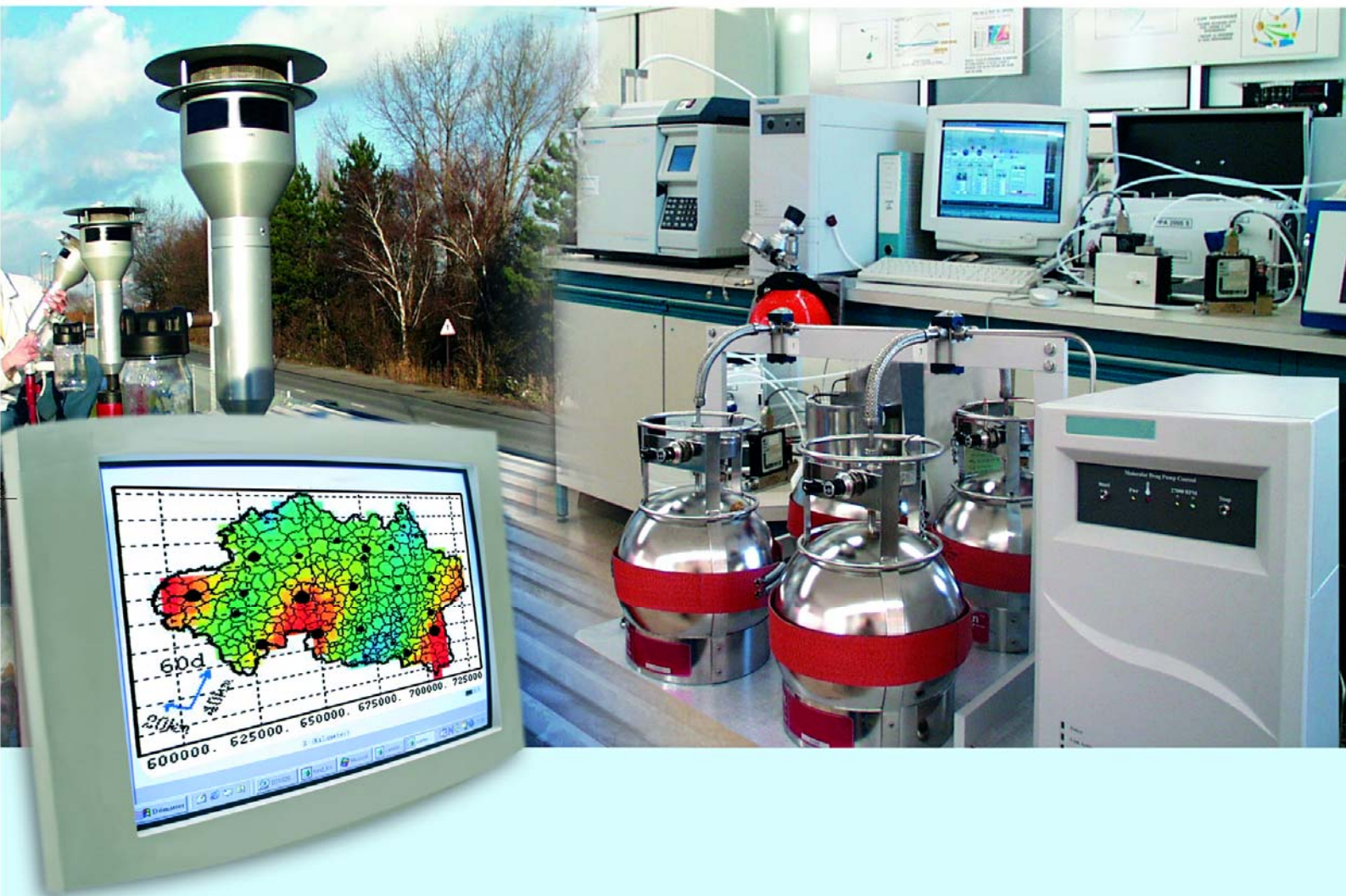


LCSQA

Laboratoire Central de Surveillance de la Qualité de l'Air



Métrologie des particules

Perspectives d'évolution du dispositif français de surveillance des PM_{2.5}

Décembre 2007

Programme 2007

G. AYMOZ, J.L. HOUDRET,
I. FRABOULET, J. LACHENAL,
T. MACE, O. LE BIHAN



École d'Ingénierie
Centre de Recherche
**Mines
de Douai**
LILLE EUROREGION
LNE

Le progrès, une passion à partager

INERIS



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'Ecole 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 la Direction des Préventions des Pollutions et des Risques du Ministère de l'Ecologie, du Développement et de l'Aménagement durables 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.

ECOLE DES MINES DE DOUAI

DEPARTEMENT CHIMIE ET ENVIRONNEMENT

**PERSPECTIVES D'EVOLUTION DU DISPOSITIF FRANÇAIS
DE SURVEILLANCE DES PM 2,5**

Jean Luc HOUDRET

Convention : 000653

Novembre 2007

**LABORATOIRE NATIONAL DE METROLOGIE
ET D'ESSAIS**

Division Métrologie chimique et biomédicale

**PERSPECTIVES D'EVOLUTION DU DISPOSITIF FRANÇAIS
DE SURVEILLANCE DES PM 2,5**

Jacques LACHENAL
Tatiana MACE

Convention : 0000652

Novembre 2007



Perspectives d'évolution du dispositif français de surveillance des PM 2.5

Laboratoire Central de Surveillance
de la Qualité de l'Air

Métrologie des particules

Programme financé par la
Direction des Préventions des Pollutions et des Risques (DPPR)

2007

G. AYMOZ (INERIS), J.L. HOUDRET (EMD), I. FRABOULET (INERIS), J. LACHENAL (LNE), T. MACE (LNE), O. LE BIHAN (INERIS).

Ce document comporte 57 pages (hors couverture et annexes).

	Rédaction	Vérification	Approbation
NOM	I. FRABOULET G. AYMOZ	J. POULLEAU	M. RAMEL
Qualité	Ingénieurs Direction des Risques Chroniques	Responsable Unité Qualité de l'air Direction des Risques Chroniques	Responsable LCSQA/INERIS Direction des Risques Chroniques
Visa			

TABLE DES MATIERES

RESUME	11
INTRODUCTION	13
PARTIE 1 - ETUDE SUR LA CORRECTION DES PM 2.5	
1. ANALYSE DES RÉSULTATS DE LA CAMPAGNE D'ÉQUIVALENCE DE BOBIGNY (PARTIE EMD)	15
1.1 Rappel de la campagne de Bobigny.....	15
1.2 Principe de l'étude.....	15
1.3 Evolutions temporelles des écarts.....	17
1.4 Résultats GLOBAUX.....	20
1.4.1 Résultat global de la comparaison entre les apports correctifs.....	20
1.4.2 Comparaison des apports correctifs totaux TEOM-FDMS_PM10 vs TEOM-FDMS_PM2,5	20
1.4.3 Résultats des corrections croisées apportées aux TEOM 50°C	21
1.5 Analyse détaillée des apports correctifs SES et SV	24
1.5.1 Apport du SES - comparaison entre PM10 et PM2,5.....	24
1.5.2 Apport du filtre SV, comparaison entre PM10 et PM2,5	24
1.5.3 Conclusions	25
2. BILAN DES ÉTUDES MENÉES PAR LES AASQA : RÉSUMÉ (INERIS).....	26
PARTIE 2 - SYNTHÈSE DES CONTRAINTES RÉGLEMENTAIRES SUR LES PM DANS LA RÉVISION DES TEXTES RÉGLEMENTAIRES EUROPÉENS	
1. CONTRAINTES SUR LE NOMBRE MINIMAL DE POINTS DE PRÉLÈVEMENT EN VUE DE L'ÉVALUATION DU RESPECT DES VALEURS LIMITES.....	27
2. CONTRAINTES SUR LE NOMBRE MINIMAL DE POINTS DE PRÉLÈVEMENT PM2,5 EN VUE DU CALCUL DE L'INDICE D'EXPOSITION MOYENNE (IEM) ET DE L'ÉVALUATION DU RESPECT DE L'OBJECTIF NATIONAL DE RÉDUCTION DE L'EXPOSITION	29
3. CONTRAINTES EN ZONE RURALE	30
3.1 Objectifs	30

3.2	Substances.....	30
3.3	Nombre de points de prélèvement :	31
3.4	Implantation.....	31
3.5	Lien avec le dispositif MERA.....	31
3.6	Objectifs de qualité et méthode	31

PARTIE 3 - SYNTHÈSE BIBLIOGRAPHIQUE SUR LES CONNAISSANCES GÉNÉRALES DES PM_{2,5} EN EUROPE

1.	INTRODUCTION.....	33
2.	VARIABILITÉS SPATIO-TEMPORELLES DES CONCENTRATIONS EN PM _{2,5}	33
2.1	Documents de référence	33
2.2	Concentrations massiques	34
2.2.1	Variabilité spatiale.....	34
2.2.2	Variabilité temporelle	35
2.2.3	Contribution de la fraction PM _{2,5} aux concentrations de PM ₁₀	35
2.3	Granulométrie.....	36
2.4	Sources de PM _{2,5}	36
2.4.1	Contribution des sources anthropogéniques.....	36
2.5	Contribution des sources naturelles ou biogéniques	38
3.	COMPOSITION CHIMIQUE.....	39
3.1	Contribution des différentes espèces aux PM _{2,5}	40
3.2	Fraction carbonée.....	40
3.3	Espèces inorganiques	41

PARTIE 4 – ETUDE BIBLIOGRAPHIQUE SUR LA JUSTESSE DU SEUIL DE COUPURE GRANULOMÉTRIQUE D'UNE TÊTE DE PRÉLÈVEMENT DES PM_{2,5} ET PM₁₀

1.	BREF HISTORIQUE	44
2.	GÉNÉRALITÉS	44
3.	MÉTHODES RÉGLEMENTÉES ET LEUR VALIDATION	45
4.	EVOLUTION DE LA TÊTE	50
5.	AUTRES ÉVOLUTIONS ET CONSÉQUENCES.....	51

6. CONCLUSIONS.....	52
7. BIBLIOGRAPHIE	52
CONCLUSION GENERALE.....	54
LISTE DES ANNEXES.....	57

RESUME

Le travail présenté ici a pour objectif de préparer le dispositif français à l'émergence de contraintes réglementaires en matière de surveillance des PM_{2,5}.

La **première question** était de savoir s'il était possible, à très court terme, avec le parc existant, de produire des données PM_{2,5} incluant la fraction volatile. L'objectif était d'étudier la possibilité de corriger les données PM_{2,5} obtenues avec un TEOM 50°C avec la fraction volatile des PM₁₀ obtenue sur les sites de référence par différence entre les mesures TEOM-FDMS et TEOM 50°C.

Les données d'équivalence issues de la campagne de Bobigny (LCSQA / AIRPARIF) ont été exploitées (présence d'un TEOM 50°C). Par ailleurs, différentes AASQA ont produit et analysé des données TEOM 50°C / TEOM-FDMS. L'ensemble de ces résultats a été discuté au sein de la commission de suivi "particules" : le recours à la correction des PM_{2,5} 50°C par la fraction volatile PM₁₀ n'a pas été exclue par la commission de suivi "particules" ; Cependant la qualité de ce type de données n'est pas non plus considérée comme suffisante par rapport à la méthode de référence. Si un tel recours devait être envisagé, il est sans doute préférable que celui-ci ne soit que temporaire.

La **seconde question** portait sur la capacité du dispositif français à répondre aux exigences de la directive en cours de révision. Pour cela, il a été nécessaire de suivre en temps réel les évolutions du projet de révision de la directive afin d'évaluer le niveau de réponse de notre dispositif et les évolutions à prévoir. Une analyse au fil de l'eau a donc été menée tout au long de l'année ; elle a été exploitée lors de différentes réunions, à commencer par celle de la commission de suivi "particules" de mars. Une note a été produite au début de l'automne, pour en résumer les principales observations.

L'analyse du projet de réglementation concernant les PM_{2,5} est rendue complexe par le fait que

- Une **partie des contraintes sur les PM₁₀ et les PM_{2,5} sont associées** (notamment par le biais du calcul du nombre de points de mesure qui concerne les PM dans leur globalité),
- Des **spécificités propres à chaque type de PM** doivent aussi être respectées.

Il convient de noter, par ailleurs, l'émergence du concept d'**indicateur d'exposition moyenne** (IEM), ainsi que de contraintes particulières en zone rurale, comprenant une **liste d'espèces chimiques** à analyser dans les PM_{2,5}. La compatibilité entre les prélèvements normatifs à visée gravimétrique, et ce nouveau besoin devra donc faire l'objet d'une surveillance particulière.

En parallèle à ces actions urgentes, il a également été nécessaire d'engager un certain nombre d'actions de fond :

- Une synthèse bibliographique a été menée en terme de connaissance générale sur le cycle de vie des PM_{2,5}. De très nombreux résultats étant publiés, les principales références et travaux de synthèse concernant l'Europe ont été sélectionnées.

- Une étude bibliographique sur la justesse de la coupure des têtes PM_{2,5} et PM₁₀, qui montre qu'il n'est probablement pas nécessaire d'envisager des actions métrologiques sur ce thème.

Au final, un nombre particulièrement important d'actions ont été menées, faisant appel à de nombreux contributeurs tant au niveau du LCSQA que des AASQA. La commission de suivi "particules" a été alimentée en continu en matière d'informations, ce qui a grandement facilité son travail et les prises de décision.

INTRODUCTION

Plus de dix années se sont écoulées entre la publication de la directive européenne de 1996, et l'entrée en service de techniques de mesure automatiques des PM10 prenant en compte la fraction volatile.

L'année 2006 a été marquée par la préparation de la transformation du dispositif français de surveillance PM10, et par la réflexion autour de la future directive unifiée, texte dont l'une des principales nouveautés est de réglementer les PM2,5. Il est donc apparu extrêmement important et urgent d'initier des actions spécifiques à la surveillance des PM2,5.

C'est en ce sens qu'a été proposée la présente étude « perspectives d'évolution du dispositif français de surveillance des PM2,5 ». L'objectif est de répondre, ou d'apporter des éléments de réponse, à un certain nombre de questions liées à la métrologie, à l'analyse des nouveaux besoins réglementaires, à la capacité du dispositif national de surveillance à répondre à ces exigences, et à la connaissance générale des PM2,5. Bien que liées par la thématique PM2,5, ces questions peuvent toutefois être relativement indépendantes. Elles ont donc été regroupées dans quatre parties :

- **1^{ère} Partie - Etude sur la correction des PM 2,5.** La première question a été de savoir s'il était possible, à très court terme, avec le parc existant, de produire des données PM2,5 incluant la fraction volatile. L'objectif est d'étudier la possibilité de corriger les données PM2,5 obtenues avec un TEOM 50°C avec la fraction volatile des PM10 obtenue sur les sites de référence par différence entre les mesures TEOM-FDMS et TEOM 50°C.
- **2^{nde} Partie - Synthèse des contraintes réglementaires sur les PM dans la révision des textes réglementaires européens.** La seconde question portait sur la capacité du dispositif français à répondre aux exigences de la directive en cours de révision. Pour cela, il a été nécessaire de suivre en temps réel les évolutions du projet de révision de la directive afin d'évaluer le niveau de réponse de notre dispositif et les évolutions à prévoir. Une analyse au fil de l'eau a donc été menée tout au long de l'année ; elle a été exploitée lors de différentes réunions, à commencer par celle de la commission de suivi "particules" de mars. Une note a été produite au début de l'automne, pour en résumer les principales observations.

En parallèle à ces actions urgentes, il a également été nécessaire d'engager un certain nombre d'actions de fond :

- **3^{ème} Partie - Synthèse bibliographique sur les connaissances générales des PM2,5 en Europe.** Une rapide synthèse bibliographique, en terme de connaissance générale sur le cycle de vie des PM2,5, est proposée. De très nombreux résultats étant publiés, les principales références et travaux de synthèse concernant l'Europe ont été sélectionnées, l'objectif étant, dans ce rapport, de résumer quelques éléments de base concernant les PM2,5, et de guider le lecteur vers les principales références européennes sur ce sujet.

- **4^{ème} Partie – Etude bibliographique sur la justesse du seuil de coupure granulométrique d'une tête de prélèvement des PM2,5 et PM10.** L'objectif est de réaliser une étude bibliographique sur la justesse de la coupure PM2,5 et PM10, afin de déterminer si des actions métrologiques doivent être envisagées sur ce thème.

1^{ERE} PARTIE

ETUDE SUR LA CORRECTION DES PM 2.5 (EMD/INERIS)

Cette étude a été initiée en cours d'année au sein de la commission de suivi "particules" afin de répondre à la question suivante :

« Est-il possible de corriger les données TEOM 50°C PM_{2,5} selon un protocole similaire à celui appliqué aux données des TEOM 50°C PM₁₀ » ?

En d'autres termes, si on admet pouvoir corriger un ensemble de TEOM 50°C PM₁₀ » dans une zone réputée homogène à partir d'une station de référence équipée d'un TEOM-FDMS PM₁₀ et d'un TEOM 50°C PM₁₀, peut-on aussi corriger plusieurs TEOM 50°C PM_{2,5} à partir de cette même référence ?

L'étude de faisabilité a été réalisée à partir des résultats horaires obtenus lors des campagnes de mesure à Bobigny réalisées par l'INERIS en collaboration avec AIRPARIF (paragraphe 3.1) et à partir des résultats d'études menées par plusieurs AASQA (paragraphe 3.2), présentés en commission de suivi "particules".

1. ANALYSE DES RESULTATS DE LA CAMPAGNE D'EQUIVALENCE DE BOBIGNY (PARTIE EMD)

1.1 RAPPEL DE LA CAMPAGNE DE BOBIGNY

La campagne de démonstration d'équivalence de Bobigny a été réalisée entre le 10 février et le 16 mars 2005. Des TEOM 50°C ayant été installés lors de cette campagne, 489 séquences horaires communes aux appareils suivants ont été validées : 2 TEOM-FDMS PM₁₀, 2 TEOM-FDMS PM_{2,5}, 1 TEOM 50°C PM₁₀ et 1 TEOM 50°C PM_{2,5} (les TEOM-FDMS étant dupliqués pour chaque fraction granulométrique, les valeurs horaires ont été moyennées pour chaque couple).

Les données de cette campagne ont pu être ré-analysées afin d'étudier la validité de la correction d'un TEOM 50°C PM_{2,5} avec l'écart mesuré entre TEOM-FDMS PM₁₀ et TEOM 50°C PM₁₀.

1.2 PRINCIPE DE L'ETUDE

L'appareil TEOM50°C est réputé perdre une partie des composés semi-volatils contenus dans les particules prélevées.

Le TEOM-FDMS a été conçu pour remédier à ce problème. Il s'agit d'un TEOM30°C complété par un élément complémentaire de séchage appelé « **SES** » et dont la fonction est de pouvoir abaisser la température de 50°C à 30°C afin de limiter la perte d'éléments volatils.

Cependant, l'expérience a montré que cet élément « **SES** » n'était pas suffisant pour compenser la totalité des pertes en composés semi-volatils constatées sur le TEOM50°C.

Le TEOM-FDMS a donc été complété par un système de filtre à particule permettant d'évaluer le reste des composés semi-volatils perdus.

Le fonctionnement du FDMS peut être schématisé ainsi :

- sur un cycle de 12 minutes, le TEOM-FDMS prélève les particules pendant les 6 premières minutes sur un filtre de prélèvement, et fournit une première mesure dénommée « **base** » de type TEOM30°C, c'est-à-dire incomplète ;
- ensuite pendant les 6 minutes suivantes du cycle, l'air prélevé est dirigé vers un autre filtre total à particules, réfrigéré celui-là, afin de créer un « air de zéro » qui balaye le filtre de prélèvement ;
- le principe est de faire perdre par évaporation complémentaire une partie des composés semi-volatils déjà prélevés ; l'appareil mesure de nouveau la masse de particules restantes et fournit une seconde valeur appelée « **ref** » dénommée par la suite « **SV** » ;
- le principe est basé sur la supposition que cette perte « **ref** » est du même ordre de grandeur que la perte subie pendant les 6 premières minutes du cycle ; le FDMS fournit un résultat final corrigé : « **base + ref** » ;
- la mesure effectuée par un TEOM-FDMS ne couvre en fait que 50% du temps.

En réalité, le TEOM-FDMS fonctionne sur un cycle horaire ; il mémorise et fournit les moyennes de 5 valeurs « **base** » consécutives, et des 5 valeurs « **ref** » associées ; le résultat final est une valeur horaire corrigée « **moyenne_{base} + moyenne_{ref}** ».

L'écart entre un TEOM-FDMS et un TEOM50°C classique devrait donc être en théorie la somme des deux corrections susvisées :

$$(\text{TEOM-FDMS} - \text{TEOM50}^\circ\text{C}) = \text{apportSES} + \text{apportSV}$$

Il a semblé intéressant d'évaluer les apports correctifs de chacun de ces deux éléments :

Détermination de l'« apport SES » :

L'apport correctif du « **SES** » est estimé par différence entre la mesure « **base** » du TEOM-FDMS et la mesure du TEOM50°C , pour **PM10** et **PM2.5** séparément. Cette correction technique s'opère pendant le prélèvement.

Détermination de l'« apport SV » :

L'apport du filtre « **SV** » est estimé par la valeur « **ref** » du TEOM-FDMS, pour **PM10** et **PM2.5** séparément. Cette correction par le calcul s'opère après le prélèvement.

L'exploitation des données de la campagne de Bobigny a permis d'estimer les parts respectives de ces deux corrections :

- pour les appareils de mesure des PM10,
- pour les appareils de mesure des PM2.5 .

On dénommera par la suite « Coarse » les particules de taille comprise entre 2,5 et 10 µm, dont les concentrations sont calculées selon :

$$\text{Coarse} = (\text{PM10} - \text{PM2.5}),$$

- Coarse de référence : entre les appareils TEOM-FDMS_PM10 et TEOM-FDMS_PM2.5,
- Coarse standard : entre les appareils TEOM50°C_PM10 et TEOM50°C_PM2.5.

1.3 EVOLUTIONS TEMPORELLES DES ECARTS

Afin d'illustrer les évolutions temporelles des corrections effectuées, deux épisodes distincts ont été choisis dans la base de données de la campagne de Bobigny :

- Les Figure 1 à 3 présentent respectivement les évolutions temporelles des mesures et éléments de correction (SES et SV) pour les PM10 , les PM2,5 et les Coarse lors d'un épisode de 4 jours de **pointe de PM2,5 sans pointe de Coarse** ;
- Les Figure 4 à 6 présentent respectivement les évolutions temporelles des mesures et éléments de correction (SES et SV) pour les PM10 , les PM2,5 et les Coarse lors d'un épisode de 2 jours de **pointe de PM2,5 avec pointe de Coarse simultanée**.

Les commentaires associés sont en regard de ces figures ; les conclusions principales peuvent se résumer ainsi :

- Le comportement du TEOM-FDMS en terme de corrections par rapport à un TEOM 50°C est tributaire du spectre granulométrique des particules prélevées;
- Le TEOM-FDMS PM10 donne des résultats d'autant plus éloignés de ceux du TEOM 50°C que les niveaux en PM2,5 sont plus élevés que les Coarse, et le contraire lorsque ces niveaux sont inversés;
- L'apport correctif du SES suit nettement les évolutions des niveaux de PM2,5, mais pas des PM10, donc pas des Coarse;
- L'apport correctif des SV suit beaucoup moins les évolutions des niveaux en PM ; il est plus faible et moins fluctuant lorsque les niveaux des Coarse sont élevés.

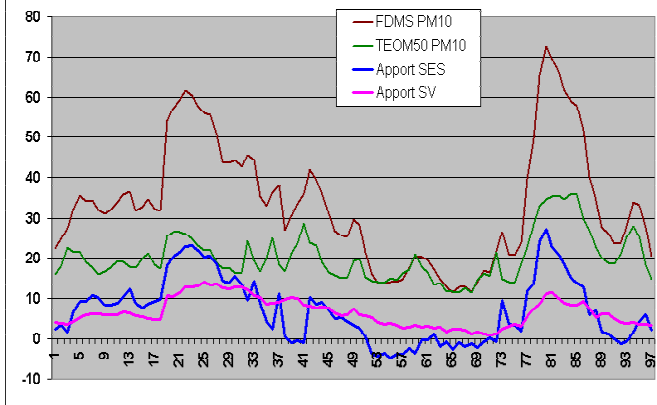


Figure 1 : évolutions des mesures de PM10

En PM10 :

TEOM-FDMS >>> TEOM lors des pointes;
 TEOM-FDMS # TEOM aux valeurs faibles ;
 L'apport SES suit les évolutions des PM, et est # 0 aux valeurs PM faibles ;
 L'apport SV suit moins ces évolutions et reste faible.

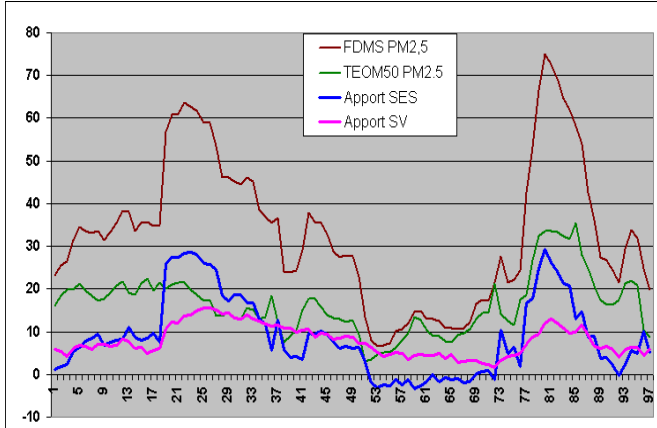


Figure 2 : évolutions des mesures de PM2,5

En PM2,5 :

Les profils des 4 courbes sont très semblables à ceux obtenus pour les PM10.
 Les PM2,5 constituent la presque totalité des PM10.

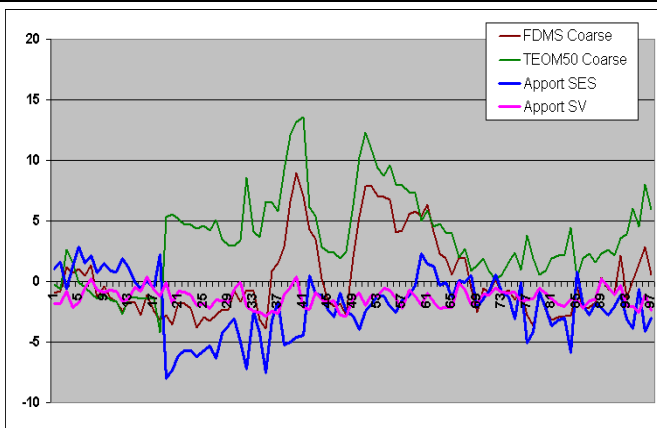


Figure 3 : évolutions des mesures de Coarse

Coarse :

Issus de doubles différences de calcul, les apports SES et SV ont une incertitude élevée ; l'apport SV est proche de zéro ; l'apport SES en général < 0 ;
 On note cependant que :
 TEOM > TEOM-FDMS , avec des valeurs TEOM-FDMS < 0 .

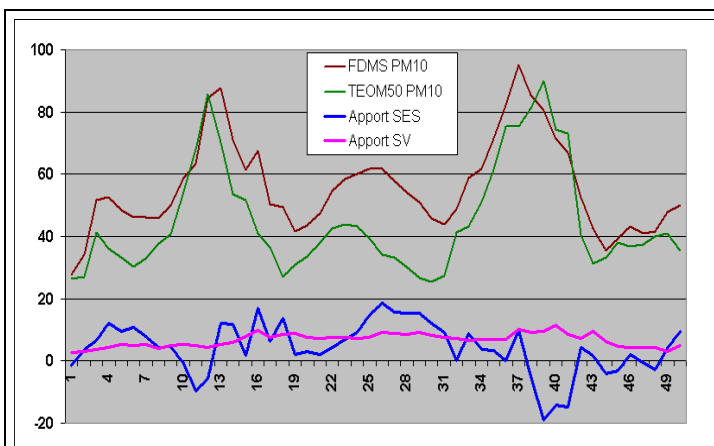


Figure 4 : évolutions des mesures de PM10

En PM10 :

A l'inverse,

TEOM-FDMS # TEOM lors des pointes ;

TEOM-FDMS > TEOM que aux valeurs faibles ;

L'apport SES ne suit pas les évolutions de TEOM-FDMS, et est = 0 aux valeurs PM faibles ;

L'apport SV est faible et constant.

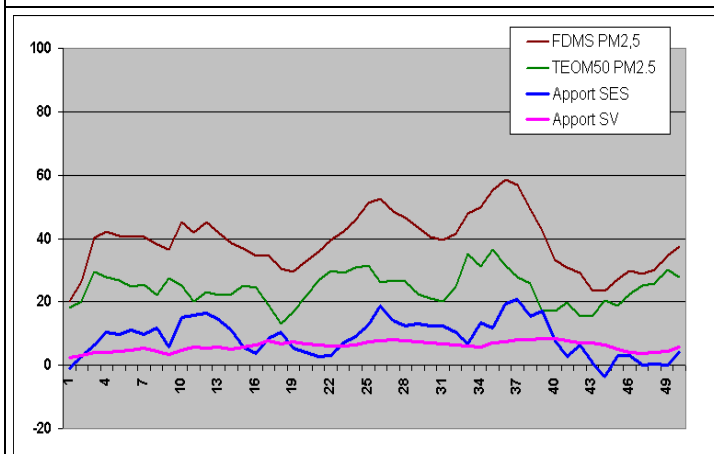


Figure 5 : évolutions des mesures de PM2,5

En PM2,5 :

Cet épisode à niveaux réduits en PM2,5 montre une évolution atténuée par rapport à PM10 ; l'écart TEOM-FDMS - TEOM reste constant ;

L'apport SES suit les évolutions de TEOM-FDMS ;

L'apport SV est faible, constant et identique à celui de la Figure 4.

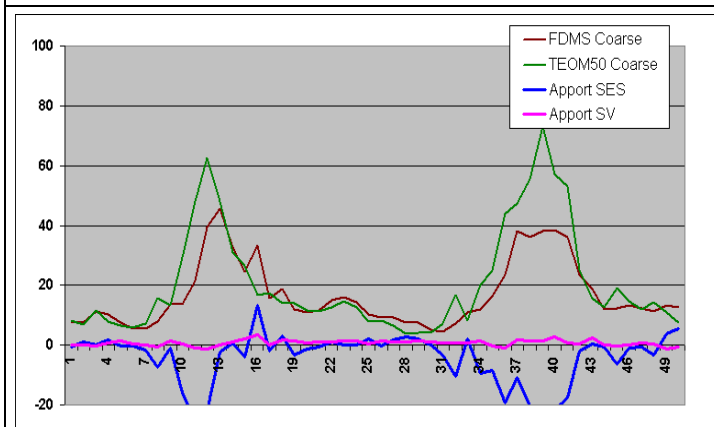


Figure 6 : évolutions des mesures de Coarse

Coarse :

Issus de doubles différences de calcul, les apports SES et SV ont une incertitude élevée ;

L'apport SV est = zéro ;

L'apport SES est < 0 lors des pointes de Coarse ;

On note que :

TEOM > TEOM-FDMS seulement lors des pointes.

1.4 RESULTATS GLOBAUX

1.4.1 RESULTAT GLOBAL DE LA COMPARAISON ENTRE LES APPORTS CORRECTIFS

La Figure 7 et le Tableau 1 montrent les parts respectives des apports moyens du **SES** et des **SV** lors des 489 heures de mesure validées à Bobigny :

Tableau 1 : résultat en $\mu\text{g.m}^{-3}$

	PM10	PM2,5	Coarse
Apport SV	5,8	6,2	"0"
Apport SES	4,8	6,0	"0"
TEOM 50°C	22,4	14,0	7,8
TEOM-FDMS	33	26,2	6,8

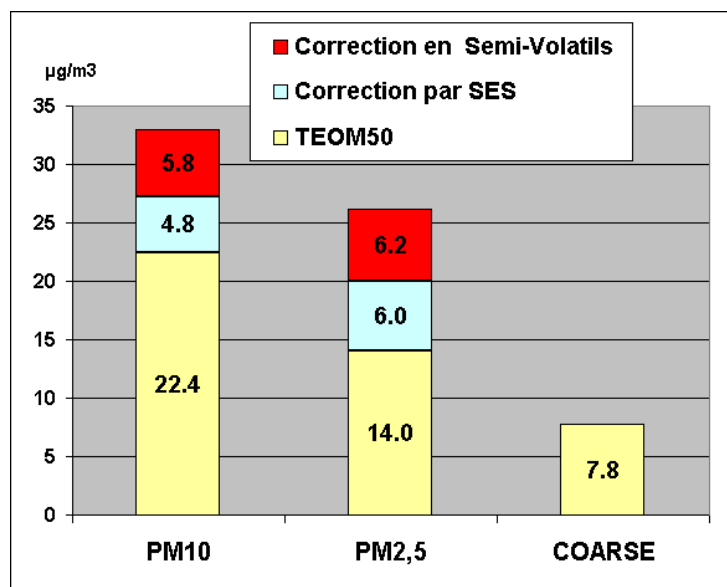


Figure 7 : Concentrations moyennes observées et détails des corrections

L'apport du **SES** semble être plus important sur le TEOM-FDMS PM2,5 ; l'apport en **SV** est à peu près le même en PM10 et en PM2,5, et est nul ou négligeable pour les Coarse. Cela confirme que **les SV perdus sont presque totalement contenus dans les PM2,5**.

1.4.2 COMPARAISON DES APPORTS CORRECTIFS TOTAUX TEOM-FDMS_PM10 VS TEOM-FDMS_PM2,5

L'apport correctif total (SES et filtre SV) est fourni par différence entre un TEOM-FDMS et un TEOM 50°C, séparément pour PM10 et PM2,5 :

- Pour PM10 : différence (TEOM-FDMS PM10 – TEOM 50°C PM10) ;

- Pour PM2,5 : différence (TEOM-FDMS PM2,5 – TEOM 50°C PM2,5).

On compare graphiquement à l'aide de la Figure 8 ces différences obtenues en valeurs horaires entre chaque couple d'appareils.

La pente obtenue, 1,0031 montre que l'apport correctif total (TEOM-FDMS - TEOM 50°C) est à peu près le même sur les deux couples d'appareils PM10 et PM2,5. La correction d'un TEOM 50°C_PM10 apparaît donc possible à partir d'un couple TEOM-FDMS/TEOM PM2,5 , et inversement.

La dispersion est assez importante pour quelques points mais dont le nombre est faible ; les corrections dites « négatives » sont en nombre négligeable.

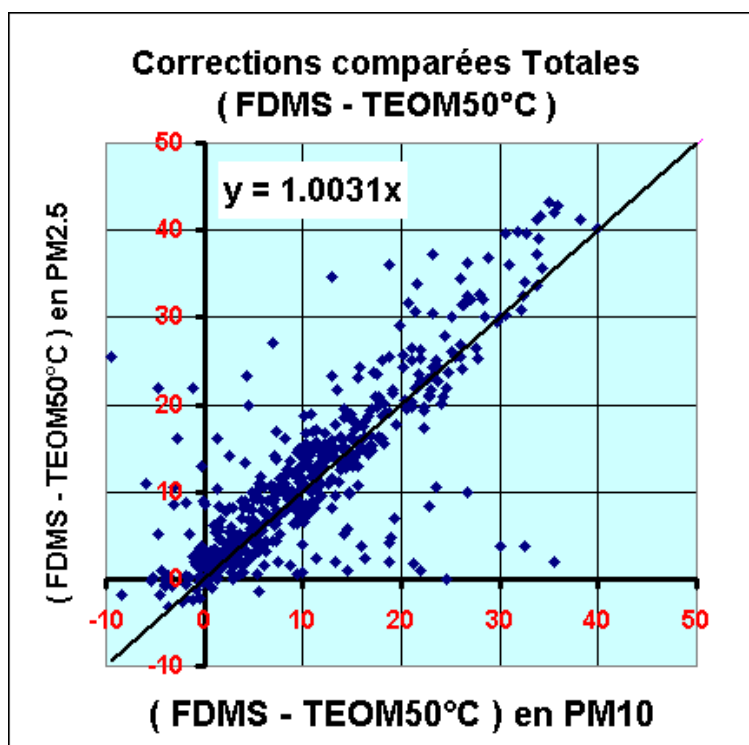


Figure 8 : corrections comparées avec le SES et filtre SV entre PM10 et PM2,5

1.4.3 RESULTATS DES CORRECTIONS CROISEES APORTEES AUX TEOM 50°C

On essaye de déterminer s'il est possible de corriger les données horaires d'un TEOM 50°C PM10 à l'aide des différences (TEOM-FDMS PM2,5 – TEOM 50°C PM2,5), et inversement de corriger les données d'un TEOM 50°C PM2,5 à l'aide des différences (TEOM-FDMS PM10 – TEOM 50°C PM10).

Les Figure 9 et Figure 10 présentent en valeurs horaires les comparaisons des données TEOM 50°C brutes en fonction des données TEOM-FDMS, respectivement pour les fractions PM10 et PM2,5. Les pentes obtenues, (respectivement 0.6765 et 0.5328) confirment une perte plus importante de matière dans les PM2,5.

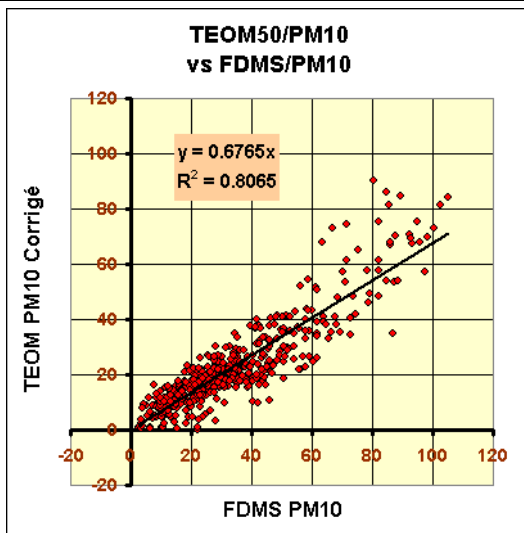


Figure 9 : TEOM50 brut vs TEOM-FDMS en PM10

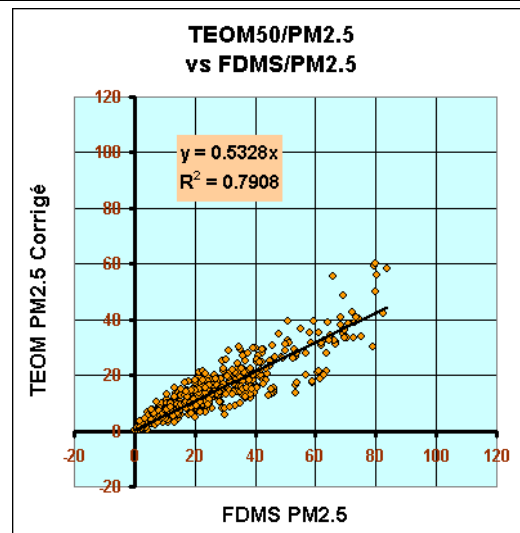


Figure 10 : TEOM50 brut vs TEOM-FDMS en PM2,5

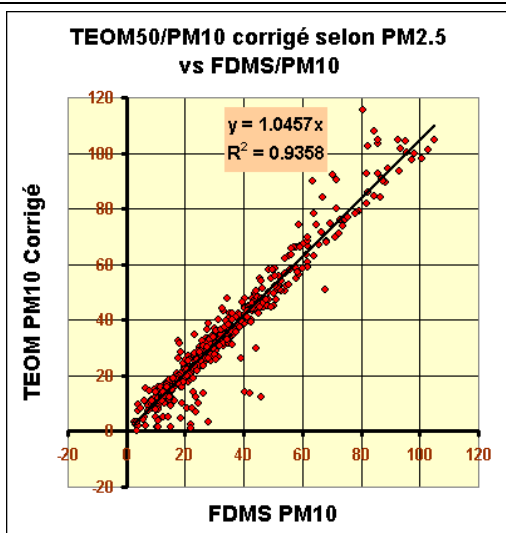


Figure 11 : TEOM50 corr(2.5) vs TEOM-FDMS

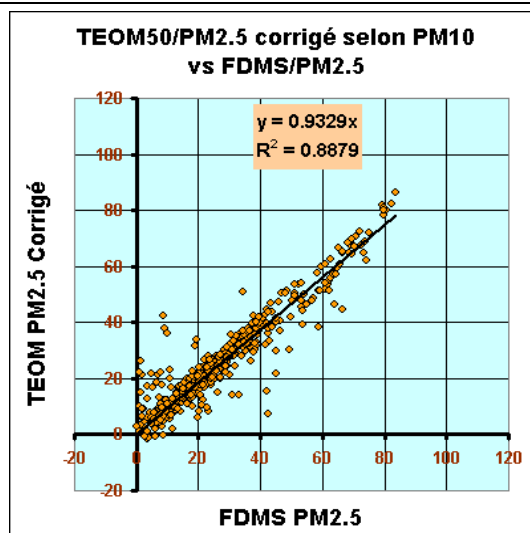


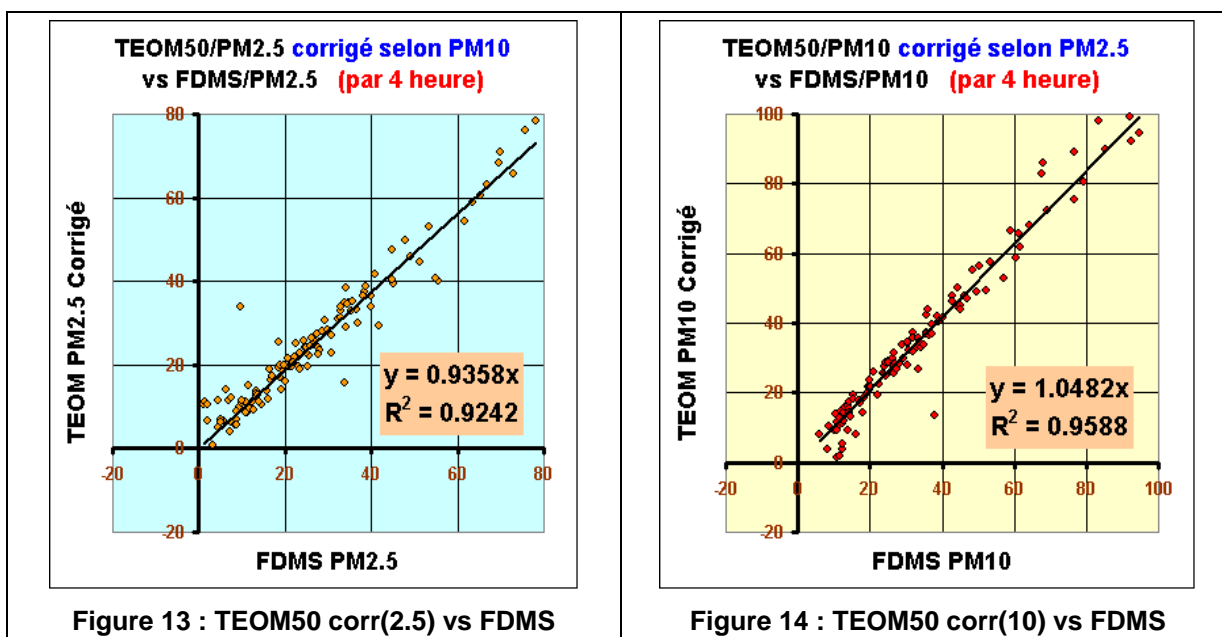
Figure 12 : TEOM50 corr(10) vs TEOM-FDMS

Les **Figure 11** et **Figure 12** présentent en fonction des données TEOM-FDMS, en valeurs horaires, les comparaisons des données TEOM 50°C PM10 et TEOM 50°C PM2,5 corrigées respectivement par les correctifs obtenus pour les fractions PM2,5 et PM10.

Les pentes obtenues, (respectivement 1,0457 et 0,9329) montrent respectivement une tendance à sur-corriger le TEOM 50°C PM10 avec les PM2,5 et à sous-corriger le TEOM 50°C PM2,5 avec les PM10.

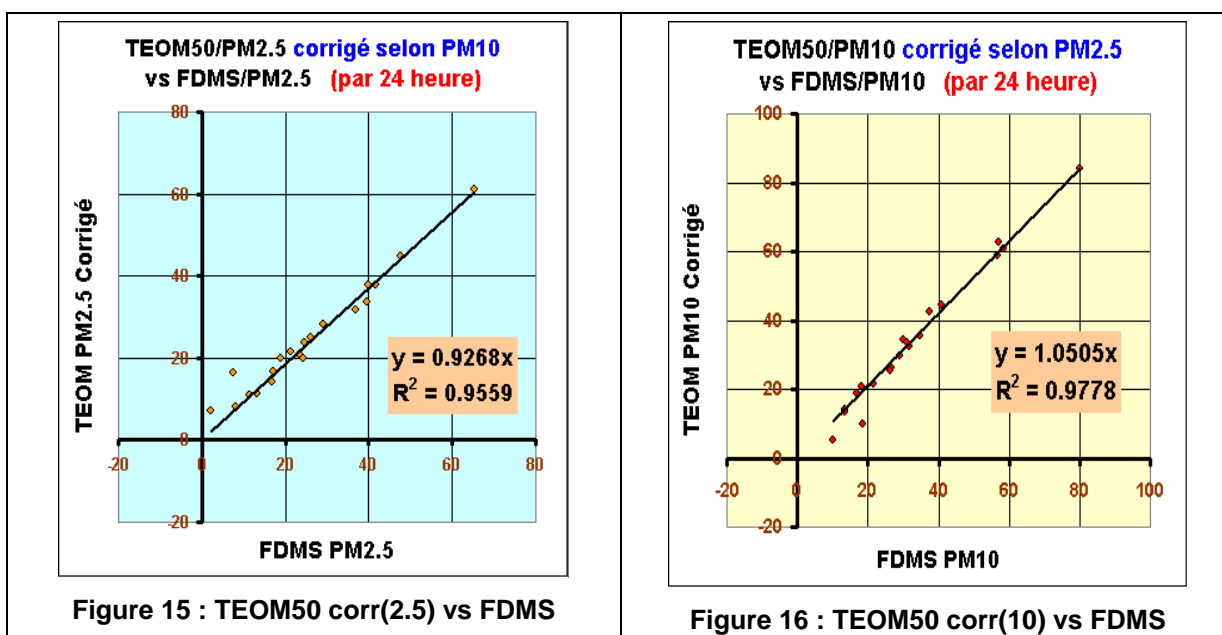
Les corrélations respectives $R^2=0.9358$ / 0.8879 semblent privilégier la correction des PM10 grâce à une référence PM2,5 plutôt que l'inverse.

Les Figure 13 à 16 présentent en fonction des données TEOM-FDMS, en séquences de 4 et 24 heures, les comparaisons des données TEOM50°C_PM10 et TEOM50°C_PM2.5 corrigées respectivement par les correctifs obtenus pour les fractions PM2.5 et PM10.



Les pentes obtenues, (respectivement 1,0482 et 0,9358) montrent respectivement une tendance à sur-corriger le TEOM50°C_PM10 avec les PM2.5 et à sous-corriger le TEOM50°C_PM2.5 avec les PM10.

Les corrélations respectives $R^2=0.9588 / 0.9242$ semblent privilégier la correction des PM10 grâce à une référence PM2.5 plutôt que l'inverse. Les corrections à l'aide de séquences de 4 heures au lieu de 1 heure, sont améliorées.



Les pentes obtenues, (respectivement 1,0505 et 0,9268) montrent respectivement une tendance à sur-corriger le TEOM50°C_PM10 avec les PM2.5 et à sous-corriger le TEOM50°C_PM2.5 avec les PM10.

Les corrélations respectives $R^2=0.9778$ / 0.9559 semblent privilégier la correction des PM10 grâce à une référence PM2.5 plutôt que l'inverse. Les corrections à l'aide de séquences de 24 heures au lieu de 4 heures, sont encore améliorées.

1.5 ANALYSE DETAILLEE DES APPORTS CORRECTIFS SES ET SV

Cette partie apporte quelques compléments d'information sur les particularités de correction du module SES et du module SV.

1.5.1 APPORT DU SES - COMPARAISON ENTRE PM10 ET PM2,5

L'apport du **SES** est estimé par différence entre le résultat du TEOM-FDMS SES (base) et celui du TEOM 50°C pour PM10 et PM2,5 séparément.

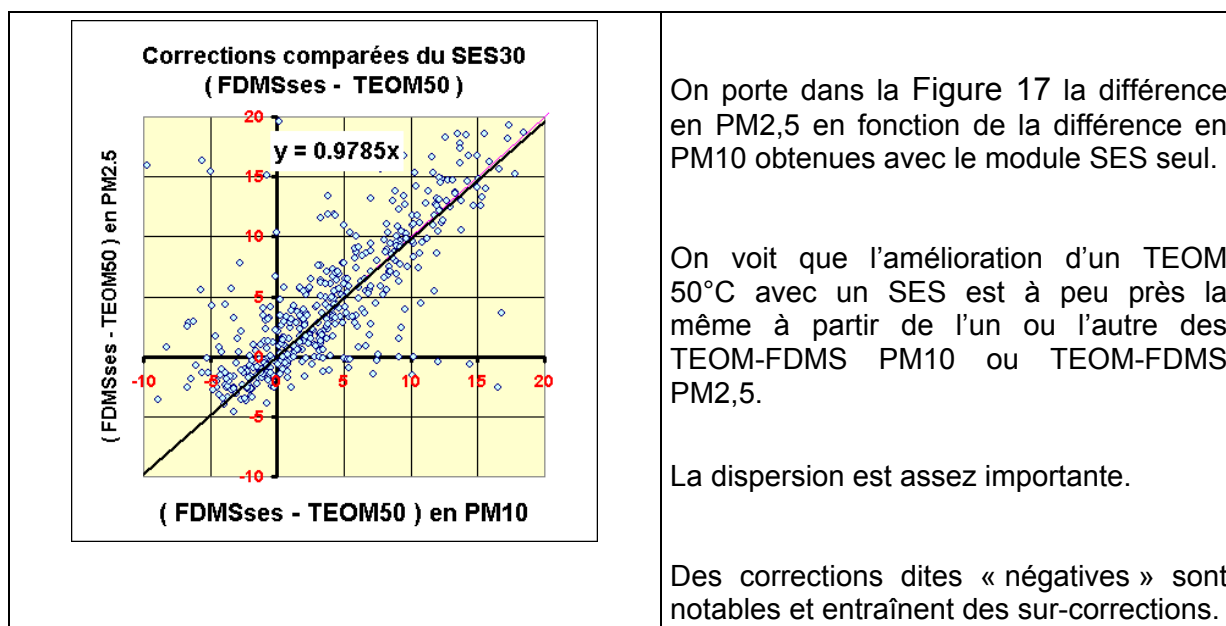


Figure 17 : Corrections comparées avec le SES entre PM10 et PM2,5

1.5.2 APPORT DU FILTRE SV, COMPARAISON ENTRE PM10 ET PM2,5

L'apport du filtre SV est fourni par les TEOM-FDMS pour PM10 et PM2,5.

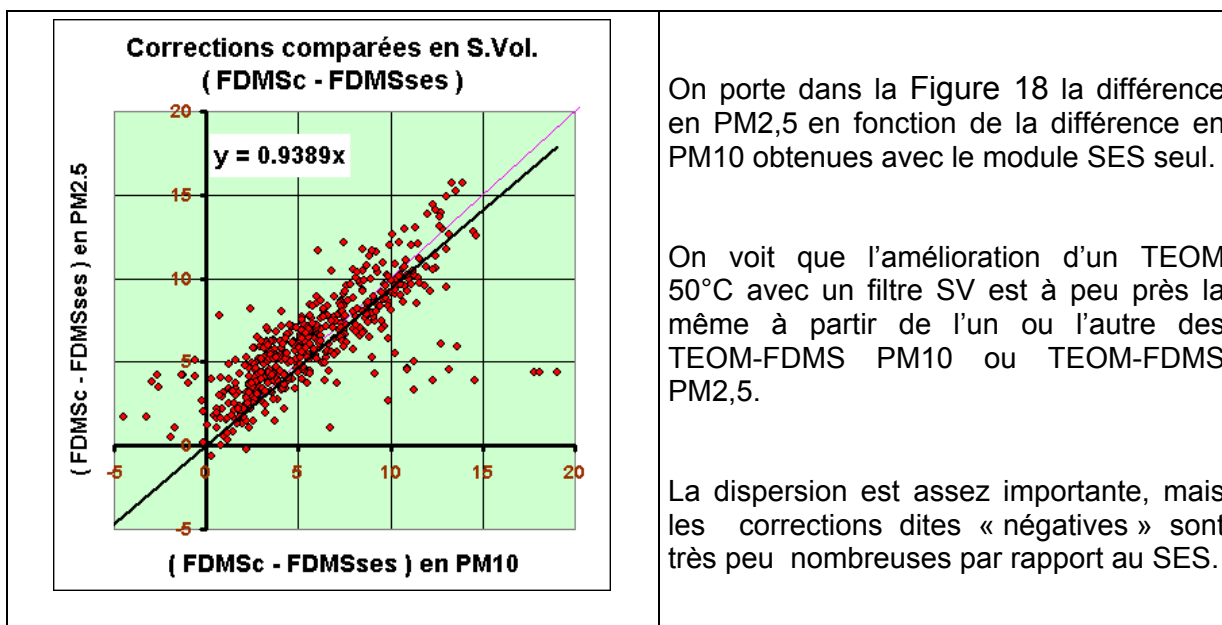


Figure 18 : corrections comparées avec le filtre SV entre PM10 et PM2,5

1.5.3 CONCLUSIONS

La validité d'une correction des données TEOM 50°C PM2,5 selon un protocole similaire à celui appliqué aux données des TEOM 50°C PM10 a été étudiée à partir des résultats obtenus lors de la campagne d'équivalence à Bobigny réalisées par l'INERIS en collaboration avec AIRPARIF entre le 10 février et le 16 mars 2005.

Il est constaté que le TEOM-FDMS PM10 donne des résultats d'autant plus éloignés de ceux du TEOM 50°C que les niveaux en PM2,5 sont plus élevés que les Coarse :

- L'apport correctif du SES suit nettement les évolutions des niveaux de PM2,5, mais pas des PM10, donc pas des Coarse ;
- L'apport correctif des SV suit beaucoup moins les évolutions des niveaux en PM ; il est plus faible et moins fluctuant lorsque les niveaux des Coarse sont élevés.

Les gains apportés par le SES d'une part, et par le filtre SV d'autre part, sont du même ordre de grandeur dans les TEOM-FDMS PM10 et TEOM-FDMS PM2,5 ;

La correction d'un TEOM 50°C PM2,5 apparaît donc possible à partir d'un couple TEOM-FDMS PM10.

Les corrections croisées obtenues montrent sur l'exemple de cette campagne une tendance à sur-corriger le TEOM 50°C PM10 avec la référence PM2,5 et à sous-corriger le TEOM 50°C PM2,5 avec la référence PM10.

Enfin, les observations tirées de cette étude, réalisée avec des données de Bobigny, demanderaient à être vérifiées à partir d'autres études, afin de diversifier les régions et les saisons étudiées.

2. BILAN DES ETUDES MENEES PAR LES AASQA : RESUME (INERIS)

Afin d'étoffer la base de données permettant d'argumenter sur la validité de l'hypothèse de correction des données TEOM PM2,5 avec l'écart mesuré sur les PM10, les AASQA ont réalisé un certain nombre de campagnes de mesure.

Nota : dans ce cadre, un TEOM-FDMS du LCSQA/INERIS a été mis en œuvre à la station AIRPARIF de Gennevilliers. Un doublet PM2,5 avec/sans FDMS a ainsi été constitué. Ces données ont été intégrées à l'analyse plus globale des données AIRPARIF, présentées en commission de suivi "particules".

Il est rapidement apparu essentiel d'exploiter les données selon un schéma commun. Un protocole commun minimal pour la comparaison de données a donc été mis au point par le LCSQA (pour plus de détails, cf. rapport « intégration des FDMS et RST »). Ce protocole (voir **annexe II**) a été exploité par les différents contributeurs présentant des données PM2,5 en commission de suivi "particules", permettant ainsi une présentation et une interprétation plus homogène des résultats.

L'analyse de l'ensemble des résultats a été réalisée dans le cadre de la commission de suivi "particules". Les principaux résultats montrent que les corrections de TEOM PM2,5 avec des écarts PM10 sur des sites urbains en région Ile de France et en Normandie sont jugées satisfaisantes par l'ensemble de la commission de suivi "particules" (se référer au compte rendu de la commission de suivi "particules" du 17 octobre 2007 pour plus de détails).

Toutefois, le nombre d'étude est trop faible pour étendre les résultats obtenus à l'ensemble de la France. De plus, la qualité du résultat, bien que satisfaisante, n'est en aucun cas jugée suffisante et comparable à la méthode de référence par la commission. Cette solution ne peut donc être qu'intermédiaire.

PARTIE 2

SYNTHESE DES CONTRAINTES SUR LES PM DANS LA REVISION DES TEXTES REGLEMENTAIRES EUROPEENS (INERIS)

Le projet de directive européenne unifiée a fait l'objet de discussion tout au long de l'année 2007. Malgré son caractère évolutif, l'intégration des PM_{2,5} dans ce texte ne fait plus de doute.

Une telle évolution induit des conséquences importantes pour le dispositif français : il est essentiel d'anticiper au maximum les changements, notamment en essayant d'avoir une vue de l'écart entre le dispositif français dans sa forme actuelle, et les différents scénarios que pourrait prendre le texte réglementaire définitif.

C'est pourquoi, tout au long de l'année, le LCSQA a réalisé une synthèse des contraintes sur la surveillance des PM afin de connaître l'impact sur les mesures réglementaires de PM. Cette synthèse a été présentée en commission de suivi "particules", et reprise en document de base sur les PM pour lancer les discussions dans la cadre du Groupe de Travail "Mise en œuvre des directives et stratégies de surveillance réglementaire". Ce document de synthèse, achevé cet automne, est présenté ci-dessous.

1. CONTRAINTES SUR LE NOMBRE MINIMAL DE POINTS DE PRELEVEMENT EN VUE DE L'EVALUATION DU RESPECT DES VALEURS LIMITEES

Le tableau 4.1 ci-après récapitule l'évolution du nombre minimal de points de mesure fixe en fonction du dépassement ou non des seuils d'évaluation. Notons qu'il est nécessaire, pour appliquer la nouvelle directive, de réactualiser les zones où l'on constate des dépassements de seuils d'évaluation en fonction des nouveaux seuils applicables. Les nouveaux seuils applicables pour les PM_{2.5} seront connus dès lors que les valeurs limites seront fixées.

Les nombres de points de prélèvement de PM doivent aussi respecter un certain nombre de règles :

- Les PM₁₀ et PM_{2,5} mesurés sur un même site comptent comme deux points de prélèvement,
- Les nombres totaux de points de prélèvement PM₁₀ et PM_{2,5} dans un état membre ne diffèrent pas d'un facteur supérieur à 2,

- Le nombre de points de prélèvement PM_{2,5} sur les sites urbains doit satisfaire aux exigences de l'annexe 5, section B (nombre minimal de site pour le calcul de l'IEM).

Population de l'agglomération ou de la zone (millier d'habitants)	Nombre de mesures fixes PM		Nombre de ZAS concernées (89 au total)
	Si la concentration dépasse un seuil supérieur d'évaluation ⁽¹⁾	Si les maximum des concentrations sont entre les seuils supérieurs et inférieurs d'évaluation	
0-249	2 (+1)	1 (+0)	59 NONAG + 6 AG
250-499	3 (+1)	2 (+1)	14
500-749	3 (+1)	2 (+1)	3
750-999	4 (+1)	2 (+1)	3
1 000-1 499	6 (+2)	3 (+1)	3
≥ 6 000	15 (+5)	7 (+2)	1
<i>Maximum</i>	<i>= 226 mesures fixes PM</i>		

Tableau 4.1 : Nombres minimaux de points de mesure fixes (et leurs évolutions avec la directive intégrée, entre parenthèse) en fonction du dépassement ou non des seuils d'évaluation. La ligne "Maximum" indique que si toutes les zones sont en dépassement du seuil supérieur, le nombre minimal de mesures fixes pour répondre à la directive serait de 226 en l'état actuel du zonage.

Si les concentrations dépassent un seuil supérieur d'évaluation (1) :

- Les points de prélèvement PM₁₀ qui montrent un dépassement d'une valeur limite (de la nouvelle directive) dans les 3 dernières années sont obligatoirement maintenus,
- Les nombres de sites urbains et de sites de trafics dans chaque état ne diffèrent pas d'un facteur supérieur à 2,
- Dans chaque zone, le nombre obligatoire de points de mesure fixe contient au moins un site urbain et un site trafic.

Enfin, les ratios liant les nombres de points de prélèvement PM₁₀ et PM_{2,5}, et de sites urbains et trafics sont applicables aux nombres minimaux requis sans tenir compte des stations venant en supplément.

2. CONTRAINTES SUR LE NOMBRE MINIMAL DE POINTS DE PRELEVEMENT PM2,5 EN VUE DU CALCUL DE L'INDICE D'EXPOSITION MOYENNE (IEM) ET DE L'EVALUATION DU RESPECT DE L'OBJECTIF NATIONAL DE REDUCTION DE L'EXPOSITION

L'IEM est déterminé (Annexe XIV) sur la base des mesures effectuées dans des lieux caractéristiques de la pollution de fond urbaine, situés dans des zones et agglomérations sur l'ensemble du territoire d'un Etat membre. Il doit être estimé en tant que concentration moyenne annuelle sur trois années civiles consécutives, en moyenne sur tous les points de prélèvement mis en place en application de l'annexe V, section B (concernant le nombre minimal de point de mesure fixe pour le calcul de l'IEM). L'IEM pour l'année de référence 2010 serait la concentration moyenne des années 2008, 2009 et 2010.

Il est donné une contrainte sur le nombre minimal de points (Annexe V.B) :

« One sampling point per million inhabitants summed over agglomerations and additional urban areas in excess of 100 000 inhabitants shall be operated for this purpose. Those sampling points may coincide with sampling points under Section A. »

Traduction : Il faut considérer un point de prélèvement par million d'habitants compris dans le total des habitants des agglomérations de plus de 100 000 habitants.

Données INSEE 2006 : en France, 57 unités urbaines de plus de 100 000 habitants comptant un total de 27 millions d'habitants.

L'IEM doit être la moyenne des PM2,5 calculée sur au moins 27 sites de fond urbains et sur trois années civiles consécutives. Il est possible :

- De choisir les points, même à posteriori (permet de s'affranchir des problèmes de saisies minimales de données, statistiquement possibles sur 3 ans pour 27 sites, en maximisant le nombre de site)
- De ne pas choisir l'ensemble des points de prélèvement fixes nécessaires à l'évaluation du respect des valeurs limites (cf. paragraphe précédent).

L'annexe XIV de la directive indique que l'IEM sera recalculé en 2020, comme la concentration moyenne des années 2018, 2019 et 2020 sur tous les points de prélèvement. "Tous les points de prélèvement" semble indiquer (de manière implicite) que les mêmes points de prélèvement doivent être utilisés. Toutefois, le texte ne donne pas plus de précision, et laisse donc la porte ouverte à une évolution de la position ou du nombre de points choisis.

Par exemple, une évolution du nombre d'habitants total dans les unités urbaines de plus de 100 000 habitants d'ici 2020 pourrait obliger à augmenter le nombre de points de prélèvement utilisés pour l'IEM 2010 pour le calcul de l'IEM 2020.

Rien n'interdit de choisir des points de prélèvement différents pour les calculs des IEM 2010 et 2020 (comme dans le cas précédent, cela évite de devoir maximiser encore plus le nombre de site pour prévenir les problèmes de saisie minimale, de suppression ou encore d'évolution de typologie de stations entre les périodes de mesure pour les IEM 2010 et 2020)

3. CONTRAINTES EN ZONE RURALE

Des mesures de la composition chimique des aérosols doivent être effectuées sur un certain nombre de sites ruraux. Cette obligation est définie dans l'article 6, alinéa 5, et fait référence à l'annexe IV.

Les termes "spéciation chimique des PM_{2,5}" et "mesure de la composition chimique des PM_{2,5}" ont la même signification.

3.1 OBJECTIFS

Un certain nombre d'objectifs sont énoncés en annexe IV.A. Il est notamment dit que ces mesures de spéciation sont "essentielles" ou "fondamentales" pour :

- assurer la mise à disposition d'informations adéquates concernant les niveaux de pollution de fond,
- estimer les niveaux de pollution dans les zones plus polluées (telles que les lieux marqués par la pollution de fond urbaine, la pollution due aux activités industrielles, la pollution due à la circulation),
- estimer la contribution éventuelle du transport à longue distance des polluants atmosphériques,
- étayer l'analyse de la répartition entre les sources de pollution,
- l'utilisation accrue de la modélisation dans les zones urbaines.

3.2 SUBSTANCES

La mesure des PM_{2,5} doit au moins comprendre la concentration totale en masse et les concentrations des composés adéquats pour en caractériser la composition chimique. La directive oblige à inclure au moins la liste des espèces chimiques ci-dessous :

SO ₄ ²⁻	Na ⁺	NH ₄ ⁺	Ca ²⁺	Carbone élémentaire (CE)
NO ₃ ⁻	K ⁺	Cl ⁻	Mg ²⁺	Carbone organique (CO)

3.3 NOMBRE DE POINTS DE PRELEVEMENT :

Pour la France, cette précision est donnée par la phrase : "un point de prélèvement est installé par 100 000 km²". La superficie de la France métropolitaine est de 551 500 km², 675 417 km² avec l'outre-mer, ce qui fait 6 ou 7 points de prélèvement.

3.4 IMPLANTATION

Les précisions sont données dans l'article 6 alinéa 5 : "des mesures sont effectuées dans des lieux ruraux caractéristiques de la pollution de fond à l'écart des sources importantes de pollution atmosphérique"

et dans l'annexe IV point C :

"Les mesures devraient être effectuées en particulier dans les zones marquées par une pollution de fond rurale conformément à l'annexe III, sections A, B et C"

3.5 LIEN AVEC LE DISPOSITIF MERA

"le cas échéant, la surveillance est coordonnée avec la stratégie de surveillance et le programme de mesure du programme concerté de surveillance continue et d'évaluation du transport à longue distance des polluants atmosphériques en Europe (EMEP)" (Article 6.5 alinéa c)

3.6 OBJECTIFS DE QUALITE ET METHODE

L'annexe I, sections A et C, s'applique en ce qui concerne les objectifs de qualité des données pour les mesures de concentration massique de particules

Les objectifs de qualité décrits en annexe I s'appliquent uniquement à la mesure de masse de PM_{2,5}, et non à leur spéciation chimique.

Pour la spéciation chimique, peu de détail sont donnés :

- [...] dans le but de fournir, au minimum, [...] les concentrations évaluées par spéciation chimique des particules fines (PM_{2,5}) en moyenne annuelle (premier paragraphe de l'article 6 alinéa 5).
- Les États membres informent également la Commission des méthodes utilisées pour mesurer la composition chimique des particules fines (PM_{2,5}) (dernière ligne de l'article 6 alinéa 5).

Concernant la spéciation chimique des PM_{2,5}, l'état membre doit fournir au minimum une moyenne annuelle pour les éléments cités. Il est libre de choisir la méthode de mesure, mais doit la communiquer à la commission. Il n'y a pas de contrainte sur les objectifs de qualité.

Commentaire sur la méthode de prélèvement :

La spéciation vise à mieux comprendre l'origine de la masse totale de PM_{2,5} mesurées sur les sites de mesure et alentours (zones urbaines, pollution transfrontalière). Cette masse est mesurée conformément à la norme EN 14907 (méthode de référence ou équivalente). Il est donc implicite que le prélèvement de PM_{2,5} réalisé pour la spéciation chimique doit l'être dans des conditions qui rendent le résultat comparable aux mesures de masse totale de PM_{2,5}.

Cela signifie que la moyenne annuelle minimale requise devrait en toute logique (mais sans obligation ou même recommandation) être calculée à partir de mesures sur des prélèvements de 24h sur filtres conformes à la norme EN 14907 en ce qui concerne la partie prélèvement.

PARTIE 3

CONNAISSANCE GENERALE SUR LES PM2,5 (INERIS)

1. INTRODUCTION

L'objet initial de cette partie était de présenter une bibliographie portant sur les actions métrologiques existantes en terme de prélèvements et d'analyse (composition chimique), les sources (naturelles et anthropiques), et les variabilités spatio-temporelles des concentrations en PM2,5. La recherche bibliographique effectuée sur ces thèmes a permis d'identifier plusieurs centaines de publications de résultats scientifiques. Il est donc apparu difficile d'effectuer une réelle bibliographie exhaustive. Il semble en revanche plus intéressant de cibler l'étude sur les travaux européens récents, afin de sélectionner les principales références et travaux de synthèse. L'objectif de cette partie est donc de résumer quelques éléments de base concernant les PM2,5, d'intérêt dans le cadre de l'application de textes réglementaires, et de guider le lecteur vers les principales références européennes sur ce sujet.

Les particules sont actuellement étudiées sous différents angles, en fonction de la question environnementale traitée : concentrations massiques, propriétés chimiques ou optiques, distributions granulométriques, hygroscopicité... Dans le cadre de l'application des directives européennes, un grand nombre d'études (liées à des questions métrologiques, de modélisation, ou plus générales) ont déjà été réalisées au sein du LCSQA. Si le principal paramètre étudié est la concentration massique de PM10 et de PM2,5, beaucoup d'actions ont également été menées sur les thèmes de la modélisation (prévision) des HAP, des métaux, ou encore de la granulométrie. L'ensemble de ces études est disponible sur le site du LCSQA (www.lcsqa.org). La synthèse bibliographique proposée est donc axée sur les nouveaux besoins réglementaires, avec une partie consacrée aux concentrations en PM2,5 rencontrées en Europe, dont un bref aperçu concernant leurs principales sources (paragraphe 2), et sur la composition chimique des PM2,5 (paragraphe 3).

2. VARIABILITES SPATIO-TEMPORELLES DES CONCENTRATIONS EN PM2,5

2.1 DOCUMENTS DE REFERENCE

Le programme EMEP de la CEE-NU, qui s'intéresse au transfert à longue distance des polluants en Europe, a émis un rapport en 2007 sur la problématique des particules en Europe (www.nilu.no/projects/ccc/reports/cccr8-2007.pdf). Ce rapport, auquel le LCSQA a largement contribué, concerne la situation globale au niveau de l'Europe. Il fait également référence aux expériences des pays

membres qui tentent de répondre à un certain nombre d'interrogations sur l'homogénéité des concentrations de PM en Europe, leur composition chimique et origine, la contribution des différentes sources (anthropiques et naturelles). La contribution de la France à cette étude, est présentée en annexe III.

Le second document de référence est une synthèse des données de caractérisation physico-chimique des particules générées en Europe ces dix dernières années. Cette étude du Joint Research Centre de la commission européenne a été publiée en 2004 (http://ccu.jrc.it/Pubblications/putaud_JF1_pdfPM-draft_02Jul.pdf) et traite de la variabilité spatio-temporelle des concentrations et de la granulométrie et de la composition chimique de l'aérosol dans l'air ambiant. Les données rassemblées dans ces publications sont issues de mesures réalisées par 12 instituts sur 31 sites en Europe.

Enfin, l'étude LCSQA de 2006 portant sur l'analyse statistique des données de PM_{2,5} en milieu urbain et périurbain (http://www.lcsqa.org/system/files/Etude_stat_PM2.5_mars07_v-finale_corr-27-09-07_1.pdf) constitue la principale source d'information au niveau français sur ce thème. Cette étude repose sur l'ensemble des données de mesure de PM_{2,5} disponibles en France (issues de la BDQA) sur les trois dernières années (de 2003 à 2005), et cela, quel que soit le type de station : urbaine, péri-urbaine, rurale.

Les éléments développés ci-dessous proviennent, sauf indication contraire, de ces 3 documents de base (et références inclusent), auxquels il faut donc se référer pour plus de précisions.

2.2 CONCENTRATIONS MASSIQUES

2.2.1 VARIABILITE SPATIALE

Au niveau européen, les concentrations moyennes annuelles mesurées au niveau des sites de fond et des sites ruraux se sont révélées égales aux percentiles 5 des concentrations moyennes annuelles mesurées en sites de proximité. Un bruit de fond annuel moyen de 4,8 +/- 2,4 µg/m³ de PM_{2,5} a alors été déterminé au niveau de l'Europe en moyennant ces valeurs. Les concentrations en PM_{2,5} mesurées en 2004 sur les sites ruraux variaient de 3,3 µg/m³ en Norvège à 28,3 µg/m³ en Italie. Pour les sites trafic, elles étaient comprises entre 8 µg/m³ en Finlande et 56 µg/m³ en Bulgarie. Les concentrations de PM_{2,5} augmentent quand on se déplace en Europe de l'ouest vers l'est, cette évolution est due aux différences observées en terme de conditions de dispersions entre les zones soumises à un climat océanique ou continental.

Les facteurs influençant les concentrations de PM à l'échelle régionale sont les conditions de dispersion des polluants associés à la topographie et à la météorologie du site, les émissions de poussières primaires et de précurseurs et le transport transfrontière des PM.

Certains sites de fonds urbains peuvent présenter des concentrations plus élevées en PM_{2,5} que des sites trafic d'autres grandes villes européennes. Dans certaines villes, les concentrations de PM_{2,5} sont très impactées par le bruit de fond

régional. Le ratio $PM_{2,5}/PM_{10}$ est trop variable pour considérer un ratio valable sur tous les sites. En revanche sur un site donné, il est parfois possible d'établir une relation linéaire entre les concentrations de PM_{10} et de $PM_{2,5}$, bien que cette relation puisse être soumise à des fluctuations saisonnières. Enfin, les zones océaniques sont caractérisées par des aérosols présentant une part importante de sels marin. Les sels marin sont plutôt présents dans la partie « grossière » des particules ce qui explique que dans ces zones, la contribution des $PM_{2,5}$ au PM_{10} est plus faible.

Au niveau Français, Les concentrations de fond de $PM_{2,5}$ en agglomération se situent le plus souvent entre 5 et 10 $\mu g/m^3$, des concentrations plus élevées étant mesurées à Marseille (entre 10 et 20 $\mu g/m^3$). Il est important de noter qu'il s'agit de mesures non corrigées des pertes en fraction volatile. Les régions PACA, Rhône-Alpes, Nord-Pas-de-Calais, Alsace et Aquitaine connaissent des niveaux de $PM_{2,5}$ relativement élevés, à l'inverse des régions Centre, Basse-Normandie et Pays de la Loire.

2.2.2 VARIABILITE TEMPORELLE

Au niveau européen, les concentrations de $PM_{2,5}$ sont plus élevées pendant les périodes Mars/Avril et Novembre/Décembre. Les valeurs les plus faibles sont observées pendant la période estivale. Les conditions météorologiques arides observées en été aboutissent à des concentrations élevées dans les zones rurales du sud et de l'est de l'Europe. Les zones du sud de l'Europe sont très influencées par les poussières désertiques naturelles provenant du Sahara. En hiver, l'utilisation du chauffage domestique au bois est à l'origine de concentrations élevées.

Au niveau français, certaines agglomérations sont marquées par un cycle annuel des concentrations (Grenoble, Strasbourg) : valeurs hivernales plus élevées, valeurs estivales plus faibles. En dehors des stations trafic, on n'observe pas de cycle hebdomadaire. En ce qui concerne l'évolution inter annuelle des concentrations de $PM_{2,5}$, on observe une baisse des niveaux entre 2003 et 2004-2005 ; aucune évolution particulière n'étant détectée entre 2004 et 2005.

2.2.3 CONTRIBUTION DE LA FRACTION $PM_{2,5}$ AUX CONCENTRATIONS DE PM_{10}

Les concentrations de PM_{10} et $PM_{2,5}$ apparaissent très corrélées dans toutes les zones. Ces corrélations sont particulièrement élevées en hiver et dans les zones de Paris, du Nord et de la région Rhône-Alpes. La contribution des $PM_{2,5}$ aux concentrations de PM_{10} varie selon la zone géographique, les contributions les plus élevées sont observées à l'est (>72%) alors que les zones côtières du nord et de l'ouest présentent les contributions les plus faibles (<60%). Les ratios $PM_{2,5}/PM_{10}$ sont en général de 5 à 10% plus élevés en hiver qu'en été.

En site trafic, la composante liée à la remise en suspension des particules appartient à la fraction grossière, elle impacte donc peu les concentrations de $PM_{2,5}$ mesurées.

En sites de fond, ruraux, de proximité et urbain la fraction de particules fines est prédominante. Le ratio $PM_{2,5}/PM_{10}$ augmente avec les concentrations de PM_{10} , c'est à dire qu'en période de pollution, les concentrations de PM_{10} sont liées à une contribution plus importante de la fraction fine.

Les épisodes de pollution sont caractérisés par une augmentation de la contribution en particules fines sur tous les types de sites, mis à part les sites trafic qui voient leur contribution de particules de la fraction grossière augmenter (ce qui peut être liée à une remobilisation accrue des poussières déposées au sol).

Aucune corrélation générale n'a pu être établie entre les concentrations de PM_{2,5} et le nombre de particules. Les sites présentant les concentrations de PM faibles montrent de bonnes corrélations alors que les sites auxquels sont associées des concentrations élevées ne présentent pas de corrélation claire entre le nombre et la concentration massique de particules.

En revanche, il a été observé en France de bonnes corrélations (supérieures à 0.75) entre NO₂ et PM_{2,5}, ce qui met en évidence, dans une proportion raisonnable, la part secondaire des PM_{2,5}.

2.3 GRANULOMETRIE

Les aérosols atmosphériques sont caractérisés par une granulométrie polydispersée. Les distributions en nombre et en masse d'un même aérosol sont différentes et sont dues à des processus de formation différents. Il n'existe donc pas de corrélation simple entre les concentrations en nombre et en taille.

En été, les distributions observées le matin sont plutôt influencées par le trafic, alors que celles observées l'après midi sont aussi impactées par l'activité photochimique. La nuit, la distribution mesurée correspond au bruit de fond. Les concentrations en nombre varient d'un facteur 10 entre les valeurs minimales et les valeurs maximales mesurées.

2.4 SOURCES DE PM_{2,5}

2.4.1 CONTRIBUTION DES SOURCES ANTHROPOGENIQUES

La figure suivante est issue du Rapport d'Inventaire National du CITEPA, publié en 2007 (www.citepa.org/emissions/nationale/index.htm). Elle illustre l'évolution des émissions de PM_{2,5} et des contributions relatives des différentes sources entre 1990 et 2006. Les principales contributions aux émissions de PM_{2,5} sont donc dues à l'activité tertiaire et résidentielle, à l'industrie manufacturière, à l'agriculture et à la sylviculture, au transport routier, et dans une moindre mesure, à la transformation d'énergie.

D'après les études du CITEPA, les émissions globales ont diminué d'un tiers depuis 1990 puisqu'elles sont passées de près de 500 tonnes à environ 325 tonnes. Cette évolution est liée à la diminution des contributions des sources de transformation énergétique et résidentiel-tertiaire. Un autre rapport du CITEPA¹ synthétise les données des inventaires d'émission des sources déclarées en France, les concentrations en particules totales et la contribution des fractions PM₁₀, PM_{2,5} et PM₁ à l'aérosol y sont présentées. Ces sources peuvent être caractérisées par des mesures directes à l'émission ou dans l'environnement en s'intéressant à des traceurs spécifiques, par traitements statistiques des données

collectées. Il est important de noter qu'un grand nombre d'incertitudes existent toutefois dans la connaissance des différents facteurs d'émission. A titre d'exemple, l'étude du LCSQA de 2007 portant sur les épisodes de PM10 en France durant le printemps 2007 (www.lcsqa.org) a montré que les émissions par l'agriculture de composés nitrés à l'origine de la formation de quantité importante de nitrate d'ammonium nécessitait encore un important travail de recherche.

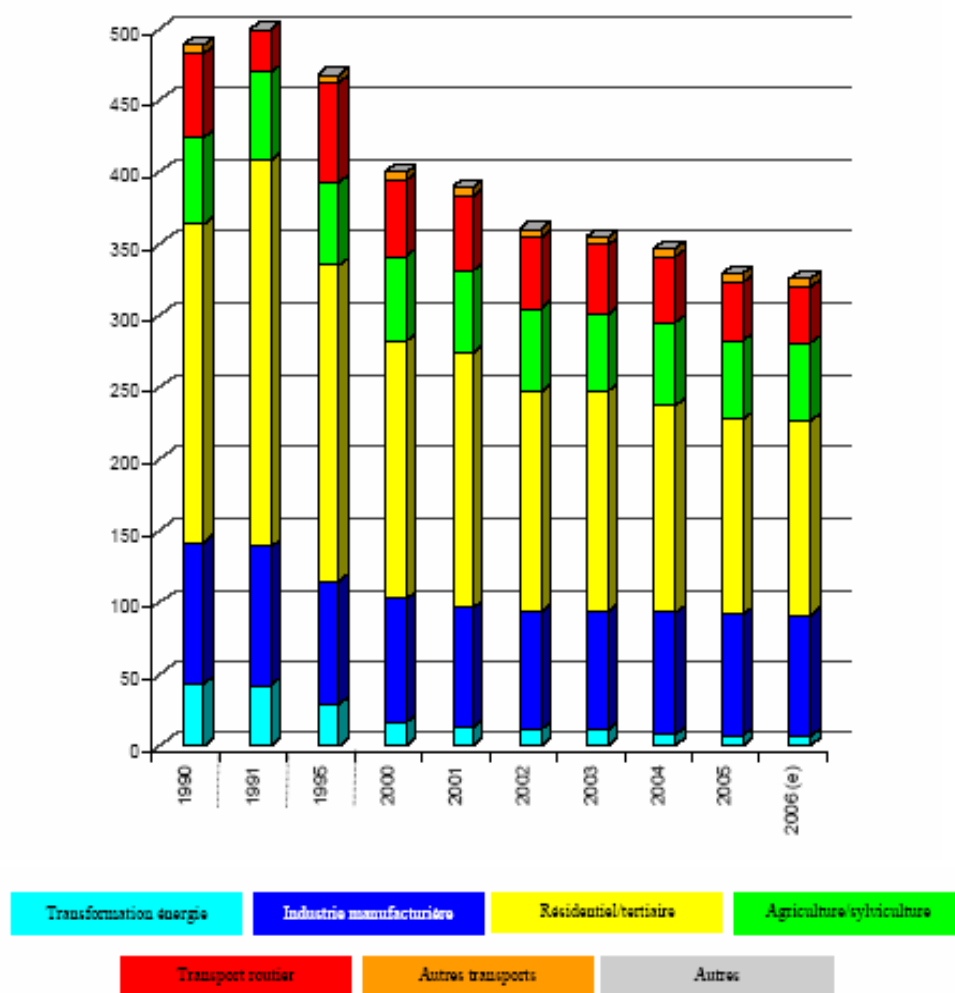


Figure 19 : Evolution des émissions de PM2,5 et des contributions des différentes sources de 1990 à 2006

Un certain nombre de travaux en cours ont pour objectif de réduire ces incertitudes. En France, le programme de recherche inter-organisme Primequal Prédit² vise, par le soutien financier à des projets de recherche, à analyser l'impact de la pollution due aux transports routiers, en développant des connaissances et des systèmes pour l'amélioration de la qualité de l'air et l'environnement. En particulier, l'appel à proposition de recherches Primequal 2 de 2006 était focalisé

² Programme de recherche et d'innovation dans les transports terrestres, <http://www.predit.prd.fr/predit3/menu.fo?cmd=statique&redirect=presentation>

sur la pollution de proximité, notamment par les particules. Plusieurs études^{3,4}, concernant l'impact sur la qualité de l'air de l'utilisation de la combustion du bois pour le chauffage domestique sont actuellement en cours. Par ailleurs, l'étude GAEC⁵, pilotée par l'INERIS, a traité de la mise en œuvre et de la performance métrologique de méthodes automatiques et manuelles pour la caractérisation des aérosols à l'émission de sources fixes. Cette étude a concerné les secteurs cimenterie, production énergétique par centrale à charbon et valorisation énergétique des déchets.

2.5 CONTRIBUTION DES SOURCES NATURELLES OU BIOGENIQUES

Un état de l'art a été réalisé par le Joint Research Centre de la commission européenne (<http://natsources.jrc.it/>) afin d'évaluer la contribution des sources naturelles aux niveaux PM en Europe. L'objectif de cet état de l'art est de proposer des bases techniques à l'élaboration de guides pour la prise en charge de ces contributions par les états membres. Ce document fait état des différentes sources naturelles d'aérosols, des méthodes permettant de les caractériser et de leur impact sur les concentrations de PM en Europe.

En résumé, la contribution des aérosols d'origine naturelle peut varier en Europe de 5% à 50% en moyenne. Le niveau de bruit de fond naturel varie selon les régions d'Europe. Dans certains pays tels, que les pays méditerranéens, il peut être à l'origine de dépassements des valeurs limites. Il existe plusieurs contributeurs à ces aérosols naturels. Parmi les principaux, on notera ;

- L'aérosol marin, qui représente une part non négligeable de l'aérosol global. Il impacte principalement les concentrations en PM₁₀, et dans une moindre mesure les concentrations de PM_{2,5} dans les zones méditerranéennes et les zones côtières du nord de l'Europe. Les contributions élevées d'aérosol marin sont plutôt observées en été et sont associées à des concentrations de PM faibles. L'aérosol marin est principalement constitué de sel marin (sodium, chlore, magnésium) primaire, et dans une moindre mesure d'espèces secondaires telles que des ions sulfate et la matière organique issue de la conversion gaz-particule de composés organiques volatils biogéniques.
- L'aérosol biologique. Sa composante primaire est constituée de pollen, de spores de bactéries et de virus. Il est réparti dans le mode grossier de l'aérosol global. L'aérosol biologique secondaire représente une part minoritaire de l'aérosol, sa formation est favorisée en période chaude.
- Les poussières désertiques, majoritairement présentes dans le mode grossier de l'aérosol. Lors de forts épisodes de pollution observés dans les pays méditerranéens du sud de l'Europe, la contribution massique des poussières désertiques aux concentrations de PM₁₀ peut atteindre 60%. Ces épisodes sont plus fréquents au printemps et à l'été. L'Espagne, l'Italie, le Portugal et la

³ Évaluation de l'impact des appareils de chauffage domestique à bois sur la qualité de l'air intérieur et extérieur, Convention ADEME N° 0501C0066

⁴ Etude LCSQA sur les traceurs de feux de bois dans les particules, pilotée par l'INERIS.

⁵ Détermination de la granulométrie des aérosols dans les émissions canalisées : PM₁₀, PM_{2,5}, PM₁ et PM_{0,1} Convention ADEME N°, Rapport final, 2007"

Grèce sont les pays européens les plus affectés par ces poussières désertiques. A titre d'exemple, plus de vingt épisodes de dépassement des seuils de PM10 observés en Espagne ont pu être attribués aux poussières désertiques.

3. COMPOSITION CHIMIQUE

Parmi les espèces chimiques généralement étudiées, on distingue les espèces dites majoritaires, (c'est à dire prenant un part importante en masse de la composition des PM2,5) et minoritaires (comme les HAP ou les métaux).

La future directive européenne imposera aux états membre la mesure des composés majoritaires des PM2,5 sur des sites de fond. Ces espèces sont divisées en deux familles :

- La composante inorganique soluble, mesurée sous forme d'anions (nitrate, chlorure, et sulfate) et de cations (ammonium, sodium, potassium, magnésium et calcium). Le prélèvement et l'analyse de ces composés ne sont pas normalisés, mais des guides de référence publiés par EMEP sont disponibles (<http://www.nilu.no/projects/ccc/manual/index.html>).
- La matière carbonée (divisée en carbone organique et carbone élémentaire). Le carbone élémentaire est, en première approximation, assimilable à du graphite pur. Le carbone organique regroupe l'ensemble des espèces constituant la matière carbonée fonctionnalisée (alcanes, acides, espèces aromatiques...). Ils sont déterminés par analyse en laboratoire de l'aérosol collecté sur filtre. Plusieurs méthodes à détection optique et thermique sont envisageables. Les résultats d'un exercice d'intercomparaison⁶ entre dix-sept laboratoires européens utilisant différentes techniques ont été publiés en 2000. Ces résultats montrent peu d'écarts entre les laboratoires pour la détermination du carbone total. En revanche, les résultats concernant le carbone organique et le carbone élémentaire montrent des différences significatives, qui sont en partie dues au fait qu'il n'existe pas de méthode de référence internationale permettant de différencier ces deux formes. Un programme de recherche européen en cours, EUSAAR (European Supersites for Atmospheric Aerosol Research, www.eusaar.net) a notamment pour but de définir une méthode commune et harmonisée pour la mesure de EC et OC. Ces développements sont plus précisément suivis dans le cadre de l'étude LCSQA CARA. Il convient enfin de noter que ces mesures donnent accès à la masse de carbone organique, c'est à dire la masse d'atomes de carbone comprise dans la matière organique. La masse réelle de matière organique n'est donc pas mesurée, et un facteur 1,4 est généralement utilisé pour ce calcul (ce facteur peut varier de 1,2 à 2,2).

Enfin, il convient de garder à l'esprit que les espèces semi-volatiles ou réactives prélevées sur filtres peuvent être soumises soit à des artefacts de prélèvement (positif et/ou négatifs), soit à des phénomènes post-dépôts.

⁶ H. Schmid et al, Results of the « carbon conference international aerosol carbon round robin test stage I, Atmospheric Environment 35 (2001) 2111-2121

3.1 CONTRIBUTION DES DIFFERENTES ESPECES AUX PM2,5

La composition chimique des PM_{2,5} est affectée par la contribution relative des fractions fines et grossière. Les composés majoritaires représentent 70% de la masse de l'aérosol, la part indéterminée comprend les espèces non mesurées (et notamment l'eau), et est liée aux incertitudes existant au niveau du facteur utilisé pour convertir la masse de carbone organique en masse de matière organique. Tous les composés, excepté le carbone élémentaire, sont présents dans la fraction fine et dans la fraction grossière mais en proportion différente ; les poussières minérales et le sel marin sont plutôt présents dans la fraction grossière. Les ions ammonium, sulfate, et nitrate ainsi que la matière organique sont majoritairement présents dans la fraction fine mais existent également dans la fraction grossière. Le carbone élémentaire est quant à lui très majoritairement localisé dans la fraction fine des particules.

La contribution relative des différentes espèces varie peu quand les concentrations de PM₁₀ évoluent. Les épisodes de fortes concentrations de PM sont donc principalement liés à des conditions météorologiques particulières aboutissant à une faible dispersion des polluants dans l'atmosphère, qu'ils soit émis localement ou importé.

3.2 FRACTION CARBONEE

La matière organique est la composante majoritaire des PM_{2,5} au niveau des sites de proximité, des sites urbains et des sites trafic. Le carbone suie représente généralement 5 à 10 % des concentrations massiques de PM_{2,5}. Les jours où les concentrations de PM_{2,5} sont supérieures à 10 µg/m³ sont caractérisés par une contribution majoritaire du nitrate. Les particules les plus fines, c'est à dire présentant un diamètre aérodynamique inférieur à 150 nm sont majoritairement constituées de carbone organique et de carbone suie.

La matière organique présente dans la fraction fine provient des sources primaires de combustion ainsi que de l'oxydation de composés organiques volatils dans l'atmosphère. Une note publiée par le CNRS fin 2007 (www2.cnrs.fr/presse/communique/1246.htm?theme1=6), réunissant les résultats de nombreux travaux précise que la combustion de biomasse (feux de cheminée, feux agricoles et feux de jardins) est responsable de 50 à 70% de la pollution carbonée hivernale en Europe.

Lorsqu'on compare les sites de fond aux sites trafic, on observe une contribution constante de la matière organique à la concentration massique de PM_{2,5}. La contribution en carbone total au niveau des sites trafic est supérieure à celle observée au niveau des sites de fond, cette observation est particulièrement marquée pour les PM_{2,5}.

Enfin, et de manière générale, il convient d'être attentif au fait que le facteur utilisé pour la conversion d'une masse de carbone organique en masse de matière organique est constant, ce qui ne correspond pas forcément à la réalité.

3.3 ESPECES INORGANIQUES

Le nitrate d'ammonium en phase particulaire est généralement en équilibre avec l'ammoniac et l'acide nitrique présents en phase gaz. L'ammoniac est principalement émis par des sources agricoles. L'acide nitrique est issu de l'oxydation des NOx émis par des sources industrielles, véhiculaires, agricoles et naturelles. L'ammonium a un comportement proche des ions nitrate et sulfate anthropiques (c'est à dire non-marin). Le sulfate ne montre pas de variation spatiale marquée.

Le sel marin et les composés associés sont présents dans les fractions PM_{2,5} et PM₁₀. Les sites situés en bord de mer présentent une contribution majoritaire en sel marin, alors qu'elle est très minoritaire au niveau des sites urbains et trafic.

La quantité de poussières minérales obtenue par caractérisation des éléments traces est faible au niveau des sites de fond, des sites ruraux et des sites urbains, en revanche elle est élevée au niveau des sites trafic. Les ions nitrate présents dans la fraction fine sont associés aux ions ammonium alors que ceux présents dans la fraction grossière sont associés au sel marin et aux poussières minérales. Enfin, la contribution des ions sulfate est identique voir plus faible au niveau des sites trafic qu'au niveau des sites de fond et des sites ruraux. Ceci indique que les émissions locales ne contribuent pas à l'augmentation des teneurs en sulfate particulaire (espèce secondaire). Sur ces types de sites, les sulfates contribuent majoritairement aux concentrations massiques de PM_{2,5}.

PARTIE 4

JUSTESSE DU SEUIL DE COUPURE GRANULOMETRIQUE D'UNE TETE DE PRELEVEMENT DES PARTICULES PM2,5 ET PM10 (LNE)

Les particules mesurées sont de plusieurs types : les matières particulaires en suspension (MSP), les particules thoraciques qui pénètrent à l'intérieur du thorax, dans lesquelles on distingue les particules inférieures à 10 micromètres (PM10) et celles inférieures à 2,5 μm (PM2,5). Les méthodes mises en œuvre pour les mesurer sont basées sur la gravimétrie et utilisent un séparateur dimensionné pour le type recherché, qui peut être un impacteur ou un cyclone. Les prélèvements sont généralement réalisés sur une période de 24 heures. Pour un suivi permanent et en temps réel des variations des concentrations des particules dans l'air ambiant, des méthodes automatiques ont été développées : TEOM (Tapered Element Oscillating Microbalance), jauge bêta (à atténuation de rayonnement bêta), balance à cristal piézo-électrique, néphélomètre intégrateur.

Un ensemble de mesure comprend :

- Une tête de prélèvement (inlet ou head inlet), qui doit permettre un échantillonnage de l'air ambiant quelle que soit la vitesse du vent et son orientation, en évitant la pénétration de la pluie, de la neige et d'éléments grossiers colportés comme végétaux ou insectes volants,
- Un élément séparateur (impacteur ou cyclone) adapté à la granulométrie visée par la mesure (souvent inclus dans la tête de prélèvement),
- Un collecteur (filtre et autres supports) ou un dispositif de mesure automatique (micro-balance, jauge bêta),
- Un dispositif d'aspiration à débit constant auto régulé.

Les méthodes automatiques ont été développées immédiatement après que les méthodes gravimétriques de référence furent validées, et les parties appelées « tête (head inlet ou PM inlet) » et « séparateur (PM10 et 2,5) » sont maintenant utilisées dans les deux méthodologies.

Dans cet examen bibliographique, nous examinerons d'abord l'évolution des matériels et des méthodes de référence gravimétriques, au niveau de la partie « tête » et de la partie « séparateur », puis nous ferons un tour d'horizon non exhaustif sur les méthodes équivalentes et automatiques, à partir de quelques études américaines et européennes récentes.

1. BREF HISTORIQUE

Les études sur la mesure et l'évaluation des moyens nécessaires pour prélever et différencier les matières particulaires de l'air ambiant se sont intensifiées depuis environ 30 ans, notamment aux USA grâce à la promulgation à partir de 1996 dans le cadre du titre 40 (Protection de l'Environnement) du code des règlements fédéraux (CFR), des nouveaux protocoles à suivre pour concevoir et tester les méthodes de mesures des PM10 et PM2,5.

En Europe, c'est également dans la fin des années 90 que la directive « mère » 96/62/CE est publiée, suivi de la directive « fille » 1999/30/CE concernant les PM10, ainsi que la norme NF EN 12341 comme méthode de référence et procédure d'essai in situ pour les PM10.

2. GENERALITES

Après les travaux d'ANDERSEN (entre 1958 et 1966), ceux de GOSMAN, A.D. en 1969 (1) et de MARPLE, V.A. en 1970 (2) ont abouti à la modélisation des caractéristiques des impacteurs afin d'offrir la possibilité de construire ces appareils pour une application donnée et pour une dimension précise de particule impactée. De même les travaux de KENNY, L.C., et GUSMAN, R.A., depuis 1997 (3) sur les caractéristiques modélisées des cyclones ont été déterminants sur cette autre technique séparative des particules.

Un impacteur utilise la vitesse d'inertie d'une particule par rapport à la vitesse du flux d'air qui la transporte, lorsqu'un écran est placé à une certaine distance du jet d'arrivée de la veine d'air chargée en particules. Les particules qui ont le plus d'inertie s'impactent sur cet écran (qui peut être un filtre collecteur), les autres qui ont moins d'inertie continuent leur chemin dans la veine d'air. De même dans un cyclone où l'impaction sur une surface est remplacée par une arrivée tangentielle suivie d'une détente périphérique avec un changement de direction, ce qui exploite également la vitesse d'inertie, la collecte se fait à l'opposé de la sortie de la veine d'air. Pour obtenir une séparation performante, le jet d'air doit avoir un nombre de Reynolds compris entre 500 et 3000, et il faut donc adapter en dimension la buse d'arrivée du jet pour y parvenir. Dans le même ordre d'idée, une bonne séparation des PM2,5 correspond à un jet permettant un nombre de Reynolds supérieur à 3000.

La notion de diamètre aérodynamique doit être maîtrisée. Les particules réelles sont de formes et de densités différentes. Lorsque la particule est sphérique, définir sa taille est facile : il s'agit de son diamètre. Mais pour une autre forme de particule, le terme diamètre n'est plus représentatif. Les physiciens des aérosols ont considéré la relation entre une quelconque particule et le milieu aérien dans laquelle elle se trouve, pour définir un diamètre aérodynamique. Le diamètre aérodynamique d'une particule quelconque sera équivalent à celui d'une particule sphérique de densité 1 mg/cm^3 ayant les mêmes propriétés de vitesse inertielles. On le calcule par la racine de la densité multiplié par le diamètre de Stokes, pour les diamètres supérieurs à $0,5 \mu\text{m}$:

$$d_{pa} = d_{ps} \sqrt{\rho_p}$$

Avec d_{pa} = diamètre aérodynamique en μm

d_{ps} = diamètre de Stokes en μm

ρ_p = densité de la particule en mg/cm^3

Les termes PM10 et PM2,5 utilisent le diamètre aérodynamique.

La courbe d'efficacité d'un impacteur (ou de tout autre système de séparation granulométrique comme les cyclones) est construite entre 0 et 100% d'efficacité de collecte des particules, exprimée en masse par diamètre aérodynamique. Le critère significatif d'un impacteur est appelé diamètre de coupure à 50%, le D_{50} , qui correspond à une efficacité de 50% en masse par rapport à la masse totale collectée. C'est-à-dire que pour le diamètre de coupure qui a été déterminé par la géométrie de l'appareil, la masse collectée en-dessous de ce diamètre devrait être la moitié de la masse totale du prélèvement.

Pour s'en assurer, un appareil conçu pour un D_{50} particulier devra être testé pour une série de n dimensions granulométriques encadrant cette valeur. Bien entendu, ce critère est valable pour un débit d'aspiration ou de circulation d'air constant (stabilité).

3. METHODES REGLEMENTEES ET LEUR VALIDATION

C'est à partir des années 80 que l'agence américaine de l'environnement (US EPA) s'est intéressée aux impacteurs pour faire la mesure des particules de l'air. Pour la même application, des tests réalisés avec des cyclones n'avaient pas montré, à l'époque, de résultats probants.

En 1996-97 est publiée une révision importante de textes antérieurs :

- Les procédures pour déterminer les caractéristiques de performance des méthodes (de référence FRM ou équivalente FEM) sont décrites dans la partie 53 – sous la rubrique D pour les PM10 (4) ; sous la rubrique F pour les PM2,5 (5). Dans chacune, des tableaux y fixent la plage de variation admise par caractéristique et pour les diamètres aérodynamiques des aérosols du test.
- La méthode de référence pour la détermination non destructive de la concentration massique des particules ayant un diamètre aérodynamique égal ou inférieur à 10 μm (PM10) sur une période de 24 heures d'échantillonnage, sous la référence Annexe J de la partie 50 (6).
- La méthode de référence pour la détermination non destructive de la concentration massique des particules ayant un diamètre aérodynamique égal ou inférieur à 2,5 μm (PM2,5), sur une période de 24 heures d'échantillonnage, sous la référence Annexe L de la partie 50 (7).
- Au fil des années, ces protocoles sont fréquemment améliorés. En 2006, les parties 53 (sauf la rubrique D) et 58 du titre 40 des CFR ont fait l'objet d'une nouvelle publication fortement amendée (8), en développant la rubrique PM10-2,5 (appendix O de la partie 50). De plus cette révision a introduit le cyclone type VSCC comme séparateur équivalent à l'impacteur WINS pour la mesure des PM2,5.

Les annexes J et L décrivent en détail le matériel constituant la méthode de prélèvement des particules : une tête de prélèvement reliée par un tube à un impacteur mono étage (par ex. PM10), à 2 étages (par ex. PM10 et PM2,5) ou à plusieurs étages, le tout relié à un dispositif d'aspiration à débit constant (conditions standards 298 K et 101,3 kPa). Les particules s'impactent sur un filtre pré pesé à chaque étage d'impaction.

Afin de valider une méthode qui répondrait aux prescriptions de l'une de ces annexes, la partie 53 – D détaille les tests à faire pour les PM10 et la partie F pour les PM2,5. Trois tests importants sont prescrits avec des critères à respecter (tableaux D-1/ F-1) :

- pour s'assurer que le diamètre aérodynamique de coupure est bien celui qui correspond à 50% de la masse collectée, un test en tunnel ventilé est décrit ;
- pour vérifier la reproductibilité entre appareils, un test de justesse est mené avec 3 matériels identiques, sur un même site, pendant 10 périodes de 24 heures ;
- pour s'assurer que le débit d'aspiration est stable, les débits sont mesurés avant et après chaque période de 24 h pendant le test de précision, ainsi qu'à $t=0, 6, 12, 24$ h pendant 3 jours de ce test.

Le tunnel doit permettre de générer 3 vitesses de vent (2, 8 et 24 km/h) avec une homogénéité de 10% au niveau de la section expérimentale, où sont placées les têtes de prélèvement. La vitesse y est mesurée (à mieux que 2%) ainsi que sa stabilité sur la section expérimentale.

Pour connaître la masse totale de l'aérosol généré par diamètre (au minimum 10 dimensions encadrant le D_{50} pour le PM10, 8 pour le PM2,5), la section expérimentale est munie de filtres collecteurs placés autour des têtes testées (toujours plusieurs du même modèle ou au moins deux par modèle). La taille de l'ouverture du porte filtre témoin est modifiée en fonction de la vitesse du vent pour permettre une aspiration isocinétique des particules générées. La masse moyenne de ces témoins sera utilisée pour calculer le taux d'efficacité de la tête testée pour chaque dimension de l'aérosol généré. Chaque vitesse de vent et chaque dimension d'aérosol est reproduite 3 fois pour le PM10, soit 90 essais pour une évaluation en aérosol liquide, plus 3 essais à 2 vitesses pour l'aérosol solide soit 6 essais supplémentaires. Pour le PM2,5, les tests sont conduits aux vitesses de 2 et de 24 km/h, avec des particules solides pour 7 dimensions, et liquide pour 1 seule dimension.

La génération de l'aérosol se fait à l'aide d'un générateur par orifice vibrant (VOAG), en particules liquides mono dispersées, et aussi en particules solides mono dispersées.

Le générateur produit des gouttes proche de la mono dispersion en brisant de manière contrôlée un jet de liquide. Quand le liquide est un soluté non volatil dilué dans un solvant volatil, les gouttes sèches qui en résultent forment des particules proches d'une dimension mono dispersée. Le diamètre physique des particules sphériques générées peut être calculé à partir des paramètres de fonctionnement du VOAG selon :

$$D_p = \left(\frac{6Q C_{vol}}{\pi f} \right)^{1/3} \quad \text{équation 1}$$

avec :

D_p = diamètre physique de la particule en μm

Q = débit volumétrique de liquide, en $\mu\text{m}^3/\text{sec}$

C_{vol} = volume de particule produite par volume de goutte, sans unité

f = fréquence de la vibration appliquée, 1/sec

Le comportement aérodynamique d'une particule donnée est fonction de sa taille physique, de sa forme et de sa densité. Le diamètre aérodynamique est défini comme le diamètre d'une sphère de densité 1 ($\rho_0 = 1 \text{ g/cm}^3$), et ayant la même vitesse que la particule donnée. Pour convertir une particule sphérique de densité connue en diamètre aérodynamique, la relation est la suivante :

$$D_{ae} = \frac{\sqrt{\rho_p} \times \sqrt{C_{Dp}} \times D_p}{\sqrt{\rho_0} \times \sqrt{C_{Dae}}} \quad \text{équation 2}$$

avec :

D_{ae} = diamètre aérodynamique de la particule, en μm

ρ_p = densité de la particule, en g/cm^3

ρ_0 = densité de la particule aérodynamique, 1 g/cm^3

C_{Dp} = facteur Cunningham de correction de pente pour le diamètre physique

C_{Dae} = facteur Cunningham de correction de pente pour le diamètre aérodynamique

A la température et pression de la pièce, le facteur Cunningham de correction de pente est uniquement une fonction du diamètre de la particule :

$$C_{Dae} = 1 + \frac{0.1659}{D_{ae}} + \frac{0.053}{D_{ae}} \exp(-8.33 D_{ae}) \quad \text{équation 3}$$

ou

$$C_{Dp} = 1 + \frac{0.1659}{D_p} + \frac{0.053}{D_p} \exp(-8.33 D_p) \quad \text{équation 4}$$

Si le facteur de correction de pente est lui-même une fonction du diamètre de la particule, le diamètre aérodynamique dans l'équation 2 ne peut pas être trouvé directement mais doit être déterminé par itération.

Pour le test avec des particules solides, les particules sont composées de fluorescéine d'ammonium. La solution liquide de concentration volumétrique connue est préparée par dilution de poudre de fluorescéine ($C_{20}H_{10}O_5Na_2$, masse = 332,31, CAS 2321-07-5) avec de l'ammoniaque aqueux. Un guide pour la préparation de solutions de fluorescéine d'une concentration volumétrique souhaitée (C_{vol}) a été présenté par Vanderpool et Rubow (dans J of Aer. Sci. And Tech., 9:65-69, 1988). Pour convertir le diamètre physique en diamètre aérodynamique de la fluorescéine d'ammonium, il faut prendre une densité de $1,35 \text{ g/cm}^3$. La masse déposée de cette solution doit être extraite et analysée à l'aide de solution d'ammoniaque à 0,01N.

Pour le test avec des particules liquides, les particules sont composées d'acide oléique marquée avec de l'uranine afin de quantifier de la masse d'aérosol déposé par fluorométrie. L'acide oléique ($C_{18}H_{34}O_2$, masse = 228,47, CAS 112-80-1) a une densité de $0,8935 \text{ g/cm}^3$. Parce que sa viscosité est relativement élevée, des erreurs significatives peuvent être faites lors de la préparation par pipette. Il est recommandé de quantifier par gravimétrie. La dilution d'une masse connue d'acide oléique doit avoir lieu d'abord dans de l'éthanol pur. L'uranine qui est de la fluorescéine sodique ($C_{20}H_{10}O_5Na_2$, masse = 376.3, CAS 518-47-8) a une densité de $1,53 \text{ g/cm}^3$. Une fois que les deux solutions ont été préparées proprement, elles peuvent être combinées en un volume final dans de l'éthanol pur.

Le calcul du diamètre physique des particules produites par le VOAG nécessite de connaître la concentration volumétrique de la solution liquide. Parce que l'uranine est insoluble dans l'acide oléique, le volume total de particule est la somme du volume de l'acide oléique et de l'uranine. La concentration volumétrique de la solution liquide se calcule ainsi :

$$C_{vol} = \frac{V_u + V_{olei}}{V_{sol}} = \frac{(M_u/\rho_u) + (M_{olei}/\rho_{olei})}{V_{sol}} \quad \text{équation 5}$$

avec :

V_u = volume uranine, en ml

V_{olei} = volume acide oléique, en ml

V_{sol} = volume total de la solution, en ml

M_u = masse d'uranine, en g

ρ_u = densité uranine, en g/cm³

M_{olei} = masse d'acide oléique, en g

ρ_{olei} = densité acide oléique, en g/cm³

Pour faire la conversion du diamètre physique des particules en diamètre aérodynamique, la densité des particules générées doit être calculée ainsi :

$$\rho_p = \frac{M_u + M_{olei}}{\left(\frac{M_u}{\rho_u}\right) + \left(\frac{M_{olei}}{\rho_{olei}}\right)} \quad \text{équation 6}$$

La masse déposée d'acide oléique doit être extraite et analysée en utilisant une solution de soude 0,01N.

Le contrôle des réglages du VOAG est fait au préalable par examen microscopique des prélèvements ou par toute autre technique appropriée. Pour le PM10, la tolérance est de $\pm 0,5 \mu\text{m}$ jusqu'à $11 \mu\text{m}$, puis de $\pm 1 \mu\text{m}$ au-delà. Pour le PM2,5, elle est de $0,25 \mu\text{m}$ jusqu'à $3,5 \mu\text{m}$, puis de $0,5 \mu\text{m}$ au-delà.

Les résultats obtenus (efficacité en % entre masse émise et masse collectée pour un diamètre aérodynamique donné), après correction par rapport à une distribution théorique, permettent de construire une courbe extrapolée conventionnellement entre 0% (pour la dimension de $50 \mu\text{m}$ en PM10 et de $10 \mu\text{m}$ pour PM2,5) et 100% (pour la dimension de $1 \mu\text{m}$ en PM10 et de $0,5 \mu\text{m}$ pour PM2,5), sur un support semi-log. On en déduira le diamètre aérodynamique qui correspondra à 50% d'efficacité en masse. La masse totale est également comparée à la masse du prélèvement théorique. Son écart avec celle-ci doit être inférieure à $\pm 10\%$ pour PM10 ou $\pm 5\%$ pour PM2,5. La tolérance sur le diamètre D_{50} visé est de $\pm 0,5 \mu\text{m}$ pour le PM10 et de $\pm 0,2 \mu\text{m}$ pour PM2,5.

Le tableau D-3 de la partie 53 – D indique en fait un ratio d'efficacité de 50,9% pour la dimension D_{50} de $10,5 \mu\text{m}$ et de 55,1% pour la dimension D_{50} de $10 \mu\text{m}$. Certaines des valeurs du tableau D-3 ont été reportées dans le tableau A1 de la norme NF EN 12341 (9).

Les tableaux F4 à F6 de la partie D-F indiquent eux un ratio de 48% pour la dimension D_{50} de $2,5 \mu\text{m}$.

Pour le protocole des PM2,5, partie 53-F, d'autres tests sont prescrits :

- l'encrassement : il s'agit de vérifier l'influence des dépôts sur les surfaces internes du séparateur entre 2 nettoyages.
- nouvelle tête de prélèvement : il s'agit là de comparer une nouvelle tête de prélèvement sur un équipement qui a déjà fait l'objet d'une évaluation. Le test en tunnel ventilé est réalisé pour les 2 vitesses de 2 et 24 km/h, mais se limite à une seule dimension d'aérosol liquide mono dispersé de $3,0 \mu\text{m}$ (contre 8 pour le test initial).

- le fractionnement statique : il s'agit de tester un matériel dont la géométrie de séparation diffère de celle de l'équipement de référence. Plusieurs techniques sont proposées pour déterminer l'efficacité massique du fractionnement sous conditions statiques.
- la fraction volatile : dans le test en tunnel ventilé, on utilise un aérosol poly dispersé et semi volatil comme le glycérol. Il s'agit d'une comparaison entre une méthode de référence et une méthode candidate à l'équivalence.

La réglementation EPA prévoit qu'une méthode de référence peut avoir des méthodes équivalentes, qui sont classées en 3 catégories :

- classe I lorsque la méthode équivalente utilise la même tête et le même séparateur, mais que la fréquence de l'échantillonnage diffère ;
- classe II lorsque la méthode équivalente diffère au niveau de la tête et/ou du séparateur, mais conserve la période d'échantillonnage de la méthode de référence ;
- classe III lorsque la méthode équivalente diffère complètement de celles des classes I et II.

4. EVOLUTION DE LA TETE

La fonction de la tête d'un appareil de collecte des aérosols est d'extraire un échantillon d'air depuis l'atmosphère ambiante sans modifier sa composition en milieu calme comme en milieu très venté. Lors de sa publication en 1997, la méthode de référence pour les PM_{2,5} prévoyait une tête avec un dessus plat qui aspirait l'air à 16,7 l/min, avec un impacteur intégré pour les grosses particules (> 10 µm) Graseby-Andersen 246B PM₁₀, pour réduire la charge à traiter dans l'étage de séparation des PM_{2,5}. Cette tête (voir doc RP en annexe IV) a donné satisfaction pendant plusieurs années et pour de nombreuses méthodes de référence EPA ou équivalentes, gravimétriques et automatiques comme :

- SIERRA ANDERSEN SA241 et 241M ; FH621-N bêta Monitor
- MET ONE BAM1020, GBAM1020, BAM1020-1, GBAM1020-1
- RP TEOM 1400/1400A PM₁₀ monitor
- RP PARTISOL 2000 Air Sampler

Cette tête avait été testée en 1991 (10) dans la première période de la réglementation EPA, qui date de 1987.

Plusieurs études indiquaient cependant que sous certaines conditions atmosphériques, cette tête n'évitait pas les précipitations et entraînait de l'humidité avec les composants du prélèvement (en cas de neige).

Cette tête a été modifiée pour corriger cette imperfection. Elle présente dans la nouvelle méthode de référence pour PM_{2,5} de l'EPA (7) un dessus plat et des ailettes incurvées de 45° sur 4 cm, afin d'éviter la pénétration de la pluie, et l'orifice de drainage a été aussi augmenté. Le diamètre de son dessus plat, initialement de 21 cm, a été réduit à 18,5 cm, afin de réduire son encombrement. Des tests ont été conduits dans le tunnel ventilé selon la procédure de la partie 53 – D/F afin de vérifier son comportement (11) aux 3 vitesses de vent, au débit d'aspiration de 16,7 l/min et pour les 2 diamètres de PM 10 et 2,5. La conclusion de cette étude montre que cette nouvelle tête avec des ailettes à 45° obtient la même aspiration que la tête initiale et restitue le même D₅₀ pour les PM₁₀ et 2,5. Cette étude a également introduit une fonction sigmoïde pour construire la courbe d'efficacité et en déduire mathématiquement le D₅₀.

5. AUTRES EVOLUTIONS ET CONSEQUENCES

Lors de la mise en pratique de la méthodologie pour la mesure des particules de dimensions inférieures aux PM₁₀, la méthode de référence pour PM_{2,5} s'appuyait sur le Well Impactor Ninety-Six (WINS) qui utilise un filtre imprégné d'huile, mais dès 1998, des tests comparatifs ont été réalisés avec d'autres dispositifs de séparation comme le Sharp-Cut Cyclone (SCC) développés pour des mesures en continu (12)(13). En effet, il est vite apparu que le WINS présentait certains inconvénients comme le rebondissement d'une particule sur le filtre et comme la surcharge de particules qui entraînaient tous deux des pertes entre étages (PM₁₀ et PM_{2,5}). Le biais lié au prélèvement doit être inférieur à 5% pour les PM_{2,5} d'après la réglementation EPA. Les travaux de PETERS en 2001 (14) ont amélioré la géométrie des buses et les critères du filtre et de l'huile d'imprégnation. Une étude en 1996 avait montré une influence du nettoyage sur le D₅₀, qui se traduisait par une diminution du diamètre aérodynamique à 2,25 µm après un intervalle de 4 jours entre les nettoyages. L'étude (12)(13) a démontré en plus que le WINS voyait ses performances se détériorer aux environs des 3 mg collectés. La courbe d'efficacité du cyclone diffère quelque peu de celle de l'impacteur tout en étant satisfaisante pour les critères demandés. On constate aussi un effet de la masse collectée, mais moindre que celui sur l'impacteur. La conclusion était que le SCC était un meilleur séparateur que le WINS sur une période relativement longue de prélèvement. L'étude de VANDERPOL (15) sur l'effet de la masse collectée en fonction de la nature et des dimensions des particules, par essais sur différents sites et en tunnel, ont démontré que la période sans collecte du filtre pouvait atteindre 5 jours de 24 h sur site, avec un biais de prélèvement de l'ordre de -1% pour une masse élevée (300 à 370 µg/m³) testée en tunnel.

Un autre développement (16) a vu la mise au point et la validation du Very Sharp Cut Cyclone (VSCC) dans le cadre d'une méthode équivalente de classe II. Le VSCC vise une réduction du biais de prélèvement qui avait été une critique des précédents travaux sur le SCC. Les conclusions indiquent que le VSCC a une efficacité aussi bonne que le WINS quand celui-ci est propre, et que ses caractéristiques de coupure sont remarquablement stables quand la masse collectée augmente, contrairement au WINS. Ces résultats ont fait de cette méthode une méthode équivalente de classe II par l'USEPA (EQPM-0202-142). A la suite de la révision de l'appendix L part 50, cette méthode équivalente a été ré-désignée en méthode de référence par USEPA (RFPS-0498-116), en décembre 2006, pour application avec matériel modèle BGI PQ200 et PQ200A (17), en alternative avec l'utilisation du WINS.

6. CONCLUSIONS

Les parties appelées tête et séparateur de particule pour PM10 et PM2,5 ont maintenant atteint un stade mature et leurs caractéristiques de performances sont parfaitement connues par les essais en laboratoires et in situ. La justesse de coupure au D_{50} tient à la stabilité du débit d'aspiration qui correspond à leur géométrie, un faible taux d'humidité, de faibles variations de la température de l'air aspiré, et un bon état de propreté des surfaces en contact avec l'air aspiré. La durée d'échantillonnage doit être adaptée à la concentration en particules pour réduire le biais lié à la masse collectée et le déplacement du D_{50} du séparateur utilisé.

Enfin, il semble qu'il n'y ait probablement pas de nécessité immédiate d'envisager des actions météorologiques sur ce thème.

7. BIBLIOGRAPHIE

(1) GOSMAN, A.D. et al (1969) « Heat and Mass Transfert in Recirculating Flow » citée in "History of impactors. A first 110 years's". MARPLE, V.A., Aerosol Science & Technology. 38:3,247-292

(2) MARPLE, V.A. (1970) "A Fundamental Study of Inertial Impaction", même citation que (1).

(3) KENNY, L.C. and GUSSMANN, R.A., (1997) "Characterization and modelling of a family of cyclone aerosol preseparator". Journal of Aerosol Science. 28:677-688

(4) part 53 : ambient air monitoring reference and equivalent methods – subpart D : procedures for testing performance characteristics of methods for PM10. <http://www.ecfr.gpoaccess.gov/cgi/t/text-idex?>

(5) partie 53 : ambient air monitoring reference and equivalent methods – subpart F : procedures for testing performance characteristics of class II equivalent methods for PM2,5.

- (6) Appendix J to part 50 - Reference method for the determination of particulate matter as PM₁₀ in the atmosphere. Source citée.
- (7) Appendix L to part 50 - Reference method for the determination of fine particulate matter as PM_{2,5} in the atmosphere. Source citée.
- (8) Federal Register (vol 71 n°200 / 17-10-2006) Revision to Ambient Air Monitoring Regulation. Final rule.
<http://www.epa.gov/fedrgstr/EPA-AIR/2006/october/day.17/a8477.pdf>
- (9) norme NF EN 12341 :1998 – Détermination de la fraction MP₁₀ de matière particulaire en suspension – Méthode de référence et procédure d'essai in situ pour démontrer l'équivalence à la référence de méthodes de mesurage.
- (10) VAN OSDELL, D.W, et al (1991) "Wind tunnel reports n°29 et 29A. Test of the RP PM₁₀ sampler inlet, [...], at 2 and 24 km/h". US EPA, AREAL, Research Triangle Park, NC 27711.
<http://www.rpco.com/products/ambprod/amb0000inlets/index.htm>
- (11) TOLOCKA, M.P. et al (2001) "On the modification on the low-flow-rate PM₁₀ dichotomus sampler inlet". Aerosol Science & Technology. 34:407-415
- (12) KENNY, L.C. (1998) "Investigations of the effects of loading on PM_{2,5} selectors". <http://www.rpco.com/products/ambprod/amb0000inlets/index.htm>
- (13) KENNY, L.C. et al (2000) "Development of a sharp-cut cyclone for ambient aerosol monitoring applications". Aerosol Science & Technology. 32:4, 338-358
- (14) PETERS, T.M., et al (2001) "Design and calibration of the EPA PM_{2,5} well impactor ninety-six (WINS)". Aerosol Science & Technology. 34:5, 389-397
- (15) VANDERPOL, R.W. et al (2001) "Evaluation of the loading characteristics of the EPA WINS PM_{2,5} separator". Aerosol Science & Technology. 34:5, 444-456
- (16) KENNY, L.C. et al (2004) "The development and designation testing of a new USEPA-approved fine particule inlet : a study of the USEPA designation process". Aerosol Science & Technology. 38:12, 15-22
- (17) Federal register (vol 71 n°200 / 17-10-2006) section 7.3.4. Revision to Ambient Air Monitoring Regulation. Final rule. Opus cité in (8)

CONCLUSION GENERALE

Le travail présenté ici a pour objectif de préparer le dispositif français à l'émergence de contraintes réglementaires en matière de surveillance des PM_{2,5}.

La **première question** était de savoir s'il était possible, à très court terme, avec le parc existant, de produire des données PM_{2,5} incluant la fraction volatile. L'objectif était d'étudier la possibilité de corriger les données PM_{2,5} obtenues avec un TEOM 50°C avec la fraction volatile des PM₁₀.

Les données d'équivalence issues de la campagne de Bobigny (LCSQA / AIRPARIF) ont été exploitées (présence d'un TEOM 50°C). Par ailleurs, différentes AASQA ont produit et analysé des données TEOM 50°C / TEOM-FDMS. L'ensemble de ces résultats a été discuté au sein de la commission de suivi "particules" : le recours à la correction des PM_{2,5} 50°C par la fraction volatile PM₁₀ n'a pas été exclue par la commission de suivi "particules" ; Cependant la qualité de ce type de données n'est pas non plus considérée comme la meilleure. Si un tel recours devait être envisagé, il est sans doute préférable que celui-ci ne soit que temporaire.

La **seconde question** portait sur la capacité du dispositif français à répondre aux exigences de la directive en cours de révision. Pour cela, il a été nécessaire de suivre en temps réel les évolutions du projet de révision de la directive afin d'évaluer le niveau de réponse de notre dispositif et les évolutions à prévoir. Une analyse au fil de l'eau a donc été menée tout au long de l'année ; elle a été exploitée lors de différentes réunions, à commencer par celle de la commission de suivi "particules" de mars. Une note a été produite au début de l'automne, pour en résumer les principales observations.

L'analyse du projet de réglementation concernant les PM_{2,5} est rendue complexe par le fait que

- Une **partie des contraintes sur les PM₁₀ et les PM_{2,5} sont associées** (notamment par le biais du calcul du nombre de points de mesure qui concerne les PM dans leur globalité),
- Des **spécificités propres à chaque type de PM** doivent aussi être respectées.

Il convient de noter, par ailleurs, l'émergence du concept d'**indice d'exposition moyenne** (IEM), ainsi que de contraintes particulières en zone rurale, comprenant une **liste d'espèces chimiques** à analyser. La compatibilité entre les prélèvements normatifs à visée gravimétrique, et ce nouveau besoin devra donc faire l'objet d'une surveillance particulière.

En parallèle à ces actions urgentes, il a également été nécessaire d'engager un certain nombre d'actions de fond :

- Une synthèse bibliographique a été menée en terme de connaissance générale sur le cycle de vie des PM_{2,5}. De très nombreux résultats étant publiés, les principales références et travaux de synthèse concernant l'Europe ont été sélectionnées.

- Une étude bibliographique sur la justesse de la coupure des têtes PM_{2,5} et PM₁₀, qui montre qu'il n'est probablement pas nécessaire d'envisager des actions métrologiques sur ce thème.

Au final, un nombre particulièrement important d'actions ont été menées, faisant appel à de nombreux contributeurs tant au niveau du LCSQA que des AASQA. La commission de suivi "particules" a été alimentée en continu en matière d'informations, ce qui a grandement facilité son travail et les prises de décision.

LISTE DES ANNEXES

Repère	Désignation	Nombre de pages
Annexe I	Document de référence de l'étude	2
Annexe II	Proposition de protocole minimal pour la comparaison de données TEOM-FDMS et TEOM 50°C corrigées	6
Annexe III	Contribution française à l'assessment report EMEP 2007	23
Annexe IV	Doc RP : inlet PM10 à dessus plat	1

ANNEXE I

THEME GENERAL : METROLOGIE DES PARTICULES

Etude: Perspectives d'évolution du dispositif français de surveillance des PM_{2,5}

Objectif

L'objectif de cette étude est de proposer une stratégie française de surveillance des PM_{2,5}. Il est en effet nécessaire d'anticiper les contraintes réglementaires de la future Directive sur la Qualité de l'Air.

Il s'agit donc de démarrer, dès 2007, les travaux de synthèse sur l'existant nécessaires, tant en terme de connaissances acquises sur ce type de particules, qu'en terme de surveillance et de retours d'expériences au niveau national et européen.

Contexte et travaux antérieurs

Les PM_{2,5} étaient déjà mentionnées dans la directive 1999/30/CE au même titre que les polluants classiques. Ainsi, le texte recommandait des mesures conjointes aux PM₁₀, permettant de communiquer des résultats agrégés à la Commission.

Cependant, aucun seuil de référence spécifique aux PM_{2,5} n'était défini. Avec le projet 2005 de révision des directives relative à "la stratégie en faveur d'un air pur en vue de protéger la santé humaine et l'environnement" apparaît une valeur de référence pour les PM_{2,5}. Un tel schéma a ainsi amené un certain nombre d'AASQA à mesurer les PM_{2,5}.

Le LCSQA, a pour sa part réalisé diverses études, notamment sur la détermination de la part urbaine et non-urbaine de l'origine des PM_{2,5}, sur les tests d'équivalence des appareils automatiques de mesure des PM_{2,5} (TEOM-FDMS) et sur la surveillance des particules submicroniques.

Travaux proposés pour 2007

Il est proposé un programme sur deux années: 2007 et 2008.

Pour 2007

- **Etude sur la correction des PM 2.5**

L'objectif est de répondre à la question suivante : est il possible d'utiliser la fraction volatile déterminée par le TEOM-FDMS PM 10 pour corriger les mesures de PM_{2.5} obtenues à l'aide d'appareils "non équivalents" ?

Lors des campagnes d'équivalence de Bobigny et de Marseille, la technique TEOM-FDMS a été utilisée simultanément en configuration PM 10 et PM 2.5. Une comparaison des mesures de la fraction volatile dans ces 2 configurations sera effectuée afin de mettre en évidence une éventuelle "équivalence", permettant ainsi d'avoir un moyen de correction des mesures issues d'appareils PM 2.5 non modifiés (➤ action EMD).

Par ailleurs, il est proposé de mettre en œuvre, sur une "station de référence" PM 10, un TEOM 50°C PM 2.5, un TEOM-FDMS PM 2.5 pendant une durée représentative, au cours de l'hiver (➤ action INERIS).

- **Etat de l'art et des connaissances actuelles sur les PM 2.5**

Une bibliographie sera effectuée sur :

- les actions métrologiques existantes en terme de prélèvements et d'analyse (composition chimique), au niveau français (AASQA) mais aussi européen, les sources (naturelles et anthropiques), les variabilités spatio-temporelles des concentrations en PM 2.5 (➤ action INERIS)
- la justesse du seuil de coupure granulométrique d'une tête de prélèvement des particules PM 2.5 et PM 10 (➤ action LNE).

- **Synthèse des différentes contraintes sur les PM_{2,5} dans la révision des textes réglementaires européens** (la Directive Cadre, les 3 premières Directives Filles et la décision du conseil sur l'échange d'informations) (➤ action EMD/INERIS)

- **Retour d'informations au sein de la Commission de Suivi "Particules en Suspension" en vue de l'élaboration d'une stratégie de surveillance sur 5 ans** (➤ action EMD/INERIS)

Afin de permettre une vue d'ensemble des actions proposées sur le thème de la surveillance des PM_{2,5}, les travaux de modélisation intégrés dans la partie "travaux numériques" sont cités, ci-dessous, pour mémoire :

- *Evaluation du modèle de particules sur la France, prise en compte des sources naturelles* (➤ action INERIS)
- *Utilisation de l'analyse descriptive du dispositif existant* (➤ action EMD / INERIS).

Pour 2008

En fonction des résultats obtenus en 2007

- **poursuite des travaux sur la caractérisation des PM 2,5 et sur la stratégie de surveillance** (➤ action EMD/INERIS)
- **étude des données de "coarse particles" : différences entre PM 10 et PM 2.5** (➤ action EMD)

ANNEXE II

Ref : – n° chrono / DRC-07-85116-13526A GAy

04 octobre 2007

NOTE :

PROPOSITION DE

PROTOCOLE COMMUN MINIMAL POUR LA COMPARAISON DE DONNEES

TEOM-FDMS ET TEOM 50°C CORRIGÉES

Introduction

Au cours de l'année 2007, plusieurs AASQA ont mené des campagnes visant à caractériser le fonctionnement de la correction des TEOM 50°C par l'ajustement mesuré sur un site de référence. Les résultats exposés en Commission de Suivi (du CPT) "Surveillance des particules en suspension" ont montré que l'interprétation des résultats pouvait être différente selon les critères de comparaison choisis, et qu'au final, il était difficile d'établir un réel bilan des différentes actions.

Le LCSQA propose donc un protocole « minimal » de comparaison de données TEOM-FDMS et TEOM 50°C corrigées, c'est à dire un format commun pour la présentation et l'exploitation des résultats des campagnes afin de faire en sorte que les données fournies et les analyses réalisées par les AASQA soient exploitables et comparables entre elles. Le but est de travailler sur une base commune pour décider quels sont les critères à retenir pour estimer la validité de l'ajustement selon les sites étudiés.

Quelques points ont déjà été soulignés :

- L'approche statistique de base par régression a un intérêt, en gardant toutefois à l'esprit qu'une régression orthogonale était absolument nécessaire. Un travail a été effectué sur le sujet (cf travaux CEN notamment). Des documents déjà anciens et portant en particulier sur la régression orthogonale ont été communiqués aux membres de la CS.
- La présentation graphique des nuages de points et de ce que l'on peut en tirer.
- Un nombre suffisant de données dans la plage considérée doit être présenté.

Un protocole minimal est donc proposé dans le paragraphe 1 suivant, et un exemple proposé en partie 2. Nous rappelons que ce protocole se veut minimal, c'est à dire :

- qu'il est souhaité que la présentation de résultats de campagnes de vérification des hypothèses concernant l'ajustement des PM10, des travaux concernant l'ajustement des PM2,5, ou en fonction des typologies de sites, ou de configuration/version des TEOM-FDMS soit basée en premier lieu sur le schéma proposé,
- qu'il n'empêche aucun traitement statistique supplémentaire des données,
- qu'une évolution de ce protocole en fonction des futurs retours d'expérience est tout à fait envisageable.

1. Protocole minimal

Le LCSQA propose une approche minimale basée sur l'utilisation de données journalières (moyennes 24h), avec :

- a) Rappel des caractéristiques des sites étudiés et de l'objectif de la campagne
- b) Un tableau présentant les données de base concernant la campagne (nombre de points, moyenne, écart type...), et si possible une carte,
- c) Une représentation graphique des séries temporelles,
- d) Une représentation graphique de la corrélation entre la méthode de référence (en abscisse) et la méthode testée (en ordonnée) avec :
 - Un quadrillage représentant les 4 secteurs autour des axes $50\mu\text{g.m}^{-3}$ permettant de visualiser l'impact de l'ajustement sur le dépassement de ce seuil,
 - Une régression orthogonale, avec une représentation graphique sur laquelle apparaît l'équation de la droite et le coefficient de régression
- e) Un tableau récapitulant les statistiques de base (moyennes et impact sur dépassement du seuil de $50\mu\text{g.m}^3$).

Un exemple est proposé ci-dessous.

2. Exemple

L'exemple ci-dessous est basé sur des données AirCOM obtenue lors d'une campagne réalisée dans le cadre de l'action LCSQA "Intégration des modules FDMS et RST".

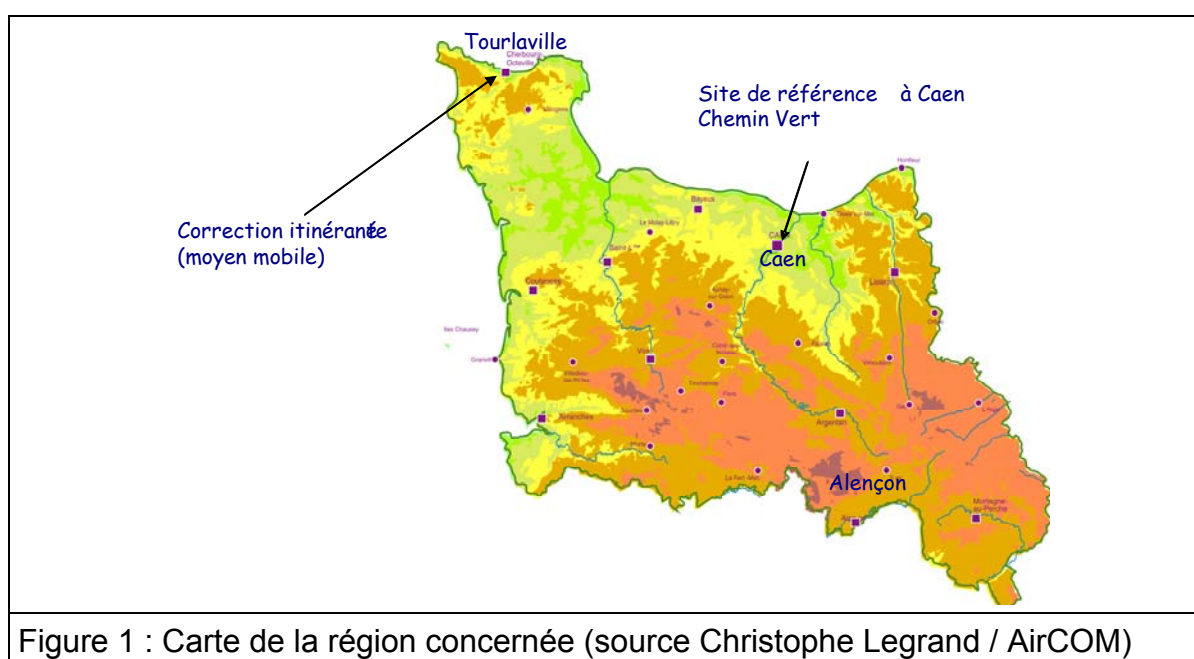
a) Objectif de la campagne et sites retenus

L'objectif est ici d'étudier la représentativité spatio-temporelle de l'ajustement des PM10 mesurées par TEOM 50°C sur une région relativement étendue et située en bord de mer. Les données utilisées ont été obtenues à Tournelville, durant l'hiver 2007. Ce site est habituellement ajusté avec l'écart mesuré sur une station urbaine de Caen.

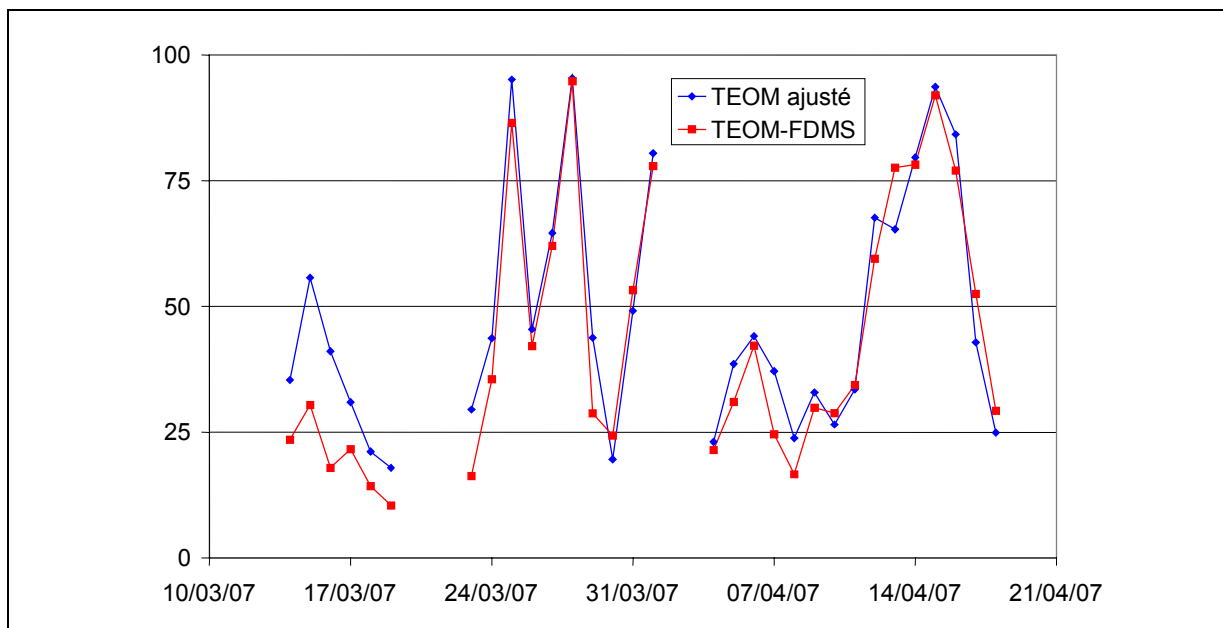
b) Descriptif de la campagne

Lieu	Cherbourg/Tourlaville (site urbain)
Date de début	14/03/07
Date de fin	18/04/07
Données de référence	TEOM-FDMS Tourlaville (Moyen mobile)
Données testées	TEOM 50°C ajusté avec l'écart du site de référence de Caen
Nombre de données	34

Tableau 1 : Descriptif de la campagne

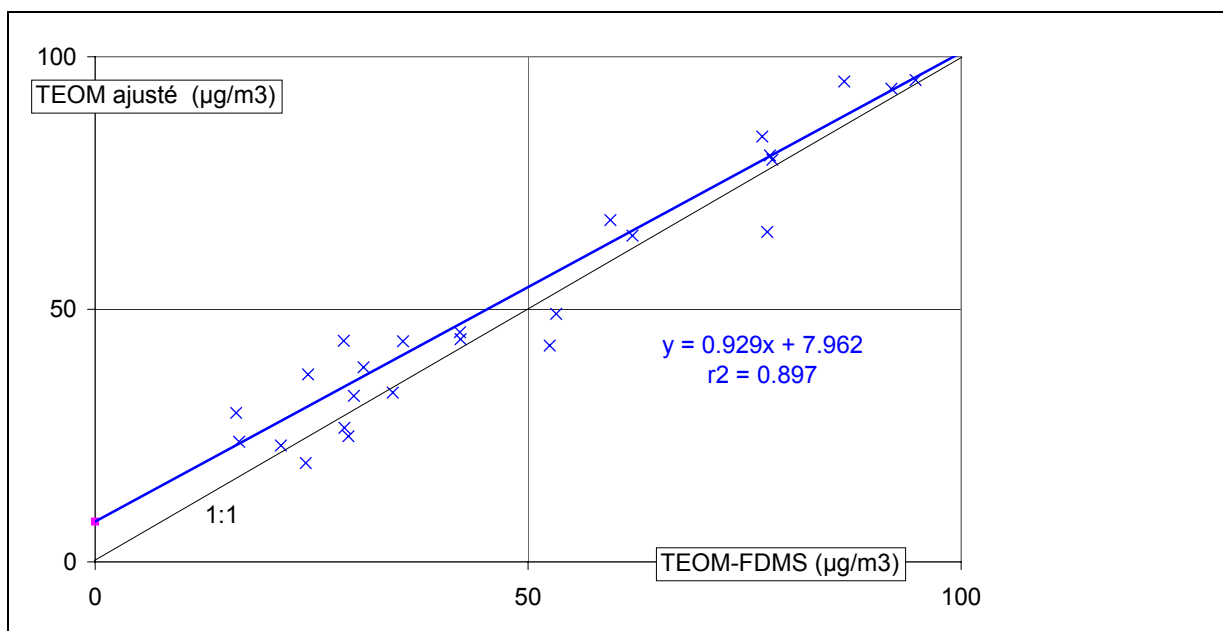


c) Représentation de l'évolution temporelle



Graphique 1 : Evolution temporelle des moyenne journalières de PM10 mesurées à Tourlaville par TEOM-FDMS (TEOM-FDMS, en rouge) et mesures TEOM ajustées avec l'écart mesuré à Caen (TEOM ajusté, en bleu).

d) Corrélation



Graphique 2 : Corrélation entre TEOM-FDMS (TEOM-FDMS, en rouge) et mesures TEOM ajustées avec l'écart mesuré à Caen (TEOM ajusté, en bleu). En noire, apparaît la première bissectrice, en bleu, la droite de régression orthogonale avec son équation et le coefficient de corrélation.

d) Tableau récapitulant les statistiques de base

Moyenne des données de référence (\pm écart type) TEOM-FDMS Tourlaville	43.1 (25.6) $\mu\text{g.m}^{-3}$
Moyenne des données ajustées TEOM 50°C Tourlaville ajusté avec l'écart de Caen	47.9 (23.9) $\mu\text{g.m}^{-3}$
Nombre d'échantillons	34
Nombre de dépassement de seuil de 50 μg correctement restitués par la méthode testée	9
Nombre de dépassement de seuil de 50 μg non vus par la méthode testée	2
Nombre de dépassement de seuil de 50 μg ajoutés par la méthode testée	0

Tableau 2 : Approche statistique de base

Contact : Gilles Aymoz, 03.44.55.65.09, gilles.aymoz@ineris.fr

ANNEXE III

Contribution française à l'assessment report EMEP 2007

Note : La rédaction de cette contribution nationale au rapport téléchargeable à l'adresse suivante : <http://www.nilu.no/projects/ccc/tfmm/index.html> , a été coordonnée par Laurence Rouil dans le cadre de ses activités de "Point focal national" pour l'Equipe Spéciale EMEP sur la Mesure et la Modélisation (task Force on Measurement and Modelling)

PM atmospheric concentrations in France :

analysis and key findings

G. Aymoz⁽¹⁾, S. Bouallala⁽²⁾, P. Coddeville⁽³⁾, N. Herbelot⁽⁴⁾, B. Oudart⁽⁵⁾, P. Laj⁽⁶⁾, O. Le Bihan⁽¹⁾, F. Mathe⁽³⁾, N. Poisson⁽²⁾, M. Rico⁽⁴⁾, L. Rouil⁽¹⁾

- (1) INERIS Institut National de l'environnement Industriel et des Risques ; contact point : laurence.rouil@ineris.fr
- (2) ADEME : Agence de l'Environnement et de la Maîtrise de l'Energie ; contact point : nathalie.poisson@ademe.fr
- (3) EMD : Ecole des Mines de Douai ; contact point : coddeville@ensm-douai.fr
- (4) MEDD/ Ministère de l'Ecologie et du Développement Durable ; contact point : nadia.herbelot@ecologie.gouv.fr
- (5) CITEPA : Centre Interprofessionnel technique d'Etudes de la Pollution Atmosphérique ; contact point : benedicte.oudart@citepa.org
- (6) LAMP, Université de Clermont-Ferrand ; contact point : P.Laj@opgc.univ-bpclermont.fr

1. INTRODUCTION

Since the year 2000, a significant effort has been provided in France for enhancing the air quality monitoring structure devoted to the Particulate Matter measurement. Although PM₁₀ was the priority, the assessment of the PM_{2.5} concentrations has not been neglected because of their adverse effects on human health. Research partners together with national and local organisations in charge of air quality monitoring have developed skills and experience related to the behaviour of PM emissions and concentrations in the air. In 2007, it seems feasible to establish a first assessment of the PM situation in France, compiling data issued from several types of information :

- Emission inventories allow to analyse source apportionment, to assess the efficiency of control measures, and to feed air quality models. Development of PM (and their precursors) emission inventories is a crucial and difficult task, still hampered by the lack of knowledge related to the sources and the processes. However results considered as reasonably relevant are now published.
- In 2006, more than 300 PM₁₀ measurement stations and 65 PM_{2.5} stations were implemented in France. This is the result of more than 15 years devoted to the development of the PM monitoring strategy in France. Most of them are TEOM or beta gauge devices which allow to get high temporal and spatial resolutions. With such a dense network, a database workable for reporting on the PM situation and for trend analysis has been built. More information is provided by research projects, supersites, and fields campaigns devoted to a better characterisation of the aerosol composition and the origin of PM events.
- Although particulate modelling is still a science under development, a dynamic research policy in that field, allowed the implementation of PM models

dedicated to air quality forecasting and to a comprehensive analysis of the aerosol phenomenology. Thus modelling is considered as a part of the whole PM monitoring system implemented in France.

The present report compiles the information currently available from the French PM monitoring system and provides an interpretation of the PM situation in the country. A first section is dedicated to the PM emissions status. The second part describes the PM measurement network and specific field campaigns. Results and trends issued from these data are presented in a third section. Before concluding, an interpretation of the PM phenomenology in France based on measurement and modelling is proposed.

2. PM EMISSION INVENTORIES

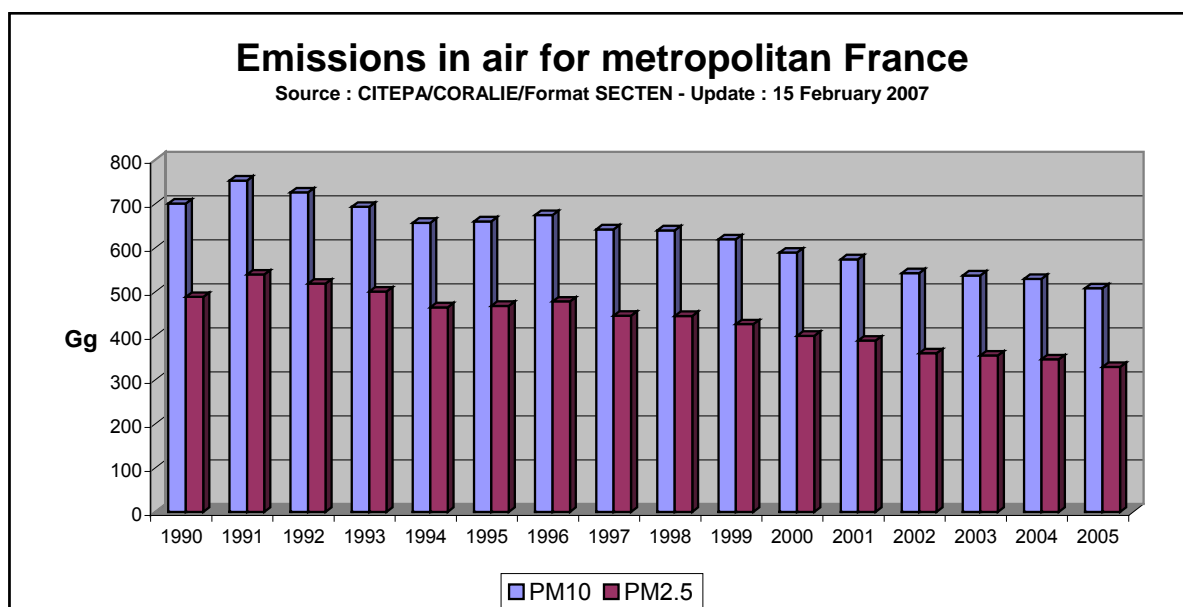
Emission data related to PM₁₀ and PM_{2.5} from 1990 to 2005, and recently updated, are given below.

PM EMISSIONS IN AIR FOR METROPOLITAN FRANCE (units Gg = kt)

Source CITEPA / CORALIE / format SECTEN

Update : 15 February 2007

Année	1990	1991	1992	1993	1994	1995	1996	1997	1998	1999	2000	2001	2002	2003	2004	2005
PM10	701	753	726	693	657	660	674	642	640	619	589	574	542	537	529	508
PM2.5	489	540	519	500	465	468	478	446	445	427	400	389	360	355	347	329



In 2005, **emissions of PM₁₀** in metropolitan France are **508 Gg**. These emissions decreased by about 28% from 1990 to 2005, despite the high emission level in 1991. The main contributors to these emissions are, by order of importance:

- Agriculture and forestry (29%), especially ploughing

- Manufacturing industry (28%), especially quarrying and building sites
- Residential/tertiary (28%), especially wood, coal, and fuel combustion.

Emissions of PM_{2.5} in metropolitan France are **329 Gg** in 2005. These emissions decreased by about 33% from 1990 to 2005.

The main contributors to these emissions are, by order of importance:

- Residential/tertiary (41%), especially wood, coal, and fuel combustion
- Manufacturing industry (26%), especially quarrying and building sites
- Agriculture and forestry (17%), especially ploughing.

Both PM₁₀ and PM_{2.5} emissions decreased in all sectors except in transport activities (not including road transport). This is partially due to progress in dust removal techniques, but also comes from structural effects such as technological improvements in biomass combustion.

3. DESCRIPTION OF THE FRENCH PM MEASUREMENT NETWORKS

Intensive work related to the measurement of PM concentrations has been realised these last years in France. A quite dense operational network devoted to reporting, monitoring and public information has been implemented, together with supersites devoted to research purposes and PM monitoring following the highest levels of requirement of the EMEP strategy. Field campaigns allow to get a complementary information, and to insure the equivalence of the automatic methods with the reference one (gravimetry HVS DA-80) described by the norm CEN/TC264, 2005.

3.1 REGULATORY NETWORK IMPLEMENTED FOR MONITORING PURPOSES

Figure 1 presents the location of PM₁₀ measurement stations in 2006. The stations are operated by local associations in charge of air quality monitoring (AASQA), acting with the agreement of the Ministry of Ecology. The observations are compiled in two databases implemented and maintained by the Agency in charge of the Environment and the Energy (ADEME): near real time unvalidated data are stored in the BASTER database when validated data are compiled following a longer term process in the BDQA database.

All the PM monitoring stations are based on automatic devices (85% TEOM - Tapered Element Oscillating Microbalance - and 15% beta gauges - β ray attenuation monitor) which allow high temporal resolution.

PM₁₀ stations are distributed throughout the country in the following way : about 72% in urban and suburban areas, 2.5% in rural areas. Near emissions sources, about 13% of the number of sites are traffic ones and 12.5% are industrial stations.

PM_{2.5} stations are mainly located at urban and suburban locations (79 %), 19% at traffic sites and the difference concerns industrial sites.

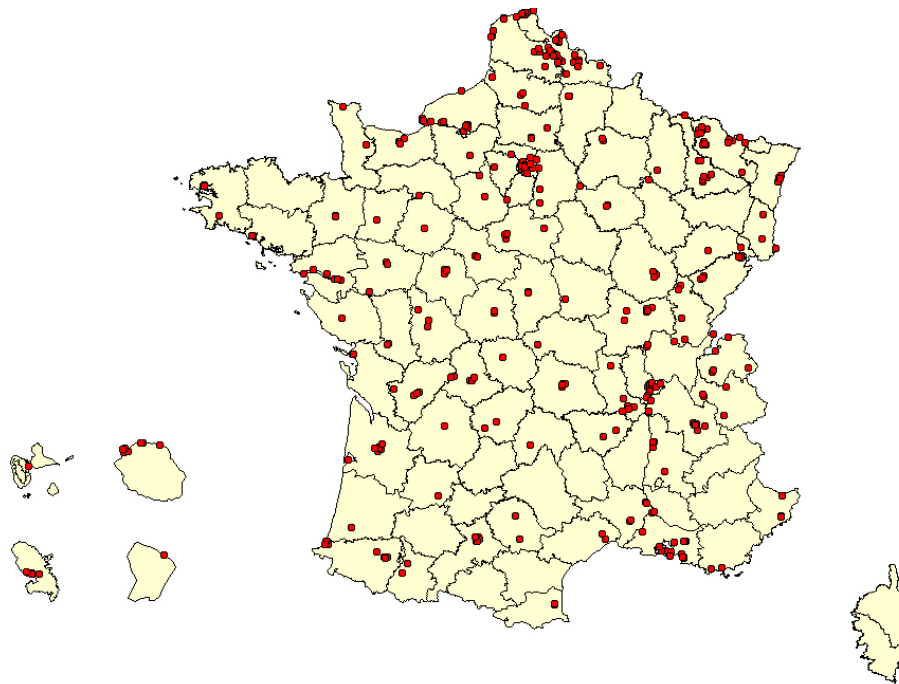


Figure 1 : PM₁₀ measurement network in France (2006)

3.2 FIELD CAMPAIGNS

As far as air quality monitoring is concerned, the main field campaigns from 2002 up to now are listed below:

Objectives	material	where	When	results	Ref
Demonstration of equivalence of the TEOM-FDMS PM_{10} and $PM_{2.5}$	Partisol 2025	Paris (Bobigny)	2005	TEOM-FDMS ok for PM_{10} and $PM_{2.5}$	
	TEOM-FDMS	Marseille	2006		
Demonstration of equivalence of the Beta Gauge MP101M-RST PM_{10}	Partisol 2025, MP101M-RST	Paris (Bobigny), 2005	2005	MP101M-RST ok for PM_{10}	[Le Bihan, 2005 and 2006]
		Marseille, 2006	2006		[Mathe, 2006]
		Italy (b)	2003		
		Belgium (a)	2006		
Preliminary test of the TEOM-FDMS PM_{10}	Partisol 2025, TEOM-FDMS	Paris	2003, 2004	High correlation between FDMS and the reference method for PM_{10}	[Bessagnet, 2004]
PM_{10} chemical composition	Partisol 2025	Paris, Rouen	2002	Confirmation of the TEOM $50^{\circ}C$ under-estimation of PM_{10} mass	[Blanchard, 2002]

(a) : French participation to a program led by Belgium.

(b) : Intercomparison test performed by CNR-IIA (Italy)

3.3 EMEP REMOTE STATIONS AND RESEARCH SUPERSITES

In the framework of the EMEP monitoring strategy, two french remote stations of the French Background Air Pollution Monitoring Network (MERA) have been recently equipped to measure PM_{10} (figure 2). The sampling method used is the automatic system TEOM.

A 1-year measurement campaign, started in June 2006, is running in another EMEP-MERA site (FR09 Revin) with the objective to evaluate the equivalence of the automatic method with the reference one. The first preliminary results already show the necessity of TEOM FDMS.

Nitrates and ammonium daily concentrations are also measured at the two sites and could help out in the interpretation.

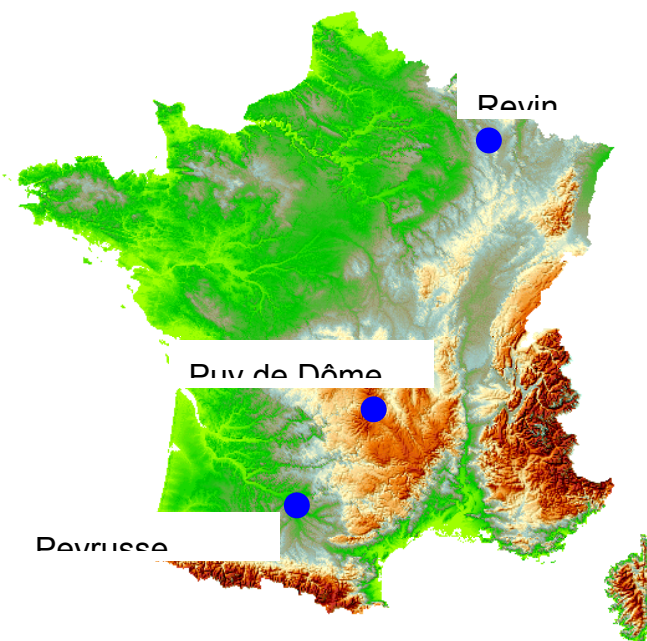


Figure 2 : location of EMEP supersites and Puy-de-Dome PM station

The Puy de Dôme supersite is operated by the Observatoire de Physique du Globe de Clermont-Ferrand. The site is located in the Auvergne region (Central France) at 1465 m high, far away from emission sources. The sampling site is influenced by both long-range transport of gas and particles from the free troposphere and by the more regional boundary layer air.

The site is equipped with complete instrumentation to characterize aerosol properties:

- Aerosol Chemistry : low volume samplers for IC and OC/EC chemistry (PM₁₀) since 2003
- Aerosol Chemistry : High volume sampler for IC and organic speciation (PM₁₀-CARBOSOL program) since 2004
- Aerosol Size segregated Chemistry since 2006
- Size distribution since 2005
- Optical properties : scattering (nephelometer) since 2006 and absorption (aethalometer) coefficients since 2000
- Hygroscopic properties : HTDMA during research campaigns in 2006
- Aerosol Mass –(RH-Controlled gravimetry on aerosol filters PM₁₀) since 2006 and number concentrations (CN counter) since 2003

Finally, it should be noted that puy de Dôme is now a part of the EUSAAR network. The objective of the project EUSAAR is the integration of measurements of atmospheric aerosol properties performed in a distributed network of 20 high quality European ground-based stations (Supersites). This integration contributes to a sustainable and reliable operational service in support of policy issues on air quality, long-range transport of pollutants and climate change. The project is coordinated by CNRS in Clermont-Ferrand.

3.4 ISSUES RELATED TO THE USE OF TEOM AND BETA GAUGE DEVICES

The reference method for sampling and measurement of PM₁₀ as mentioned in the 1st Daughter Directive 99/30/EC is described in EN 12341:1999 standard. It is based on 24 hours sampling of PM₁₀ on filters followed by filters weighting under controlled humidity and temperature conditions. However, this method is not sufficiently operational for routine monitoring. The main difficulties encountered when using this method are:

- delicacy of filter handling procedures;
- impossibility to provide real-time data for public information (daily basis prescribed in Directive)
- high running costs (weighting room with controlled atmosphere, whole measurement process).

Automatic tools such as TEOM or beta gauges bring a solution to these difficulties. However the 90's version of such devices do not measure correctly the PM semi-volatile compounds.

Consequently, the use of these techniques leads to an underestimation of PM levels compared with the reference method.

The main reason for that was clearly identified as the volatilisation of some PM₁₀ compounds in the instrument. This is illustrated in the Figure 3 for the TEOM: TEOM measurements need to be corrected with volatilised compounds (ammonium nitrate in this case). This underestimation is an important point because it makes the TEOM measurement and beta gauge methods not equivalent to the reference method.

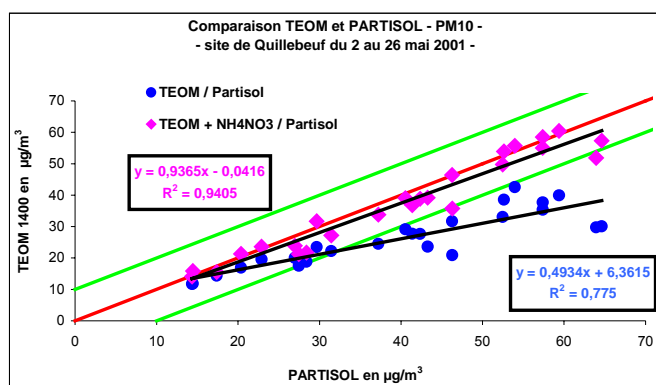


Figure 3 : Correlation between TEOM and reference method (blue), and TEOM corrected with NH_4NO_3 and reference method (pink), for PM_{10} measurements.

The first option examined to tackle this problem was to correct TEOM measurements with a conversion factor. However, field operations have demonstrated that this conversion factor is highly variable in time and space. Table 1 show that this factor ranged between 1.0 and 1.5 for monthly averages, and can exceed 2 for daily values.

Site	Typology	Period	n	PARTISOL/TEO		Mean ratio	Ratio [min - max]
				M	$\text{PM}_{10} \mu\text{g}/\text{m}^3$		
Auteuil	Traffic	summer	30	43,6 / 43,8	1,0	0,9 – 1,1	
		winter	30	40,5 / 36,4	1,1	0,9 – 1,3	
Gennevilliers	Urban background	summer	23	24,0 / 22,0	1,1	1,0 – 1,3	
		winter	30	24,5 / 18,7	1,3	0,8 – 1,7	
PA 18	Traffic	summer	34	23,9 / 21,9	1,1	0,9 – 1,3	
		winter	31	30,4 / 21,9	1,4	0,9 – 1,8	
Vitry sur Seine	Urban background	summer	29	20,6 / 19,8	1,0	0,9 – 1,3	
		winter	28	30,5 / 21,3	1,4	0,7 – 2,0	
Quillebeuf	Industrial	summer	32	35,5 / 23,9	1,5	1,1 – 2,2	
Le Havre	Urban background	summer	29	23,3 / 19,9	1,2	0,9 – 1,7	

Table 1: Relation between TEOM and reference method for PM_{10} measurement for different sites and seasons. *n* is the number of daily samples.

Looking for an instrumental option, two technical solutions have been identified and tested: for the MP101M beta gauge, the RST module (Regulated Sampling Tube); for the TEOM, the FDMS (Filter Dynamics Measurement System). These additional modules dry and master the particles in such a way that the measurements are comparable to the reference method.

To demonstrate the equivalence with the reference method, by the end of 2004, field operations started to obtain necessary data with respect to the European Commission "guidance on the demonstration of equivalence". These field campaigns have been carried out in France, or in Belgium in collaboration with European partners.

An example of intercomparison result is proposed in figure 4. Table 2 gives a summary of the all data obtained.

Results for the two automatic monitoring methods show that the following meet the equivalence criteria set out: TEOM retrofitted with FDMS (for PM₁₀ and PM_{2.5}); and beta gauge MP101M-RST (for PM₁₀). The equivalence criteria is respected without the application of correction for slope and/or intercept.

Due to the variability of test sites (in time and space) involving different composition of ambient air and meteorological conditions, it can be assumed that equivalence for equipment tested under the used configuration is valid anywhere else in France under ambient conditions.

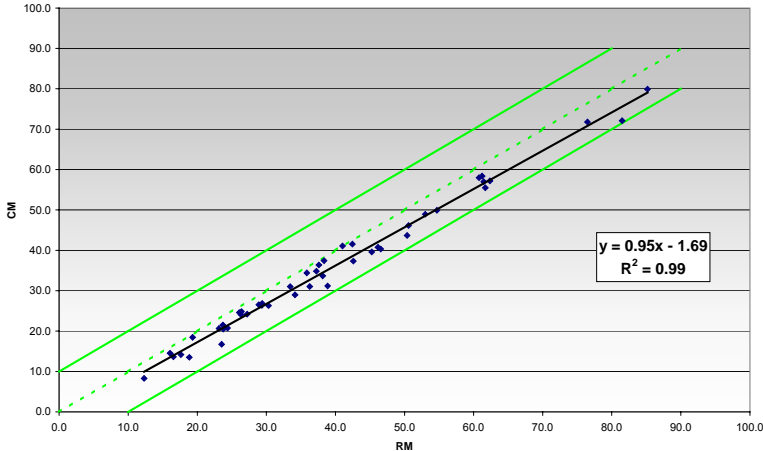


Figure 4 : Correlation between PM₁₀ measurement with the reference method (RM) and FDMS (CM) in Paris (urban background site of Bobigny, winter 2005, 49 daily samples

Candidate method	Trial site location	Time period	Equivalence criteria met?
Thermo R&P TEOM-FDMS PM ₁₀ series 8500 version b ^(a)	Bobigny (France)	25/01 to 17/04/2005	Yes
	Marseille (France)	21/12/2005 to 13/04/2006	
Thermo R&P TEOM-FDMS PM _{2.5} series 8500 version b ^(a)	Bobigny (France)	25/01 to 17/04/2005	Yes
	Marseille (France)	21/12/2005 to 13/04/2006	
Environnement SA MP101M-RST PM ₁₀ ^(b)	Bobigny (France)	25/01 to 17/04/2005	Yes
	Marseille (France)	21/12/2005 to 13/04/2006	
	Aarschot (Belgium)	10/05 to 24/06/2006	
	Monterotondo (Italy)	24/06 to 19/08/2003 & 10/12/2003 to 11/01/2004	

(a) 1h-step time measurement

(b) 24h-step time measurement

Table 2 : field campaigns devoted to the equivalence checking

Once the equivalence procedure has been conclusive, 2006 spring has been dedicated to define an implementation strategy all over the French territory, to produce validated PM₁₀ measurements, including the volatile fraction of PM₁₀. The system calibrated to produce corrected data is based on a network of reference sites, where PM₁₀ are measured simultaneously with usual TEOM and TEOM-FDMS. The difference between the two measurements is used on a scale defined by the user (regional in most cases) to adjust TEOM measurements on sites where FDMS are not yet installed.

By now, about 50 reference sites are producing real-time corrections.

4. RESULTS AND TRENDS FOR PM₁₀ AND PM_{2.5} CONCENTRATIONS

Note : the results presented below are issued from non corrected measurement data (prior to 2006). The volatile fraction of the particles should not be taken into account.

4.1 BASIC STATISTICS

Figure 5 and 6 show the trends of PM₁₀ concentrations since 1998. Since 2004, concentrations get the same level; a slight increase can even be noted in 2006. The exceptional events observed in summer 2003 with the heat wave are also visible on PM concentrations.

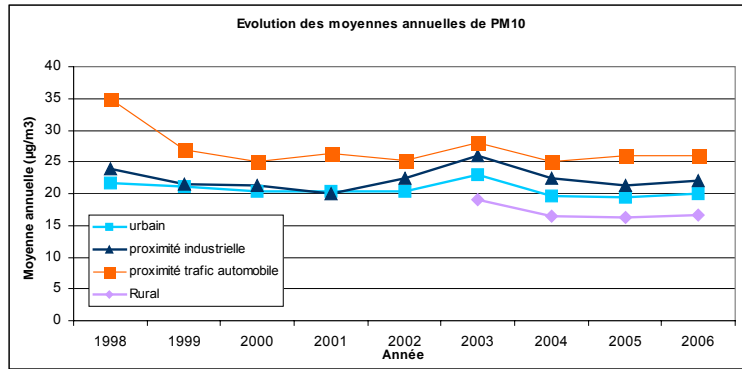


Figure 5 : PM_{10} concentrations in France since 1996

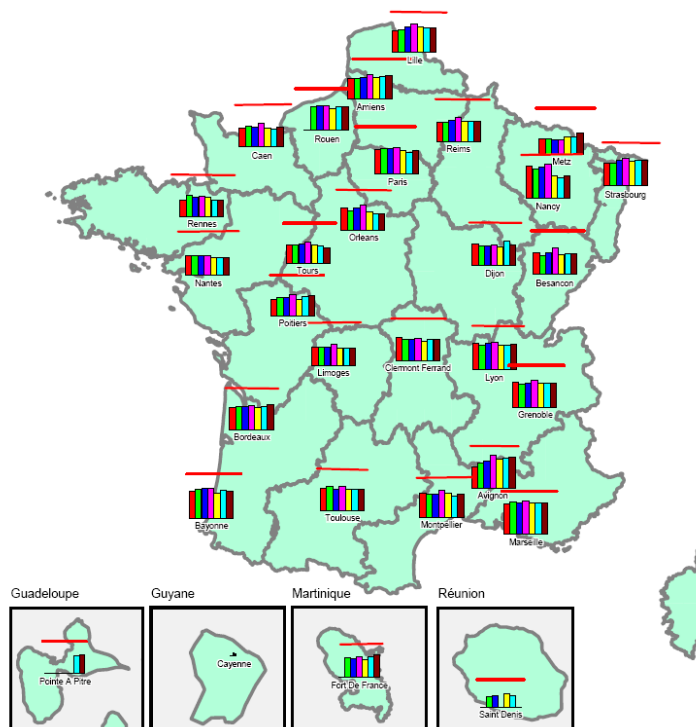


Figure 6 : PM_{10} concentrations in the French cities

The annual averages of $PM_{2.5}$ and PM_{10} concentrations in different regions are presented in figure 7. Highest concentrations are measured at traffic stations for both pollutants.

In urban areas, highest $PM_{2.5}$ concentrations (15 to $18 \mu\text{g}/\text{m}^3$) are found in the South-East (Provence-Alpes Cote d'Azur), and in the Eastern side of the country (Alsace, Rhone-Alpes). The western part is not concerned by such concentration levels. Areas near the Atlantic side get $PM_{2.5}$ concentrations 5 to $7 \mu\text{g}/\text{m}^3$ lower than those measured at the eastern sites. The north, the Centre of the country as well as Paris area get median concentrations levels (12 to $14 \mu\text{g}/\text{m}^3$).

The East/West gradient noted for $PM_{2.5}$ concentrations also holds for PM_{10} concentrations. Mediterranean area is still the most exposed and Nantes, a city

located on the Atlantic coast the less one. Paris area and the North show quite high PM_{10} concentrations, generally higher than those observed in Alsace and Rhone-Alpes regions.

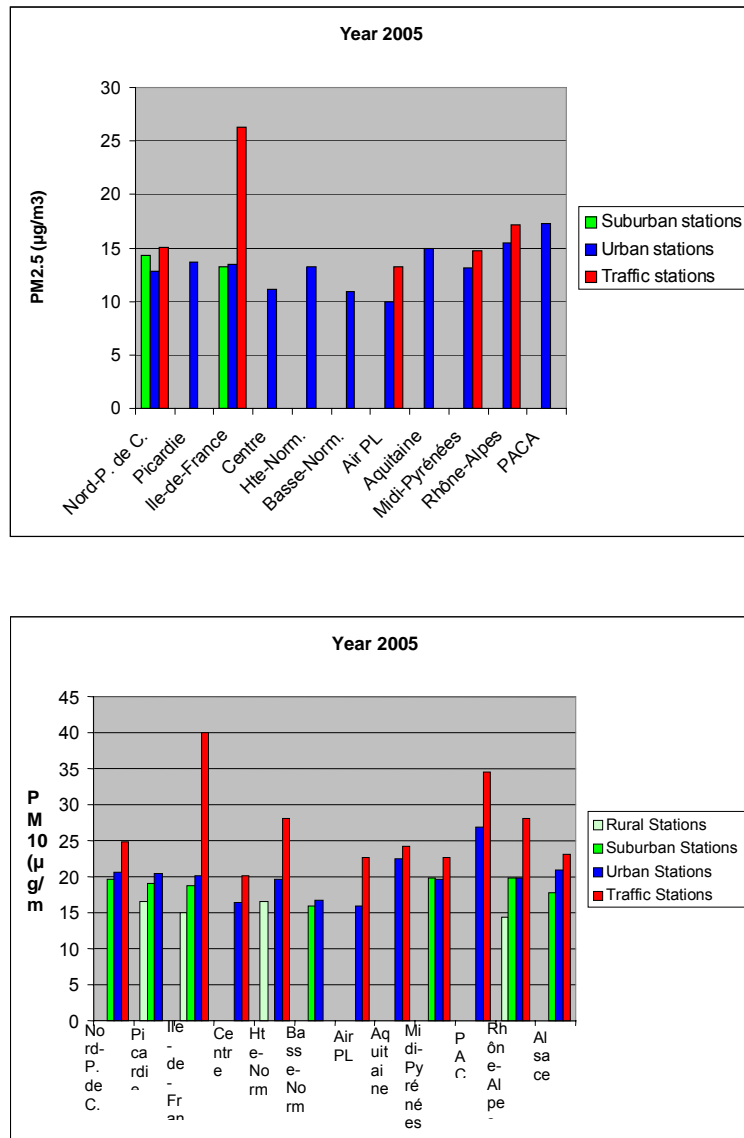


Figure 7 : $PM_{2.5}$ and PM_{10} annual means in French regions

It should be noted (not shown) that $PM_{2.5}$ and PM_{10} concentrations were particularly high everywhere during summer 2003, when the heat wave occurred in Europe. High photochemical activity could help to explain this phenomenon.

Comparable levels of concentration have been observed at remote sites (EMEP sites) located at Peyrusse-Vieille (FR13 EMEP site) in the South of France and Revin in the North. In 2006-2007 the daily mean concentrations were respectively $15.3 \mu\text{g}/\text{m}^3$ (Aug 06 to Feb 07, average daily data, 9h-9h TU)) with a maximum

daily value at $60 \mu\text{g}/\text{m}^3$ and $13.8 \mu\text{g}/\text{m}^3$ (Aug 06 to Feb 07, average daily data, 9h-9h TU) with a maximum value of $46 \mu\text{g}/\text{m}^3$. (figure 9).

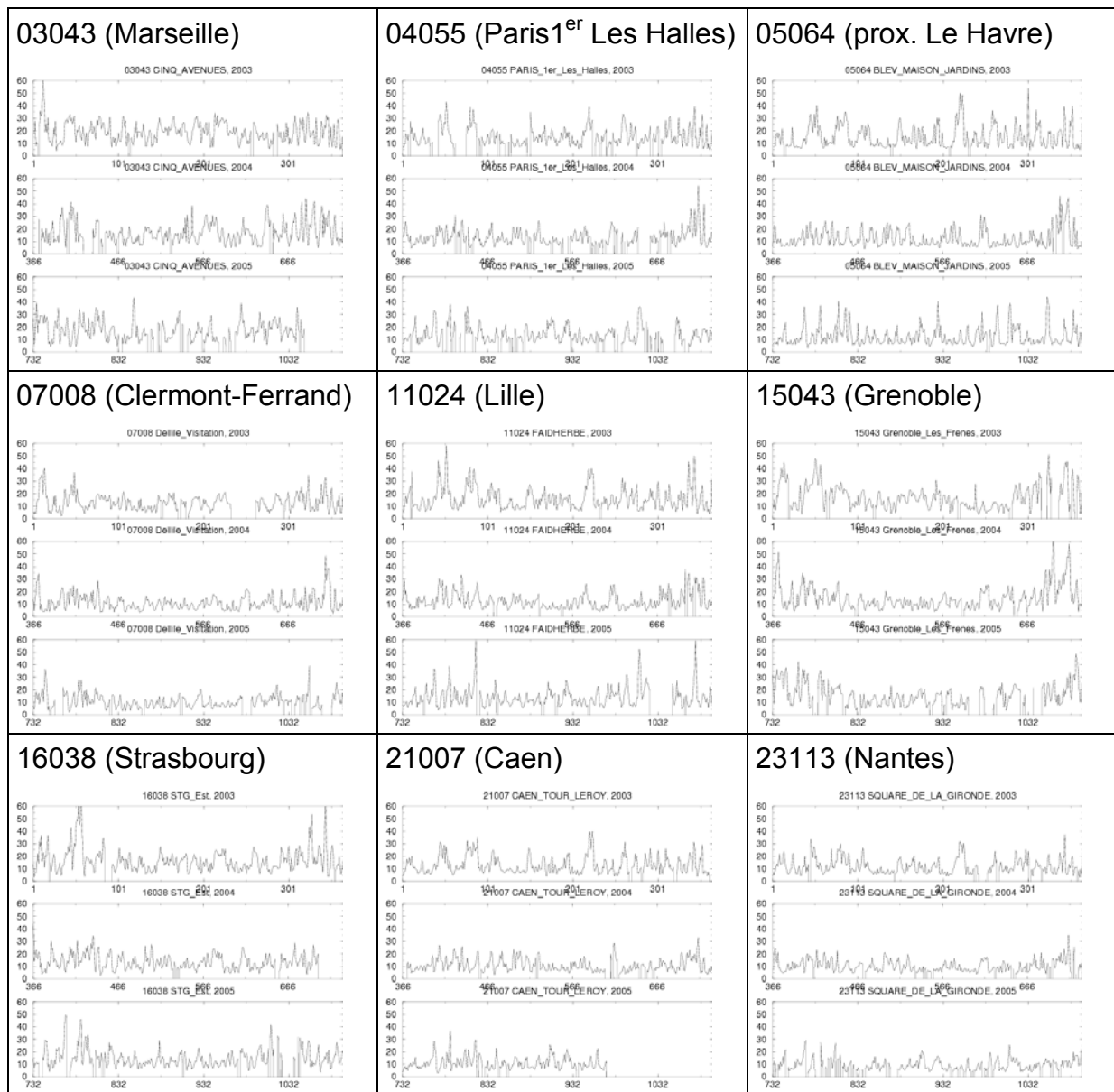


Figure 8 : PM_{2.5} concentrations time series for few french cities

Except for this period, analysis of seasonal variability demonstrates the following statements:

- ❑ PM_{2.5} concentrations are higher in March/April and November/December than the rest of the year;
- ❑ They are the lowest in summer;
- ❑ Seasonal variability of urban PM_{2.5} is more or less sharpened depending on the cities considered (see figure 8 with a clear difference between summer and winter at Grenoble and Strasbourg).

No seasonal trend is observed for PM₁₀ concentrations. In some cases, they are higher in winter than in summer, in other situations the contrary is true. In most cases concentrations averaged over both periods are rather comparable.

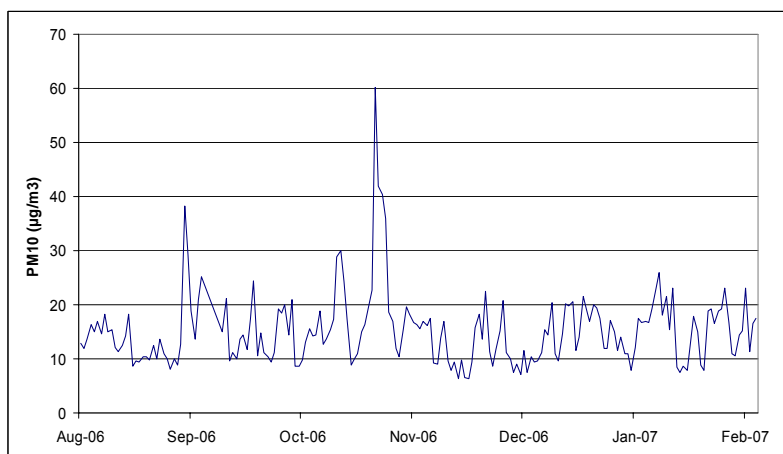


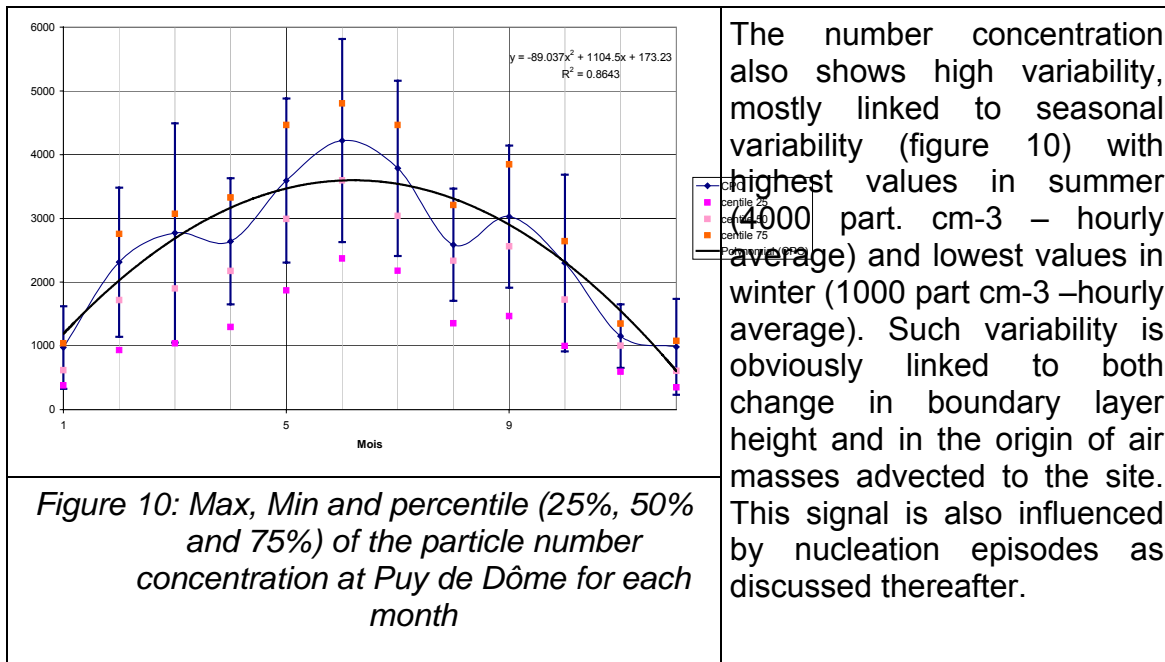
Figure 9 : PM₁₀ concentrations ($\mu\text{g}/\text{m}^3$, daily value) measured at Peyrusse Vieille (FR13, EMEP station) from July 2006 to February 2007

4.2 PM CHARACTERISTICS

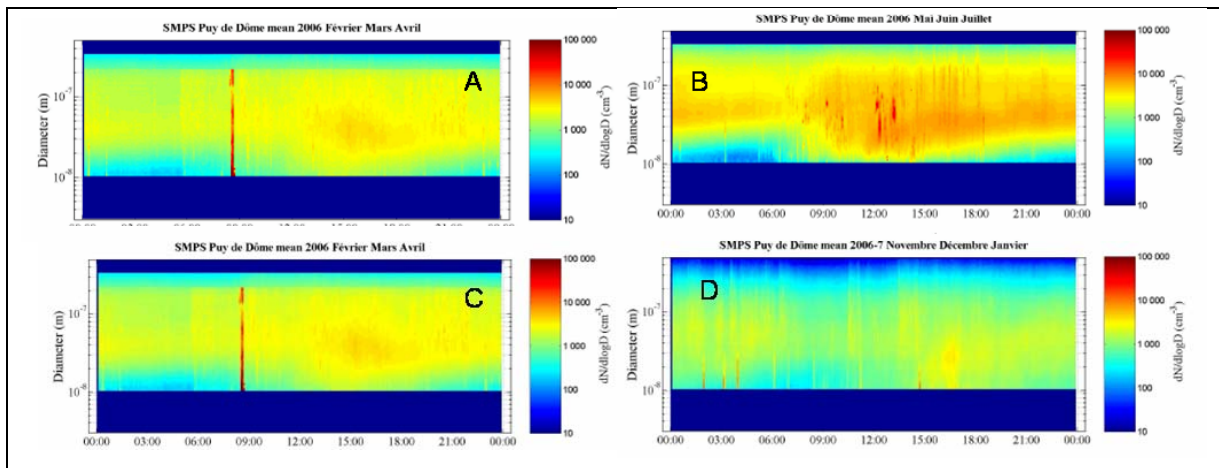
Characteristics of PM are thoroughly investigated at the Puy-de-Dome supersite. A large panel of indicators is evaluated helping in a better understanding of the rural background composition. PM mass composition at urban and suburban sites has been analyzed during the equivalence campaigns which held in Paris and in the Normandy regions (see section 3.2).

4.2.1 PUY-DE-DOME SITUATION

Concentrations measured at the site show that the site is typical of the natural background. Average PM₁₀ mass is slightly lower than $5 \mu\text{g}/\text{m}^3$ (daily average) with minimum values lower than $1 \mu\text{g}/\text{m}^3$ (free tropospheric background) and maximum values close to $30 \mu\text{g}/\text{m}^3$ (Saharan dust episodes).



The evolution of the particle size distribution is seen on a daily basis at Puy de Dôme. The mode of the size distribution lies around 50nm during background periods regardless of seasons and the distribution is mono-modal. During summer months, an additional source of particle is present, due to mixing with boundary layer air, leading to bimodal size distribution with both Aitken (30nm) and accumulation (80 nm) modes. Figure 11 shows typical daily variation during different seasons at Puy de Dôme.



As mentioned earlier, the variability of the size distribution signal is also linked to nucleation episodes. The occurrence of these episodes is higher during spring time and early summer and usually takes place during clear-sky conditions, at the interface between free-tropospheric and boundary layer air masses.

The mechanisms of particle nucleation at Puy de Dôme has been reviewed by Venzac et al.(2007) showing that most of the episodes are connected with increases in the ion background in the atmosphere. Nucleation events are likely to be one of the most efficient processes controlling particle concentrations in the free troposphere over Europe.

The weekly averaged concentration is close to $3 \mu\text{g}/\text{m}^3$. On average, the OC fraction accounts for less than $1 \mu\text{g}/\text{m}^3$ although weekly averages can be higher than $1.5 \mu\text{g}/\text{m}^3$.

Average proportions of inorganic and organic compounds are shown in Figure 12.

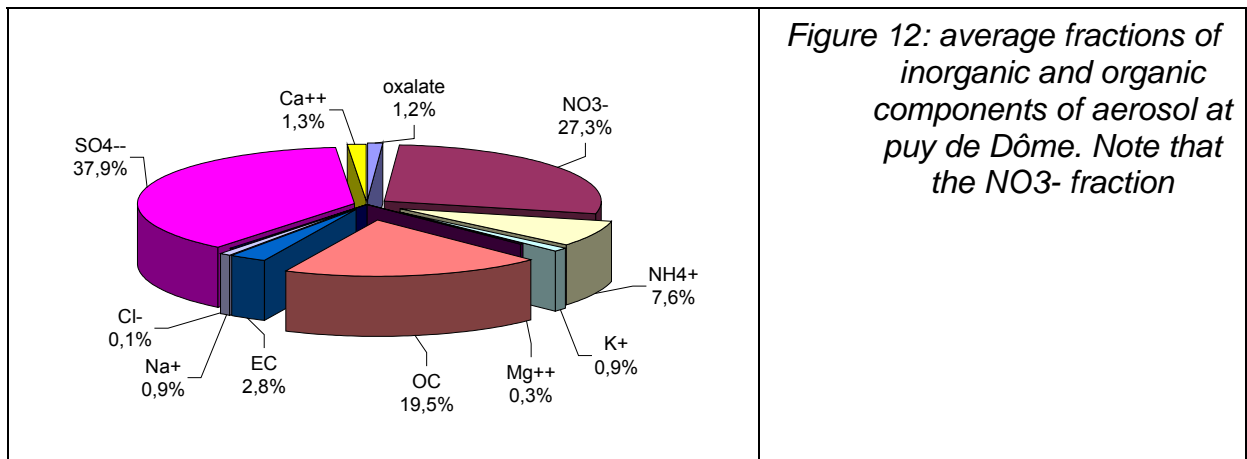


Figure 12: average fractions of inorganic and organic components of aerosol at Puy de Dôme. Note that the NO3- fraction

4.2.2 URBAN PM SPECIATION

The field campaigns organised to assess the volatile part lost by automatic devices allowed to describe the PM₁₀ mass composition in winter and in summer for different types of sites. Figure 13 shows some of these results.

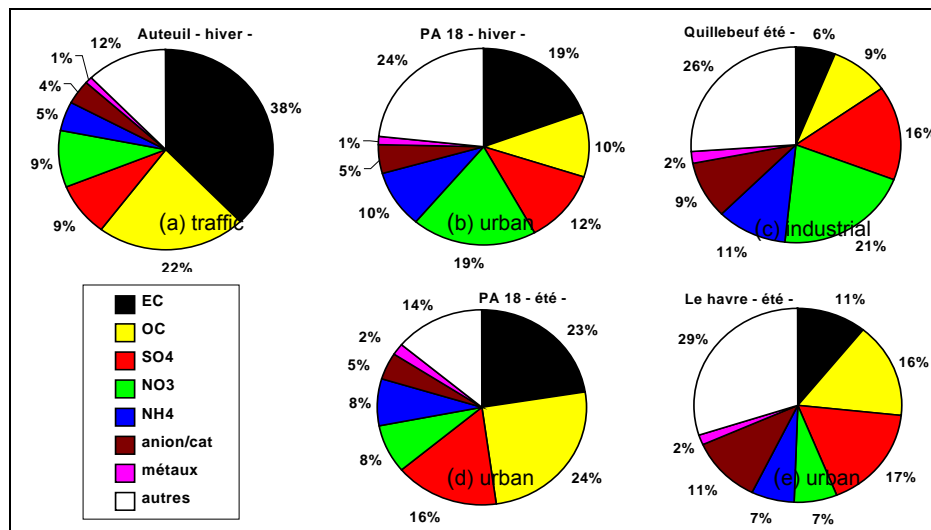
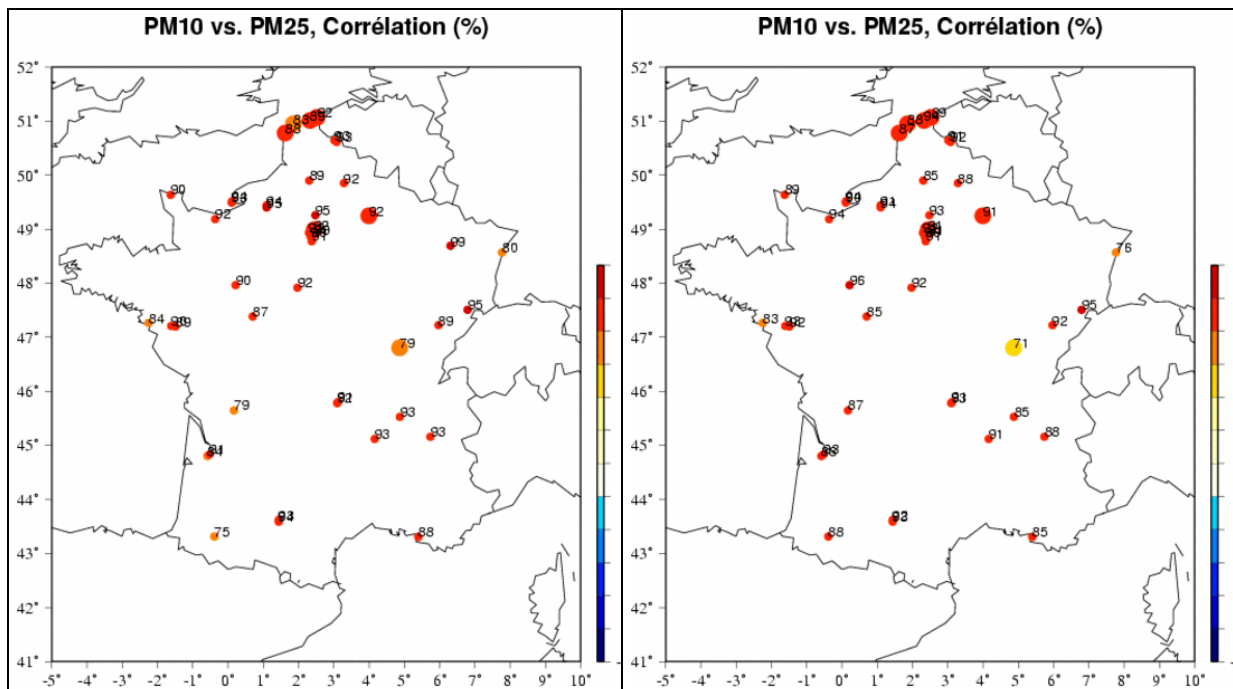


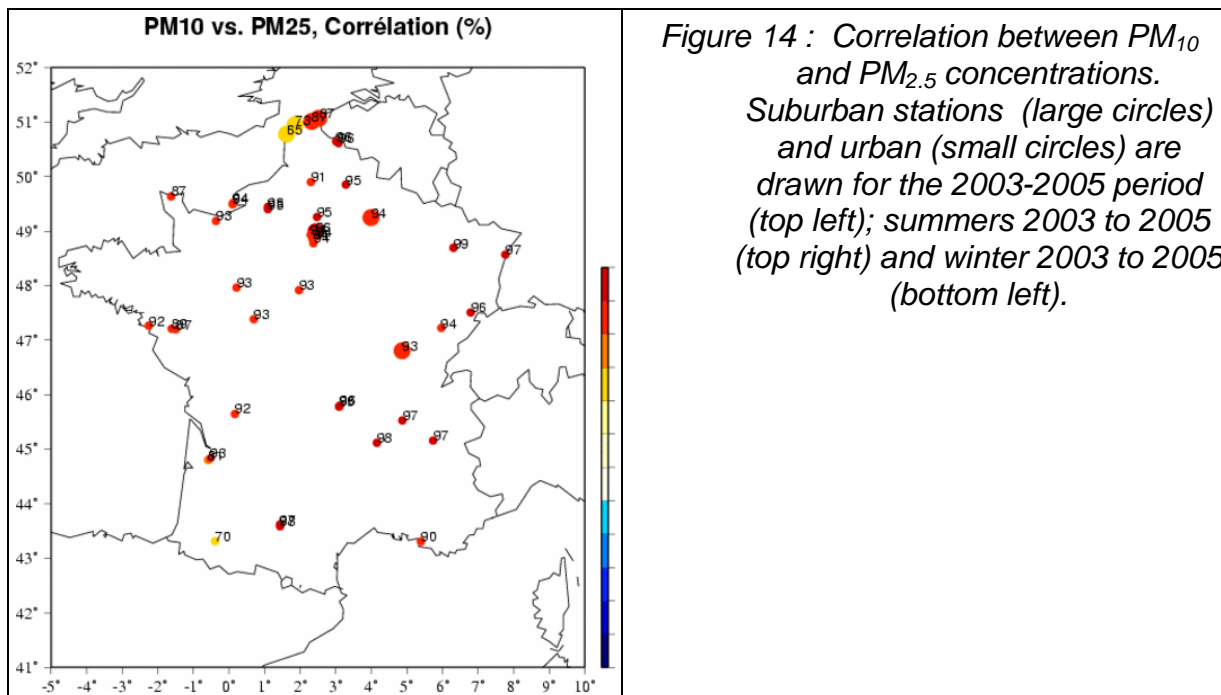
Figure 13 : PM₁₀ mass composition for different situations in winter (a and b) and in summer (c to e)

4.3 RELATIONSHIPS BETWEEN PM₁₀ AND PM_{2.5} CONCENTRATIONS

4.3.1 CORRELATION BETWEEN PM₁₀ AND PM_{2.5} MASS CONCENTRATIONS (FIGURE 14)

Correlation between PM₁₀ and PM_{2.5} mass concentrations is excellent everywhere, higher than 75% (minimum in the South-West region). The score of 85% is often exceeded, with better results in winter or in summer depending on the geographic area. Correlation are higher in winter in Paris areas, in the North and in the Rhone-Alpes (Centre-East) regions.





4.3.2 RATIO $PM_{2.5}/PM_{10}$ (FIGURE 15)

Figure 15 shows ratios $PM_{2.5}/PM_{10}$ mass concentrations. This indicator varies depending on the geographic area considered. Highest ratios (72 to 84%) are seen in the eastern part of the country (Lorraine, Vosges, Bourgogne), excepted in Alsace (65%). In Paris area $PM_{2.5}/PM_{10}$ ratio varies from 64 to 71%. It is quite homogeneous in the mid-south of France: from 63 to 69%. Ratios are lower at sites located in the western and northern coasts (53% at Nantes and 58_59% at Calais, Dunkerque).

$PM_{2.5}/PM_{10}$ ratio is almost higher in winter than in summer with a 5 to 10% increase compared to the average mean.

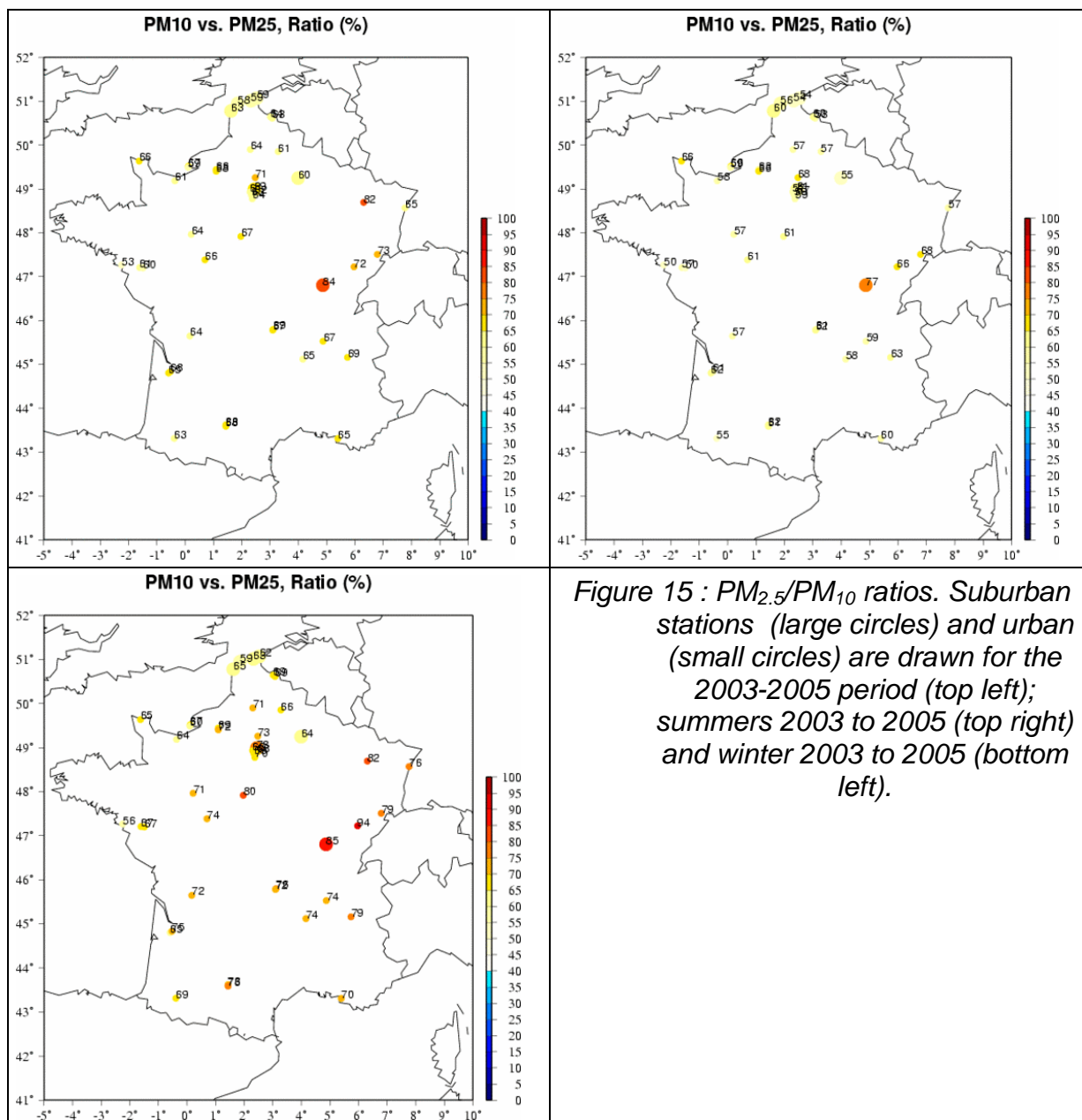


Figure 15 : PM_{2.5}/PM₁₀ ratios. Suburban stations (large circles) and urban (small circles) are drawn for the 2003-2005 period (top left); summers 2003 to 2005 (top right) and winter 2003 to 2005 (bottom left).

5. PM CLIMATOLOGY IN FRANCE

The Puy-de-Dome rural supersite helps to investigate the long range transport contribution to PM concentrations. It is clearly detected during advection of anthropogenic, marine and Saharan dust air masses to the sampling site. The contribution of the specific emission area is difficult to estimate without detailed modelling of transport mechanisms. Available measurements show that contribution of marine aerosol (from the Atlantic Ocean) to the free troposphere in France remains extremely limited far from the Coastal areas. On average, we can consider that this contribution never gets above $0.1 \mu\text{g}/\text{m}^3$, that is, at the most, a few % of the total PM₁₀ mass.

On the contrary, Saharan dust episodes have potentially a higher impact on the average PM₁₀ mass measured at Puy de Dôme. During Saharan dust episodes, the contribution of dust (mostly found onto large particles) reaches a few $\mu\text{g}/\text{m}^3$ (2-6), and contributes to a substantial fraction of PM. It should be noted that the dust is mostly formed by Ca-containing material but also provides a surface for condensing HNO₃ vapour that in turn will contribute to increasing PM. The contribution of NO₃ condensed onto large particles can reach several tens of % of the total aerosol mass.

Finally, high concentration of particles is also measured during advection of air masses from Northern Europe (including the Paris area). These episodes are most intense following cold front when cyclonic conditions favour Northerly winds to the site. However, a precise contribution of long-range transport from anthropogenic activities is difficult to estimate due to the fact that the contribution of boundary layer air is embedded in the bulk filter (and impactor measurements). We can estimate that long range transport from Northern Europe increases the aerosol mass at the Puy-de-Dome supersite by a few $\mu\text{g}/\text{m}^3$ and is mostly composed of nitrate, sulphate and organic material.

Model experiments allow to represent the impact in France of particulate pollution episodes mainly due to inorganic particulate formation. The CHIMERE model [Bessagnet , 2005] has been developed to simulate primary and secondary PM concentrations. Its results have been assessed against observations and during European model intercomparison exercises [Cuvelier, 2006]. Provided that the emissions are reliable, confidence is built in model results especially for inorganic compounds. Thus, CHIMERE is able to correctly detect ammonium nitrate episodes . This capacity is used in the PREV'AIR system (www.prevair.org) , which is the french air quality forecasting platform (figure 16).

An example of ammonium nitrate episode simulated by CHIMERE is given in figure 17. Such episodes occurs several times a year, especially in spring because of favourable meteorological conditions and higher emissions of ammonium in the northern part of Europe.

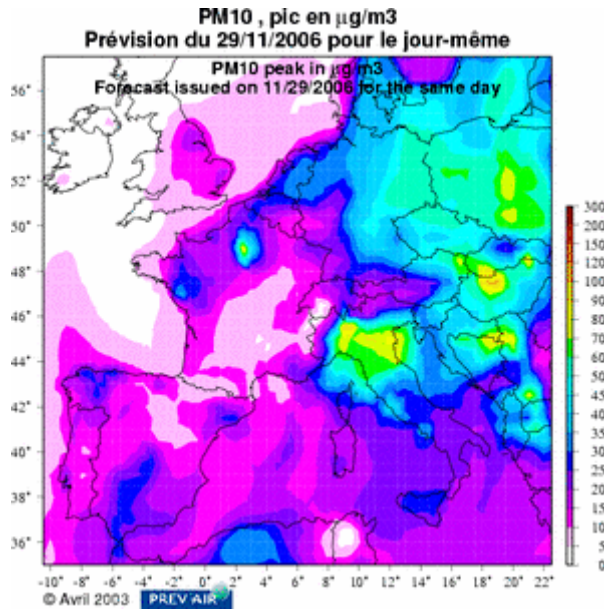
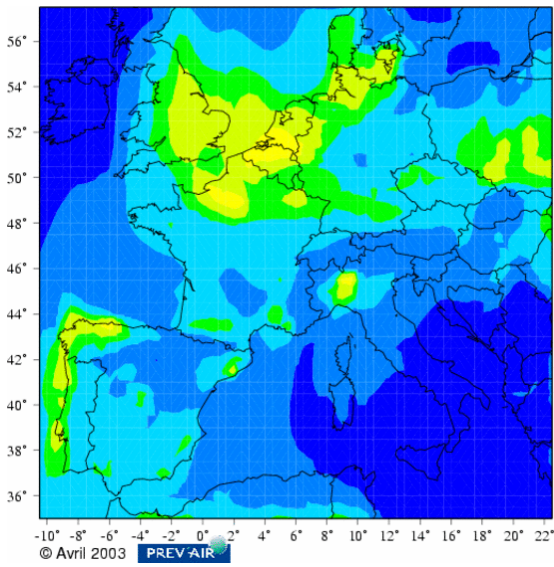
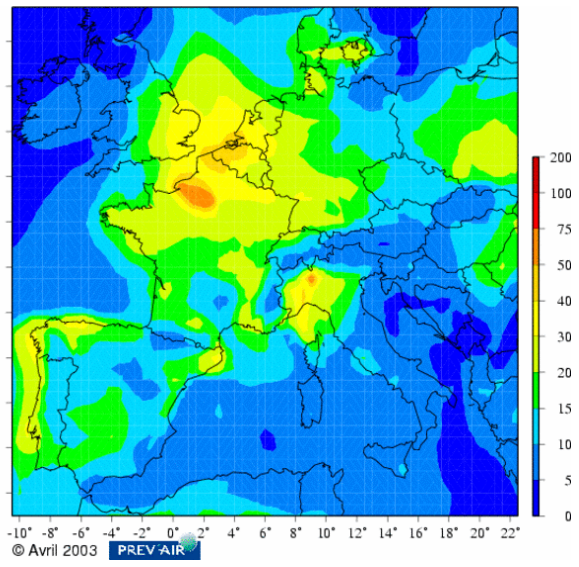


Figure 16 : PREV'AIR PM₁₀ forecast

13th March 2006



14th March 2006



15th March 2006

16th March 2006

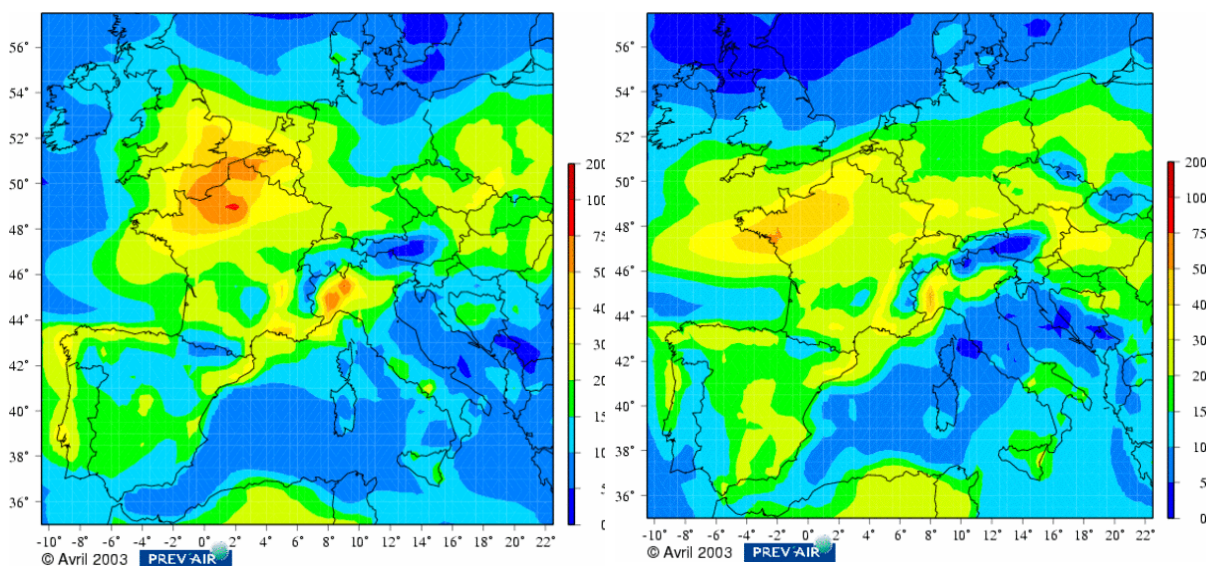


Figure 17: Ammonium nitrate episode simulated with the CHIMERE model (March 2006)

6. REFERENCES

[Blanchard, 2002] – "Caractérisation de l'aérosol atmosphérique en milieu urbain", O. Blanchard, rapport LCSQA, 34pp.

[Bessagnet, 2005] - "Origin of particulate matter pollution episodes in wintertime over the Paris Basin", B. Bessagnet, A. Hodzic, O. Blanchard, M. Lattuari, O. Le Bihan, H. Marfaing, L. Rouil, Atmospheric Environment 39 (2005) 6159–6174, 2005.

[Coddeville, 2006] – "Programme MERA, intercomparaison de méthodes de mesure des PM_{10} en milieu rural", S.sauvage, P.Coddeville, Rapport de marché ADEME n°0562C0057, octobre 2006

[Cuvelier, 2006], - "CityDelta: A model intercomparison study to explore the impact of emission reductions in European cities in 2010", Atmospheric Environment, Volume 41, Issue 1, January 2007, Pages 189-207, C. Cuvelier, P. Thunis, R. Vautard, M. Amann, B. Bessagnet, M. Bedogni, R., Berkowicz, J. Brandt, F. Brocheton, P. Buitjes, et al.

[Le Bihan 2005] – "Utilisation du TEOM/FDMS pour la surveillance des PM - Procédure d'équivalence : TEOM/FDMS PM_{10} et $PM_{2,5}$ – Campagne de Bobigny ", O. Le Bihan & H. Marfaing, rapport LCSQA/INERIS, INERIS-DRC/AIRE-05-64996-Ole/lfr-n°743-v3a, novembre 2005

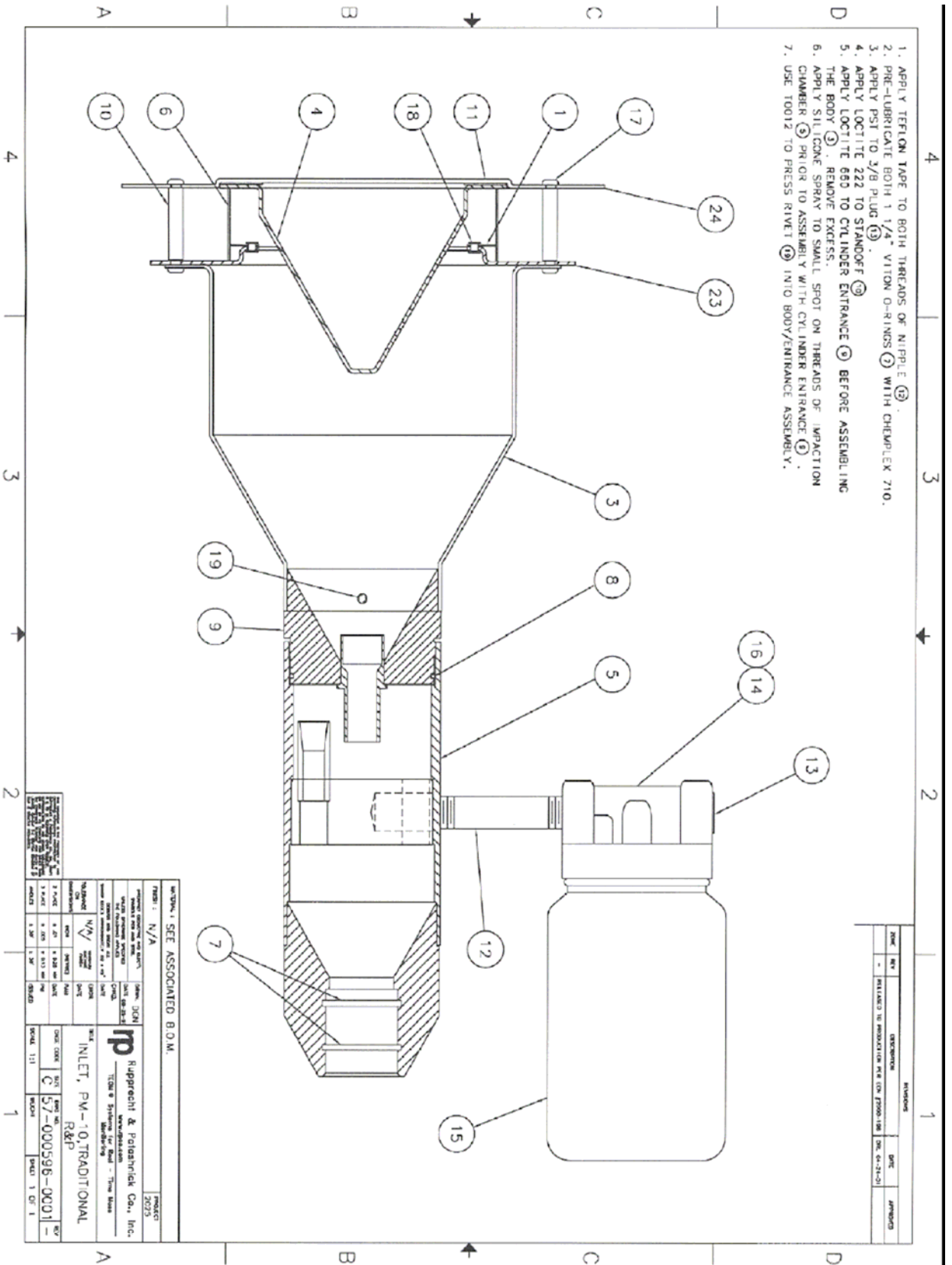
[Le Bihan, 2006] - "Demonstration of equivalence of PM automated monitoring methods: results of the first measurement campaign on a parisian urban background air quality station", O. Le Bihan, F. Mathé, C. Chambre, P. Bruno, H. Marfaing, Abstracts of the conference "Particles in Europe", 13-14 june 2006, Antwerp, Belgium, pp. 56-58.

[Le Bihan, 2006] – “Correction of PM_{10} measurements : french approach”, O. Le Bihan, J. Collosio, 11th EIONET workshop on air quality assessment and management, 26-27 octobre 2006, La Rochelle. EN-2006

[Le Bihan, 2007] – “Practical testing of equivalence demonstration for PM automated monitoring methods : the experience in France”, O. Le Bihan, F. Mathé, H. Marfaing, D. Robin, Workshop on Equivalence Methods, JRC Ispra, 2-4th, May 2007

[Mathe, 2006] – “Demonstration of equivalence of PM automated monitoring methods: results of the first measurement campaign on a parisian urban background air quality station”, O. Le Bihan, F. Mathé, C. Chambre, P. Bruno, H. Marfaing, congrès IUAPPA, Lille, septembre 2006

ANNEXE IV



MATERIALS SEE ASSOCIATED B.O.M.		DATE: 2075	
REV: N/A	DATE: N/A	DESIGNER: JCH	PROJECT: 2075
PREPARED BY: JCH CHECKED BY: JCH DATE: 2075		INLET, PM-10, TRADITIONAL R&P	
TITLE: INLET, PM-10, TRADITIONAL R&P		ORDER CODE: C PART NO: 57-000596-0001 SCALE: 1:1	
1. 1.000 2. 1.000 3. 1.000 4. 1.000	1. 1.000 2. 1.000 3. 1.000 4. 1.000	1. 1.000 2. 1.000 3. 1.000 4. 1.000	1. 1.000 2. 1.000 3. 1.000 4. 1.000

Doc RP : inlet PM10 à dessus plat.

INERIS - DRC-07-85118-16734A