

Note technique

Travaux financés par le ministère chargé de l'environnement

ESTIMATION DES CONCENTRATIONS DE PM LIÉES A LA COMBUSTION DE BIOMASSE A PARTIR DES MESURES D'ABSORPTION PAR LE BROWN CARBON (BRC)

Olivier FAVEZ (INERIS)

SYNTHESE

Le dispositif national s'est équipé ces dernières années d'Aethalomètre multi-longueurs d'onde (de type AE33) permettant d'assurer la surveillance du carbone suie en tant que traceur potentiel de polluants responsables de l'impact sanitaire des particules, mais également de différencier les émissions de ce composé dues à la combustion d'hydrocarbures de celles liées à la combustion de biomasse (BC_{ff} vs. BC_{wb}). Il est ainsi possible de disposer d'une première estimation des concentrations de PM issues de ces deux familles de sources à l'aide de simples approches mono-traceur ($PM_{ff} = a \times BC_{ff}$ et $PM_{wb} = b \times BC_{wb}$). Cependant, les profils chimiques des particules émises par combustion de biomasse peuvent être très différents d'un site et/ou d'une période de mesure à l'autre, induisant une forte incertitude sur les valeurs du facteur de conversion à appliquer entre BC_{wb} et PM_{wb} selon le cas d'étude. La valeur de ce facteur reste très incertaine si elle ne peut pas être contrainte par le biais d'études de sources spécifiques et indépendantes (e.g., mesures sur filtres).

Outre le carbone suie, les combustions de biomasse émettent principalement de la matière organique, dont une partie absorbe le rayonnement lumineux dans le proche ultraviolet. Cette fraction organique absorbante, appelée *Brown Carbon* (BrC), n'est pas identique d'une combustion à l'autre, ne provient pas uniquement de la combustion de biomasse et n'est pas le seul composé (en plus du carbone suie) à absorber la lumière autour de 400 nm. Malgré ces nombreux facteurs d'incertitudes, on observe de très fortes corrélations entre les concentrations de PM issues de la combustion de biomasse et la quantité de lumière absorbée dans le proche UV par le BrC sur un panel de différents sites de fond urbain français. Ces résultats suggèrent la possibilité d'estimer directement les concentrations d'aérosols organiques issues de la combustion de biomasse, sans hypothèses sur la part de Black Carbon liée à la biomasse.

1. CONTEXTE

Le programme CARA a été mis en place en 2008, en réponse au besoin de compréhension et d'information sur l'origine des épisodes de pollution particulaire. Ce programme repose historiquement sur l'analyse chimique au laboratoire (Ineris, IMT Lille-Douai ou laboratoires universitaires) de filtres collectés par les Associations agréées de surveillance de la qualité de l'air (AASQA) en plusieurs points du dispositif national. Néanmoins, l'utilisation exclusive de prélèvements sur filtres et l'analyse différée ne répondait pas bien au besoin grandissant d'une détermination en temps quasi-réel de la composition chimique des PM. Le développement d'analyseurs automatiques dimensionnés pour la surveillance sur le long terme - en particulier l'Aethalomètre multi-longueur d'onde AE33 et l'Aerosol Chemical Speciation Monitor : ACSM – a permis de compléter le dispositif « sur filtres ». Ce dispositif opérationnel, unique en Europe, est aujourd'hui exploité par les acteurs du dispositif national pour une compréhension en temps réel de l'origine des épisodes de pollution particulaire [1].

Dans ce contexte, le programme CARA se doit de proposer des méthodologies simples mais rapides d'estimation des sources à partir des mesures automatiques de composition chimique réalisées par les AASQA. Pour l'AE33, une première approche de déconvolution des sources de combustion est basée sur la distinction entre les deux principales fractions du Black Carbon (BC) que l'on peut relier à la combustion d'hydrocarbures (BC_{ff}) et à la combustion de biomasse (BC_{wb}). Ces fractions peuvent ensuite être utilisées pour estimer (à l'aide d'un facteur multiplicatif et avec une précision de l'ordre de $\pm 50\%$) les concentrations de PM_{10} attribuables aux deux familles de sources (notées respectivement PM_{ff} et PM_{wb}), telles que :

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

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

où PM_{ff} et PM_{wb} représentent la concentration massique de particules PM_{10} issues respectivement de la combustion d'hydrocarbures et de la combustion de biomasse.

Outre le BC, PM_{ff} et PM_{wb} sont constituées principalement de composés organiques. Les coefficients a et b permettent de tenir compte de ces contributions. Ces coefficients sont issus (i) de la littérature scientifique pour la contribution fossile, et (ii) d'études précédentes pour la contribution biomasse. En effet, les émissions de combustion de biomasse sont très inhomogènes d'un type de bois à un autre, d'un type de foyer à un autre, ... de sorte que des coefficients b significativement différents (e.g., compris entre 8 et 18) peuvent être obtenus d'un site de mesure à un autre [2]. Il est également à noter que le BC représente une part assez faible (typiquement entre 5 et 15%) des émissions de combustion de biomasse, engendrant une forte incertitude sur les estimations de PM_{wb} telles que proposées ci-dessus. Ainsi, les AASQA n'ayant pas eu la possibilité de réaliser une campagne de détermination indépendante de PM_{wb} (e.g., à l'aide de mesures sur filtres [2]) en parallèle de la mise en œuvre de leur AE33 sur un site donné, utilisent actuellement une valeur par défaut du coefficient b (=10, afin de minimiser les risques de surestimation de PM_{wb}) pour le site de mesure concerné.

La présente note vise à proposer une méthodologie alternative d'estimation de PM_{wb} , pouvant être utilisée par les AASQA n'ayant pas d'éléments leur permettant de choisir la valeur du coefficient b à appliquer pour une ou plusieurs de leur(s) station(s) équipée(s) d'AE33. Cette méthodologie repose sur l'absorption de la lumière dans le proche ultraviolet par une fraction - appelée *Brown Carbon* (BrC) - de la matière organique, contribuant à PM_{wb} de façon plus importante que BC_{wb} (typiquement 30-40%).

2. DESCRIPTION DE LA METHODOLOGIE PROPOSEE

Ce travail a porté sur les jeux de données recueillis pour la campagne hivernale 2014-2015 [2], en étudiant la correspondance entre les estimations de PM_{biomasse} obtenues à l'aide des mesures de lévoglucosan (composé organique traceur de combustion de biomasse) échantillonné sur filtre et celles issues des mesures AE33 dans le proche UV (autour de 400 nm). En effet, ces dernières sont influencées non seulement par le Black Carbon mais également par le Brown Carbon (BrC), constitué de composés organiques de structure similaire à celle des HAP [3]. L'absorption dans le domaine de l'infrarouge (i.e. mesures autour de 900nm pour l'AE33) n'étant influencée que par le Black Carbon, il est possible d'en déduire la part de l'absorption liée au Black Carbon, puis au BrC, dans le proche UV, selon les formules suivantes :

$$(i) \text{Babs}_{\text{BrC, UV}} = \text{Babs}_{\text{total, UV}} - \text{Babs}_{\text{BC, UV}}$$

$$(ii) \text{Babs}_{\text{BC, IR}} = a \cdot \lambda_{\text{IR}}^{-1}$$

$$\text{Babs}_{\text{BC, UV}} = a \cdot \lambda_{\text{UV}}^{-1}$$

$$\rightarrow \text{Babs}_{\text{BC, UV}} = \text{Babs}_{\text{BC, IR}} \times (\lambda_{\text{UV}} / \lambda_{\text{IR}})^{-1} = \text{Babs}_{\text{BC, IR}} \times (\lambda_{\text{IR}} / \lambda_{\text{UV}})$$

$$(iii) \text{Babs}_{\text{BC, IR}} = \text{Babs}_{\text{tot, IR}}$$

$$(iv) \text{Babs}_{\text{tot, } \lambda} = \sigma_{\lambda} \cdot \text{BCi}$$

où Babs représente le coefficient d'absorption total (Babs_{tot}), de BC (Babs_{BC}) ou de BrC (Babs_{BrC}), λ représente n'importe quelle longueur d'onde, IR et UV représentent des longueurs situées respectivement dans le proche infrarouge et le proche ultraviolet, σ représente l'efficacité d'absorption massique utilisée par défaut par l'AE33, et BCi (avec i variant de 1 à 7) représente la mesure fournie par l'AE33 pour chacune de ses longueurs d'onde.

Les valeurs de σ utilisées par défaut par le logiciel de l'AE33 sont de 18,47 à 370 nm (BC1) et de 7,19 à 950 nm (BC7).

Du système d'équations ci-dessus, on obtient donc :

$$(v) \text{Babs}_{\text{BrC, 370nm}} = (18,47 \times \text{BC1}) - ((7,19 \times \text{BC7}) \times (950 / 370))$$

$$\text{Babs}_{\text{BrC, 370nm}} \approx 18,5 \times (\text{BC1} - \text{BC7})$$

Les trois hypothèses faites ici sont :

- 1) que l'*Angström Absorption Exponent* (AAE, ou α dans l'équation (ii) $\text{Babs} \sim \lambda^{-\alpha}$) du Black Carbon seul soit bien égal à 1. Cette valeur est communément admise au sein de la communauté scientifique [4] ;
- 2) que seuls BrC et BC absorbent le rayonnement lumineux dans le proche UV. Les oxydes de fer, présents par exemple au sein des poussières sahariennes, sont également capables d'absorber autour de 400 nm [5] ;
- 3) que l'AE33 détermine, à partir d'un prélèvement sur bande filtrante, un coefficient d'absorption réellement équivalent à celui des particules en suspension dans l'air. Ce n'est vraisemblablement pas le cas, malgré les corrections d'artefacts de mesure déjà

prises en compte par cette nouvelle version d'Aethalomètre. Néanmoins, l'ajout d'une constante de correction (de type Babs « vrai » = cste x Babs « AE33 »), comme préconisé au sein d'ACTRIS¹, ne modifient pas les coefficients de corrélation discutés ci-après.

La Figure 1 ci-après présente la comparaison des valeurs de PM_{wb} estimées à l'aide de mesures journalières de lévoglucosan sur différents sites de fond urbain aux valeurs de $Babs_{BrC, 370nm}$ obtenues sur ces mêmes sites lors de l'étude de l'hiver 2014-15 [2].

On note une meilleure linéarité entre les estimations réalisées à partir des mesures sur filtres et les mesures d'absorption par le BrC ($Babs_{BrC_{370nm}}$, $r^2 = 0,94$), qu'avec les mesures de BC_{wb} (Annexe 1, $r^2 = 0,89$). Ainsi, la valeur de la pente de corrélation entre $PM_{biomasse}$ et $Babs_{BrC, 370nm}$ semble globalement plus stable d'un site à l'autre que celle de la pente de corrélation entre PM_{wb} et BC_{wb} (Tableau 1).

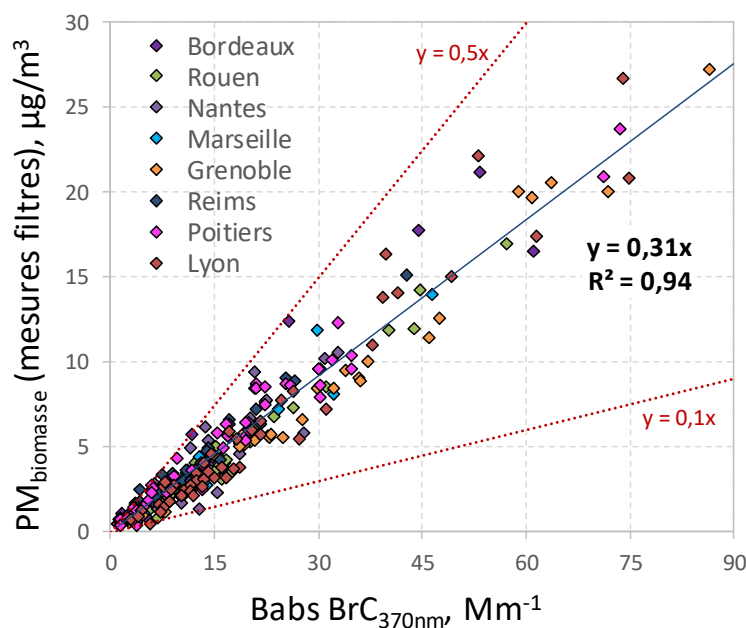


Figure 1 : Corrélation entre les concentrations de PM liées à la combustion de biomasse ($PM_{biomasse}$), estimées à partir des mesures de lévoglucosan sur filtre, et le coefficient d'absorption calculé à partir des données AE33 pour le Brown Carbon à 370 nm ($Babs_{BrC 370 nm}$) lors de la campagne hivernale 2014-2015.

Il apparaît donc raisonnable de proposer une valeur moyenne - 0,31 - comme facteur de conversion sur l'ensemble des sites de fond urbain du dispositif national équipés d'un AE33, tel que :

$$(vi) \quad PM_{biomasse} \approx 0,31 \times Babs_{BrC, 370nm}$$

$$PM_{biomasse} \approx 5,735 \times (BC1 - BC7)$$

¹ Infrastructure de recherche européenne dédiée à la mesure des de la mesure des aérosols, des espèces gazeuses réactives et des nuages (Aerosols, Clouds and Trace gases Research InfraStructure network - <http://www.actris.net/>).

Deux nouvelles hypothèses sont alors prises en compte :

- 4) l'ensemble du BrC détecté par l'AE33 dans le proche UV est directement ou indirectement issu de la combustion de biomasse ;
- 5) le profil chimique de la matière organique émise par la combustion de biomasse, et du BrC qu'il contient, est similaire d'un site de mesure à un autre.

Il est important de souligner que ces hypothèses sont entachées de très fortes incertitudes et donc soumises à controverse. Néanmoins, les résultats présentés ici (Figure 1 et Tableau 1) semblent indiquer qu'elles ne sont pas loin d'être vérifiées, au moins en hiver et à l'échelle de la France métropolitaine.

Tableau 1 : Facteurs de conversion

	PM _{biomasse} / BC _{wb} ^[2]	PM _{biomasse} / Babs _{BrC,370nm} ²	PM _{biomasse} / Babs _{BrC,470nm}
Reims	13,0	0,33	0,89
Rouen	12,7	0,28	0,79
Nantes	15,2	0,30	0,89
Lyon	13,4	0,32	0,89
Grenoble	11,1	0,29	0,78
Marseille	16,0	0,32	0,80
Poitiers	15,3	0,33	0,96
Bordeaux	14,2	0,31	0,96
Moyenne	13,8 ± 12%	0,31 ± 6%	0,87 ± 8%

Les équations ci-dessus peuvent être appliquées à d'autres paires de longueurs d'onde, e.g., à 470 nm :

(vii) $PM_{\text{biomasse}} \approx 0,86 \times B_{\text{abs,BrC,470nm}} (r^2 = 0,91),$

soit $PM_{\text{biomasse}} \approx 12,650 \times (BC2 - BC7).$

Considérer les mesures à 470 nm plutôt que celles à 370 nm pourrait permettre de réduire le panel de composés chimiques potentiellement responsables de l'absorption aux courtes longueurs d'onde qui sont un facteur d'incertitude dans les différentes hypothèses prises pour utiliser la méthodologie basée sur la mesure du BrC. Néanmoins, le couple 470-950 nm donne,

² Ces résultats sont obtenus à partir des données fournies par l'AE33, selon son paramétrage par défaut et sans correction des valeurs absolues de $B_{\text{abs},\lambda}$. De ce fait, ils diffèrent de ceux présentés dans le rapport bilan des travaux 2017 du programme CARA^[6], pour lesquels une correction avait été appliquée. Les valeurs de pentes indiquées dans le Tableau 1 de la présente note sont conformes à la décision du GT Stratégie nationale de surveillance des PUF et du carbone suie (réunion du 26 juin 2019) de bancariser et d'utiliser en temps réel les données « brutes » fournies directement par l'analyseur dans une configuration connue et commune à chaque station.

pour chaque site étudié ici, des coefficients de corrélation avec PM_{biomasse} légèrement plus faibles que ceux obtenus avec le couple 370-950 nm (cf. Tableau 1 et Annexe 2).

3. APPLICATION A UN JEU DE DONNEE LONG-TERME

Afin de tester son efficacité, la méthodologie proposée ci-dessus a été appliquée au jeu de données AE33 obtenu par Atmo Grand-Est sur la station de Metz-Borny (fond urbain) entre juin 2015 et janvier 2017, en parallèle d'une étude PMF réalisée à partir de mesures sur filtres PM10 prélevés approximativement 1 jour sur 3 pendant cette période [6-7]. La figure 2 présente les résultats de comparaison entre le facteur PMF « combustion de biomasse » (PM_{biomasse}) et les estimations des concentrations correspondant à cette source (PM_{wb}) obtenues à partir des mesures AE33, soit par application de la méthode basée sur BC_{wb} (avec un ratio $PM_{\text{wb}}/BC_{\text{wb}}$ fixé par défaut à 10) soit à l'aide de la méthode alternative proposée ici.

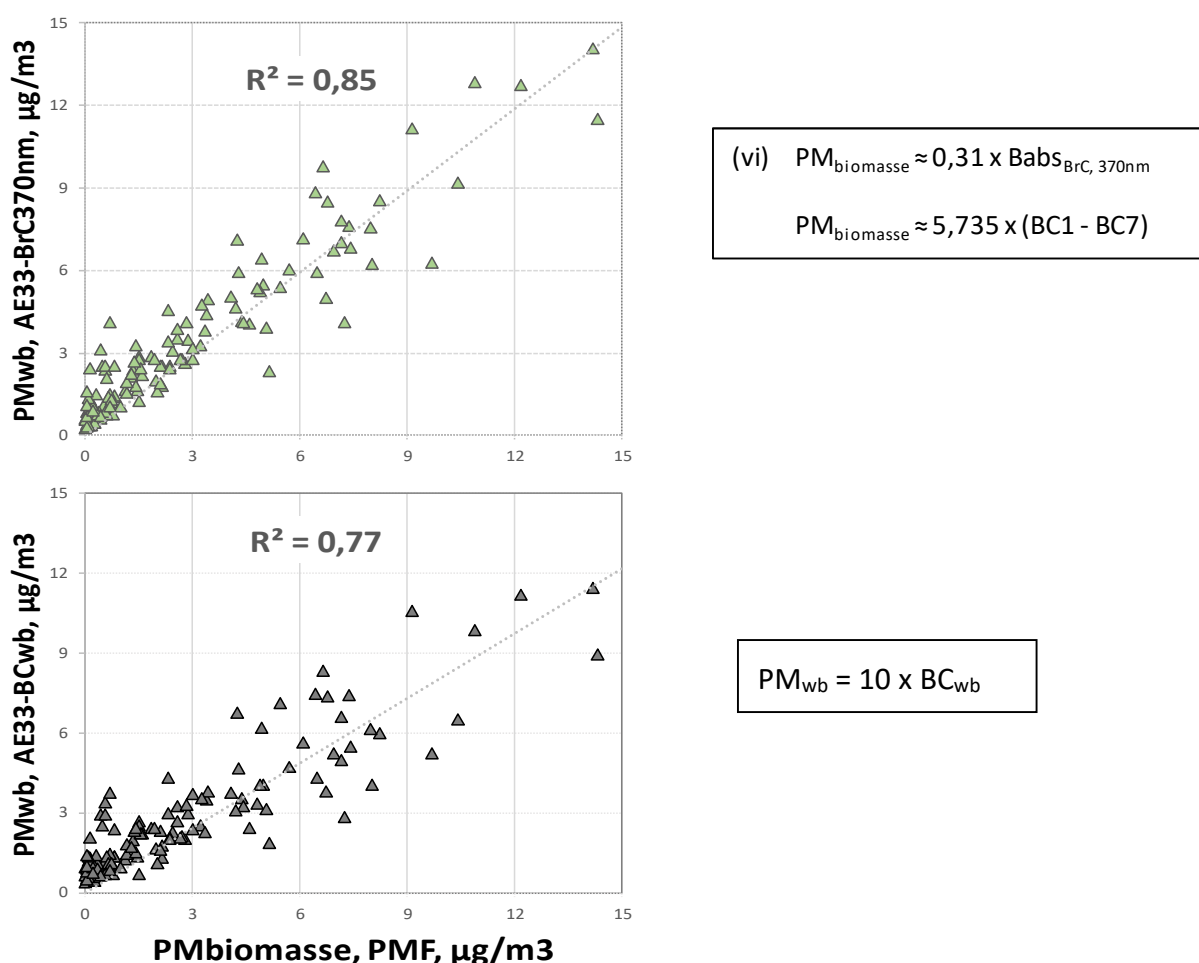


Figure 2 : Comparaison des résultats issus de trois méthodologies d'estimation des concentrations de PM_{10} liées à la combustion de biomasse : analyse PMF, « modèle Aethalomètre » basé sur BC_{wb} , et méthode alternative basée sur $Babs_{BrC}$ à 370 nm. (Cf Annexe 3 pour la comparaison entre sorties PMF et méthode basée sur $Babs_{BrC}$ à 470 nm).

On note une très bonne correspondance entre les estimations issues de l'équation (vi) et les résultats obtenus par analyse PMF pour la source combustion de biomasse, et, à nouveau, une meilleure linéarité que pour BC_{wb} . Ce test concluant semble confirmer la pertinence de la méthode alternative proposée ici pour les sites de fonds urbains français.

NB : comme pour le « modèle Aethalomètre », une tendance à la surestimation systématique

de PM_{biomasse} peut être attendue aux faibles concentrations (e.g., $PM_{\text{biomasse}} < 1 \mu\text{g}/\text{m}^3$, cf. Figure 2). Ce phénomène est susceptible d'influencer plus particulièrement les mesures en période « chaude » (fin de printemps à début d'automne), avec des contributions probablement non-négligeables de poussières crustales et/ou d'aérosols organiques secondaires à l'absorption de la lumière dans le proche UV.

4. CONCLUSION

Les formules décrites ci-dessus (équations (vi) et (vii)) peuvent être utilisées par les AASQA en première approche (i.e., pour traitement des données AE33 en temps réel et/ou dans le cas de campagnes de terrain spécifiques) pour l'estimation des concentrations de PM_{biomasse} directement à partir des mesures BC1 (ou BC2) et BC7 fournies par l'instrument.

Elles sont notamment recommandées, pour les sites de fond urbain du territoire national, dans le cas où aucune information complémentaire sur la valeur du facteur de conversion b ($PM_{\text{wb}} = b \times BC_{\text{wb}}$) n'est disponible. Dans les cas où un coefficient b peut être déterminé et validé, il est préférable d'utiliser la méthodologie d'estimation de PM_{wb} à partir de ce coefficient b .

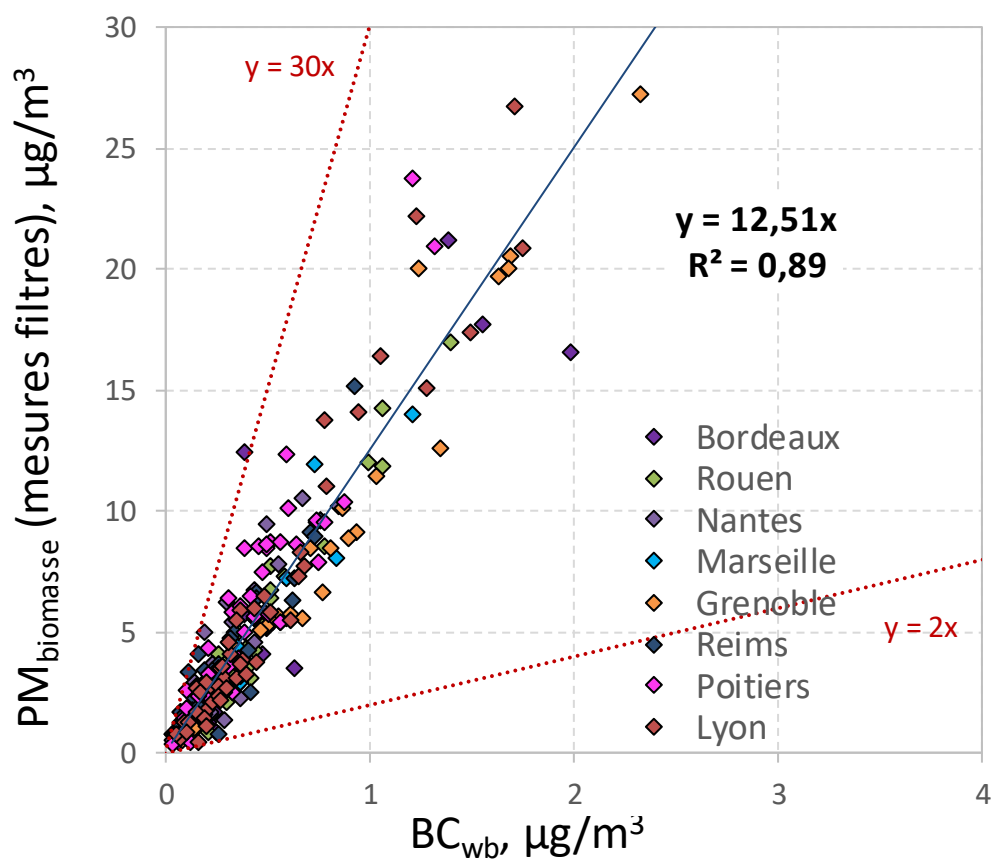
Etant donné les hypothèses prises et leurs incertitudes associées, la méthodologie décrite ici reste soumise à des exercices de vérification/validation au fil de l'eau, ainsi qu'aux retours d'expériences que pourront apporter les AASQA après quelques mois de tests sur les données produites en site fixe et/ou lors de campagne de terrain sur différents types de sites.

5. REFERENCES

- [1] Episodes de pollution particulaire de mi-janvier 2017 : éléments de compréhension à partir des mesures automatiques. Note LCSQA du 24 janvier 2017. https://www.lcsqa.org/system/files/lcsqa2017-cara_note1_episode_pollu_mi_janv_2017.pdf
- [2] Impact de la combustion de biomasse sur les concentrations de PM10 (programme CARA - hiver 2014-2015). Rapport LCSQA 2015. <http://www.lcsqa.org/rapport/2015/ineris/impact-combustion-biomasse-concentrations-pm10-programme-cara-hiver-2014-2015>
- [3] Andreae M.O., A. Gelencsér, A.: *Black carbon or brown carbon? The nature of light-absorbing carbonaceous aerosols*. Atmospheric Chemistry and Physics, 6, 3131-3148, 2006
- [4] Bond T.C., R.W. Bergstrom: *Light absorption by carbonaceous particles: an investigative review*. Aerosol Science and Technology, 40, 27-67, 2006
- [5] Favez O., S.C. Alfaro, J. Sciare, H. Cachier, M.M. Abdelwahab: *Ambient measurements of light absorption by agricultural waste burning organic aerosols*. Journal of Aerosol Science, 40, 613-620, 2009.
- [6] Bilan des travaux 2017 du programme CARA. Rapport LCSQA 2018. <https://www.lcsqa.org/fr/rapport/bilan-des-travaux-2017-du-programme-cara>

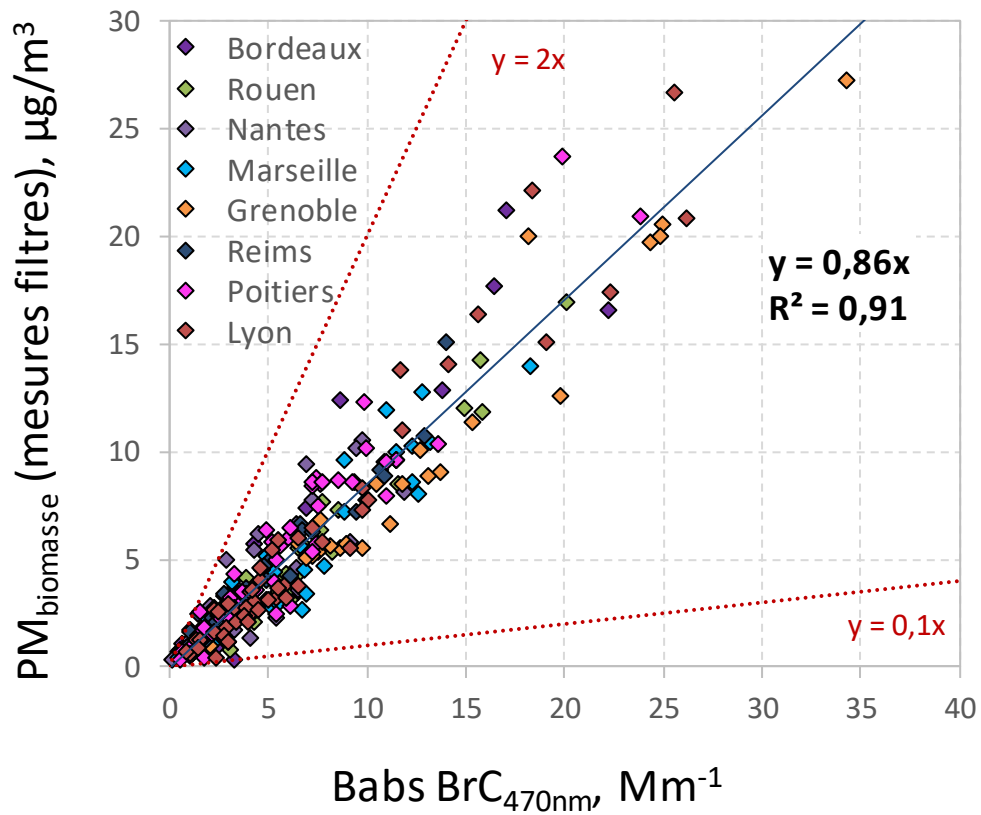
[7] Petit, J.E., C. Pallarès, O. Favez, L.Y. Alleman, N. Bonnaire, E. Rivière: *Sources and geographical origins of particulate matter (PM₁₀) In Metz (France) using oxalate as a marker of secondary organic aerosols by positive matrix factorization analysis*. Atmosphere, 10(7), 370, 2019. <https://www.mdpi.com/2073-4433/10/7/370>

ANNEXE 1



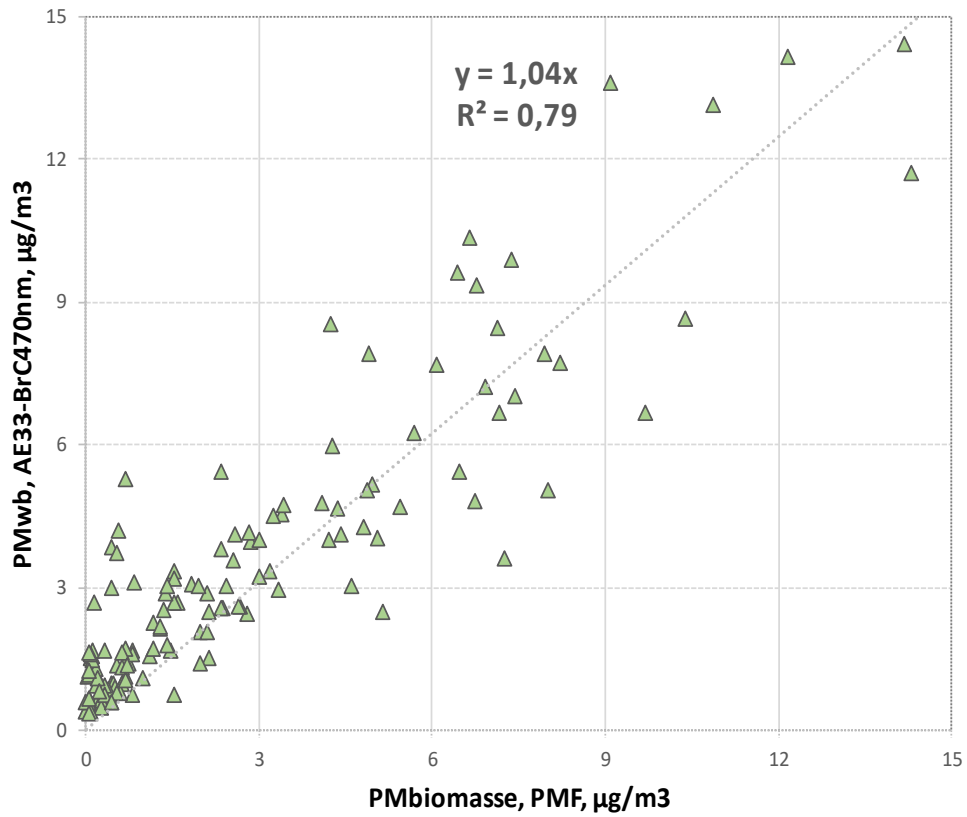
Corrélation entre les concentrations de PM liées à la combustion de biomasse (PM_{biomasse}), estimées à partir des mesures de levoglucosan sur filtre, et les concentrations de BC_{wb} estimées par l'AE33 lors de la campagne hivernale 2014-2015.

ANNEXE 2



Corrélation entre les concentrations de PM liées à la combustion de biomasse (PM_{biomasse}), estimées à partir des mesures de levoglucosan sur filtre, et le coefficient d'absorption calculé à partir des données AE33 pour le Brown Carbon à 470 nm (Babs BrC 470 nm) lors de la campagne hivernale 2014-2015

ANNEXE 3



Corrélation entre les concentrations de PM liées à la combustion de biomasse (PMbiomasse), estimées par analyse PMF et celles obtenues à partir des mesures AE33 d'absorption par le Brown Carbon à 470 nm (Babs BrC 470 nm) lors de la campagne hivernale 2014-2015