIF pour le secteur résidentiel et le secteur tertiaire. Ils tiennent également compte d'autres émissions liées à ces secteurs, ce qui explique qu'ils ne soient pas nuls en été. L'expression *émissions du chauffage* sera néanmoins conservée dans la suite du rapport.

2.4 RESULTATS

NB : pour une lecture plus aisée, nous nous limitons à présenter les principaux résultats obtenus, sans détailler l'analyse exploratoire.

Les calculs sont effectués campagne par campagne et toutes années confondues. Dans ce dernier cas, par souci d'homogénéité (même typologie de site, niveaux de concentration comparables, mêmes variables météorologiques disponibles), seules les campagnes hivernales conduites à Gennevilliers en 2003, 2004, 2005, 2006 et 2007 sont prises en compte.

Le site de Douai est pris en compte à titre de comparaison.

¹ Ces estimations remplacent les calculs effectués l'an dernier avec le préprocesseur météorologique d'ADMS4 : par construction, la hauteur de couche limite calculée à partir des données de Météo-France se trouvait linéairement corrélée à la vitesse de vent et n'apportait pas d'information supplémentaire par rapport à cette dernière variable.

2.4.1 CARACTERISTIQUES GENERALES DES DONNEES DE CONCENTRATION

2.4.1.1 VUE D'ENSEMBLE DES CAMPAGNES

Les graphiques suivants (Figure 1) représentent la moyenne arithmétique, la médiane, le 5^e et le 95^e centile de la variable N pour les différentes campagnes étudiées. On notera le contraste été/hiver à Gennevilliers et les différences de concentration entre le site urbain de Gennevilliers et le site trafic de Douai.

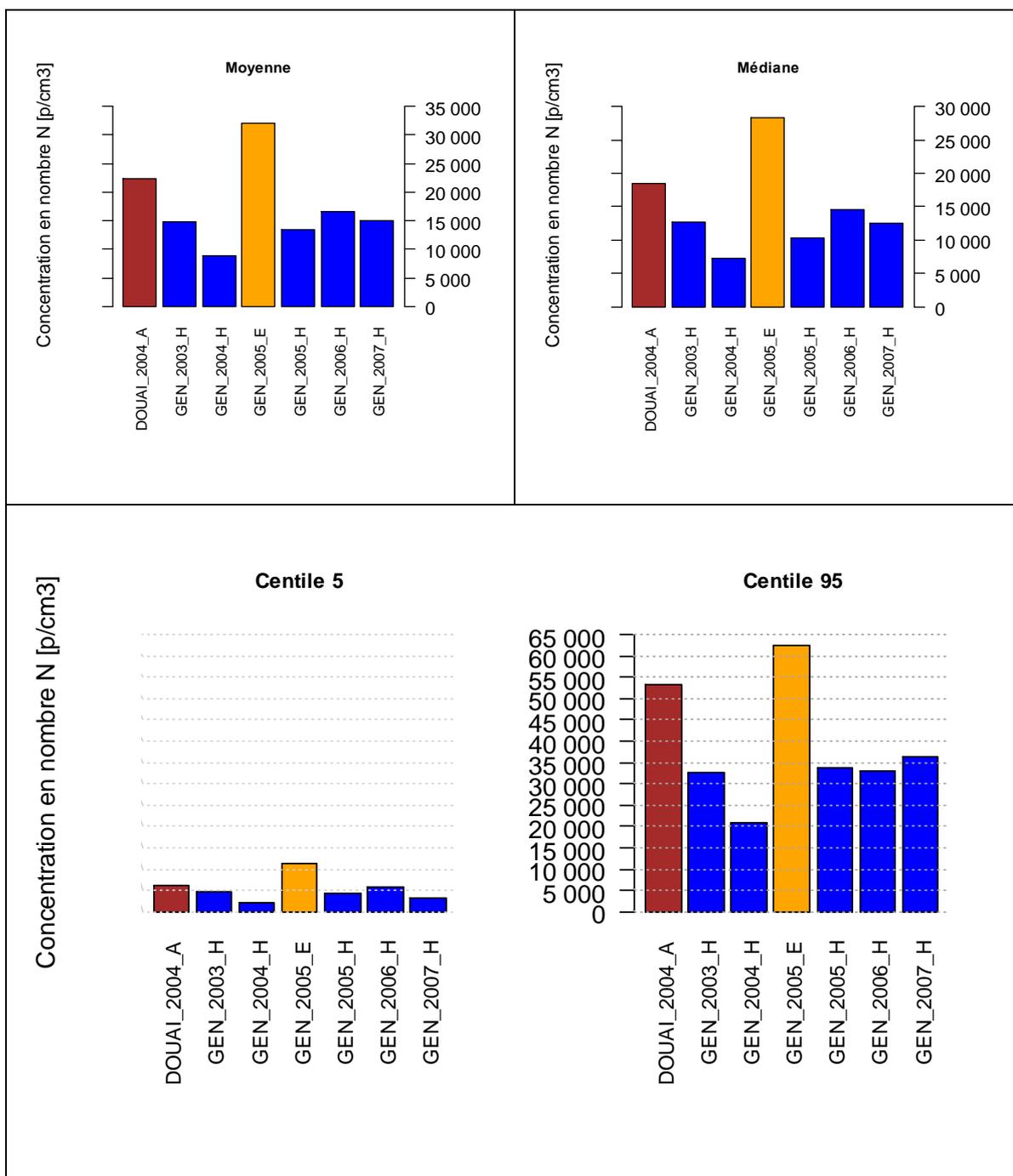


Figure 1- Statistiques élémentaires de la concentration N (10-500 nm) mesurée durant les campagnes d'hiver (H) et d'été (E) de Gennevilliers et de la campagne d'automne (A) de Douai.

2.4.1.2 GRANULOMETRIE

Quels que soient le lieu (Gennevilliers ou Douai), l'année (2003 à 2007) et la saison (hiver ou été 2005), **les particules de la classe 10 - 100 nm (N1) sont les plus nombreuses**. En moyenne par campagne, **elles représentent 80% à 86% du nombre total de particules**.

La proportion représentée en moyenne par les particules de la classe 100 - 500 nm (N2) est comprise entre 15% et 19% selon les campagnes; elle est inférieure à 1% pour les particules de la classe 500 nm - 20 µm.

Ces valeurs s'accordent avec les pourcentages recensés dans la littérature par Morawska et al. (2008).

2.4.2 INFLUENCE DES EMISSIONS ET DE LA METEOROLOGIE : ETUDE DES VARIATIONS TEMPORELLES

Cette partie repose sur l'analyse de deux types de graphes : les séries temporelles et les profils journaliers moyens et médians.

2.4.2.1 INFLUENCE DU TRAFIC AUTOMOBILE ET DU CHAUFFAGE URBAIN

Trafic

Les séries chronologiques (Figure 2) et les profils journaliers moyens et médians (**Erreur ! Source du renvoi introuvable.** et annexe 1) montrent une **excellente concordance temporelle entre le premier pic matinal des émissions du trafic (8-9h)**, notamment des émissions de particules et de NOx, **et le premier pic matinal des concentrations numériques de particules (N)**.

L'après-midi, N chute plus brutalement que les émissions qui, en moyenne se maintiennent à un niveau assez proche de leur maximum. Sur les profils médians, la diminution des émissions après le pic matinal est plus marquée. Toutefois, elle ne se prolonge pas au-delà de 10-11 h et ne permet pas d'expliquer la baisse des concentrations entre 11h et 15h. Cette décroissance de la moyenne et de la médiane de N peut s'expliquer par la hauteur de mélange vertical qui, avec le réchauffement de l'atmosphère, augmente sensiblement ; ainsi la dispersion des polluants s'intensifie.

De 15h à 21h environ, N croît à nouveau notablement alors que les émissions du trafic stagnent, n'augmentant que légèrement entre 16h et 18h pour s'atténuer ensuite.

A partir de 21h, N recommence à diminuer. **Le minimum de N à la fin de la nuit (4h du matin) coïncide exactement avec le minimum des émissions**.

Ces remarques valent pour chaque campagne hivernale ou estivale ainsi qu'en moyenne sur les années. Notons que les jours de week-end, c'est-à-dire les jours de moindres émissions, le minimum diurne de N est inférieur à son minimum nocturne (cf. figure en annexe 1). On peut l'attribuer au fait que l'après-midi, la

diminution de N liée à l'augmentation de la hauteur de mélange vertical est moins atténuée par les émissions du trafic que pendant les jours ouvrés (en moyenne, ces émissions sont plus faibles d'environ 25%).

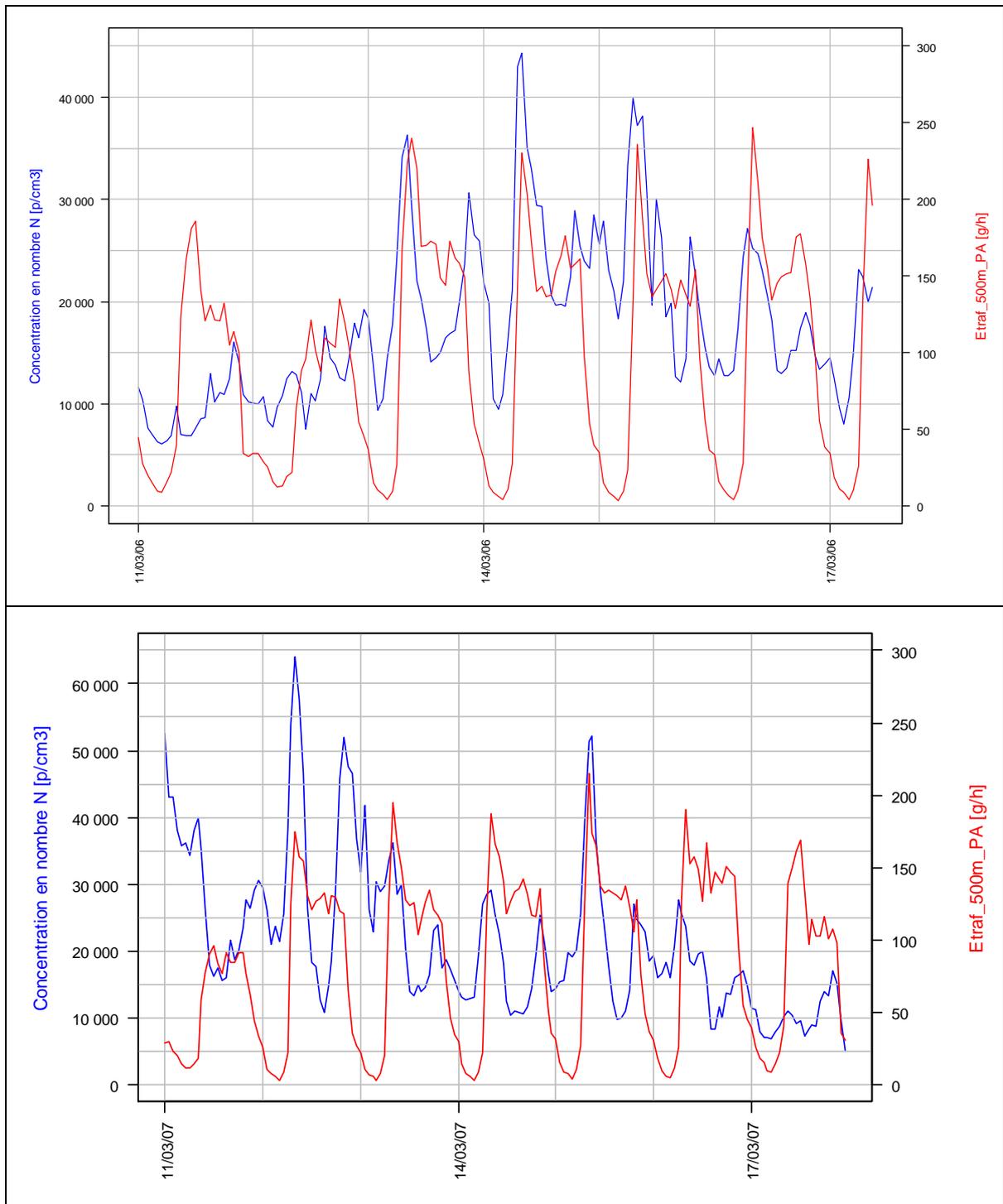


Figure 2 – Série temporelle de la concentration N [p/cm^3] (en bleu) et des émissions de particules du trafic [g/h] (en rouge) du samedi 11 au vendredi 17 mars 2006 et du dimanche 11 au samedi 17 mars 2007.

Chauffage urbain (et autres contributions du secteur résidentiel/tertiaire)

La variable de chauffage s'exprime comme un facteur multiplicatif. Elle représente la fluctuation estimée des émissions du chauffage autour de leur moyenne annuelle. Elle dépend du secteur - résidentiel ou tertiaire - du mois de l'année et de l'heure du jour. Elle est moins précise que la variable de trafic dont l'estimation repose sur des données horaires de comptage.

Le profil moyen journalier qui lui correspond est donc un **profil théorique**.

On observe un certain accord entre l'augmentation matinale de N et la remontée des émissions du chauffage (Figure 7). Mais la concordance n'est pas aussi bonne qu'avec les émissions du trafic : les émissions du chauffage commencent à augmenter environ une heure avant la concentration N et atteignent leur maximum environ deux heures avant celle-ci.

2.4.2.2 INFLUENCE DE LA METEOROLOGIE

Caractéristiques des variables météorologiques

En ce qui concerne la météorologie, on distingue **deux échelles de temps** :

- Les séries temporelles montrent des **variations sur plusieurs jours**, avec une assez bonne corrélation, plus ou moins marquée selon les campagnes, entre la hauteur de couche limite atmosphérique (désignée par HCLA) et la vitesse de vent (désignée par VV) (Figure 4). Elles mettent en évidence des épisodes anticycloniques stables, caractérisés par des vents faibles et une couche limite atmosphérique peu élevée, et des épisodes de plus grande turbulence, caractérisés par une intensité de vent et une hauteur de couche limite supérieures.
- Les profils journaliers montrent des **variations intra journalières**. La température et la hauteur de couche limite atteignent leur maximum entre 15 h et 16 h (heure locale) (Figure 8, **Erreur ! Source du renvoi introuvable.** et annexe 1). Si entre les campagnes de mesure, on peut noter quelques différences, en moyenne sur ces dernières, la vitesse de vent présente elle aussi un profil journalier bien dessiné, dont le maximum se situe autour de 15h. L'augmentation simultanée de ces trois variables météorologiques peut s'expliquer par l'accroissement de la turbulence thermique due au rayonnement solaire et aux effets de la canopée urbaine et par le développement de cellules convectives.

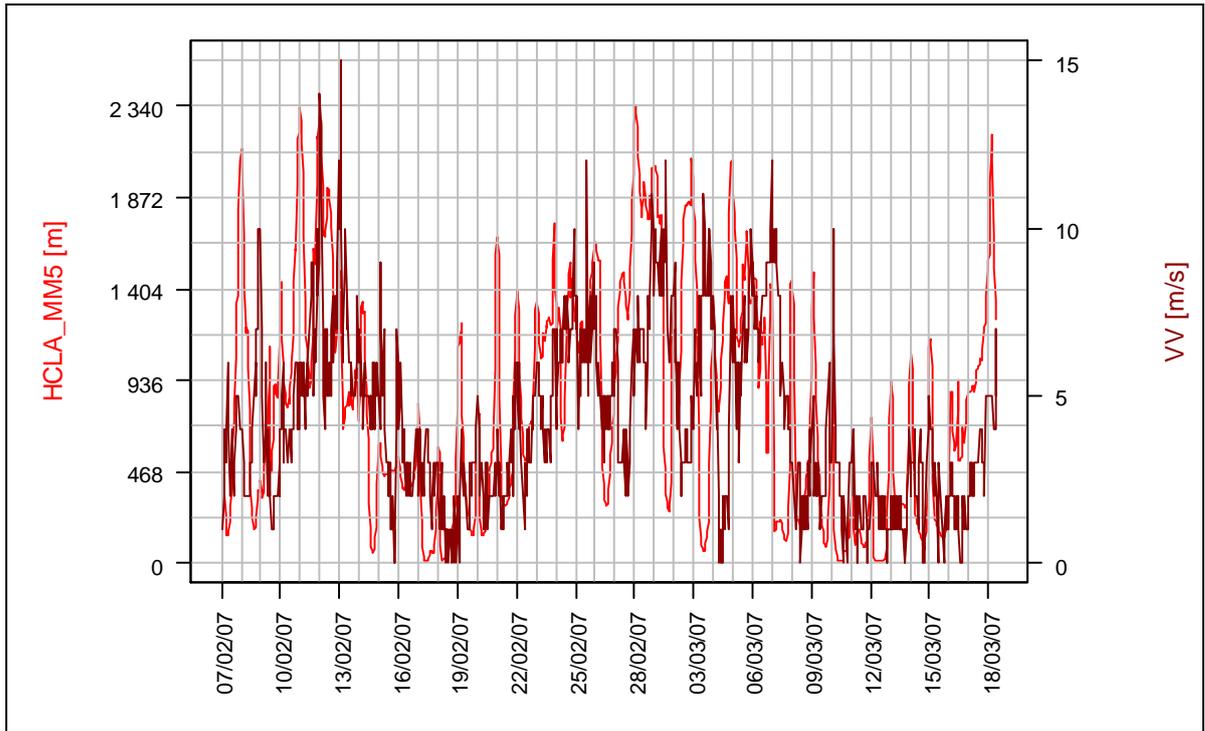


Figure 3 – Série temporelle de la hauteur de couche limite atmosphérique calculée par le modèle MM5 (rouge clair) et de la vitesse de vent mesurée (rouge sombre) pendant la campagne hivernale de 2007.

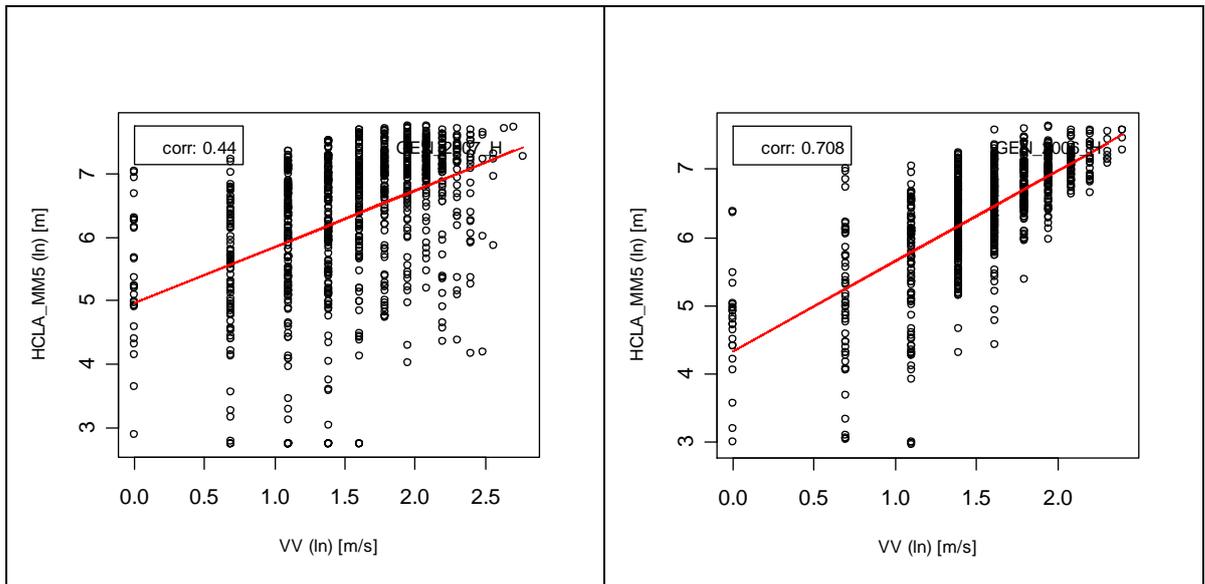


Figure 4 – Nuage de corrélation correspondant aux séries temporelles précédentes (après transformation logarithmique des variables) ; droite : même nuage pour la campagne de l'hiver précédent (2006).

Relations entre les concentrations et la météorologie

A l'échelle de plusieurs jours, les séries temporelles montrent une opposition de phase entre N et la hauteur de couche (ou entre N et la vitesse de vent) (Figure 5).

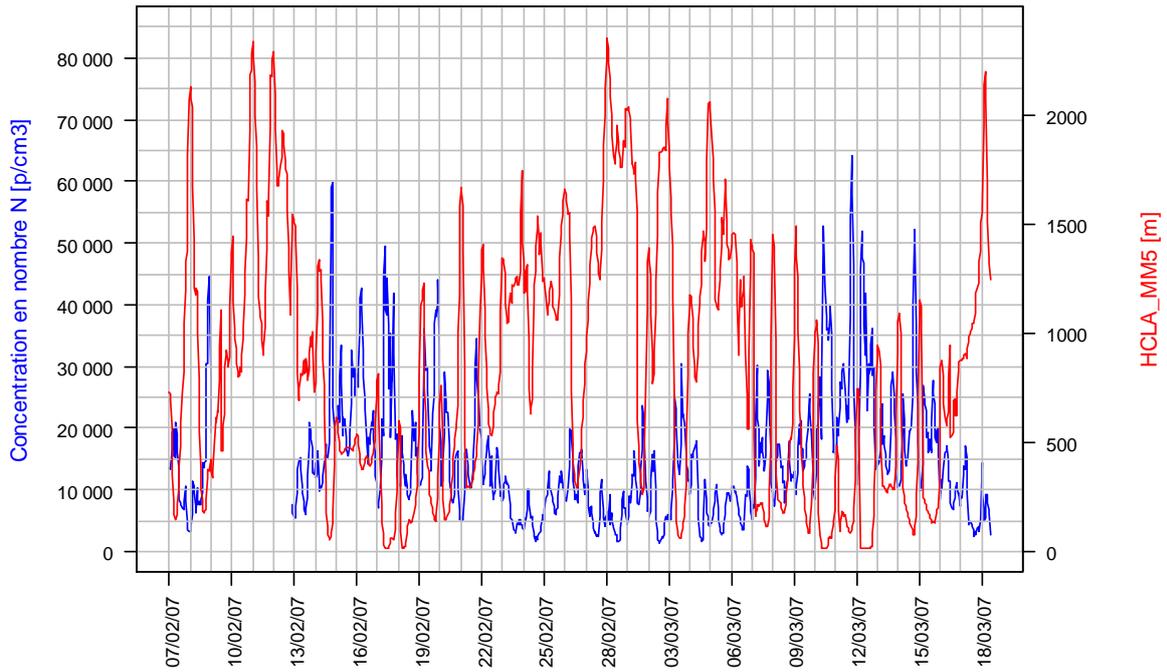


Figure 5 – Série temporelle de la concentration N [pg/m^3] (en bleu) et de la hauteur de couche limite atmosphérique calculée par le modèle MM5 [m] (en rouge) pendant la campagne hivernale de 2007.

Notons que les épisodes de pollution se produisent de manière concordante pour les différentes variables de concentration, ce qui est signe d'influences communes (Figure 6). Ce point est précisé en 2.4.2.4.

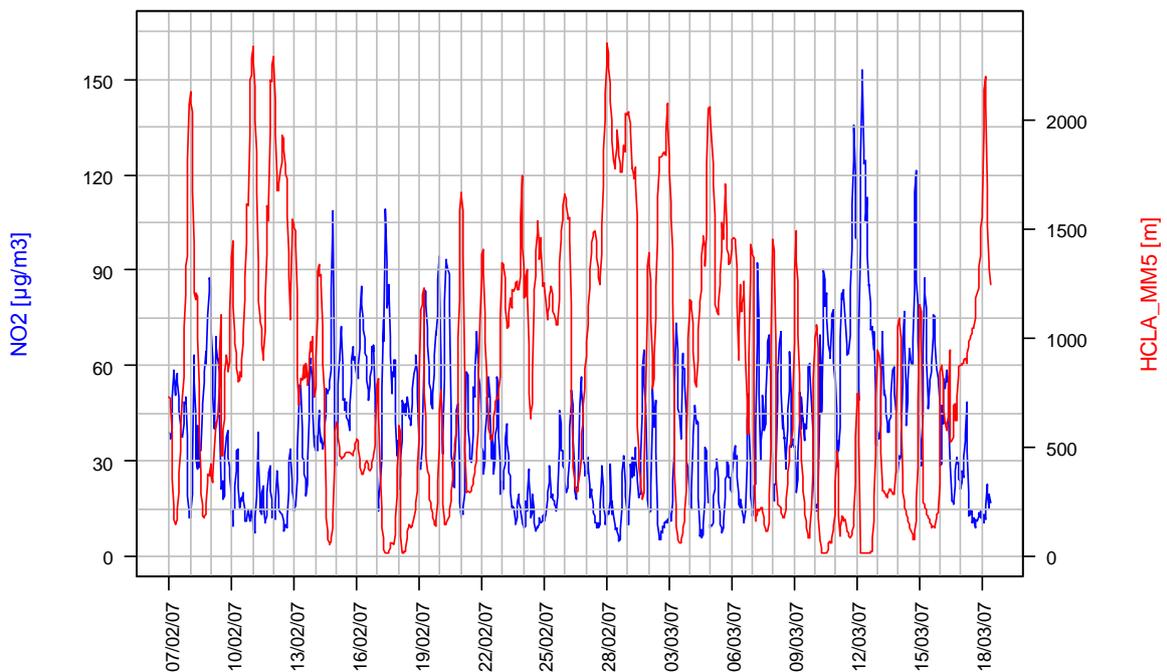


Figure 6 – Série temporelle de la concentration de NO_2 [$\mu\text{g}/\text{m}^3$] (en bleu) et de la hauteur de couche limite atmosphérique calculée par le modèle MM5 [m] (en rouge) pendant la campagne hivernale de 2007.

A l'échelle de la journée, en moyenne sur les campagnes hivernales, le minimum de N observé l'après-midi coïncide exactement avec le maximum de la température, de l'épaisseur de la couche limite atmosphérique et de la vitesse de vent (Figure 8). Il en va de même en été (Figure 10), ce qui est logique : les concentrations sont les plus faibles lorsque les conditions météorologiques sont les plus dispersives.

2.4.2.3 COMPARAISON ENTRE LES SAISONS

Il est important de noter qu'en moyenne par heure du jour, les concentrations en nombre estivales sont supérieures aux concentrations hivernales d'un facteur 2,2 environ alors que (Figure 1 ; **Erreur ! Source du renvoi introuvable.** à Figure 13) :

- les émissions diurnes du trafic sont 1 à 1,5 fois inférieures selon les polluants (pour des émissions nocturnes approximativement identiques) ;
- les émissions estimées du chauffage sont 2 à 3 fois inférieures ;
- la couche limite atmosphérique se développe rapidement l'après-midi pour devenir environ 1,3 fois plus épaisse qu'en hiver.

Seul le vent, plus faible l'été, constitue une condition pénalisante.

En revanche, les concentrations massiques de PM₁₀ (fraction non volatile) sont comparables entre les deux saisons ; celles de PM_{2.5} (fraction non volatile) sont inférieures en été (Figure 11).

Ces constats laissent supposer que d'autres facteurs que les émissions du trafic et les conditions de dispersion participent à la pollution due aux particules submicroniques. Ces autres facteurs agissent principalement sur les particules les plus fines, dont la contribution en masse est mineure, et jouent un rôle plus particulièrement actif en été. Ils relèvent vraisemblablement de la **chimie/photochimie** comme l'étude de la granulométrie tend à le confirmer (§0).

Les profils journaliers et les séries temporelles montrent que les concentrations en nombre de particules évoluent de manière cohérente avec :

- les variations des émissions du trafic,
- dans une moindre mesure (mais on ne dispose que de données théoriques) les fluctuations des émissions du chauffage,
- les variations des conditions météorologiques.

Les concentrations en nombre plus élevées en été qu'en hiver révèlent l'importance du rôle joué par la photochimie en été.

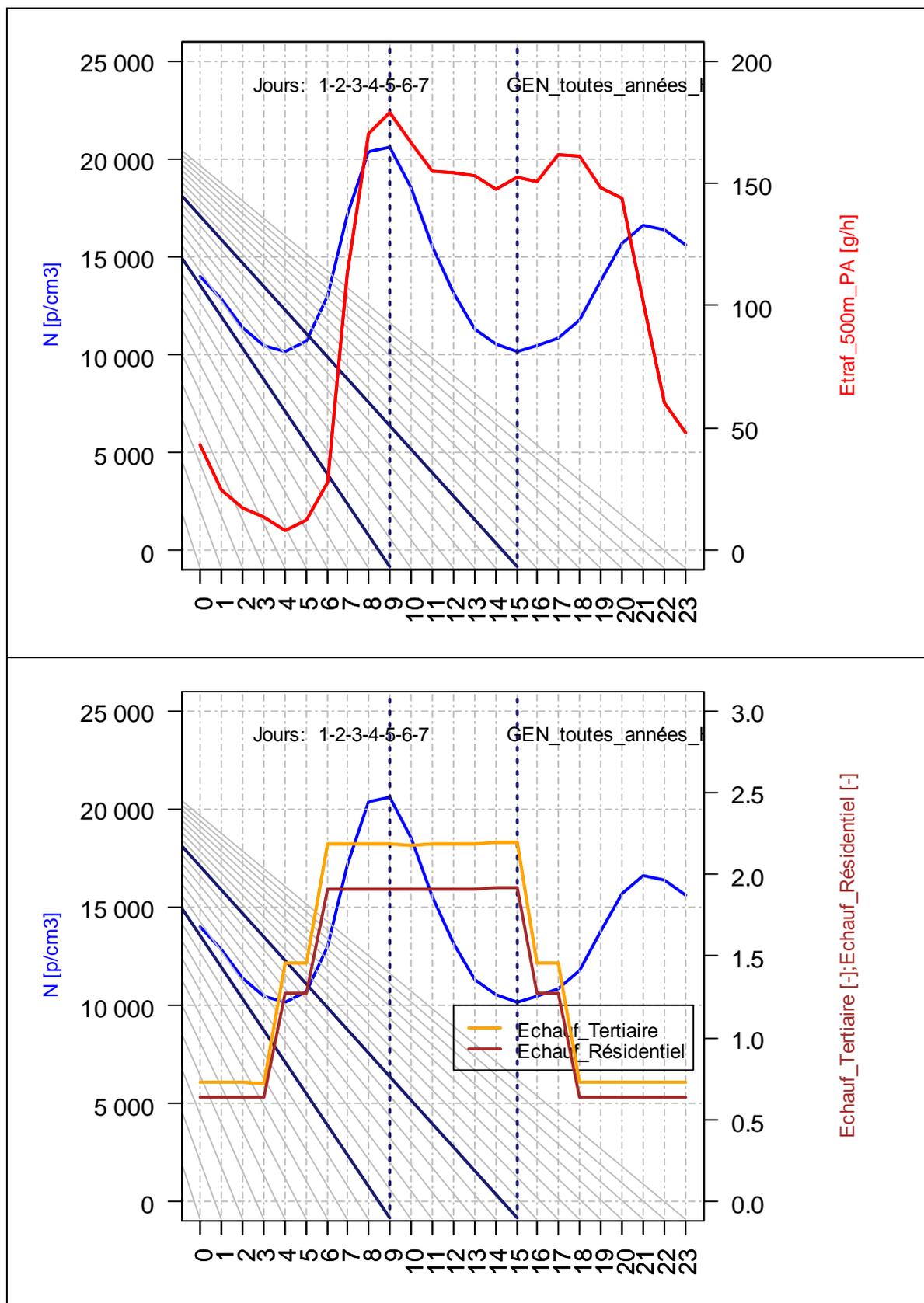


Figure 7 - Représentation du cycle journalier de N (en bleu) et de variables d'émissions ; en haut : émissions de particules du trafic ; en bas : émissions du chauffage. Tous les jours de semaine. Moyenne sur les campagnes hivernales (2003 à 2007).

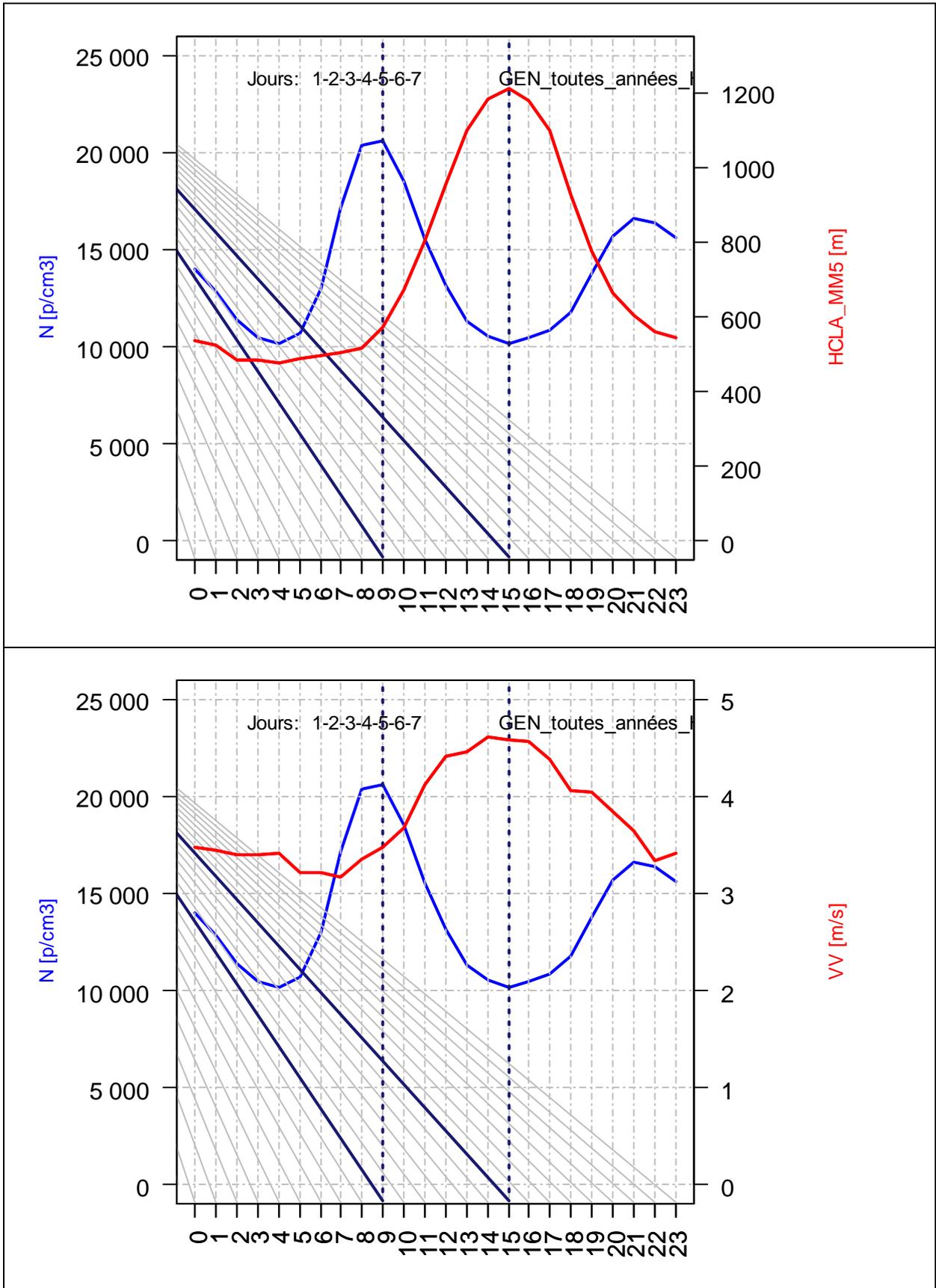


Figure 8 - Représentation du cycle journalier de N (en bleu) et de différentes variables météorologiques (en haut : hauteur de couche limite, en bas : vitesse de vent). Moyenne sur les campagnes hivernales (2003 à 2007)

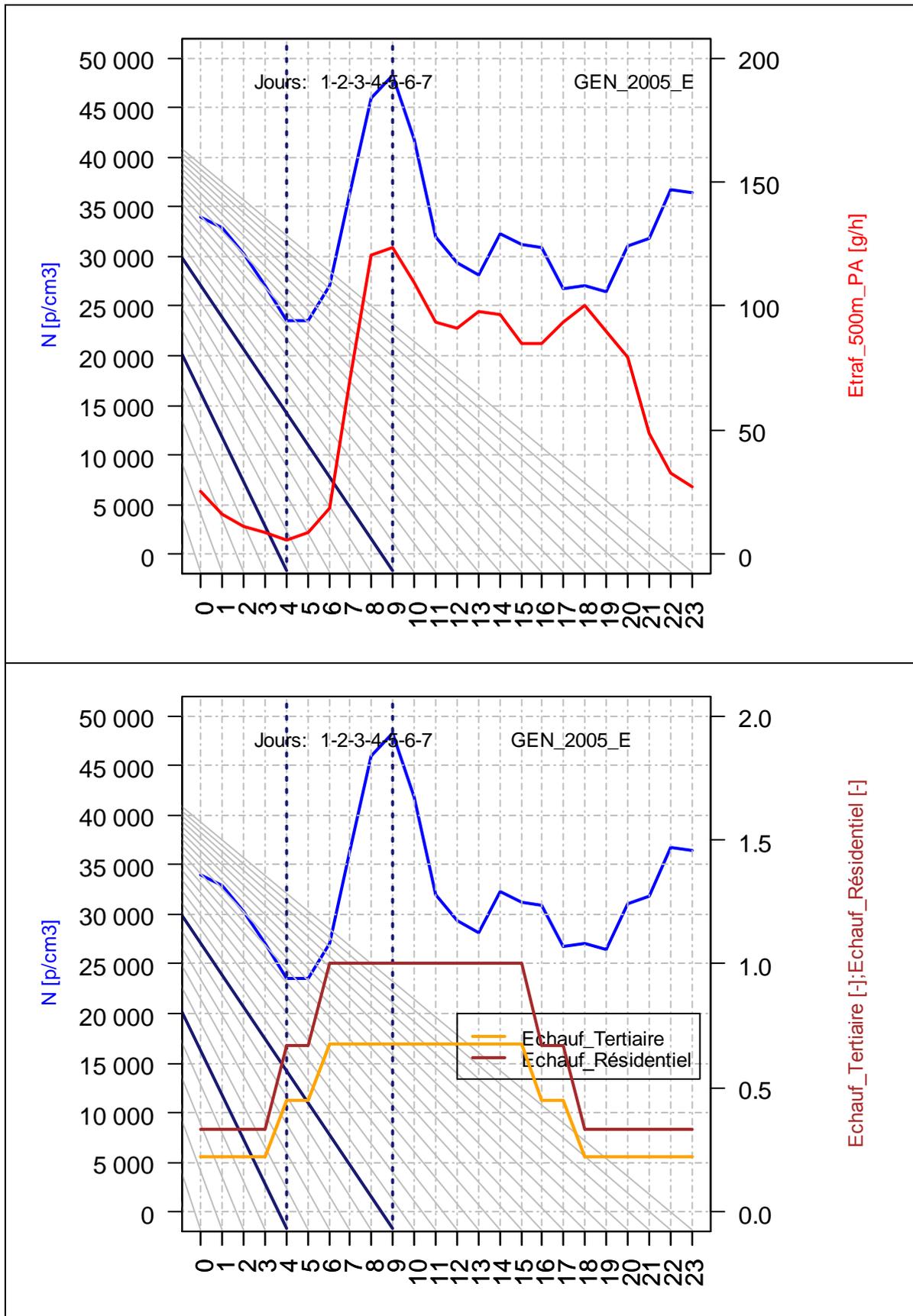


Figure 9 - Représentation du cycle journalier de N (en bleu) et de variables d'émissions (en haut : trafic/particules, en bas : chauffage). Tous les jours de semaine. Moyenne sur la campagne estivale de 2005.

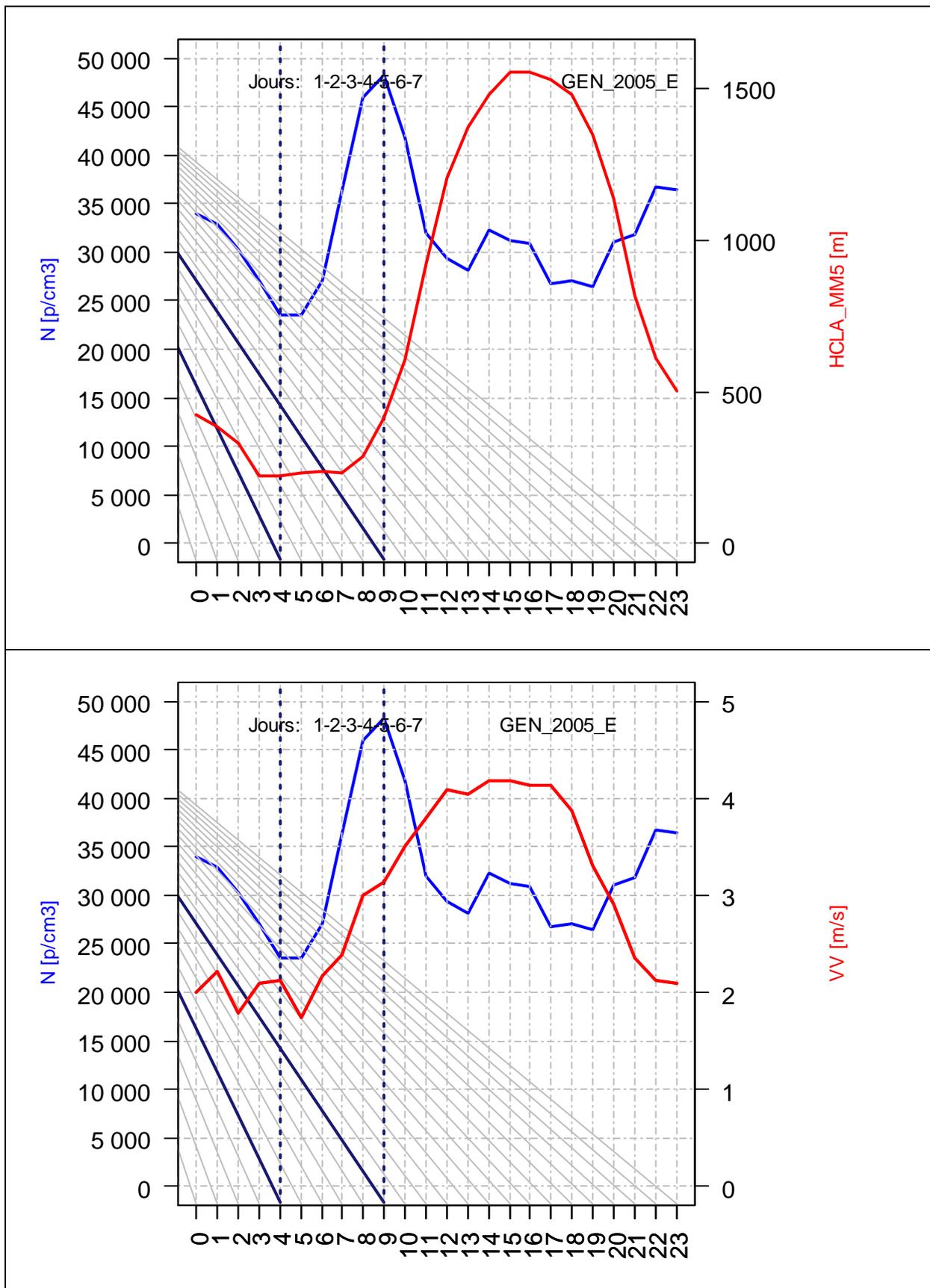


Figure 10 - Représentation du cycle journalier de N (en bleu) et de variables météorologiques (en haut : hauteur de couche limite, en bas : vitesse de vent). Moyenne sur la campagne estivale de 2005.

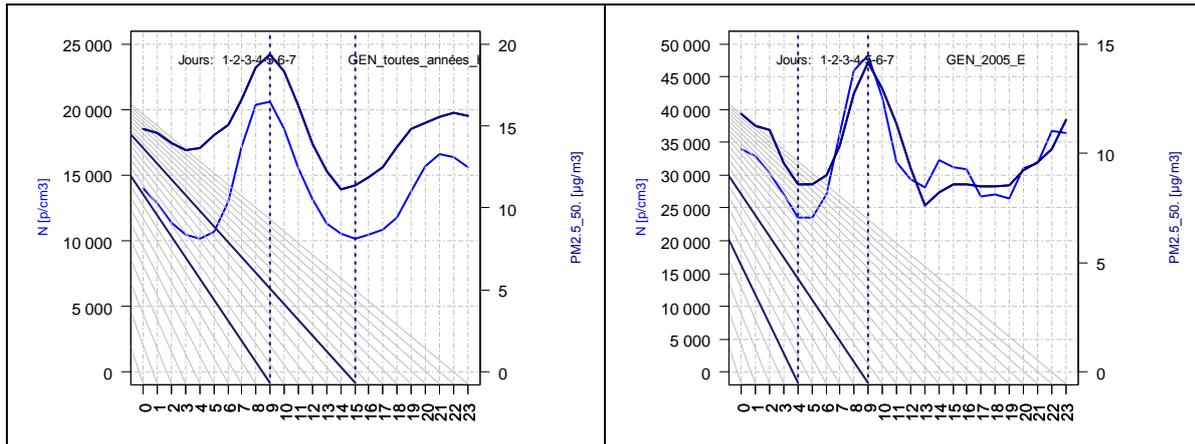


Figure 11 - Représentation du cycle journalier de N (en bleu) et des PM_{2.5}. A gauche : moyenne sur les campagnes hivernales ; à droite : moyenne sur la campagne estivale de 2005.

2.4.2.4 COMPARAISON AVEC D'AUTRES POLLUANTS

Les profils de la concentration numérique N et du NO₂ sont similaires du fait de sources (trafic, chauffage) et de processus de dispersion (météorologie) communs. En été cependant, les concentrations de particules ultrafines remontent en début d'après-midi tandis que celles de NO₂ se stabilisent et que celles d'ozone augmentent rapidement : ce pic secondaire, visible aussi sur les profils médians, pourrait être l'effet de processus chimiques plus actifs l'après-midi (cf. §0). Ces observations ne reposent toutefois que sur un mois de campagne ; il serait intéressant de les vérifier par une nouvelle campagne de mesure estivale.

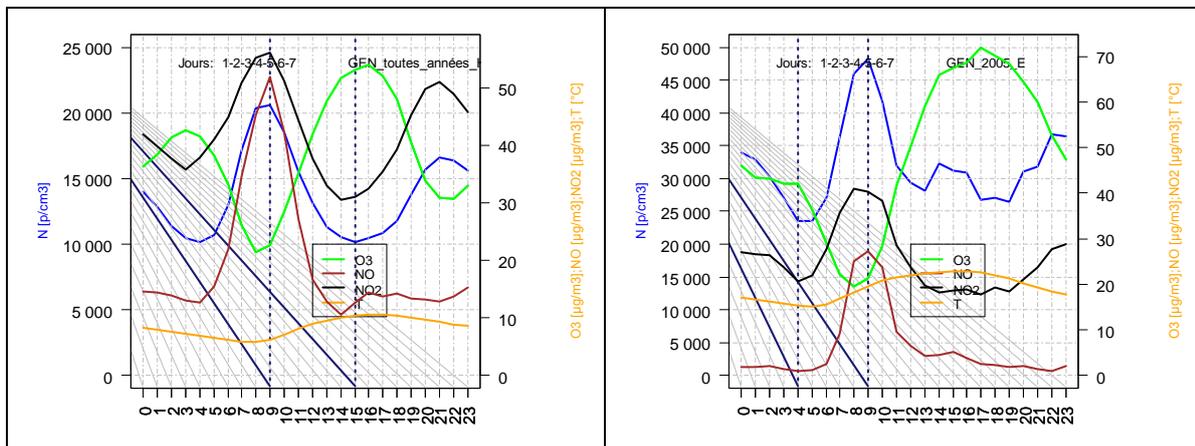


Figure 12 - Représentation du cycle journalier de N (en bleu) et de différentes variables de pollution (NO, NO₂, O₃). Le profil journalier de la température (T) est également représenté. A gauche : moyenne sur les campagnes hivernales ; à droite : moyenne sur la campagne estivale de 2005.

2.4.2.5 COMPARAISON AVEC UN AUTRE SITE

A Douai, le profil journalier suggère l'impact plus direct du trafic. En effet, si le minimum des concentrations coïncide avec le moment où les conditions atmosphériques sont les plus propices à la dispersion, le pic de l'après-midi se produit plus tôt qu'à Gennevilliers. Une diminution plus rapide de la hauteur de couche limite et un second pic d'émissions plus marqué (données d'émissions indisponibles) pourraient en être la cause.

Ce résultat est cohérent avec la typologie du site (sous influence du trafic).

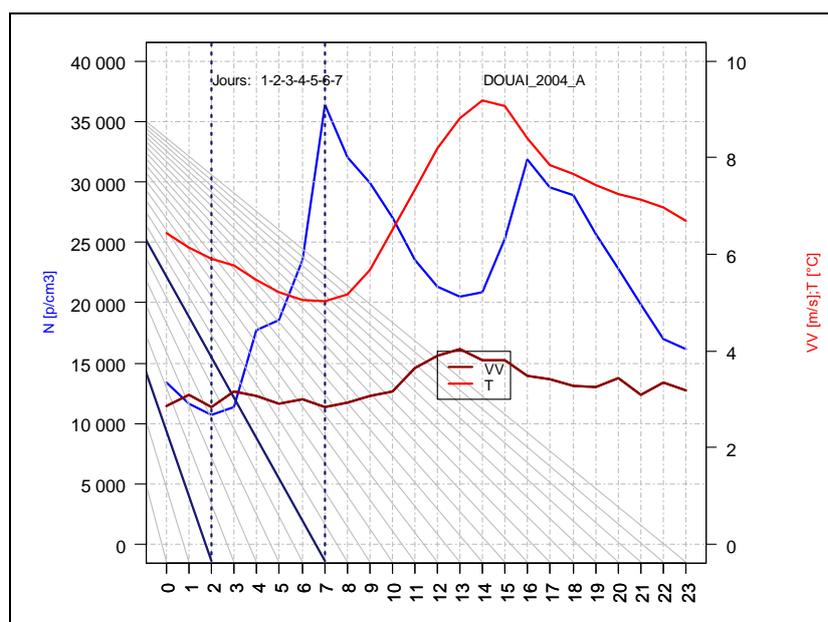


Figure 13 – Représentation cycle journalier de N (en bleu) et de différentes variables météorologiques (T et VV). Moyenne sur la campagne automnale de 2004.

2.4.3 INFLUENCE DES EMISSIONS ET DE LA METEOROLOGIE : CORRELATIONS ET ACP

Nous avons tracé les nuages de corrélation entre la concentration N et les variables d'émissions et de météorologie.

Ces nuages indiquent l'existence :

- d'une corrélation faible mais positive avec les émissions du trafic ;
- d'une corrélation négative avec la vitesse de vent et la hauteur de couche limite.

On constate également une dépendance en variance : le nuage est d'autant plus dispersé, *i.e.* la variabilité des concentrations est d'autant plus grande que les émissions sont plus élevées / que le vent est plus faible / que la couche limite est moins épaisse.

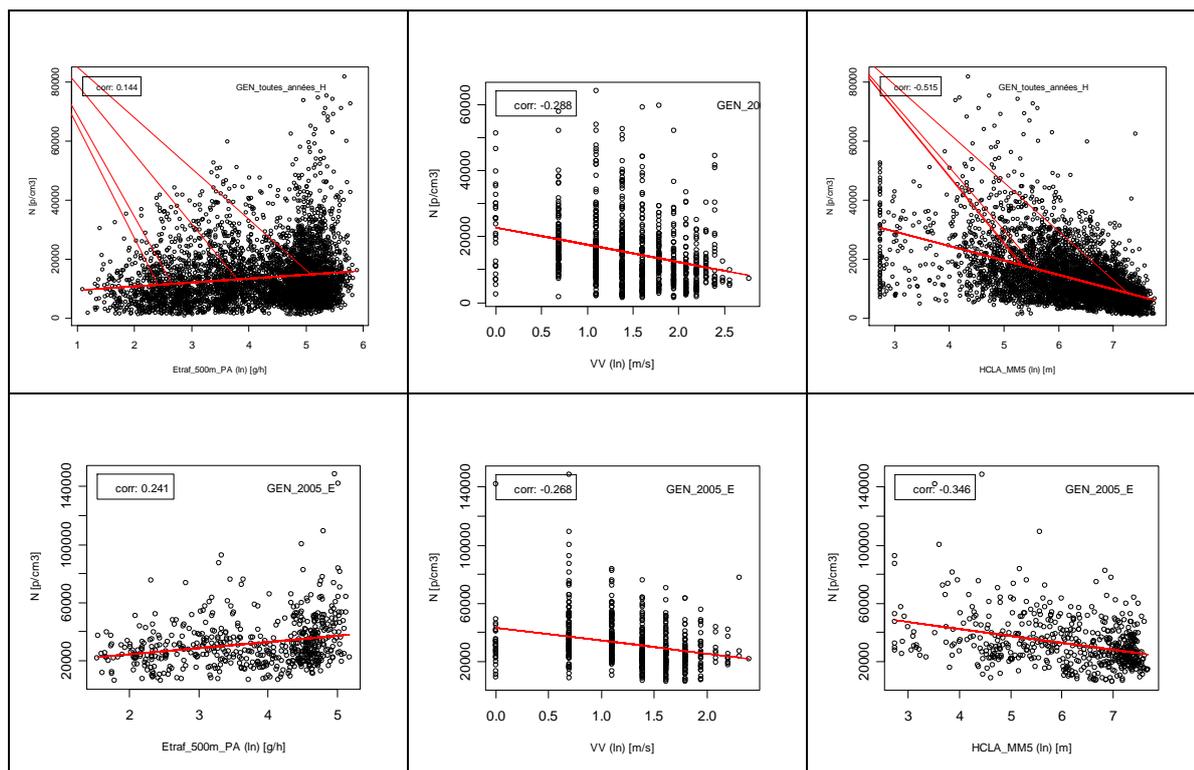


Figure 14 – De gauche à droite : corrélation avec les transformées logarithmiques ($\ln(1+X)$) des émissions de particules du trafic, de la vitesse de vent et de la hauteur de couche limite atmosphérique. Ligne du haut : hivers 2003 à 2007, ligne du bas : été 2005.

La relation négative avec la vitesse de vent se vérifie à Douai :

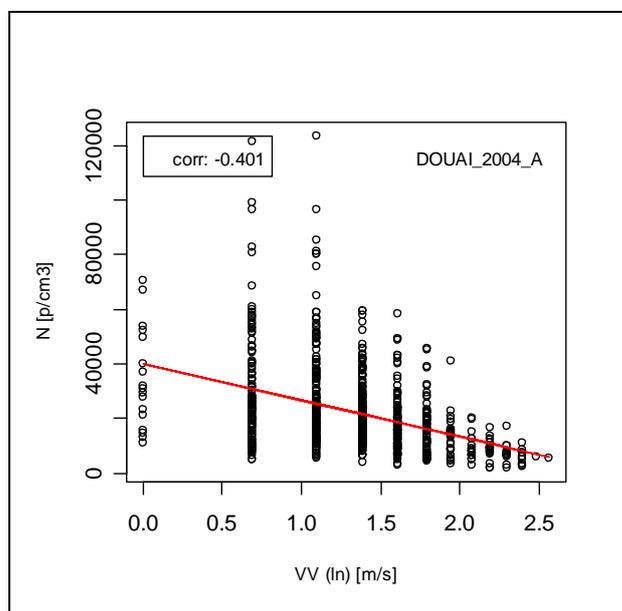


Figure 15 – Corrélation entre N et la transformée logarithmique ($\ln(1+X)$) de la vitesse de vent. Campagne de Douai, automne 2004.

Avec l'humidité relative et la température, les nuages sont très dispersés.

S'ils sont cohérents avec les conclusions de l'analyse temporelle (§2.4.2, §2.4.2.2), les graphiques précédents ne révèlent **pas de corrélation linéaire forte**. Une cause possible est le fait que la concentration N résulte de la conjonction de plusieurs facteurs selon une relation non linéaire.

Une analyse en composantes principales des variables explicatives disponibles a été réalisée pour l'hiver (campagnes 2003 à 2007) puis pour l'été 2005. Les variables introduites dans les calculs sont :

- le logarithme* des émissions de particules liées au trafic (comme toutes les émissions du trafic sont étroitement corrélées entre elles, seules les émissions de particules ont été considérées),
- les émissions théoriques du chauffage (les émissions du secteur résidentiel et du secteur tertiaire étant linéairement corrélées, nous n'avons retenu qu'une seule variable) ;
- le logarithme* de quatre variables météorologiques : HCLA_MM5, VV, T, HR

* transformation du type $\ln(1+X)$. Celle-ci réduit la dispersion des données due aux valeurs extrêmes et améliore la corrélation linéaire avec les concentrations.

Les concentrations numériques de particules (N1, N2, N) ont été projetées *a posteriori* sur les différents plans factoriels qui, au total, restituent 35% de leur variance en hiver, et 40 à 45% de leur variance en été.(Figure 16).

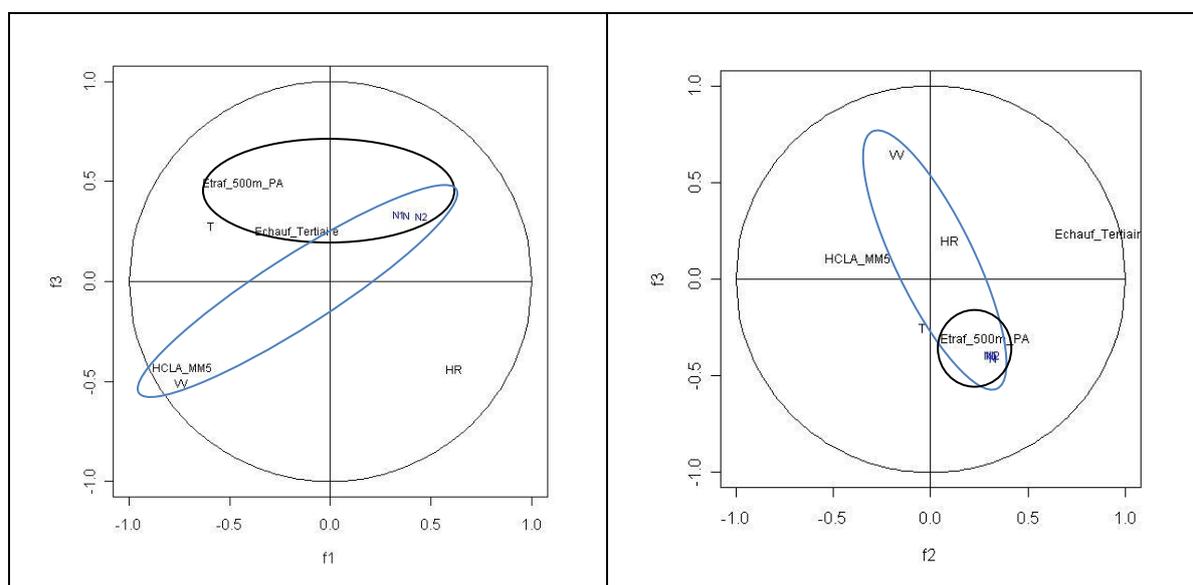


Figure 16 – ACP sur les émissions et la météorologie. Projection sur les plans restituant la plus grande part de la variance de N (environ 25%). A gauche : hiver ; à droite : été.

N1, N2 et N se projettent logiquement du même côté que les émissions du trafic et à l'opposé de la vitesse de vent et de la hauteur de couche limite.

Ce pourcentage assez faible peut être attribué :

- au fait que d'autres sources et d'autres variables d'influence, tels que les processus chimiques, ne sont pas prises en compte ;
- aux limites de l'ACP qui ne considère que les relations linéaires entre variables et ignore la dimension temporelle.

Pour tester cette dernière hypothèse, deux nouvelles ACP ont été réalisées :

- l'ACP a été restreinte à une heure donnée ou à une plage horaire. En se restreignant par exemple aux heures du pic matinal (7h-9h), le pourcentage de variance expliquée devient supérieur à 50% (entre 50 et 60% selon la saison et la variable de concentration).
- Toutes les heures ont été à nouveau considérées mais le jour julien et la variable « heure » (à ceci près qu'il s'agit d'une variable cyclique) ont été ajoutés à la liste des variables explicatives. Le pourcentage de variance expliquée atteint 45% à 50% en hiver ; en été, il ne change pas.

35% à 60% de la variance des concentrations peut s'expliquer par des variables qui décrivent les émissions du trafic et du chauffage et la dispersion atmosphérique. Les limites de l'ACP et l'absence de variables représentatives d'autres sources d'émission et des réactions chimiques ne permettent pas de conclure sur la part restante.

L'analyse en composante principale (ACP) permet de rechercher des relations linéaires entre les différentes variables.

L'ACP confirme le rôle actif de la météorologie –vent, couche limite-, et des émissions du trafic dans l'évolution temporelle de la concentration en nombre.

Cependant, la limitation de l'ACP aux relations de type linéaire fait que cet inventaire des relations existantes n'est pas exhaustif et que la quantification proposée doit être considérée de manière indicative et non absolue. L'ACP est insuffisante pour évaluer l'influence des processus physico-chimiques dont la prise en compte nécessite l'intermédiaire de la modélisation déterministe.

2.4.4 ETUDE DE LA GRANULOMETRIE

La Figure 17 (moyenne sur les hivers 2003 à 2007) et la Figure 19 (moyenne sur l'été 2005) permettent de visualiser :

- en ligne, l'évolution journalière moyenne de la concentration numérique de particules appartenant à une fraction granulométrique donnée ;
- en colonne, la façon dont la concentration numérique de particules mesurée à une heure donnée se répartit en moyenne entre les différentes fractions granulométriques.

Ces graphiques se composent de 108 lignes, une pour chaque fraction granulométrique considérée dans la gamme 10-500 nm, et de 24 colonnes, une

par heure du jour. Chaque couleur correspond à un intervalle de concentration (en nombre de particules).

De la même façon, la Figure 18 (hivers 2003 à 2007) et la Figure 20 (été 2005) permettent de visualiser l'évolution journalière moyenne du pourcentage de particules représenté par chacune des 108 fractions granulométriques mesurées.

Les concentrations numériques par fraction granulométrique varient de la même façon que N. Elles montrent un premier pic entre 8h et 9h (8h pour les fractions les plus fines, à revoir), un minimum à 15h, un nouveau pic, moins élevé que le premier, à 21h, et un nouveau minimum à 4h.

Pour les particules les plus fines ($\varnothing < 30$ nm), comme le montre les variations de couleur, un maximum secondaire apparaît généralement vers 16h en hiver et 14h en été (heure locale). Il est plus particulièrement marqué en saison estivale, pouvant même surpasser le pic du matin ($\varnothing < 15$ nm). Ce résultat est bien visible sur les figures en pourcentage : la part représentée par les fractions les plus fines ($\varnothing < 30$ nm) augmente au cours de l'après-midi tandis que la proportion des autres fractions diminue ($\varnothing \in [30-100$ nm]) ou se maintient ($\varnothing > 100$ nm). Les profils granulométriques calculés par plage horaire (7-9h et 15-17h) en fournissent une autre illustration (Figure 21 et Figure 22) : pour la tranche 7h-9h, le maximum des profils correspond à un diamètre de particule de 30 nm ; pour la tranche 15h-17h, le maximum du profil estival et de deux des cinq profils hivernaux (2006 et 2007) correspond à un diamètre de 10 nm.

Ces observations pourraient s'expliquer par la physico-chimie des particules, notamment la photochimie (Kulmala, 2008, 2004). Il pourrait notamment s'agir de réactions de **nucléation** (formation de très petites particules par agglomération de molécules initialement en phase gazeuse) (Hallquist et al. 2009 ; Watson et al., 2006).

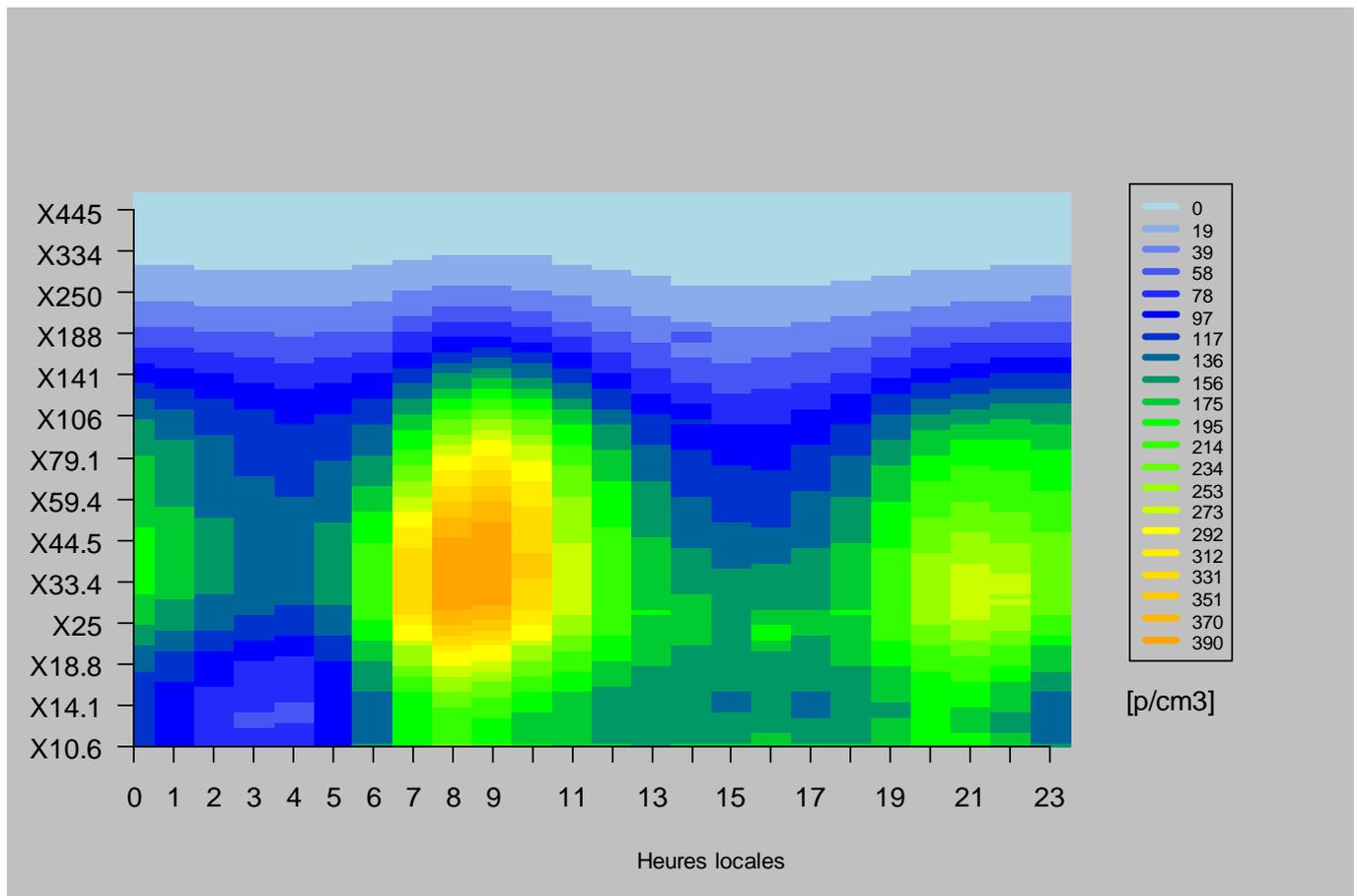


Figure 17 – Evolution journalière du nombre de particules mesuré pour chaque canal compris entre 10 et 500 nm. Moyenne sur les campagnes hivernales 2003 à 2007. En abscisse : les heures du jour ; en ordonnée : les diamètres centraux des fractions granulométriques mesurées par SMPS.

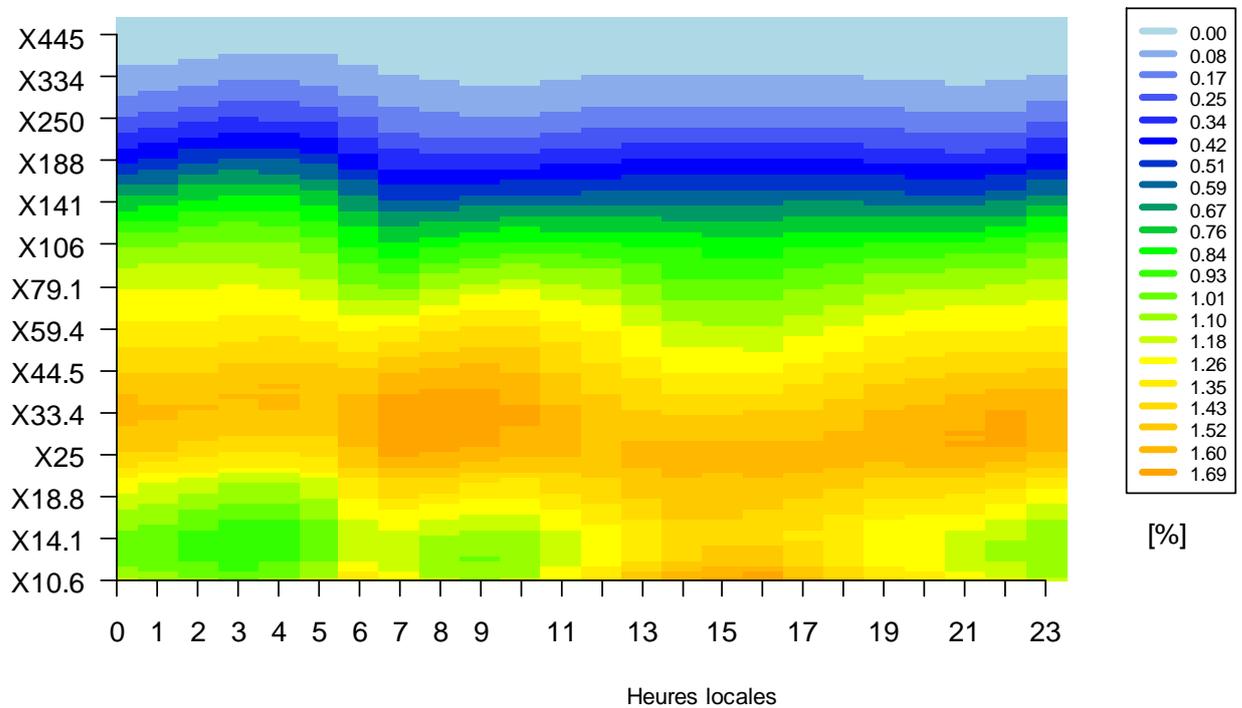


Figure 18 – Evolution journalière du nombre **relatif** (en pourcentage de N) de particules mesuré pour chaque canal entre 10 et 500 nm. Moyenne sur les campagnes hivernales 2003 à 2007. En abscisse : les heures du jour ; en ordonnée : les diamètres centraux des fractions granulométriques mesurées par SMPS.

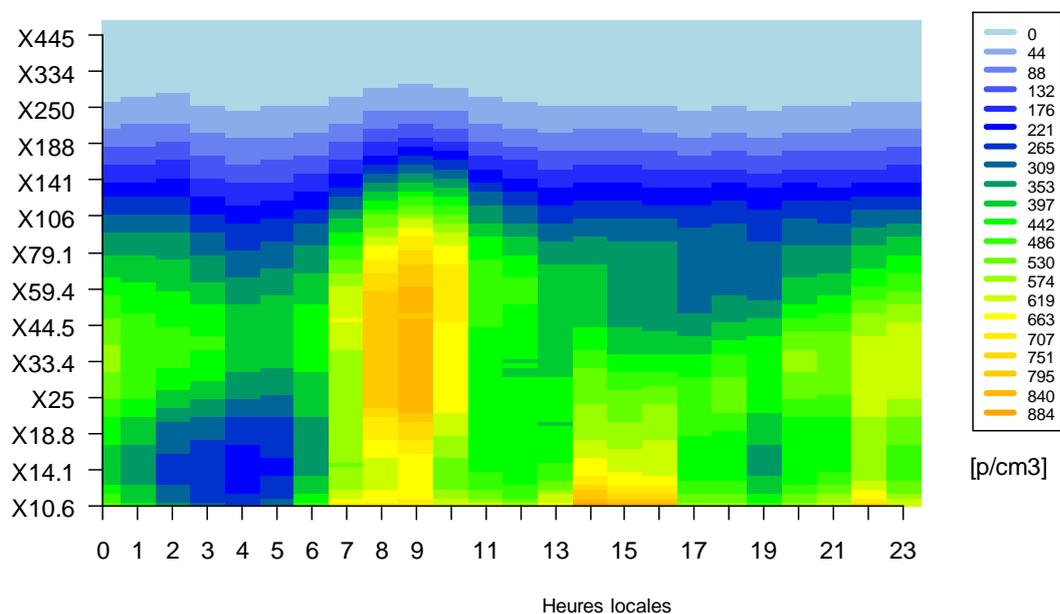


Figure 19 – Evolution journalière du nombre de particules mesuré pour chaque canal entre 10 et 500 nm. Moyenne sur la campagne estivale 2005. En abscisse : les heures du jour ; en ordonnée : les diamètres centraux des fractions granulométriques mesurées par SMPS.

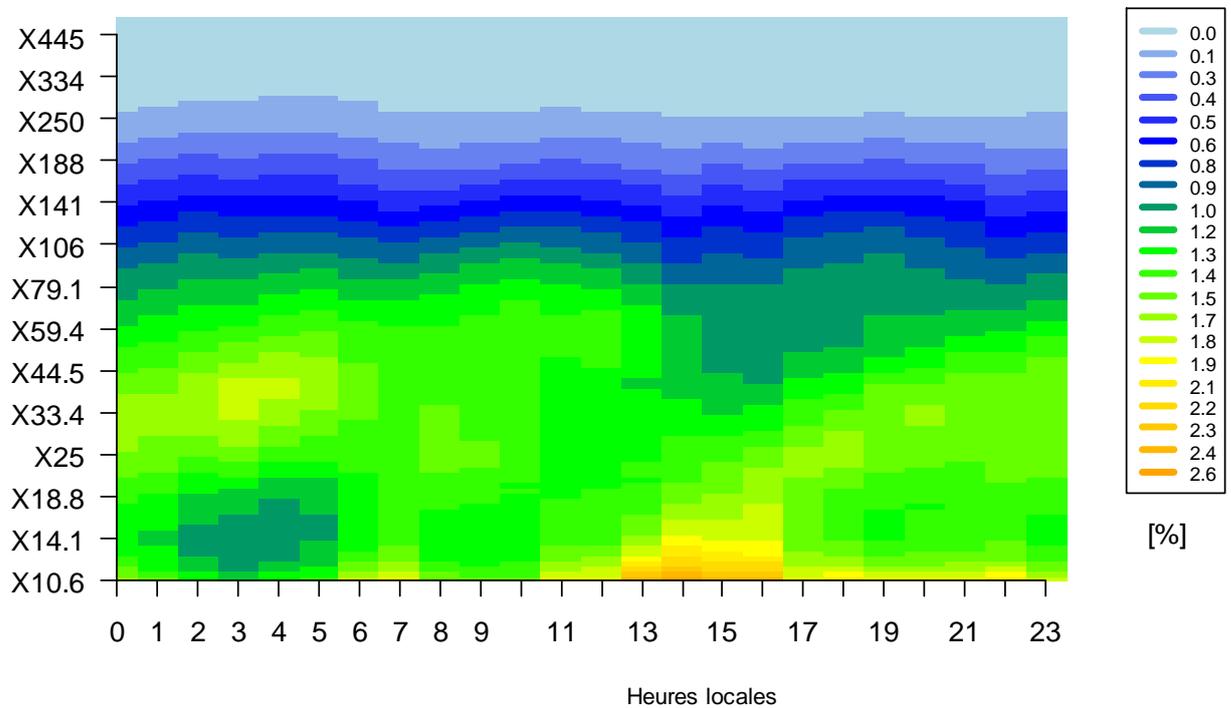


Figure 20 – Evolution journalière du nombre **relatif** (en pourcentage de N) de particules mesuré pour chaque canal entre 10 et 500 nm. Moyenne sur la campagne estivale 2005. En abscisse : les heures du jour ; en ordonnée : les diamètres centraux des fractions granulométriques mesurées par SMPS.

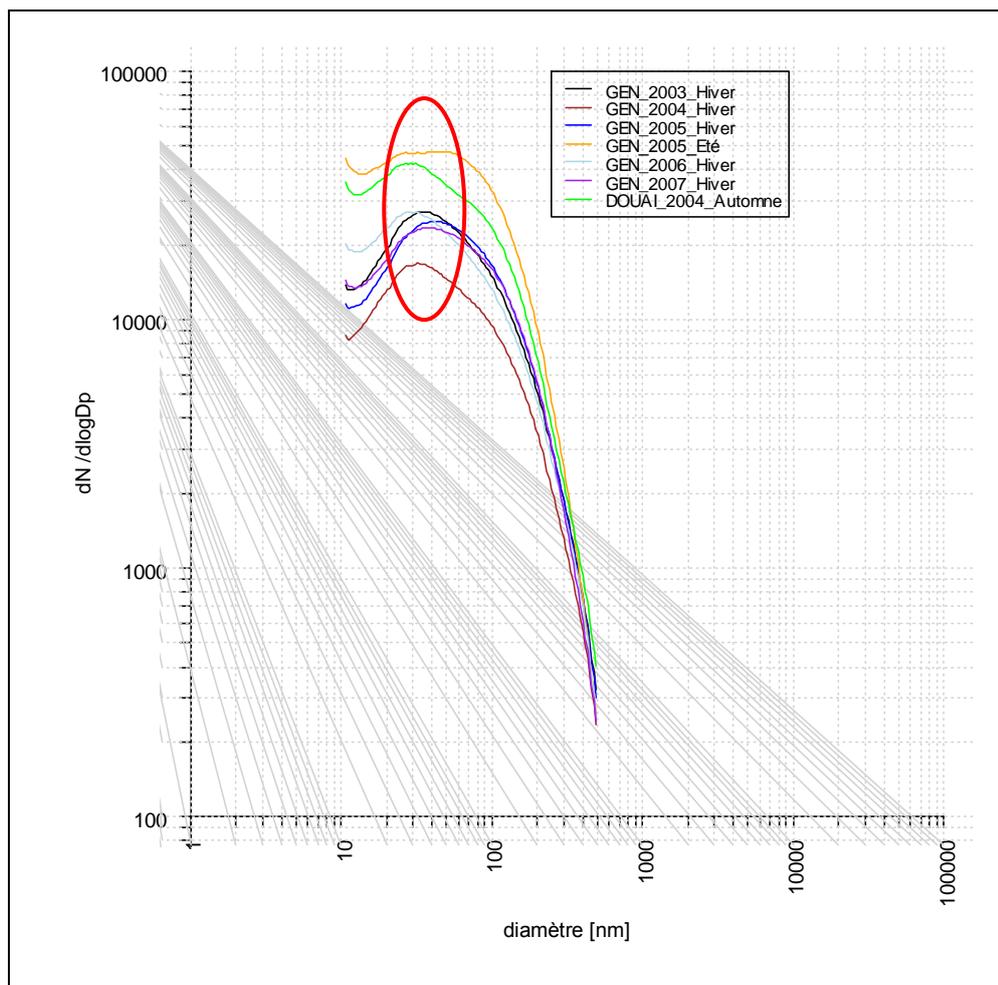


Figure 21 – Profil granulométrique moyen par campagne entre 7h et 9h du matin

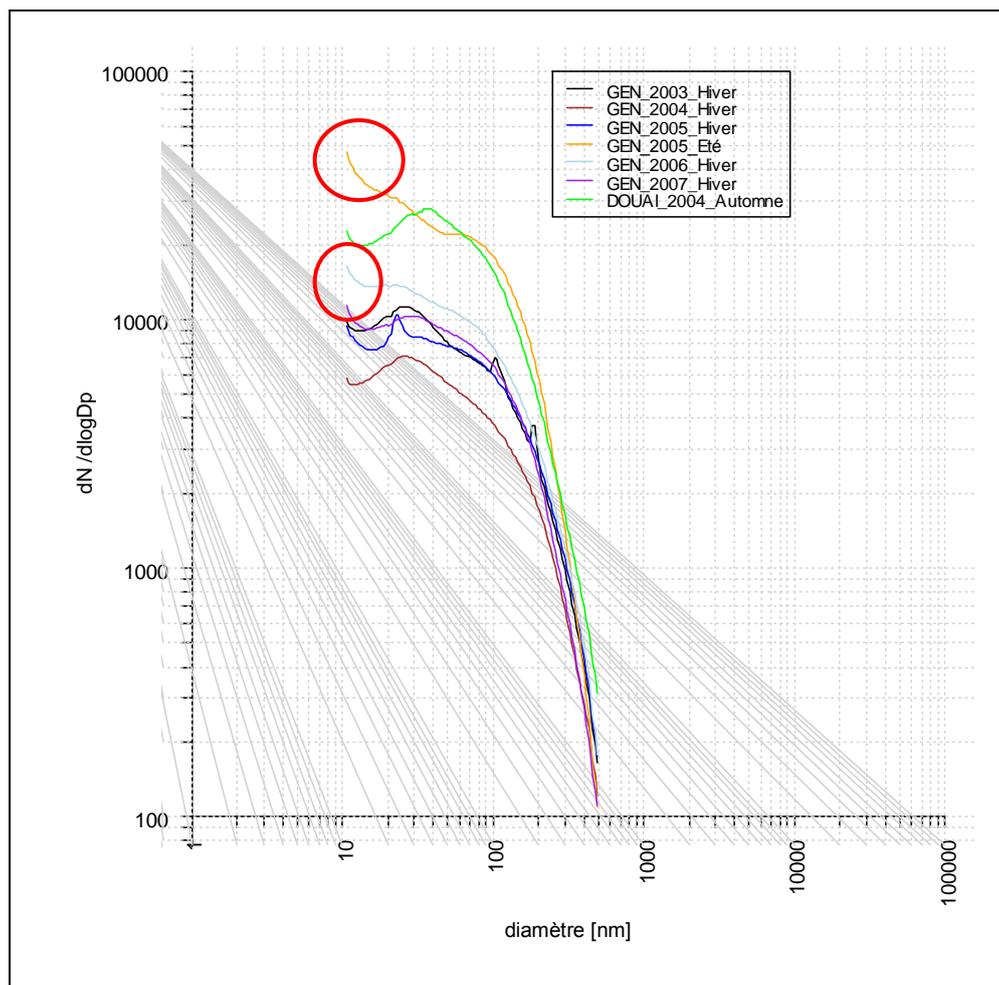


Figure 22 – Profil granulométrique moyen par campagne entre 15h et 17h

2.5 CONCLUSION

Deux facteurs, physiquement indépendants, jouent un rôle déterminant dans l'évolution des concentrations de particules ultrafines : les émissions, notamment celles du trafic, et les conditions de dispersion.

Comme le montre l'étude statistique des campagnes de mesure réalisées sur le site urbain de Gennevilliers, la concentration N varie en cohérence avec ces deux facteurs. Le matin, N augmente de manière concordante avec les émissions du trafic. L'après-midi, les conditions atmosphériques deviennent plus favorables à la dispersion du fait du rayonnement solaire et de la turbulence, et leur influence sur les concentrations devient prépondérante : N diminue sensiblement alors que les émissions se maintiennent à un niveau relativement élevé.

N atteint son minimum vers 15h-16h, au moment où la hauteur de couche limite est maximale, puis se remet à augmenter tandis que cette dernière décroît. Les deux variables rejoignent un second seuil aux environs de 21h. Le week-end, la remontée de N en fin de journée est de moindre amplitude parce que les émissions sont plus faibles.

Les réactions physico-chimiques constituent certainement un facteur important de variabilité.

De la comparaison entre les campagnes d'hiver et d'été, se dégage une problématique estivale qu'il serait intéressant d'approfondir. Pendant l'été (juillet-août), les concentrations numériques sont nettement plus élevées alors que les émissions du trafic et du chauffage sont sensiblement plus faibles. D'autre part, en moyenne sur les campagnes, et de façon plus marquée l'été, le nombre et la proportion de particules très fines ($\varnothing < 30$ nm) augmentent en début d'après-midi, vraisemblablement en lien avec la photochimie.

Cette étude statistique a fait ressortir les principales caractéristiques de la pollution due aux particules ultrafines sur le site urbain de Gennevilliers et les rôles respectifs des émissions, de la météorologie et de la chimie. Le nombre de données disponibles et la récurrence des résultats d'une campagne hivernale à une autre assurent la fiabilité des résultats établis pour l'hiver.

Les particularités de la saison estivale mériteraient d'être confirmées par de nouvelles mesures.

Enfin, il serait utile de compléter cette analyse générale par des études de cas (épisodes de pollution).

3. TYPOLOGIE

Le programme « typologie » porte sur la caractérisation des particules submicroniques dans des situations de typologie particulière. Le programme de l'exercice 2008 a comporté deux actions :

- d'une part, nous avons approfondi l'analyse de la campagne menée à la station de La Mède : cette étude concerne une zone résidentielle imbriquée dans une zone industrielle parmi les plus importantes de France. Les observations sont particulièrement intéressantes (chapitres 3.1 à 3.6).
- D'autre part, nous nous sommes rapprochés du programme de recherche FORMES consacré à l'étude de la fraction organique de l'aérosol urbain. Une description de ce projet est fournie en annexe 1.

3.1 RAPPEL CONCERNANT LA CAMPAGNE DE LA MEDE ET LES RESULTATS OBTENUS EN 2006

Les données de la campagne de La Mède ont bénéficié d'un premier traitement à l'occasion du rapport LCSQA 2006 [Le Bihan O., Mathé F., 2006].

Nous revenons sur ces éléments, ci-dessous.

Présentation de la campagne :

Le volet « typologie » des travaux 2006, a permis la réalisation d'une campagne de mesure à la station AIRFOBEP de La Mède. Cette station est particulièrement intéressante pour notre étude, et ce à plusieurs titres :

- cette zone est riche en sources, avec particulièrement en toute proximité une raffinerie, une carrière, et une voie de circulation importante (Figure 23, Figure 24) ; à cela s'ajoute le site industriel de Lavera situé dans le quadrant sud-ouest
- la station est implantée dans le sud de la France, les sites considérés par cette étude se situant jusqu'ici dans le nord du pays (Paris et Douai) ;
- elle est placée aux abords de l'étang de Berre, près de la méditerranée, et présente une météorologie locale particulièrement typée.

La campagne s'est déroulée du 22/06/2006 au 08/08/2006. Suivant le même schéma que pour les autres campagnes, le nombre de particules a été mesuré en continu avec un SMPS, couvrant la gamme de taille 10 – 500 nm, et un APS pour la gamme 500 – 20000 nm.

Résultats

Le nombre médian de particules mesuré à la station de La Mède est dans la gamme de ceux mesurés sur les sites de Gennevilliers (site urbain de fond) et Douai (site de proximité trafic, ouvert). Ce nombre présente en revanche une variabilité très importante à l'échelle de la campagne (avec deux pics exceptionnels à presque 10 millions de particules par cc), ainsi qu'à l'échelle de la journée (avec une évolution non reproductible d'un jour à l'autre). La relation entre l'évolution du nombre de particules et les autres paramètres (PM10 ou polluants gazeux) est aussi très différente de celle observée à Gennevilliers et Douai.

Le schéma de traitement des données développé jusqu'ici doit donc être modifié afin de permettre l'étude de l'évolution dans le temps de l'influence des différentes sources de particules. La première démarche sera d'analyser l'évolution du nombre de particules en fonction de l'origine des vents. Cela permettra en particulier de mieux connaître l'influence de la raffinerie située à proximité du site sur le nombre total de particules ultrafines, et celle des sources naturelles sur les particules supermicroniques (et donc les PM10).

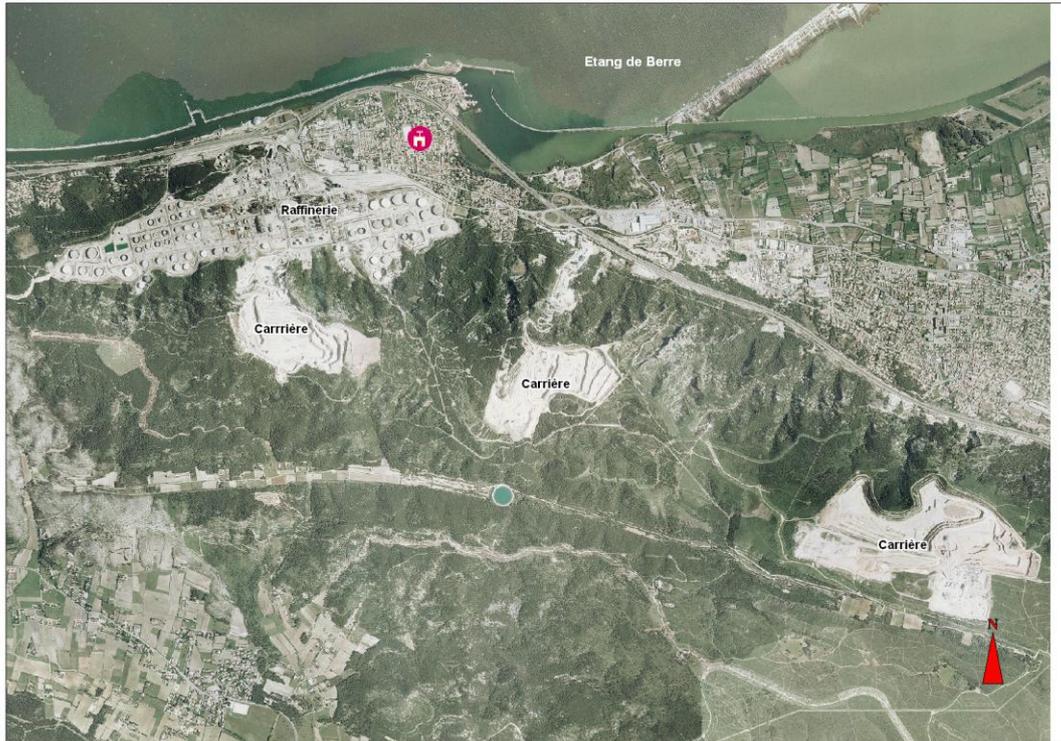


Figure 23 : photo d'ensemble de La Mède, englobant les sources proches (carrières, raffinerie au sud-ouest, autoroute).

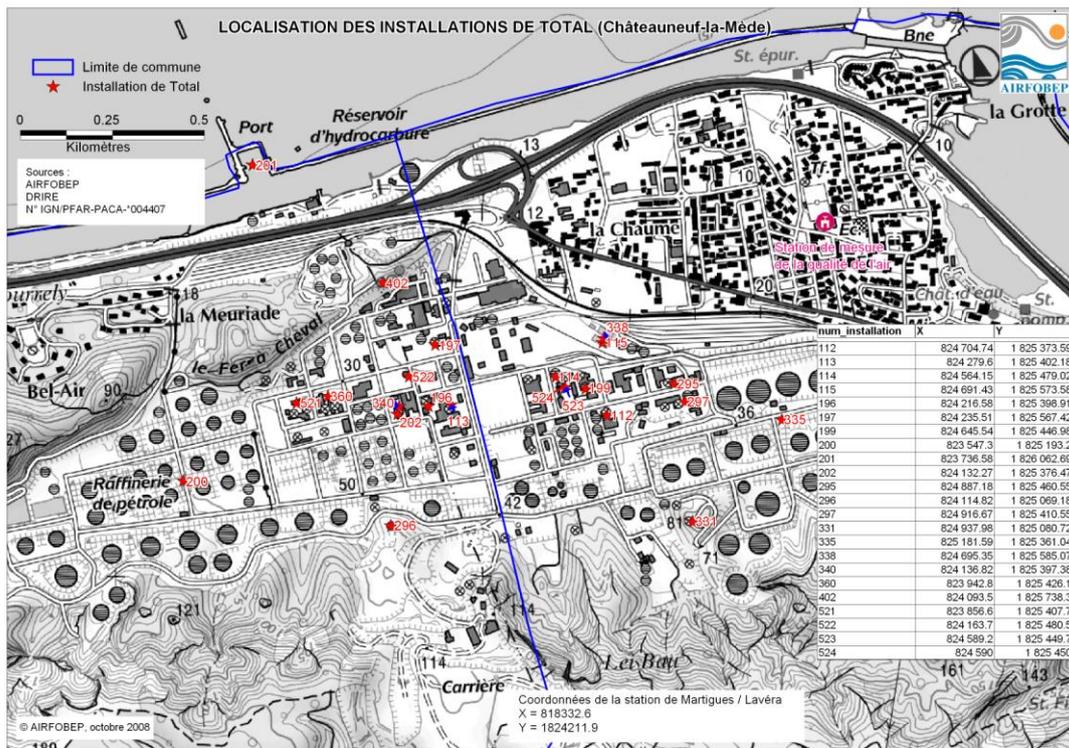


Figure 24 : carte présentant l'ensemble La Mède / raffinerie.

3.2 OBJECTIFS DES TRAVAUX COMPLEMENTAIRES MENES EN 2008

La conclusion que nous venons de rappeler ci-dessus insiste sur un point important, à savoir que la variabilité rencontrée sur le site nécessite de passer d'une approche statistique globale à une approche différenciée : il s'agit notamment de prendre en compte l'origine des masses d'air, et de mener des études. Dans ce but, on s'appuie tout particulièrement sur les roses de pollution et les suivis temporels.

Nous proposons dans un premier temps, de porter un regard spécifique sur les principaux polluants autres que les particules submicroniques (3.3) ;

puis, dans une seconde partie, de mener un travail centré sur les particules submicroniques, et illustré à l'aide de ces polluants complémentaires (3.4).

3.3 ETUDE PAR POLLUANT

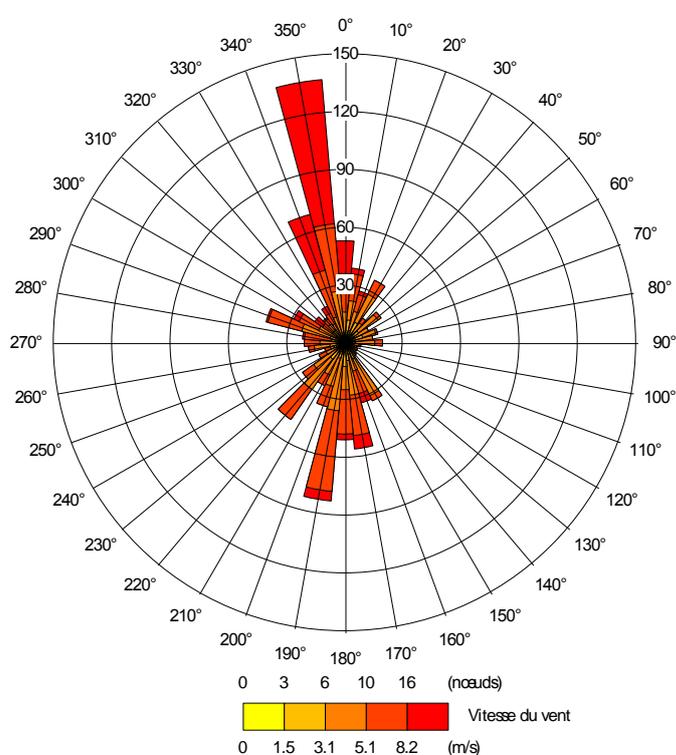


Figure 25 : rose des vents sur le site de La Mède durant la campagne de juillet 2006.

Durant la campagne, comme le montre la rose des vents (Figure 25), le vent a eu pour origine essentielle le quadrant nord, et le quadrant sud.

SO₂

Intéressons-nous à présent au SO₂, polluant essentiellement d'origine industrielle.

La Figure 26 représente la rose des niveaux de concentration de SO₂, selon 5 intervalles, pour l'ensemble de la campagne. Les données par vent faible ne sont pas considérées dans la mesure où il est délicat de leur attribuer une origine géographique.

Les concentrations inférieures à $10 \mu\text{g}/\text{m}^3$ reflètent quasiment la rose des vents : ces concentrations peuvent être associées à du bruit de fond.

En revanche, lorsque ces données ($<10 \mu\text{g}/\text{m}^3$) sont retirées de la représentation pour ne visualiser que les concentrations supérieures à $10 \mu\text{g}/\text{m}^3$ (Figure 27), il apparaît que le SO_2 provient essentiellement du secteur S-O.

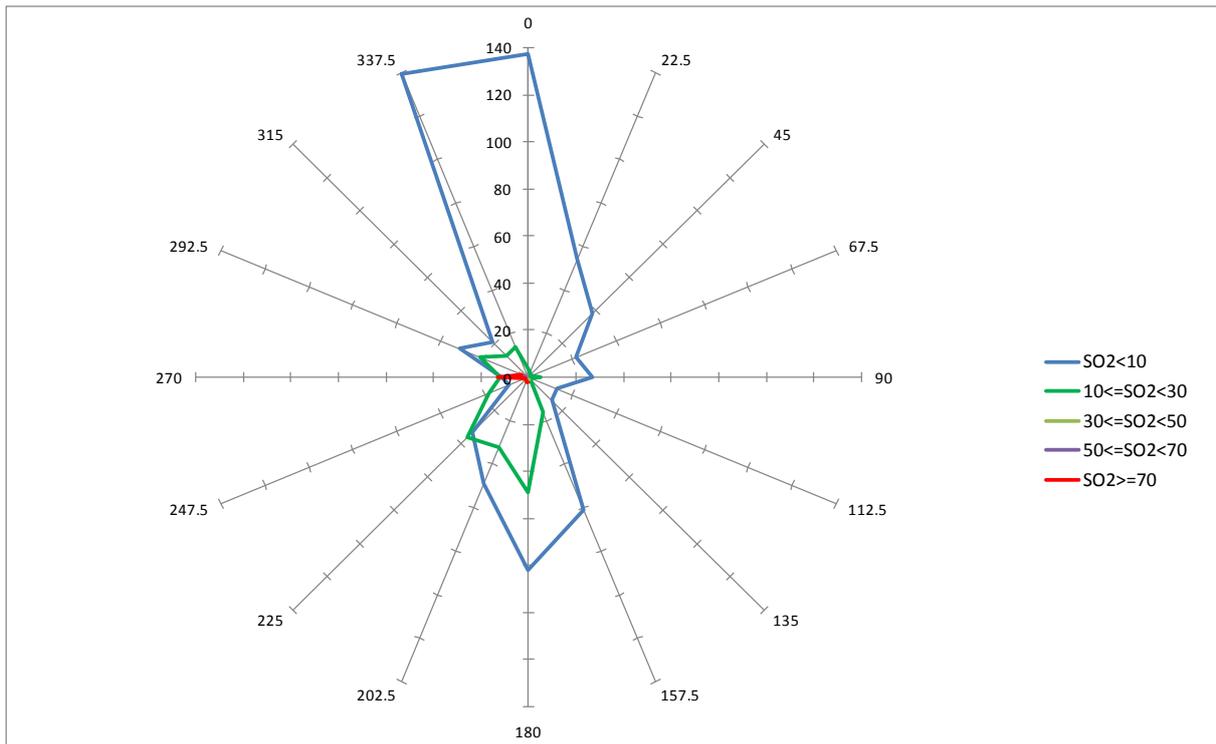


Figure 26 : rose des pollutions pour le SO₂, pour les vents supérieurs à 2 m/s.

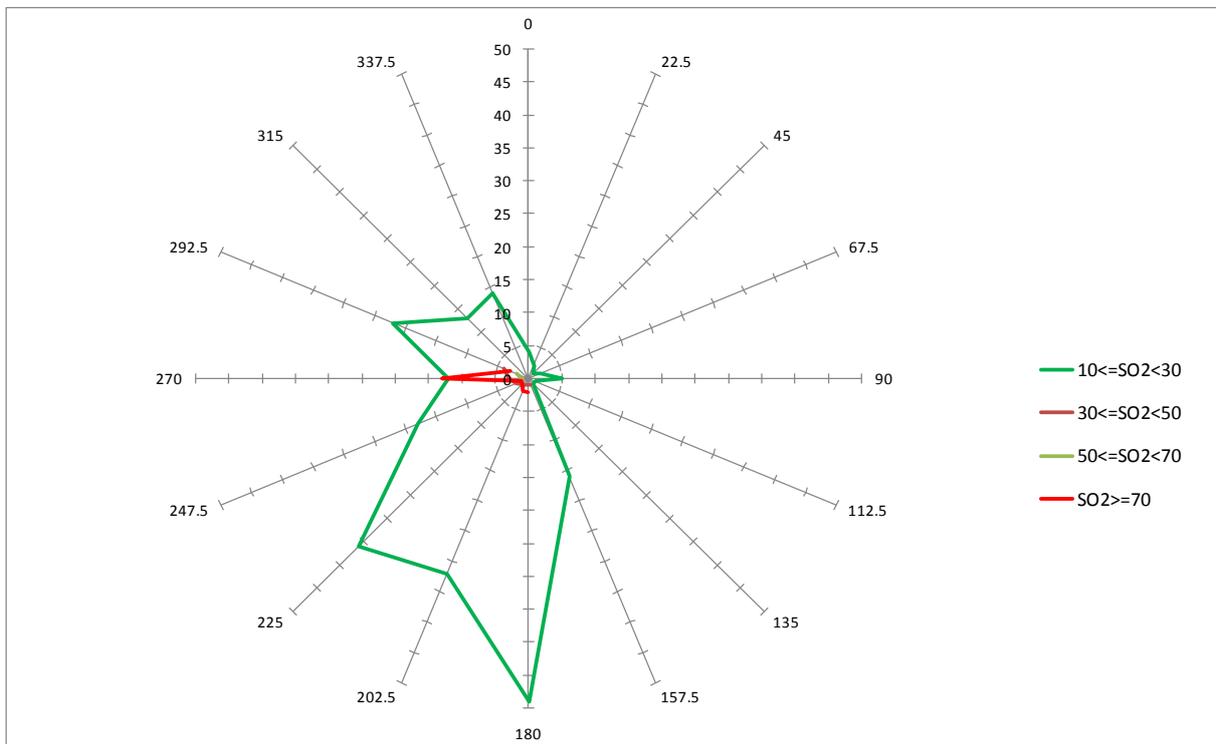


Figure 27 : rose des pollutions pour le SO₂, pour les vents supérieurs à 2 m/s et les concentrations supérieures à 10 µg/m³.

Le suivi temporel du SO₂ est présenté sur la Figure 28 .

D'une part, nous observons que les niveaux de SO₂ se situent principalement au dessous de 30 µg/m³, avec un comportement relativement cyclique à l'échelle journalière. La gamme de concentration allant de 10 à 30 µg/m³ correspond pour l'essentiel au secteur SO et SSO.

D'autre part, nous relevons 5 événements, relativement ponctuels, culminant à une concentration allant de 80 µg/m³ à 435 µg/m³. Ce caractère à la fois limité dans le temps, et élevé en concentration, suggère la présence d'un panache. Ces événements sont répertoriés dans le Tableau 3. Il est important de souligner que l'ensemble de ces événements correspondent au quadrant ouest, les origines moyennes allant de 210 à 285°.

En conclusion, nous relevons sur le site de La Mède,

- un fond allant de 10 à 30 µg/m³ dans le quadrant SO et SSO,
- l'occurrence de niveaux significatifs de SO₂ dans le quadrant ouest. En effet, nous observons cinq événements assez ponctuels dans le temps, et correspondant à des niveaux de concentration élevés (80 à 435 µg/m³).

Ce constat est en cohérence avec la présence d'activités industrielles dans cette zone géographique, notamment une raffinerie située à proximité.

Les autres quadrants ne présentent pas d'activité émettrice de ce polluant.

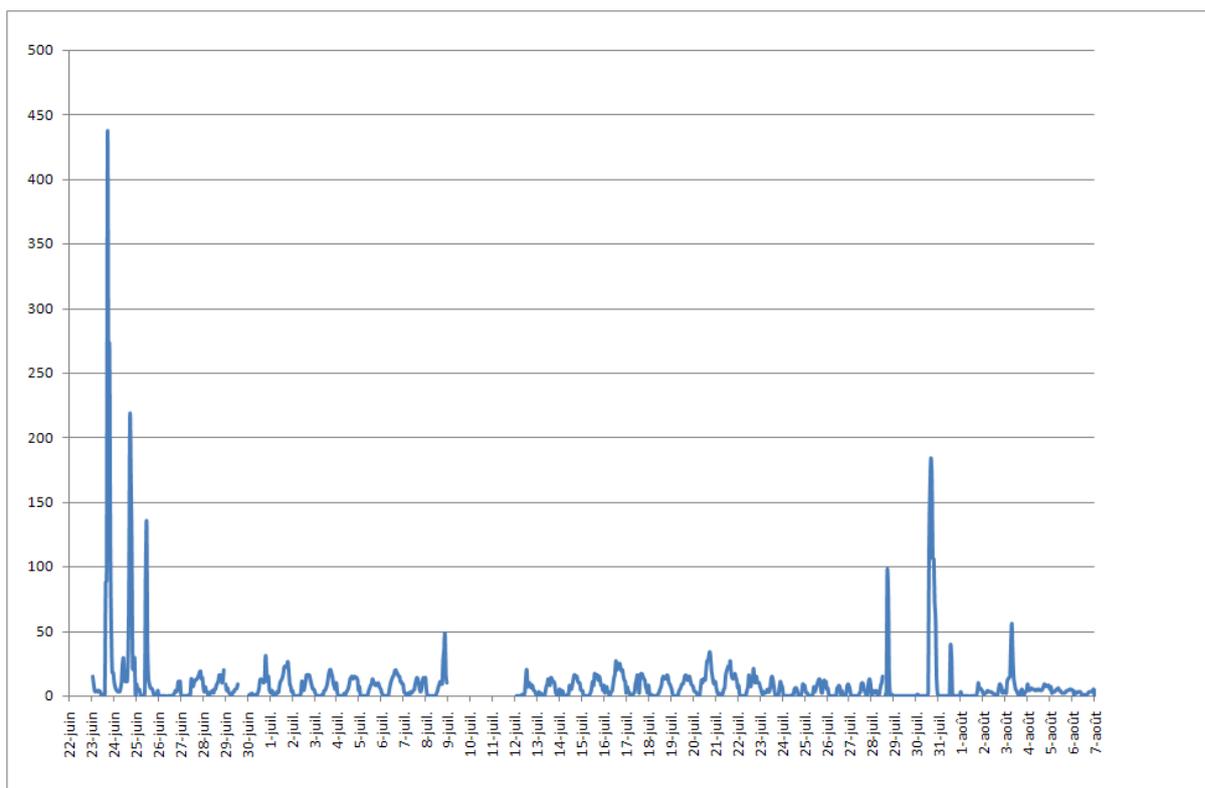


Figure 28 : suivi temporel du SO₂ (µg/m³).

PM10

La rose des PM10 indique que la gamme inférieure à $30 \mu\text{g}/\text{m}^3$, correspond principalement au quadrant nord (étang de Berre)(Figure 29).

La gamme des concentrations supérieures à $30 \mu\text{g}/\text{m}^3$, et tout particulièrement à $50 \mu\text{g}/\text{m}^3$, est associée majoritairement au quadrant sud (Figure 30).

Le suivi temporel met en avant 11 événements supérieurs à $100 \mu\text{g}/\text{m}^3$ (Figure 31). Dans la majorité des cas, ces pics n'impliquent pas d'autres polluants et sont brefs dans le temps dans la mesure où ils ne concernent pas plus de 2 valeurs horaires successives : 27 juin (01h, Est ; 7h, Sud) ; 3 juillet (13h, Sud) ; 5 juillet (14h, Sud) ; 1^{er} août (17h, Nord-Ouest) ; 2 août (20h, Nord) ; 3 août (19h, 20h ; Nord) ; 4 août (20h ; Nord) ; 6 août (16h ; Nord) ; 7 août (20h, 21h ; Nord).

Nous remarquons que le quadrant nord est prépondérant dans cette gamme de concentration ($> 100 \mu\text{g}/\text{m}^3$).

Le fait que ces pics n'impliquent que les PM10 (pas d'autre polluant, notamment les particules submicroniques) peut faire penser à une source mécanique, et tout particulièrement à la remise en suspension de poussières.

Citons par exemple l'action du vent sur un sol sec et empoussiéré, ou l'action d'un vent important sur la mer ou un étang (production de gouttelettes). Toutefois, la comparaison entre la concentration en PM10 et la vitesse du vent (toutes directions) ne suggère pas de lien particulier (notamment pas de proportionnalité) (Figure 32).

Trois échantillons correspondent au quadrant sud, lequel est concerné par la présence de carrières.

En conclusion, nous relevons l'existence de pics élevés en PM10 (supérieurs à $100 \mu\text{g}/\text{m}^3$), situations pour lesquelles ce polluant réagit seul, les autres paramètres observés ne montrant pas de variation particulière.

Trois quadrants sont concernés.

Le quadrant nord est le plus représenté, sans qu'il y ait identification de la ou des sources.

En revanche, trois échantillons concernent le quadrant sud dans lequel se situent des carrières. Ce type d'activité industrielle est connu pour émettre des poussières.

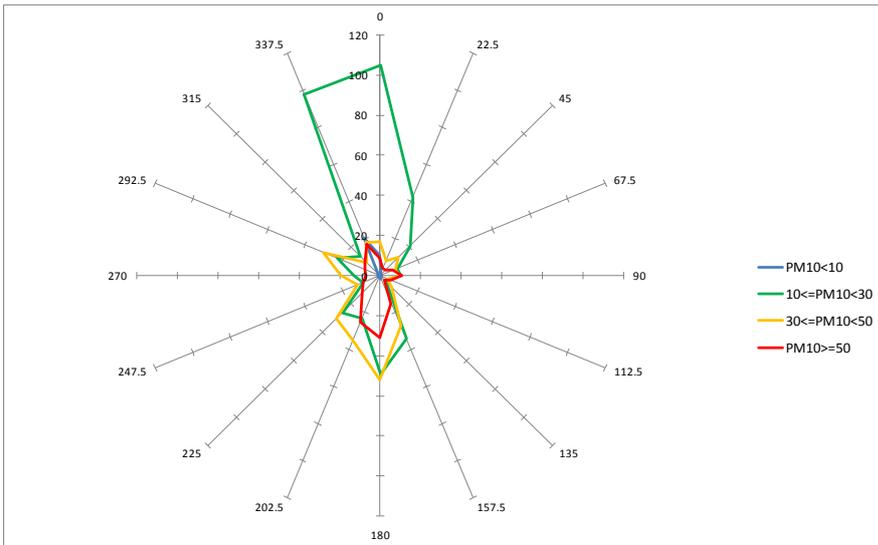


Figure 29 : rose de pollution pour les PM10 (vitesses supérieures à 2 m/s) [$\mu\text{g}/\text{m}^3$]

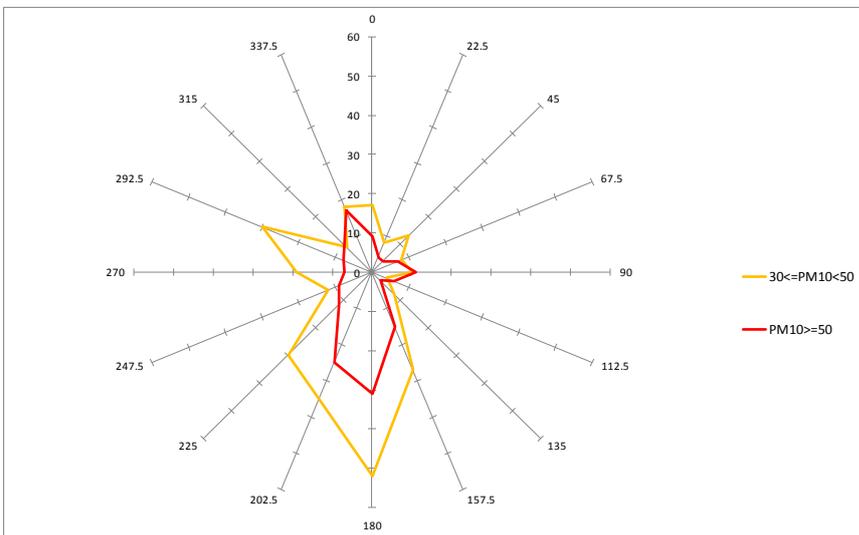


Figure 30 : rose de pollution pour les PM10 (> 2 m/s), pour les concentrations supérieures à 30 $\mu\text{g}/\text{m}^3$

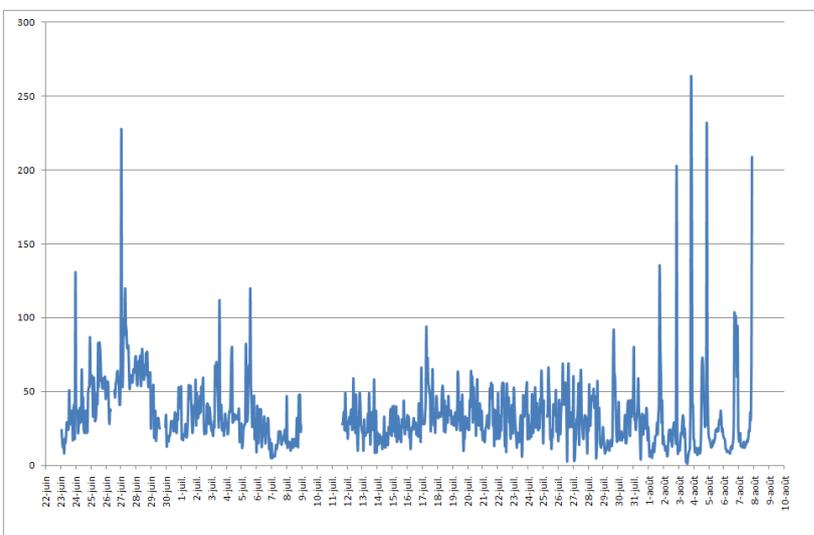


Figure 31 : suivi temporel des PM10 [$\mu\text{g}/\text{m}^3$]

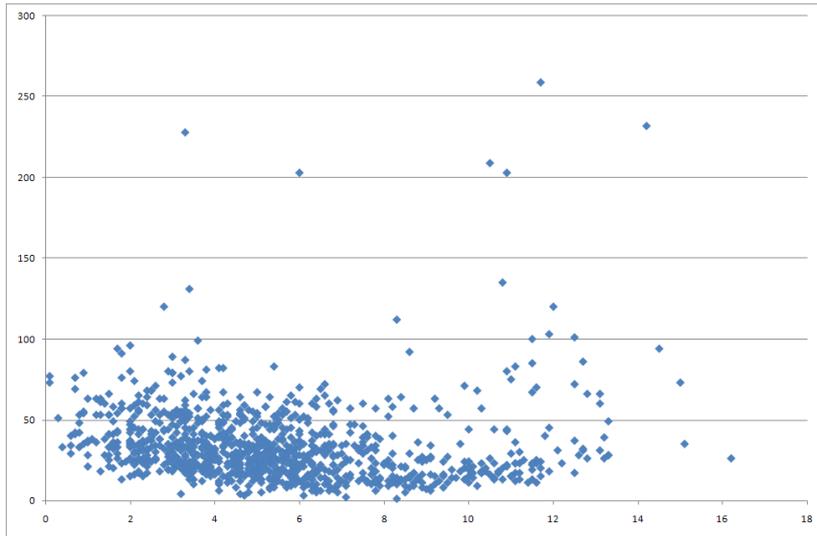


Figure 32 : étude de la relation vitesse du vent / concentration en PM10 [$\mu\text{g}/\text{m}^3$]

OXYDES D'AZOTE

Le monoxyde d'azote a pour principale origine le quadrant sud sud-est (Figure 33). Si ses concentrations restent très modérées durant la campagne, leur évolution se manifeste par pics, se démarquant fortement d'un fond par ailleurs très bas (Figure 34). On pense là encore à des sources très ponctuelles dans l'espace et ou le temps (effet de panache).

Le NO₂ pour sa part (Figure 35) présente un profil moins contrasté. Sa rose de pollution ne présente pas non plus d'origine aussi spécifique (Figure 36).

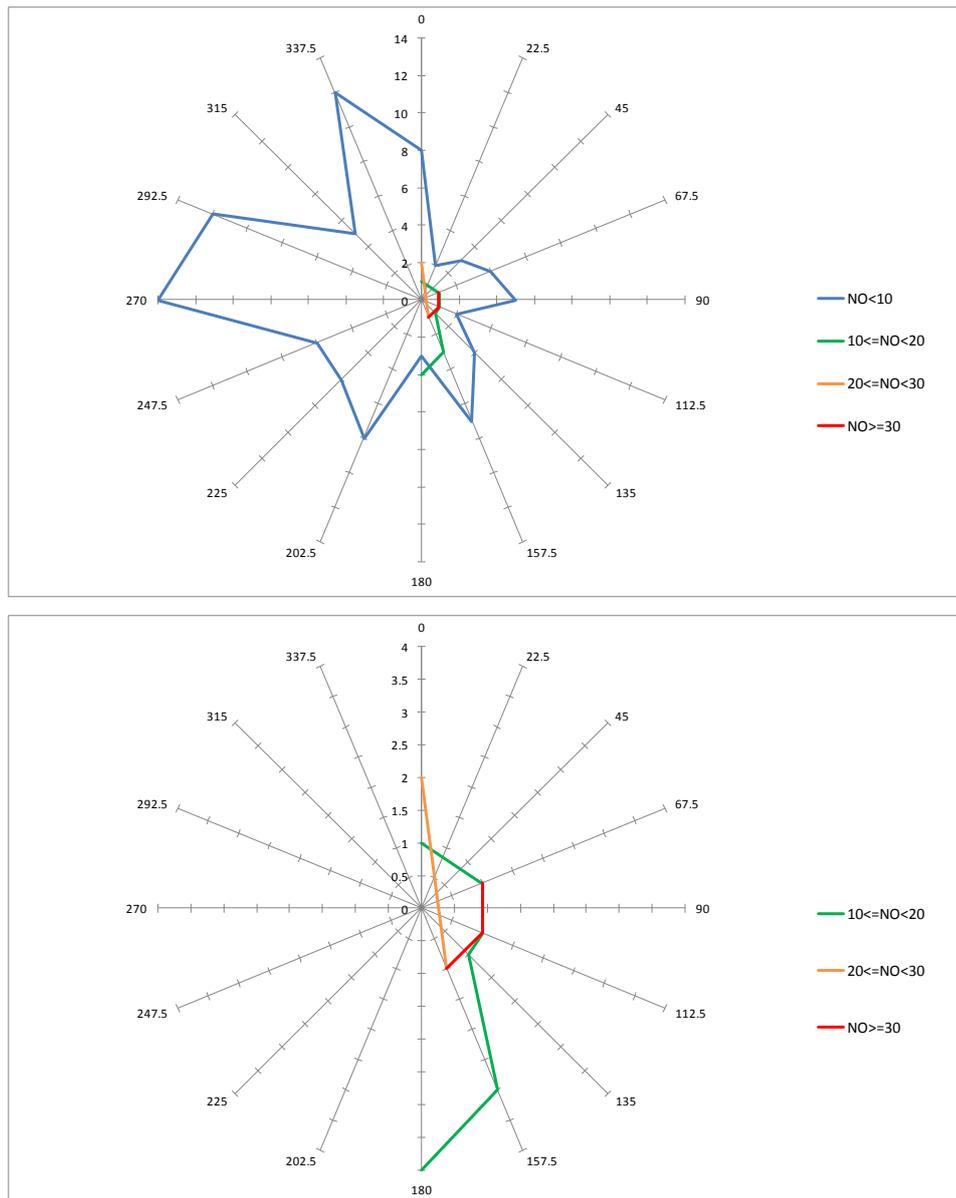


Figure 33 : roses de pollution du NO [$\mu\text{g}/\text{m}^3$]

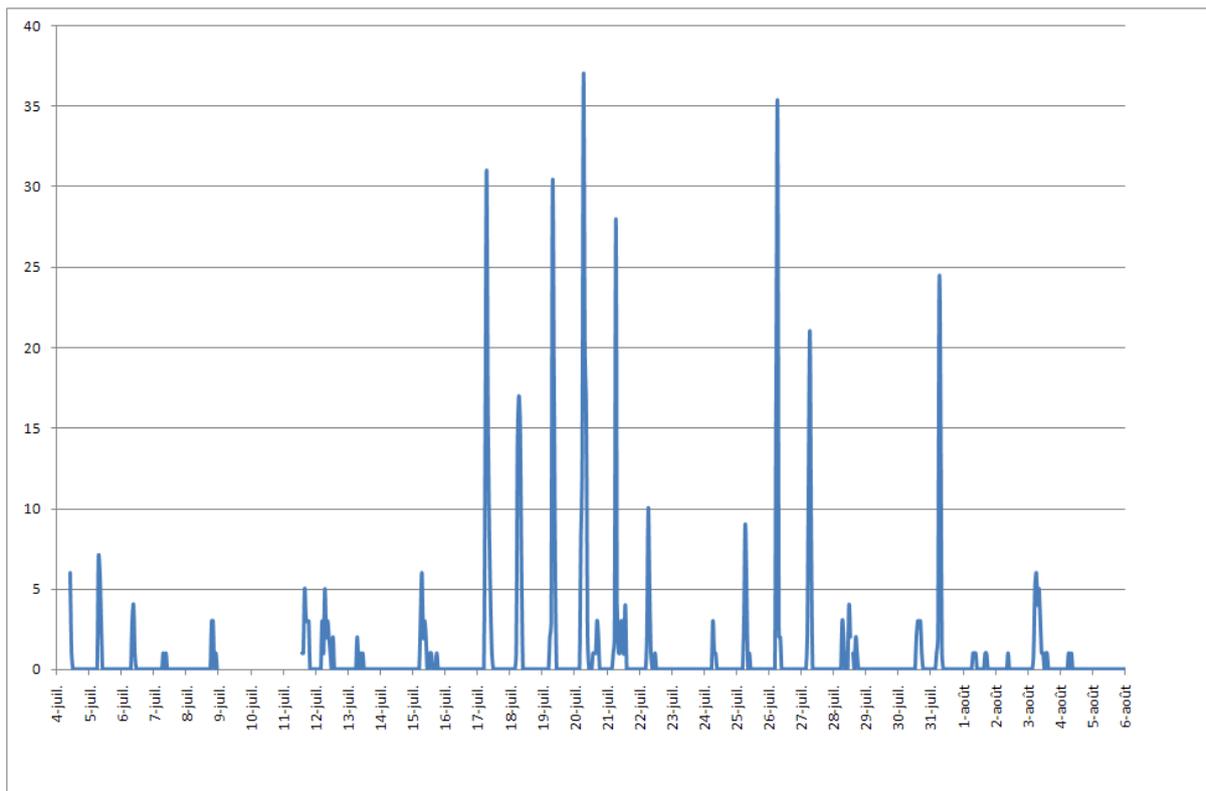


Figure 34 : suivi temporel du NO ($\mu\text{g}/\text{m}^3$)

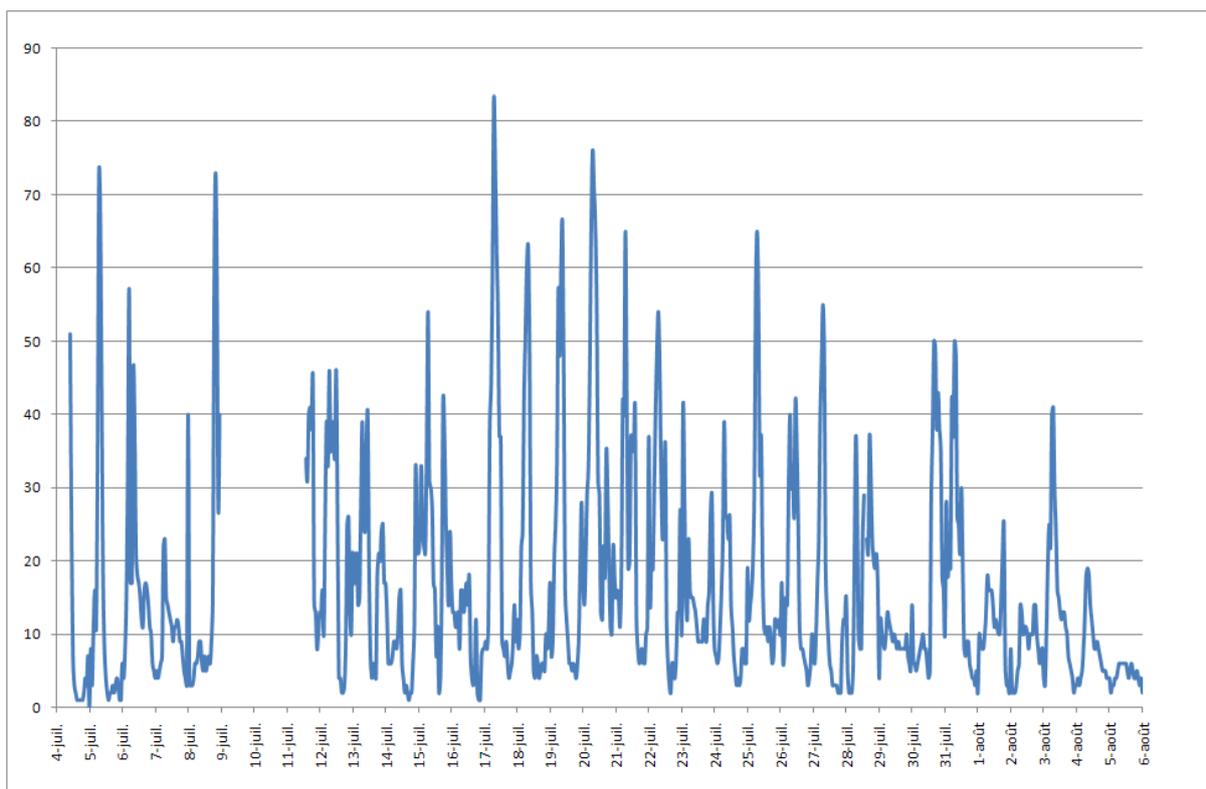


Figure 35 : suivi temporel du NO₂ ($\mu\text{g}/\text{m}^3$)

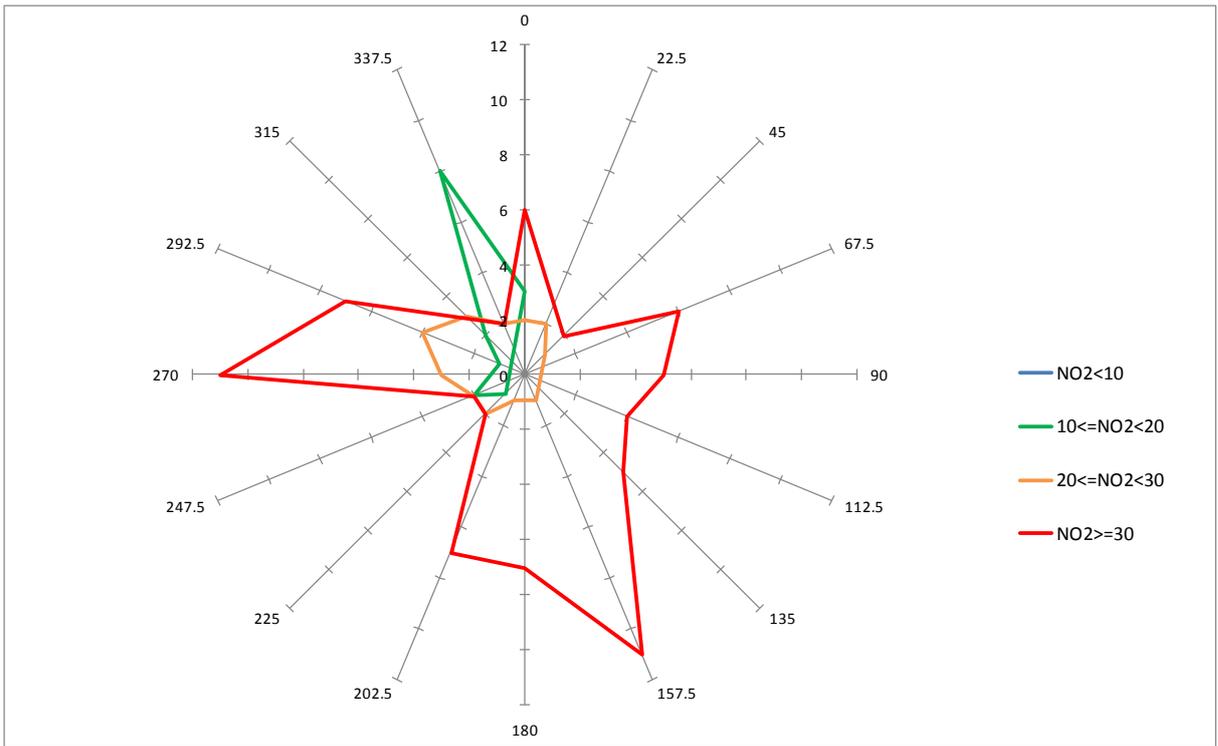


Figure 36 : rose de pollution du NO₂ (µg/m³)

3.4 COMPARAISON ENTRE LA CONCENTRATION EN NOMBRE ET LES AUTRES POLLUANTS

SUIVI TEMPOREL, ROSE DES VENTS

La concentration totale en nombre (10 nm – 20 µm) présente une variabilité et une gamme de concentration totalement inédites (Figure 37) par rapport aux campagnes réalisées sur le site urbain de Gennevilliers.

Elle présente pour les valeurs inférieures à 10 000 p/cc, une rose (Figure 38) très proche de la rose des vents (Figure 25) : les secteurs nord et sud prédominant.

La gamme de concentration allant de 10 000 à 100 000 p/cc représente une part très importante des échantillons, en comparaison de la classe précédente. La rose de pollution montre la présence de cette gamme sur la plupart des directions de vent, avec notamment une extension dans le quadrant ouest au sens large, ce qui la distingue fortement de la rose des vents. Cela signifie donc que le secteur Ouest est associé à des concentrations en nombre significatives.

Les données présentent enfin une gamme de concentration jamais observée jusqu'alors dans nos travaux, avec des valeurs supérieures à 100 000 p/cc et pouvant dépasser plusieurs millions de particules par cm³ (Figure 37), zone à partir de laquelle on atteint la saturation du SMPS !

La rose de pollution associée à ces échantillons est présentée sur la Figure 39 : le secteur sud est le plus concerné avec toutefois deux autres contributions très nettes, l'une plein ouest, l'autre au nord nord-ouest.

Une étude de cas est proposée dans le paragraphe suivant.

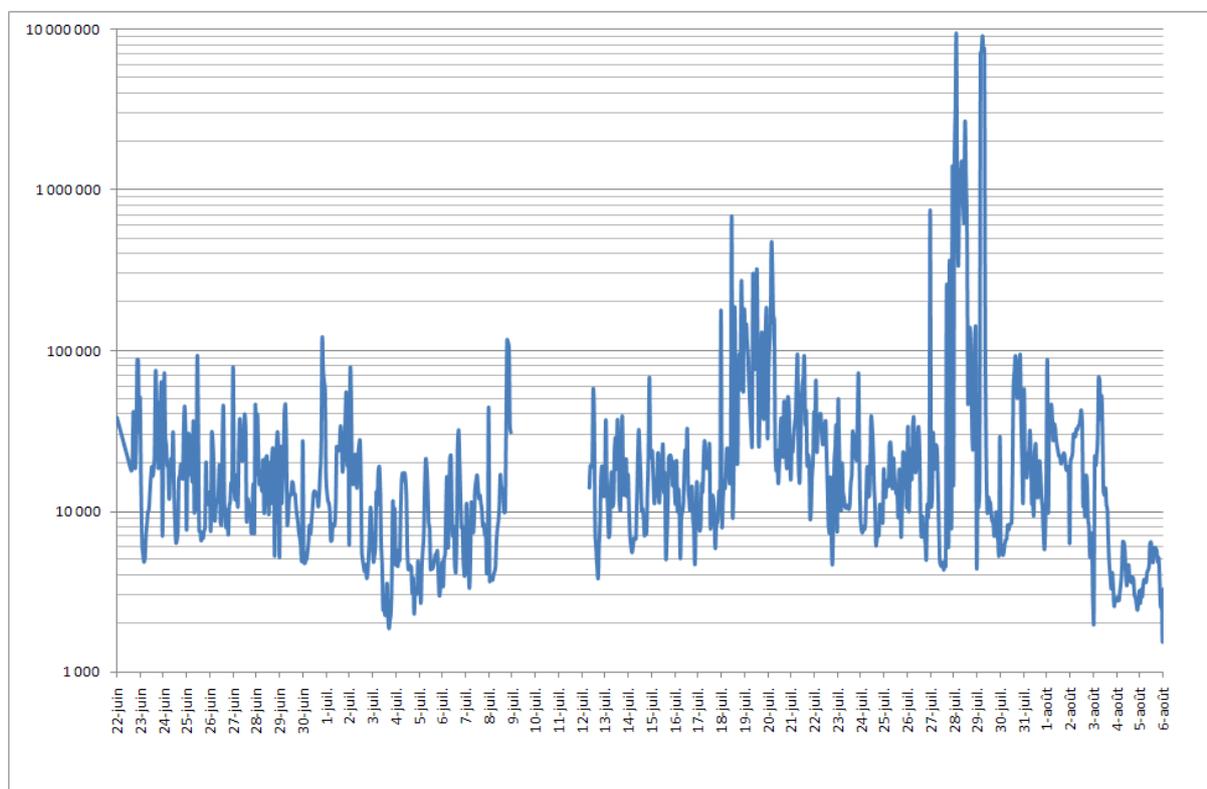


Figure 37 : suivi temporel de la concentration totale en nombre (p/cc).

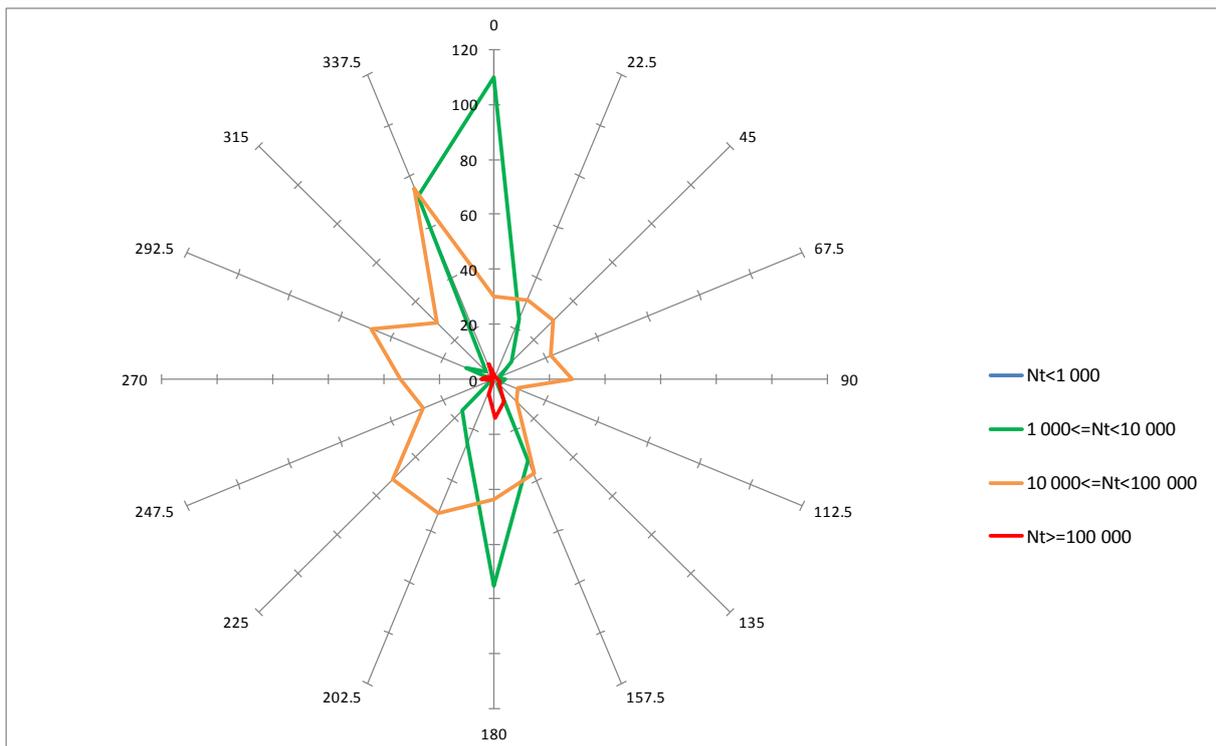


Figure 38 : rose de pollution pour la concentration en nombre de 10 nm à 20 µm (p/cc)

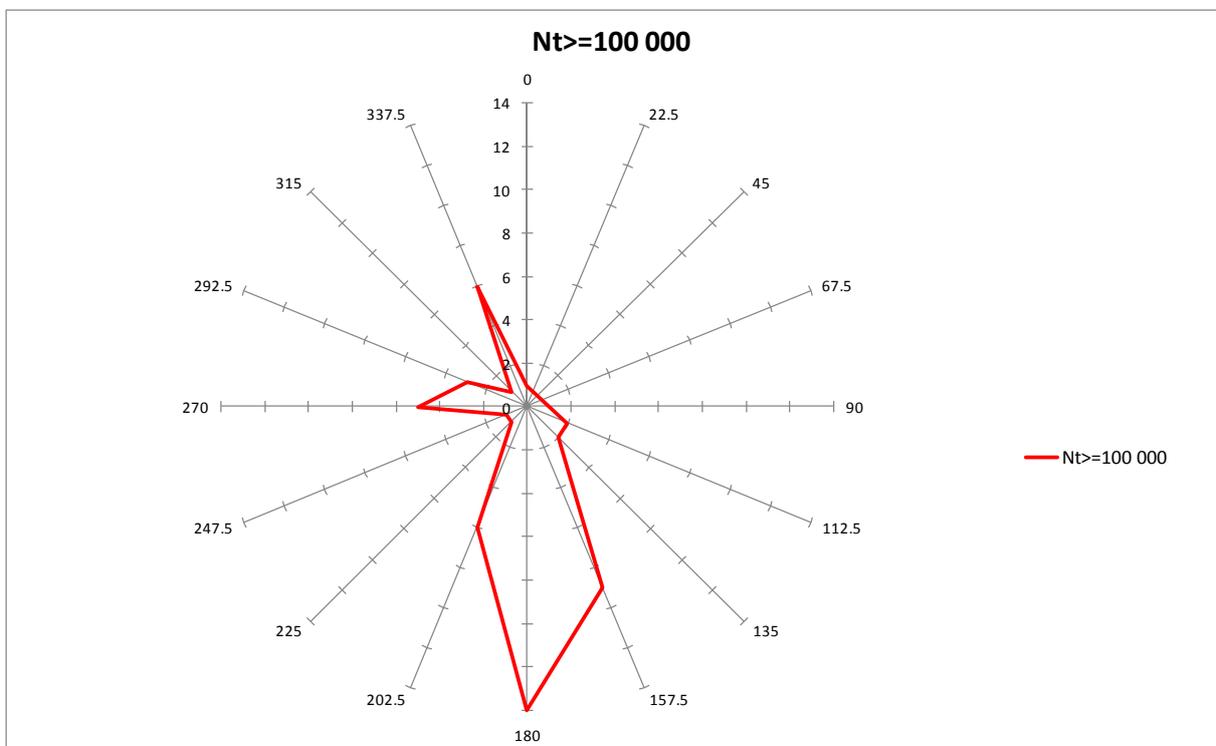


Figure 39 : rose de pollution pour les valeurs élevées (> 100 000 p/cc) de la concentration totale en nombre

EVENEMENTS PARTICULIERS

Le tableau ci-dessous (Tableau 3) a pour objectif de répertorier et d'illustrer un certain nombre d'événements d'intérêt.

Un code est utilisé (première colonne) ; il a pour objectif de proposer des indicateurs, afin de faciliter la construction d'une vue d'ensemble.

Nous avons été confrontés à des événements exceptionnels pour ce qui est des concentrations en particules submicroniques :

Situation de type « A » : concentration en particules submicroniques supérieures au **million** par cm^3 .

Par ailleurs, notre analyse a montré le rôle des quadrants sud et ouest, ce qui nous a conduits à identifier deux types précis d'événements :

Situation de type « B » : événement ponctuel Sud

Situation de type « C » : événement ponctuel Ouest.

Type A

Pour la première fois depuis le lancement de ces travaux LCSQA, nous avons été confrontés à des concentrations extrêmement élevées, **dépassant le million de particules par centimètre cube**. A tel point qu'il est probable que le granulomètre SMPS ait saturé dans certaines situations, ce qui indique la présence d'un véritable panache, *a priori* fort peu dilué.

Ces échantillons sont rassemblés sous le vocable de situation de type « A ».

Ils peuvent *a priori* inclure des événements de type B et C. Nous remarquons notamment l'absence de corrélation avec d'autres polluants, qui est caractéristique des situations de type « B ».

Deux de ces échantillons ne peuvent cependant être classés ni en catégorie « B » ni en catégorie « C » : l'un correspond à des directions de vent multiples, l'autre au quadrant nord.

Type B

Nous relevons une deuxième catégorie d'échantillons intéressants pour les particules submicroniques : il s'agit de la catégorie « B ».

Ses caractéristiques sont les suivantes :

- les niveaux de concentration sont supérieurs à $100\,000 \text{ p/cm}^3$, et peuvent atteindre des niveaux proches du million de particules par cm^3 ;
- le vent est orienté plein sud
- les PM10 ne présentent pas de niveau de concentration exceptionnel ; leur comportement est faiblement corrélé à celui de la concentration en nombre, à l'exception de deux cas où à l'inverse les deux paramètres évoluent de manière simultanée.

Nous ne relevons pas de comportement spécifique pour les autres paramètres

Il est à noter que plus de la moitié de ces événements ont lieu la nuit, ce qui exclut une possible source photochimique.

La catégorie « B » est donc avant tout caractérisée par de hauts niveaux de particules submicroniques, et un vent au sud.

A titre d'exemple, nous relevons une moyenne horaire de 750 000 p/cm³ le 27 juillet entre minuit et une heure du matin, le vent étant orienté plein sud (174°) et soufflant à 6 m/s.

Type C

Nous distinguons 9 situations de type « C » : dans le cadre d'un régime de vent d'ouest, pour des vitesses supérieures à 3 m/s, cette situation concerne avant tout le SO₂.

Cette direction de vent et la présence de SO₂ privilégient une origine industrielle.

Nous constatons par ailleurs de manière quasi-systématique une augmentation de la concentration en particules submicroniques : d'une part, le suivi temporel est comparable avec celui du dioxyde soufre, et d'autre part, la concentration en nombre atteint des niveaux significatifs, dépassant dans deux cas 100.000 p/cc.

Enfin, nous observons également une remontée de la concentration en NO₂.

Code	Date, heure	Vent	SO ₂	PM10	NO	NO ₂	Nt (p/cc)	*
C	23 juin, 16h à 21h	275°, 5 m/s	> 50 µg/m ³	+	ad	ad	++	
C	24 juin, 17h-20h	210°, 4m/s	> 50 µg/m ³	+	ad	ad	+	
C	25 juin, 11h-12h	225°, 54m/s	> 50 µg/m ³	+	ad	ad	++	
C	30 juin, 20h	O (290°, 64m/s)	Pic < 50 µg/m ³	Pic < 100 µg/m ³	ad	ad	>100.000	
	7 juillet, 12h30	NNO		Ras				
C	8 juillet, 19h-21h	O (≈ 280°)	Pic < 50 µg/m ³	Pic < 100 µg/m ³	ras	x	>100.000	
	10 juillet	SO	ad	ad	ad	ad	ad	
	13 juillet	SO						
B	18 juillet, 0h	S (182°)	+	ras	ras	+	>100.000	
B	18 juillet, 11h	S (176°)	ras	Pic < 100 µg/m ³	ras	ras	>100.000	
B	18 juillet, 14h	S (192°)	ras	Ras	ras	ras	>100.000	
B	18 juillet, 21h-22h	S (170°)	ras	+	ras	ras	>100.000	
B	19 juillet, 0h-3h	S (150-190°)	ras	ras	ras	ras	>100.000	
B	20 juillet, 2h-7h	S	ras	+	ras	+	>100.000	
B	27 juillet, 0h	S (174°)	ras	Pic < 100 µg/m ³	ras	ras	>100.000	
A	27 juillet 23h au 28 juillet 14h	Directions multiples, 4 à 7 m/s	ras	+	ras	+	>100.000 >> 1.000.000	
C	28 juillet, 17h-18h	275°, 6 m/s	> 50 µg/m ³	+	ras	++	>100.000	
A	29 juillet, 4h-8h	N	ras	ras	ras	ras	>> 1.000.000	
C	30 juillet, 14h-21h	280°, 5 m/s	> 50 µg/m ³	+	ras	++	++	
C	31 juillet	245°, 5 m/s	Pic < 50 µg/m ³	+	ras	ras	+	Feu
	1 ^{er} août	NNO	Ras	Pic 135, à 17h				perturbations
	2 août	NNO	Ras	Pic 203, à 20h				perturbations
C	3 août, 7h	285°, 6 m/s	> 50 µg/m ³	Ras	++	++	++	

Tableau 3 : synthèse des événements particuliers.

Nota : (*) : Evènement signalé par la raffinerie voisine. (ad) : absence de données.

Ras : « Rien A signaler » ie ce polluant ne présente aucun lien avec le pic observé par ailleurs

(+) : lien possible mais peu explicite avec le pic observé par ailleurs.

(++) : lien explicite. (>...) : lien explicite, et dépassant un seuil donné.

3.5 DISCUSSION

Le volet « typologie » de l'étude LCSQA sur les particules submicroniques a pour objectif de documenter les niveaux de concentration observés dans différentes situations.

L'intérêt de la campagne de mesure menée en juillet 2006 en collaboration avec AIRFOBEP, est de fournir des données dans une zone résidentielle appartenant à une zone géographique fortement industrialisée : la station de La Mède.

Nous avons tout d'abord appliqué le mode de traitement des données utilisées pour la station de Gennevilliers (station utilisée pour notre action « long terme »).

Le rapport publié en 2006 a montré que cette approche n'était pas suffisante : en effet, alors que la station de fond parisienne montre des comportements récurrents, avec notamment un véritable cycle journalier, il en va tout autrement pour la station de La Mède. Celle-ci présente une très grande variabilité qu'il convient d'étudier de manière plus spécifique.

Le travail complémentaire effectué en 2008 fait apparaître un ensemble très riche d'informations.

Un premier élément particulièrement marquant est la mise en évidence pour un nombre important de valeurs horaires, de niveaux de concentration beaucoup plus élevés que sur le site de fond parisien, avec des **valeurs tout à fait inhabituelles**, dépassant le million de particules par centimètre cube ! Si la concentration médiane est comparable aux valeurs parisiennes (13.000 p/cc) il n'en est pas de même pour le centile 95 (86.200 p/cc pour 20.700 p/cc en été 2005 à Paris), et encore moins pour le maximum : > 9.000.000 p/cc (saturation du SMPS) pour 92.600 p/cc en été 2005, soit au moins 100 fois plus.

A ce titre, l'épisode le plus marquant est celui du 29 juillet qui se distingue par des valeurs élevées de 4h du matin à 9h : il ne s'agit donc en aucun cas de photochimie.

Comme autre élément marquant, cette seconde partie de l'étude renforce l'idée de **complexité du site** : la rose de pollution en particules submicroniques montre en effet au moins trois directions / quadrants d'origine pour ce qui est des valeurs supérieures à 1.000.000 p/cc. De plus, si certains événements sont communs à plusieurs polluants (cf. le SO₂, les particules ultrafines, voire le NO₂), d'autres situations ne semblent concerner que des polluants isolés. C'est par exemple le cas des pics de PM10 supérieurs à 100 µg/m³ ou les pics ponctuels en particules submicroniques se produisant par vent de sud (catégorie « B »).

Cette **complexité** est très probablement associée avant tout à la multiplicité des sources, ainsi qu'à leurs différences en nature, intensité, variation dans le temps.

Le mesurage de la concentration en nombre permet de renforcer la signalisation d'événements identifiés par ailleurs (exemple : pics de SO₂).

De surcroît, il met en évidence des événements non-détectés jusqu'ici. Notre étude a permis de référencer 33 événements² : 11 concernent uniquement le PM10, 22 sont décrits dans le Tableau 3. Sur ce total, 14 (42%) impliquent les particules submicroniques dont 9 (27%) concernent exclusivement les particules submicroniques.

Il convient de faire remarquer que nombre d'échantillons présentant des concentrations élevées en particules submicroniques sont des échantillons nocturnes. La photochimie ne peut être retenue dans ce cas comme une source. En conséquence, se pose la question de l'identité de ces sources nocturnes, une possibilité étant l'existence de procédures industrielles se déroulant de manière plus fréquente de nuit.

A l'inverse, les événements « PM10 » sont principalement diurnes.

RETOUR D'EXPERIENCE D'AIRFOBEP

Nous rapportons dans ce paragraphe un certain nombre de réflexions basées sur nos échanges avec nos partenaires d'AIRFOBEP.

Effet de panache

Nous avons observés des pics particulièrement brefs dans le temps.

Cet aspect est bien connu de nos partenaires (ainsi que des modélisateurs) qui l'associent au caractère assez limité dans l'espace de panaches : une distance de quelques mètres peut suffire à séparer des niveaux de concentration de fond de niveaux de concentration aiguë.

Le SO₂ est qualifié de polluant « très directionnel » : ceci est peut être l'illustration de cet effet « de panache ».

Catégorie C :

Le quadrant ouest – sud-ouest constitue une situation référencée pour le site de La Mède.

Il s'agit d'une typologie qualifiée « d'industrielle » : en effet, la zone de La Mède est considérée comme étant alors sous l'influence de la raffinerie TOTAL, ainsi que du site industriel de Lavera (INEOS et Naphtachimie).

Dans une telle situation, le dispositif STERNES est activé : il s'agit du dispositif de réduction des émissions soufrées. STERNES existe depuis une vingtaine d'année, et, depuis janvier 2009, est désormais activé à partir de données de prévisions météorologiques.

Nous avons regroupé lors de cette étude tout un ensemble de données -la catégorie « C »-, qui correspondent effectivement à un vent d'ouest, et à des niveaux de concentration significatifs en SO₂.

Sur ce point, résultats de l'étude et retour d'expérience sont convergents.

Pics de PM10, catégories A et B

² L'événement du 10 juillet n'est pas pris en compte dans ces calculs, la station de mesure étant à l'arrêt (coupure électrique).

Qu'il s'agisse des pics de PM10 attribués au quadrant nord, ou des catégories A et B, ces observations ne trouvent pas un écho immédiat dans l'expérience d'AIRFOBEP.

L'interprétation de ces événements n'est pas aisée à ce jour.

Cette question mériterait d'être étudiée plus avant, par exemple dans le cadre de la validation du dispositif STERNES.

3.6 CONCLUSION

En conclusion, les niveaux de concentration en particules submicroniques sont **les plus importants que nous ayons observés à ce jour** au cours de ce programme LCSQA.

Des **périodes de concentration –et donc d'exposition- extrêmement élevée** ont été observées (catégorie A). Ces dernières -menant à une saturation du granulomètre SMPS- ont atteint des niveaux comparables à ceux que l'on peut observer à la source de procédés de combustion (Fraboulet 2006, 2007).

Les situations sous influence industrielle détectées à l'aide du SO₂ (catégorie C), correspondent systématiquement à une augmentation de la concentration en nombre des particules.

Dans leur majorité, les catégories A et B correspondent à des valeurs tout à fait acceptables pour les polluants réglementaires mesurés le site ; en revanche, la prise en compte de la concentration en nombre nous amène à considérer la qualité de l'air comme dégradée, voire extrêmement dégradée (catégorie A). En d'autres termes, les paramètres de surveillance actuellement disponibles sur le site **ne permettent pas de détecter la totalité des situations à risque.**

Ces situations inédites, ainsi que l'atteinte de valeurs extrêmes, justifieraient qu'une telle étude soit poursuivie dans le but d'identifier les sources. Pour ce faire, il serait nécessaire d'adopter une démarche statistique et par conséquent d'élargir de manière conséquente la base de données.

De manière plus générale, cette étude confirme l'attention qu'il convient de porter aux populations imbriquées dans des zones industrielles, à l'image du site de La Mède.

4. VEILLE, PROSPECTIVE

4.1 NORMALISATION CEN

Dans un premier temps, nous avons identifié une activité tout à fait intéressante au niveau CEN, portant sur la mise en œuvre de techniques de mesurage en taille et nombre, dans un contexte « hygiène professionnelle ». Les références exactes sont les suivantes :

« Atmosphères des lieux de travail — Caractérisation des aérosols ultrafins/nanoaérosols — Détermination de la distribution de la taille et concentration en nombre en utilisant des systèmes d'analyse de mobilité électrique différentielle » - CEN/TC 137/WG 3

Dans un second temps, et de manière encore plus intéressante, l'année 2008 a été marquée par la constitution au niveau CEN, d'un groupe de travail dédié à la problématique du mesurage en nombre et taille des particules en air ambiant.

Les références précises de ce groupe sont les suivantes :

CEN/TC 264/WG 32 "Air quality – Determination of the particle number concentration"

Le LCSQA / INERIS s'est porté candidat à la participation à ce groupe. Cette candidature a été acceptée, les représentants français étant désormais A. Ustache et O. Le Bihan, LCSQA / INERIS.

Une première réunion est programmée le 27 janvier 2009, Düsseldorf (Germany).

Il est à noter par ailleurs que le réseau EUSAAR sera également représenté (cf. paragraphe suivant).

4.2 RESEAU EUSAAR

Le réseau EUSAAR propose pour l'essentiel, d'une part des actions concertées en matière de protocoles de mesurage, et d'autre part des activités concertées de recherche (cf. annexe 2).

Un lien a été établi entre la présente fiche LCSQA et le réseau EUSAAR, et plus précisément avec les activités NA3 et NA5, à savoir le volet « caractérisation physique de l'aérosol », et le volet « gestion des données ».

Dans le cadre des activités NA3, un Workshop dédié à la mesure par S/DMPS est organisé début juin 2009 à Leipzig (Allemagne).

Notre principal objectif est de comparer les protocoles utilisés en matière de contrôle et de mise en œuvre du matériel dans le cadre des travaux LCSQA, avec ceux utilisés par la communauté de recherche EUSAAR, qui est la principale communauté à mettre en œuvre de manière permanente (« monitoring ») des granulomètres.

5. CONCLUSION ET PERSPECTIVES

Le risque sanitaire lié à la présence de particules submicroniques dans l'air ambiant a conduit au lancement dès 2003 d'une action spécifique du dispositif français de surveillance de la qualité de l'air, par le biais de travaux pluri-annuels confiés au LCSQA. Ceux-ci comportent différentes activités complémentaires.

Depuis 2003, la concentration en nombre et la distribution en taille des particules de diamètre compris entre 10 nm et 20 µm sont étudiées grâce à la réalisation de campagnes de mesure de 5 semaines. Une défaillance importante sur l'un des appareils installés par le LCSQA a été constatée pour la première fois en 2008.

En ce qui concerne la qualité de la mesure, deux actions nouvelles doivent être signalées : un groupe de normalisation consacré au mesurage « taille et nombre » dans l'« air ambiant », auquel participera le LCSQA / INERIS, a été lancé ; d'autre part, le LCSQA s'est rapproché des membres du projet européen EUSAAR afin de participer à leurs travaux communs sur la métrologie des particules (nombre, taille), et tout particulièrement à des exercices d'intercomparaison.

Le volet « typologie » de ce programme a été consacré en 2008 à deux actions :

Le LCSQA a participé à la première campagne du projet FORMES. Ce programme nous permet de collaborer avec la communauté française de recherche spécialisée dans le développement d'outils d'analyse en temps réel des caractéristiques physico-chimiques des particules submicroniques.

Nous avons également réalisé une analyse complémentaire de la campagne « typologie » menée à la station AIRFOBEP de « La Mède » : cette station, placée dans une zone résidentielle sous influence industrielle, se révèle soumise à des caractéristiques d'exposition extrêmement variables. Cette variabilité concerne aussi bien l'évolution temporelle des concentrations que l'origine géographique des particules. Le contraste est saisissant par rapport à la station de Gennevilliers qui est caractérisée par des profils de concentration relativement répétables d'une campagne de mesure à une autre. Des situations types ont été identifiées, dont certaines correspondent à un niveau d'exposition extrême. Ces résultats posent la question de l'existence de situations à risque, ainsi que d'événements nocturnes. Ils nous appellent à poursuivre ce travail, en cherchant tout d'abord à étoffer la base de données.

Enfin, et il s'agit ici du fait le plus marquant de cette année, , une analyse statistique des données recueillies depuis 2003 sur le site de fond de Gennevilliers a pu être réalisée à partir du travail préparatoire effectué en 2007. Rappelons que celui-ci a permis la constitution d'une base de données destinée à être enrichie au fil du temps. Des variables complémentaires ont été introduites en 2008, notamment issues des travaux récents d'AIRPARIF en matière d'inventaire d'émissions.

De cette analyse nous avons pu tirer pour le site de Gennevilliers un descriptif particulièrement intéressant des facteurs d'influence que sont le chauffage urbain, le trafic, et la météorologie (notamment la hauteur de couche limite).

Les perspectives qui s'ouvrent sont les suivantes :

Nous sommes désormais engagés dans une démarche de consolidation de ce qui pourrait devenir un véritable protocole commun QA/QC, basé d'une part sur les nouveaux travaux normatifs, et d'autre part sur les discussions techniques et les intercomparaisons du projet EUSAAR.

Le programme FORMES comprend une seconde campagne sur le site de Grenoble, en janvier 2009.

L'étude conduite à « La Mède » suggère la création d'un nouveau type d'intervention : dans le cas d'une problématique locale très spécifique, notamment dans des cas d'influences industrielles où l'on s'interroge sur l'origine et les circonstances de pics de concentration, il s'agirait de mettre en œuvre une action de mesurage sur plusieurs mois afin de faciliter le traitement de la question posée.

L'analyse statistique des données recueillies depuis 2003 à la station de Gennevilliers a permis d'établir un schéma de compréhension qui montre l'implication des émissions (trafic, chauffage urbain) et de la météorologie (vent, couche limite) dans la pollution liée aux particules submicroniques. En 2009, nous proposons de dresser un bilan des résultats obtenus par rapport aux travaux réalisés en parallèle, aux données bibliographiques et à ce qui est fait par les autres équipes européennes.

6. REFERENCES

I. Fraboulet, X. Chaucherie, F. Gouriou, B. Graziotin, N. Karoski, H. Thille, O. Le Bihan, "Détermination de la granulométrie des aérosols dans les émissions canalisées : cas d'une cimenterie", *Asfera* 2006.

I. Fraboulet*, F. Gouriou, A. Ungar, E. Joos, X. Chaucherie, F. Gautier, E. Fiani, O. Le Bihan, "Size distribution of fine Particles in Stack emissions of a 600-MWe coal-fired Power Plant", *Proceedings of the 8th International conference on emissions monitoring*, 5-6 september 2007, Zurich, Switzerland, pp. 51-56, 2007.

M. Hallquist, J. C. Wenger, U. Baltensperger, Y. Rudich, D. Simpson, M. Claeys, J. Dommen, N. M. Donahue, C. George, A. H. Goldstein, J. F. Hamilton, H. Herrmann, T. Hoffmann, Y. Iinuma, M. Jang, M. Jenkin, J. L. Jimenez, A. Kiendler-Scharr, W. Maenhaut, G. McFiggans, Th. F. Mentel, A. Monod, A. S. H. Prevot³, J. H. Seinfeld, J. D. Surratt, R. Szmigielski, and J. Wildt "The formation, properties and impact of secondary organic aerosol: current and emerging issues", *Atmospheric Chemistry and Physics (ACP)*, on discussion (Web), February 2009.

Le Bihan O., 2004 – rapport LCSQA « Particules submicroniques », déc. 2004, www.lcsqa.org

Le Bihan O., 2005 – rapport LCSQA « Particules submicroniques », déc. 2005, www.lcsqa.org

Le Bihan O., Mathé F., 2006 – rapport LCSQA « Particules submicroniques », déc. 2006, www.lcsqa.org

Kulmala, M. et Kerminen, VM., 2008. On the formation and growth of atmospheric nanoparticles. *Atmospheric Research*, Vol. 90, N°2-4, pp. 132-150.

Kulmala M., Vehkamäki H., Petäjä T., Dal Maso M., Lauri A., Kerminen V.-M., Birmili W. et McMurry P.H., 2004. Formation and growth rates of ultrafine atmospheric particles: a review of observations, *J. Aerosol Sci.* 35 (2004), pp. 143–176.

Morawska L., Ristovski Z., Jayaratne E.R., Keogh D.U., Ling X., 2008. Ambient nano and ultrafine particles from motor vehicle emissions: characteristics, ambient processing and implications on human exposure. *Atmospheric Environment*, 42, 8113-8138.

Watson J.G., Chow J.C., Park K., Lowenthal D.H., 2006. Nanoparticle and ultrafine particle events at the Fresno Supersite. *Journal of the Air and Waste Management Association*, 56, 417-430.

7. LISTE DES ANNEXES

Repère	Désignation	Nombre de pages
Annexe 1	Analyse statistique des données de Gennevilliers, figures complémentaires	2
Annexe 2	Participation au programme FORMES	3
Annexe 3	Détail des activités du projet EUSAAR	1

ANNEXE 1 : ANALYSE STATISTIQUE DES DONNEES DE GENNEVILLIERS. FIGURES COMPLEMENTAIRES

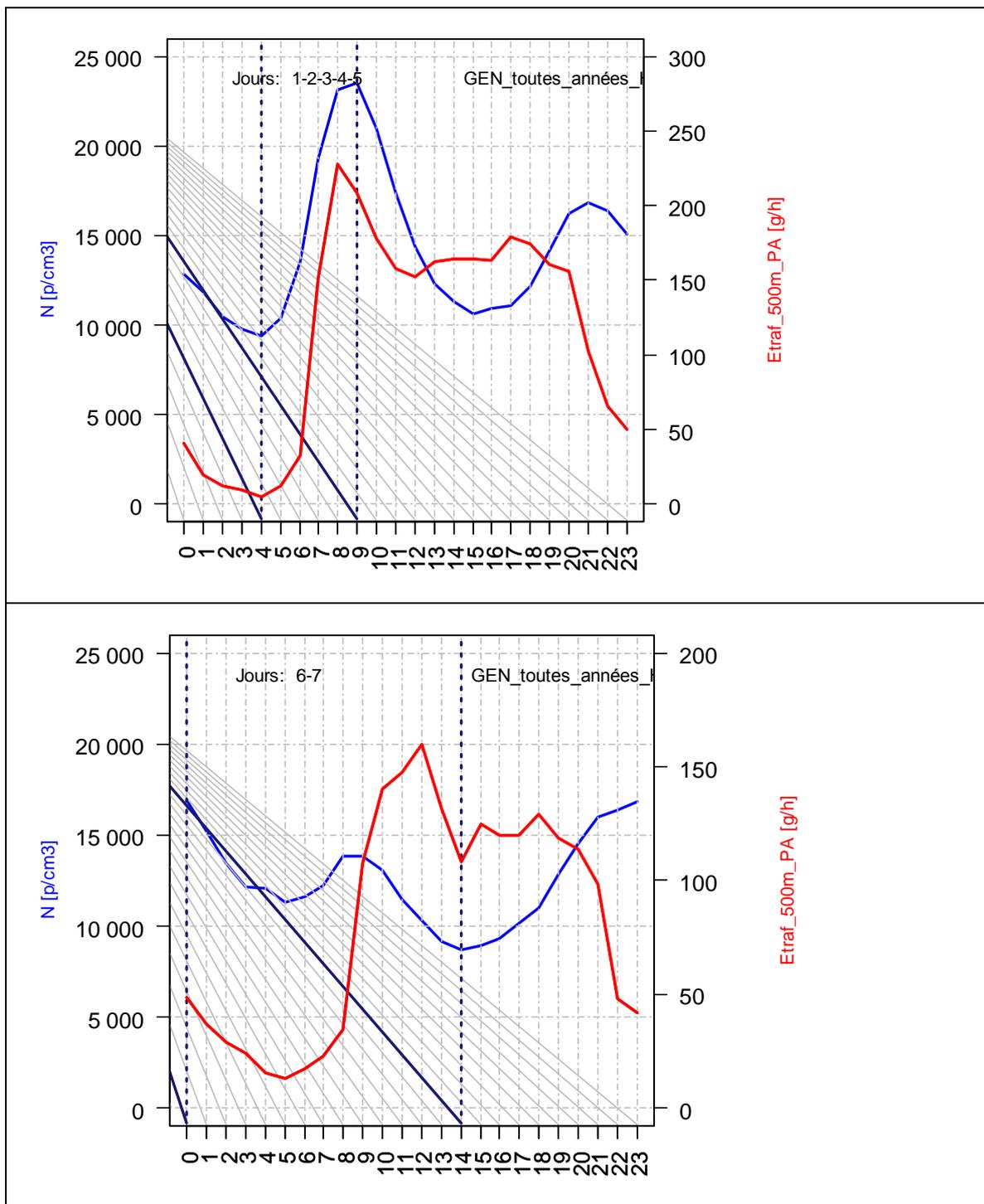


Figure 40 - Représentation du cycle journalier de N (en bleu) et de variables d'émissions (trafic/particules) pour les jours ouvrés (fig. du haut) et le week-end (fig. du bas). Moyenne sur les campagnes hivernales (2003 à 2007).

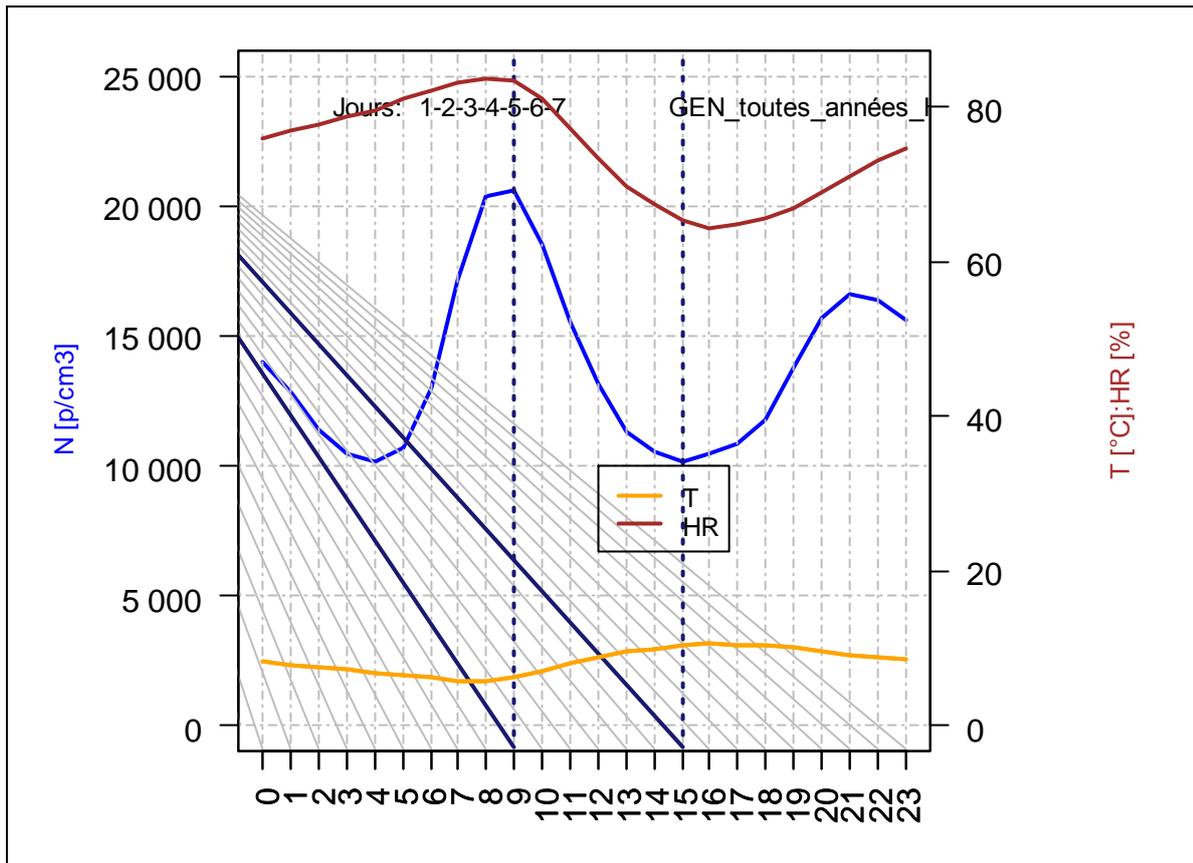


Figure 41 – Représentation du cycle journalier de N (en bleu) et de différentes variables météorologiques (température et humidité relative). Moyenne sur les campagnes hivernales (2003 à 2007).

ANNEXE 2 : PARTICIPATION AU PROGRAMME FORMES

Le programme FORMES est un projet de recherche dédié à l'étude de la fraction organique de l'aérosol urbain. Il regroupe une grande partie des laboratoires de recherche français dans le domaine, ainsi que deux AASQA, Atmo PACA et Atmo Rhône-Alpes.

Différentes informations concernant le programme FORMES sont accessibles sur le site internet suivant :

<http://www.univ-provence.fr/gsite/document.php?pagendx=6809&project=lcp-ira>.

Objectif de ce rapprochement

Un lien a été établi avec cette étude LCSQA pour trois raisons principales :

- se rapprocher d'acteurs spécialisés sur notre sujet d'étude,
- et détenteurs d'un savoir-faire de pointe sur la mesure de la composition de l'aérosol, notamment ultrafin ;
- dans ce contexte, mettre en œuvre nos techniques de mesurage traditionnelles et émergentes (TSI 3031), dans une perspective de validation de méthode.

Programme FORMES : Résumé du projet et résultats attendus [site Web]

Fraction Organique de l'aérosol urbain : Méthodologie d'Estimation des Sources (FORMES)

Présentation

Depuis quelques décennies, les relations entre santé publique et particules atmosphériques se sont affinées et le rôle prépondérant de l'aérosol organique et de certaines sources de combustion a progressivement été mis en évidence, particulièrement pour les sites de proximité en zone urbaine. Si un important travail, à mener sur le long terme, est encore nécessaire pour établir des relations claires entre santé et pollution particulaire, la réduction du risque sanitaire passe impérativement par une réduction des niveaux d'exposition moyens. Or, la mise en place de politiques efficaces visant à la réduction des niveaux de concentrations en PM (directive 1999/30/CE) exige la connaissance préalable des sources de l'aérosol mesuré dans l'air ambiant. Cette connaissance est encore très parcellaire, particulièrement celle relative à l'influence des sources secondaires pour lesquelles il n'existe pas de méthodologie de référence.

Dans ce contexte, nous proposons donc de développer une étude de démonstration pour une méthodologie de détermination quantitative de l'influence des différentes sources sur la fraction organique de l'aérosol urbain (primaires et secondaires), Cette étude sera menée dans des environnements et conditions météorologiques et photochimiques très différenciés : Marseille l'été, et Grenoble l'hiver. Les objectifs du programme FORMES sont 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,

* Au terme du programme, proposer une méthodologie simplifiée d'étude des sources à la fois primaires et secondaires, opérationnelle pour une large gamme de sites.

La méthodologie adoptée comprend plusieurs approches. Tout d'abord, la spéciation des sources primaires sera 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, levoglucosan, alcanes linéaires, acides carboxyliques, HAP, ...). Cette méthodologie devra tenir compte d'approches complémentaires comme l'étude des isotopes du carbone, ou l'utilisation de méthodes statistiques plus adaptées à la connaissance des profils de sources (UNMIX, PMF). Ensuite, la contribution de la fraction secondaire, d'une approche beaucoup plus complexe, sera évaluée principalement selon deux méthodes. La première est fondée sur les résultats obtenus par AMS (Aerosol Mass Spectrometer, Aerodyne) qui permet de faire la différence entre les fractions primaires et secondaires. La seconde est plus exploratoire et vise à étudier les relations entre les propriétés physiques des particules (volatilité et hygroscopicité) et les processus photochimiques donnant naissance à l'aérosol organique secondaire.

Equipes impliquées dans le projet :

Laboratoires de recherche :

* Laboratoire Chimie Provence (LCP-IRA), UMR 6264 CNRS-Université de Provence

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

* Laboratoire de Chimie Moléculaire et Environnement (LCME), Polytech'Savoie-Université de Savoie

* Laboratoire de Météorologie Physique (LaMP), UMR 6016 CNRS-Observatoire de Physique du Globe de Clermont Ferrand-Université Blaise Pascal Clermont Ferrand

* Institut de Recherches sur la Catalyse et l'Environnement de Lyon (IRCELYon), UMR 5256 CNRS-Université Claude Bernard Lyon

Associations Agréées de Surveillance de la Qualité de l'Air :

* ATMO-PACA (Marseille)

* ASCOPARG (Grenoble)

Partenaires supplémentaires non officiellement partenaires de FORMES :

- LCSQA / INERIS (G. Aymoz, O. Le Bihan et E. Leoz),

- ISM-LPTC (Bordeaux, E. Villenave et H. Budzinski)
- LSCE (J. Sciare).

Coordination du projet :

Jean-Luc JAFFREZO (LGGE, Grenoble) et Nicolas MARCHAND (LCP-IRA, Marseille)

Programme : PRIMEQUAL

Financement : ADEME, MEDAD

Résultats préliminaires : Campagne de terrain (Marseille, Juillet 2008)

Présentation générale de la campagne [site Web]

La première campagne de terrain du programme FORMES s'est déroulée à Marseille, au cœur du Parc Longchamp, du 29 Juin au 15 Juillet 2008.

Créé depuis 1995, le site de mesure est un site historique de l'association chargée de la surveillance de la qualité de l'air en région PACA (ATMO-PACA, site de 5 avenues). Ce site de référence, fortement instrumenté en routine par ATMO-PACA (ozone, oxydes d'azote, dioxyde de soufre, monoxyde de carbone, benzène, masse des particules en suspension -PM10, PM2.5-), est représentatif de l'air respiré par un large bassin de population et influencé par une large gamme de sources primaires.

Au cours de cette campagne un total de 435 échantillons de particules atmosphériques ont été collectés, à l'aide de 9 préleveurs de particules. Ces échantillons seront analysés dans le courant de l'automne 2008 dans les différents laboratoires impliqués dans le projet. Au total plus d'une centaine de paramètres chimiques seront quantifiés avec une résolution temporelle de 12h.

A cette instrumentation dite "off-line", s'ajoute le déploiement d'instruments de recherche très spécifiques permettant une analyse en ligne (c'est à dire en temps réel ou quasi réel) des particules et des composés organiques gazeux présents dans l'atmosphère (AMS, PTRMS, SMPS, HVTDMA, PILS-TOC).

Résultats [site Web]

Le rapport intermédiaire du programme FORMES est consacré majoritairement aux résultats obtenus lors de la campagne de Marseille, l'analyse de ceux-ci étant appelée à se poursuivre au cours du projet.

ANNEXE 3 : DETAIL DES ACTIVITES EUSAAR

- Protocoles :

- NA2: Standardised measurement protocols, intercomparisons and quality assurance of carbonaceous particulate matter.
- NA3: Standardised measurement protocols, intercomparisons and quality assurance of aerosol physical properties (including nanoparticles)
- NA4: Standardised measurement protocols, intercomparisons and quality assurance of aerosol optical properties
- NA5: Standardised data protocol and central database
- NA6: Audits and capacity building

- Joint Research Activities

- JRA1: Operational retrieval of vertical profiles of aerosol parameters from DOAS technique
- JRA2: Building a new generation of humidity-controlled aerosol monitors

JRA3: Real-time data acquisition of advanced parameters