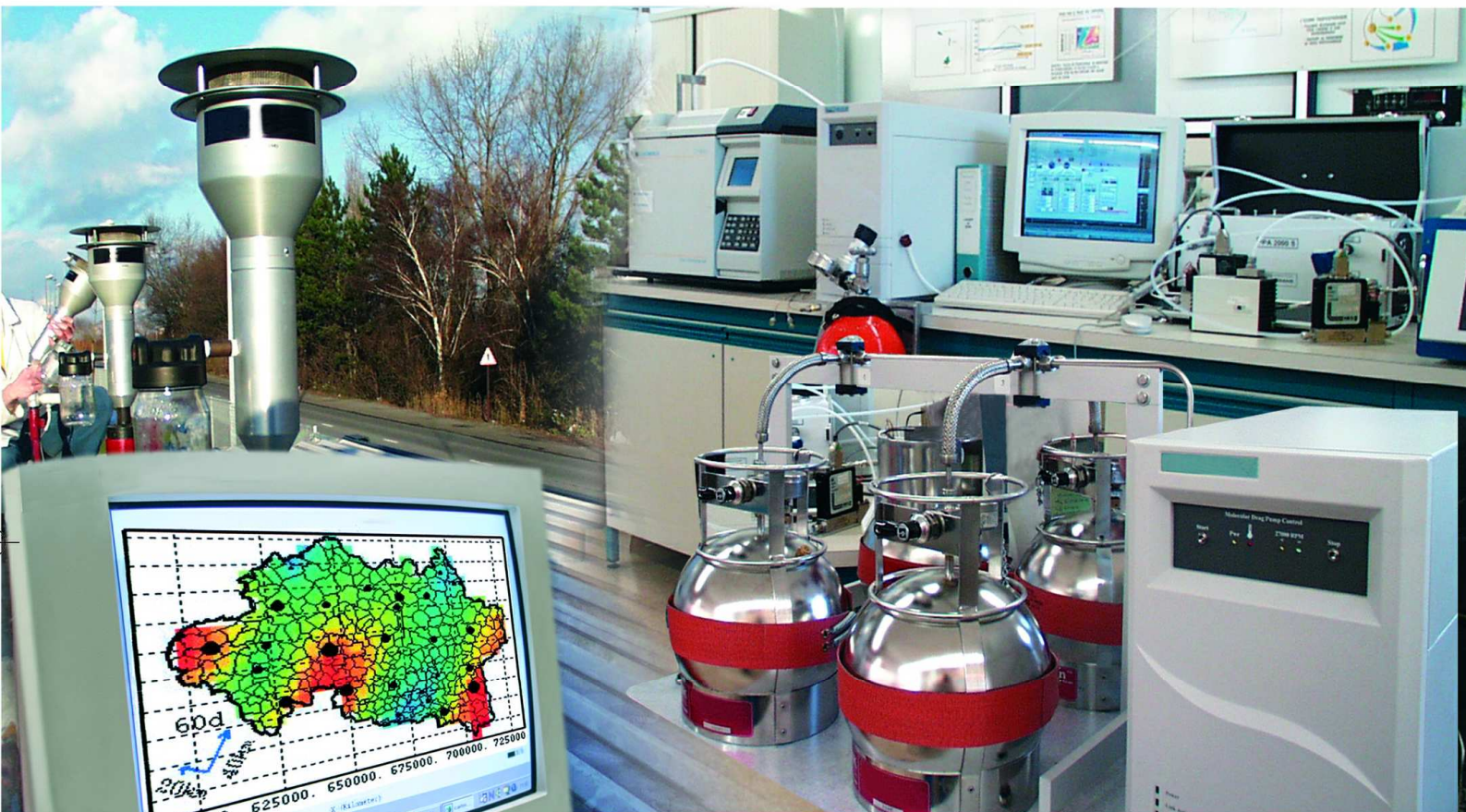




Laboratoire Central de Surveillance de la Qualité de l'Air



Métrologie des particules PM_{10} et $PM_{2.5}$

Caractérisation Chimique des Particules

Veille sur les études de sources

Décembre 2009

Programme 2009

L. CHIAPPINI





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. Ces travaux en matière de pollution atmosphérique supportés financièrement par la Direction Générale de l'Energie et du Climat du Ministère de l'Ecologie, de l'Energie, du Développement Durable et de la Mer sont réalisés avec le souci constant d'améliorer le dispositif de surveillance de la qualité de l'air en France, coordonné au plan technique par l'ADEME, 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.



Caractérisation chimique des particules

Laboratoire Central de Surveillance
de la Qualité de l'Air

Métrologie des particules PM₁₀ et PM_{2.5}

Programme financé par la
Direction Générale de l'Energie et du Climat (DGEC)

2009

L. CHIAPPINI

N. MARCHAND (LCP-IRA)

Ce document comporte 43 pages (hors couverture et annexes)

	Rédaction	Vérification	Approbation
NOM	Laura CHIAPPINI	Eva LEOZ-GARZIANDIA	Martine RAMEL
Qualité	Ingénieur Unité CIME Direction des Risques Chroniques	Responsable Unité CIME Direction des Risques Chroniques	Responsable LCSQA/INERIS Direction des Risques Chroniques
Visa			

TABLE DES MATIÈRES

RESUME

1. LISTE DES ABBREVIATIONS.....	8
2. INTRODUCTION	9
3. DIFFERENTES APPROCHES D'ETUDES DE SOURCES.....	10
3.1 Méthode basée sur l'évaluation de données métrologiques.....	10
3.2 Méthodes basées sur des inventaires d'émission et des modèles de dispersion, orientées vers la source	11
3.3 Méthodes statistiques dites « modèles récepteurs », orientées vers le site récepteur	11
3.3.1 L'approche CMB.....	12
3.3.2 Les approches « multivariées »	13
3.3.3 Les approches combinées.....	14
3.3.4 Les rapports caractéristiques.....	15
3.3.5 Isotopes du carbone	15
3.3.6 Mesures d'absorption	15
3.3.7 Combinaison de différentes méthodes de mesures et statistiques.....	16
4. ETAT DES LIEUX DES ETUDES DE SOURCES EN FRANCE	16
4.1 Les études de caractérisation de la pollution particulaire de portée nationale.....	19
4.1.1 CARA.....	19
4.1.2 Particul'AIR.....	20
4.1.3 « Chauffage au bois ».....	20
4.1.4 Particules Submicroniques	21
4.2 Les études de caractérisation de la pollution particulaire de portée régionale.....	22
4.2.1 Particules en Ile de France	22
4.2.2 Vallée du Peillon.....	22
4.2.3 Impact chaufferies bois en Alsace	23
4.3 Les projets de recherche nationaux et européens	23
4.3.1 FORMES	23
4.3.2 MEGAPOLI.....	24
4.3.3 CHARMEX.....	25
4.4 Conclusions et perspectives.....	26

5. APPLICATION DE LA METHODE « CMB » AUX DONNEES CARA 2009..	27
5.1 L'épisode de janvier 2009.....	27
5.2 Espèces chimiques analysées et choix des profils de source	28
5.3 Résultats des analyses.....	29
5.3.1 EC, OC, levoglucosan, hopane et B [a]P	29
5.3.2 Anions et cations (NO ₃ ⁻ , SO ₄ ²⁻ , Cl ⁻ , NH ₄ ⁺ , Na ⁺ , K ⁺ , Mg ²⁺ et Ca ²⁺)	30
5.4 Estimation e la contribution de différentes sources	31
5.4.1 Estimation de la contribution de la source marine et des poussières crustales	31
5.4.2 Estimation des sources de la matière organique – application du CMB ..	32
5.4.3 Conclusions	36
6. CONCLUSIONS GENERALES ET PERSPECTIVES.....	37
7. BIBLIOGRAPHIE.....	39
8. LISTE DES ANNEXES	43

RESUME

La pollution particulaire constitue aujourd'hui un véritable enjeu à la fois politique sanitaire et réglementaire. De ce fait, un besoin fort est exprimé par les pouvoirs publics de se doter d'outils de compréhension des phénomènes et d'aide à la décision afin d'appliquer la Directive 2008/50/CE et mettre en œuvre des plans de réduction des sources de matière particulaire (PM) en France. C'est pourquoi le dispositif CARA a été créé au sein du LCSQA et que des campagnes de mesures sont menées sur le territoire pour suivre des traceurs spécifiques de certaines pollutions, caractériser la pollution particulaire dans des zones spécifiques telles les zones rurales, mettre au point des méthodes d'analyse et de traitement des données pour attribuer les sources et comprendre les phénomènes.

Faisant tout d'abord l'état des lieux des différentes approches existantes pour l'attribution des sources de particules ainsi que des différentes études de source de PM menées en France au niveau national, régional et dans le domaine de la recherche, ce travail a révélé la multiplicité et la diversité de ces études.

Afin d'inscrire CARA dans les travaux de recherche et de réflexion sur les études de sources menées en France, les méthodes d'attribution des sources utilisées dans le cadre du programme de recherche FORMES ont été appliquées aux données issues du dispositif CARA pour des épisodes de pollution particulaire intenses survenus au cours de l'année 2009 et sont présentés dans ce rapport.

Enfin, ce travail a mis en valeur la pertinence d'approfondir ce type d'étude bibliographique synthétisant l'ensemble des résultats et conclusions des différents programmes menés sur le territoire mais également à l'étranger. Une première journée d'échanges a été organisée par l'ADEME en avril 2009 afin de faire le point sur un certain nombre d'études de source en France. Il a également révélé l'importance de mettre en place une réflexion nationale capable d'orienter et d'harmoniser les différentes études en cours et futures afin d'exploiter au mieux les données en résultant et d'avoir ainsi une vision globale et critique sur l'ensemble des travaux menés en France sur les PM.

1. LISTE DES ABBREVIATIONS

AMS :	Aerosol Mass Spectrometer
AOS :	Aérosol Organique Secondaire
APCA :	Absolute Principal Component Analysis
CMB :	Chemical Mass Balance
IEM :	Indice d'Exposition Moyen
HAP :	Hydrocarbures Aromatiques Polycycliques
HOA :	Hydrocarbon-Like Organic Aerosol
LCME :	Laboratoire de Chimie Moléculaire et Environnement
LCP-IRA :	Laboratoire Chimie Provence – Instrumentation et Réactivité Atmosphérique
LGGE :	Laboratoire de Glaciologie et Géophysique de l'Environnement
LHS :	Latin-hypercube sampling
LSCE :	Laboratoire des Sciences du Climat et de l'Environnement
OOA :	Oxygenated Organic Aerosol
PCA :	Principal Component Analysis
PM :	Particulate Matter (matière particulaire)
PMF :	Positive Matrix Factorisation

2. INTRODUCTION

La matière particulaire (PM) présente dans l'atmosphère est considérée depuis quelques années maintenant comme un enjeu environnemental majeur du fait de son impact sur la santé. Ainsi, des valeurs limites annuelles ont été récemment fixées par l'Union Européenne pour les particules de taille inférieure à 10 µm, PM₁₀, et celles de taille inférieure à 2.5 µm, PM_{2.5} (Directive 2008/50/CE 2008). Le Grenelle de l'environnement d'octobre 2007 avait conclu à la nécessité de réduire de 30 % les niveaux en PM_{2.5} par rapport aux niveaux actuels et d'adopter comme référence française la valeur cible de 15 µg m⁻³, prévue pour devenir valeur limite en 2015.

Le calcul d'un Indice d'Exposition Moyenne (IEM), déterminé sur la base des mesures de concentrations dans des lieux caractéristiques de pollution de fond urbaine, concerne également les PM_{2.5}. Cet IEM sera à la base d'un Objectif National de Réduction des Expositions à atteindre en 2020. L'atteinte de cet objectif passera inévitablement par la poursuite de politiques de réduction des émissions et par conséquent par une meilleure connaissance des sources de PM.

Le dispositif CARA a été mis en place suite à l'observation des épisodes de pollution par les PM₁₀ du printemps 2007 qui avaient mis en évidence le besoin de compréhension et d'information sur l'origine de ces pics.

Basée sur une approche couplée entre la caractérisation chimique des particules (spéciation) et la modélisation, ce dispositif consiste, en pratique, à effectuer des prélèvements de particules sur quelques sites en France, afin d'en analyser la composition chimique (carbone élémentaire et carbone organique, EC/OC, anions et cations) sur une sélection de ces échantillons (épisodes de forte pollution ou situations de fond d'intérêt), et de confronter les résultats à la modélisation.

Ainsi, cette spéciation chimique des PM permet de relier les composés identifiés à des familles de sources telles que, par exemple, les combustions ou les sources naturelles, et d'en estimer l'impact sur la masse totale de PM.

Cependant, chaque espèce pouvant provenir de plusieurs sources, des approches plus complexes sont nécessaires afin d'affiner les différentes sources (ex : combustion du bois, combustion véhiculaire) et d'estimer la contribution de chacune d'entre elles.

Une description des différentes approches existantes fait l'objet de la première partie de ce rapport ainsi qu'une bibliographie portant sur l'apport des techniques analytiques émergentes pour l'identification de sources telles les mesures de ¹⁴C est réalisée. Le paysage français des différentes études de source de PM est par la suite dressé. Enfin, l'application de méthodes d'attribution des sources utilisées dans le cadre du programme de recherche FORMES aux données issues du dispositif CARA pour des épisodes de pollution particulaire intenses est présentée.

Ce rapport s'inscrit dans le programme CARA 2009 rappelé en annexe 1 et s'accompagne de trois autres rapports, le premier fait le bilan des campagnes de janvier 2008 à janvier 2009¹, le second présente les travaux d'ordre technique liés

¹ Disponible sur : <http://www.lcsqa.org/thematique/metrologie/caracterisation-chimique-des-particules-bilan-des-campagnes-de-janvier-2008-ja>

à l'optimisation du prélèvement et de l'analyse², le troisième portant sur les résultats de comparaison modèle-mesure³.

3. DIFFERENTES APPROCHES D'ETUDES DE SOURCES

La matière particulaire se caractérise par une grande complexité de sa composition chimique, très variable et hétérogène dans l'espace et dans le temps. Il existe cependant des composés que l'on peut qualifier de "majoritaires" formant la plus grande part de la masse des PM et pouvant être reliés à des familles de sources afin d'en estimer l'impact sur la masse particulaire. Des études plus fines des sources, en vue d'identifier la contribution de chacune d'entre elles, nécessitent des approches méthodologiques plus précises et complexes que la simple analyse chimique. Il est possible de distinguer au moins trois grands types de méthodes permettant de réaliser des études d'attribution des sources ou « source apportionnement » :

- Les méthodes basées sur l'évaluation de données métrologiques
- Les méthodes basées sur des inventaires d'émission et des modèles de dispersion
- Les méthodes statistiques dites « modèles récepteurs »

Il est important de noter qu'aucune de ces trois grandes classes de méthodologies n'est triviale. La quantification des sources en site récepteur demeure une problématique très complexe et appartient encore au champ de la recherche.

3.1 METHODE BASEE SUR L'EVALUATION DE DONNEES METROLOGIQUES

Il existe plusieurs méthodes d'évaluation de données métrologiques pour identifier les sources de PM. Certaines sont basées par exemple sur la corrélation entre les directions des vents et les concentrations en polluants mesurés (Henry et al. 2002)

Une autre méthode, proposée par Lenschow et al. 2001, consiste à réaliser des mesures sur des sites de typologies différentes (site urbain, site trafic, site de fond...) et à soustraire les niveaux mesurés sur les sites peu pollués aux niveaux mesurés sur les sites plus pollués. La différence, par exemple « niveau de PM en site trafic » - « niveau de PM en site urbain » est directement assimilée à une contribution locale dont il est alors possible de déterminer les profils chimiques. Les cadastres d'émission sont alors employés pour identifier et attribuer chaque source.

De même, afin d'évaluer les apports des sources naturelles et de les soustraire aux niveaux de PM comme le préconise la directive (Directive 2008/50/CE 2008), Escudero et al. 2007 ont proposé une méthodologie basée également sur la soustraction des niveaux de PM mesurés quotidiennement sur un site de fond aux

² Disponible sur : <http://www.lcsqa.org/thematique/metrologie/caracterisation-chimique-des-particules-aspects-techniques-et-metrologiques-ve>

³ Disponible sur ; <http://www.lcsqa.org/thematique/metrologie/etude-des-episodes-de-pollution-2008-2009-dans-le-cadre-du-dispositif-cara-ver>

niveaux mesurés sur ce même site les jours d'épisode de poussière. L'avantage de ces méthodes réside en leur facilité de mise en œuvre. Exceptée l'étude de Lenschow et al. 2001 menée à Berlin en comparant des mesures réalisées sur site de fond régional, site urbain de fond et site trafic, et celle d'Escudero et al. 2007 sur l'évaluation de l'apport de poussières venant d'Afrique en Espagne, il existe très peu de données dans la littérature sur la robustesse de ces méthodes qui de plus nécessitent de disposer de cadastres d'émissions fiables et ne permettent pas l'estimation des sources secondaires.

3.2 METHODES BASEES SUR DES INVENTAIRES D'EMISSION ET DES MODELES DE DISPERSION, ORIENTEES VERS LA SOURCE

Ces méthodes nécessitent de disposer d'inventaires d'émissions détaillés bien souvent non disponibles ou peu complets et précis ainsi qu'une bonne modélisation des phénomènes de dispersion, dilution et réaction dans l'atmosphère, ardue et difficile à réaliser en particulier en ce qui concerne les espèces secondaires. Elles présentent en revanche l'avantage de permettre l'évaluation de l'impact de stratégies de réduction d'émissions sur les concentrations en PM. Il existe peu d'études dans la littérature basée sur cette méthodologie.

3.3 METHODES STATISTIQUES DITES « MODELES RECEPTEURS », ORIENTEES VERS LE SITE RECEPTEUR

La mise en œuvre des méthodes statistiques ou « modèles récepteur » ne nécessite pas comme les modèles de dispersion, des inventaires d'émissions détaillés et précis mais des données métrologiques robustes provenant de mesures des propriétés physiques et/ou chimie des PM sur des sites récepteurs. Ce type de modèles se focalise en effet sur la caractérisation de l'environnement sur le site récepteur par opposition aux modèles de dispersion focalisés sur le transport, les phénomènes de dilution, de réactivité qui surviennent depuis la source jusqu'au site.

Les méthodes statistiques dites « modèles-récepteur » se basent sur le fait que la matière particulaire atmosphérique est un mélange complexe de nombreuses espèces chimiques traçant potentiellement son origine. Elles sont fondées sur l'hypothèse que la matière particulaire provenant d'une certaine source se caractérise par ses propriétés chimiques et/ou physiques qui finissent par se retrouver dans la matière particulaire mesurée sur un site récepteur et peuvent par conséquent être utilisées pour identifier les différentes sources et en réaliser la répartition ou « apportement » (Hopke et al. 2006).

De nombreux modèles statistiques basés sur ce principe ont été développés, chacun dépendant de la quantité et la nature des informations disponibles a priori, allant de ceux nécessitant le moins d'information sur les sources (« Principal Component Analysis », PCA ou « Positive Matrix Factorisation », PMF) à ceux en nécessitant le plus grand nombre comme les profils de sources par exemple (« Chemical Mass Balance », CMB).

La figure ci-dessous représente le niveau de connaissance des sources ainsi que le nombre d'échantillons nécessaires à l'attribution des sources par les différents types de modèles existants. Alors que l'application du CMB nécessite une bonne

connaissance des sources et se suffit d'un seul échantillon (notons néanmoins que dans le cas d'un seul échantillon, l'exploitation statistique des données est difficile et peu pertinente), l'application des modèles « multivariables », se passant d'une caractérisation des sources, requiert un grand nombre d'échantillons.

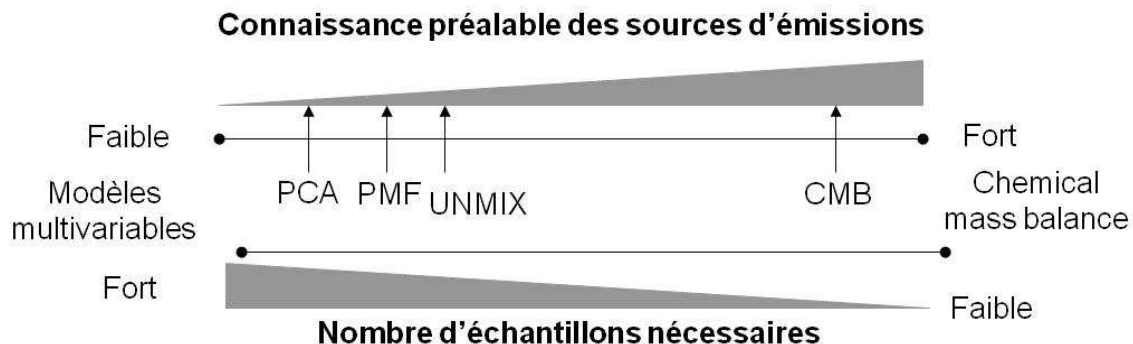


Figure 1 : Différentes approches pour l'estimation des contributions des sources, d'après Viana et al. 2008

3.3.1 L'APPROCHE CMB

La détermination quantitative des sources en site récepteur par CMB (« Chemical Mass Balance ») repose sur une approche statistique résolvant de manière itérative des équations de bilan de matière (1). L'application à la matière organique particulaire a été proposée par Schauer et al. (1996). Depuis, elle est utilisée fréquemment de part le monde et constitue une méthode de référence pour l'US EPA. Bien qu'elle nécessite des techniques analytiques avancées, cette méthodologie est relativement aisée à mettre en œuvre puisqu'elle ne requiert en entrée ni cadastre d'émissions, ni données météorologiques. L'approche consiste à décrire la concentration des constituants d'un échantillon ambiant donné comme une combinaison linéaire des compositions chimiques relatives des sources. La concentration d'un constituant i mesuré sur le site k , C_{ik} , s'écrivant alors :

$$C_{ik} = \sum_{j=1}^m f_{ijk} \cdot a_{ij} \cdot s_{jk} \quad (1) \text{ (Schauer et al., 1996)}$$

où

- s_{jk} est la concentration observée sur le site k et originaire de la source j (s_{jk}/OC représente alors la contribution relative de la source j à l'OC mesurée sur le site k),
- a_{ij} est la concentration relative du composé i dans les émissions de la source j ,
- f_{ijk} est le coefficient de fractionnement qui caractérise les modifications de a_{ij} au cours du transport de la source j vers le site k . Le coefficient de fractionnement prend en compte l'appauvrissement du constituant i engendré par des processus tels les transformations chimiques ou l'équilibre gaz/particules. Il peut également être utilisé pour expliciter l'enrichissement en constituant i dû à des processus de formation ou de condensation. En pratique les f_{ijk} ne sont pas connus. Le système d'équations (1) doit alors être résolu à l'aide de composés très faiblement réactifs et purement en phase particulaire pour lesquels f_{ijk} égal 1.

Ainsi, il est possible de déterminer les contributions des sources primaires (S_{jk}) connaissant les concentrations (C_{ik}) mesurées sur le terrain et les profils à l'émission (a_{ij}) déterminées à partir d'études spécifiques sur les sources.

La validité statistique de cette résolution repose sur les hypothèses que (1) les profils à l'émissions des sources sont connus et constants avec le temps, (2) les espèces chimiques utilisés sont inertes chimiquement, (3) toutes les sources significatives sont incluses, (4) le nombre de sources ne dépasse pas le nombre d'espèces chimiques, (5) les facteurs d'émissions sont linéairement indépendants d'une source à l'autre et (6) les incertitudes de mesure sont aléatoires, non corrélées et distribuées normalement.

Conceptuellement cette approche repose sur la conservation des ratios marqueurs/OC_j entre le site d'émission et le site récepteur, et donc par extension, sur la conservation du carbone. Ainsi l'AOS (Aérosol Organique Secondaire) qui correspond à un apport de carbone, par transfert de matière par conversion gaz/particules suite à des réactions de photo-oxydation en phase gazeuse de composés organiques volatils, ne pourra être déconvolué par le CMB. L'AOS correspondra alors à la fraction de l'OC non attribuée aux sources primaires. Cela suppose donc que l'ensemble, ou du moins les sources primaires majeures de carbone, soient incluses dans la modélisation. Ce principe de conservation du carbone offre également un avantage majeur. Il permet de s'affranchir des mécanismes de vieillissement de l'aérosol organique ; à condition que le nombre de carbone demeure constant, quel que soit l'état d'oxydation des composés constitutifs de la fraction organique.

3.3.2 LES APPROCHES « MULTIVARIABLES »

« Principal Component Analysis », PCA ou « Positive Matrix Factorisation », PMF, Unmix...Ce type de méthode, permettant la répartition des sources uniquement sur la base des mesures réalisées sur le site récepteur à partir d'outils mathématiques et de logiciel simples et facilement accessibles, est largement utilisé : l'approche Principal Component Analysis, PCA ou Absolute Principale Component Analysis, APCA, par Bruno et al. 2006 pour l'identification des sources de PM₁₀ et PM_{2.5} en Italie, l'approche PMF par Kim et al. 2007; Shrivastava et al. 2007; Karanasiou et al. 2009, l'approche Unmix par Kim et al. 2003...

Il se base sur l'écriture de la conservation de la masse donnée ci-dessus sous forme matricielle :

$$X = FA + E$$

X (n-p) : Matrice des concentrations en composés mesurés

F(n-m) : Matrice des contribution des m sources

A(m-p) : Matrice des profils de source

E : matrice résiduelle prenant en compte les erreurs et les incertitudes

L'approche PCA est basée sur la transformation d'un nombre importants de variables corrélées, en un nombre réduit de variables non corrélées appelées composantes principales.

En d'autres termes, un nouveau lot de variables est déterminé comme combinaison linéaire de variables mesurées de telle sorte que les variations observées dans le système soient considérées par un nombre de données le plus faible possible. Cette approche ne permet cependant pas une attribution quantitative des sources (Hopke et al. 2006) contrairement à Absolute Principle

Component Analysis, APCA. Les deux peuvent présenter des résultats aberrant, estimant une contribution négative pour certaines sources.

Pour palier ces inconvénients, des approches telles PMF (Karanasiou et al. 2009) et UNMIX (Hu et al. 2006), basées sur la contrainte des solutions de la matrice par un certain nombre de paramètres ont été mises au point.

L'utilisation de l'approche « multivariées » PMF est enrichie en l'appliquant à des analyses par Aerosol Mass Spectrometry, (AMS). Cette technique est basée sur l'analyse en temps réel de la composition chimique de chaque particule d'une population, et la classification de ces particules en cluster en fonction de leurs propriétés chimiques.

En plus des concentrations en NO_3^- , NH_4^+ , SO_4^{2-} , Cl^- , ainsi que celle des composés organiques considérés dans leur globalité, l'AMS permet depuis peu, grâce à la mise au point d'un nouvel algorithme de déconvolution spectrale (Zhang et al. 2005) de séparer la matière organique « oxygénée » notée OOA et représentant la fraction oxydée (AOS et vieillissement de la fraction primaire), de la matière organique type « hydrocarbure » notée HOA et assimilée à la fraction primaire non transformée de l'aérosol (Zhang et al. 2005). Ce « découpage » de la matière organique peut être affiné par l'emploi de facteurs décrivant une matière organique oxygénée peu volatile (OOA1) et semi-volatile (OOA2), s'appliquant à la matière organique provenant de la combustion de la biomasse (BBOA : Biomass Burning Organic Carbon) voire de nouveaux facteurs à déterminer... La mise en œuvre sur le terrain de cet outil permet une estimation de la fraction secondaire des espèces organiques et d'apporter des informations pour mieux contraindre et évaluer ainsi son importance relative vis-à-vis de la fraction issue de sources primaires. Cependant, l'assimilation de l'ensemble de la matière organique oxygénée à de l'aérosol secondaire peut entraîner une sous-estimation des la matière organique primaire.

Par ailleurs, cette approche PMF a été couplée à des mesures de métaux afin d'identifier les sources de Pm en milieu industriel (Alleman et al. 2010).

3.3.3 LES APPROCHES COMBINÉES

Afin de palier les désavantages des méthodes de conservation de la masse d'une part et multivariées d'autre part, et de combiner les aspects positifs de chacun, des modèles hybrides ont été développés. Park et al. 2005 ont ainsi couplé les approches PCA et CMB pour attribuer les sources de PM en zone urbaine, Yatkin et al. 2008 CMB et PMF en Turquie, Shi et al. 2009 les approches CMB, PMF et PCA...

3.3.4 LES RAPPORTS CARACTERISTIQUES

La méthode basée sur l'analyse des rapports caractéristiques, consistant à représenter l'un en fonction de l'autre deux rapports ne permet pas seul d'attribuer les sources mais constitue un outil efficace pour contraindre les modèles tels les modèles CMB. Le rapport levoglucosan/OC peut ainsi être utilisé pour évaluer les attributions des sources de combustion de la biomasse (Robinson et al. 2006), HAP/EC pour évaluer les sources de la circulation automobile (Robinson et al. 2006), acide palmitique/acide oléique pour les émissions liées à la cuisson d'aliments Robinson et al. 2006. Turpin et al. 1995 ont également proposé une méthode basée sur les rapports EC et OC et sur la soustraction au carbone organique total du carbone élémentaire corrigé d'un rapport EC/OC qui serait caractéristique d'émissions primaires.

3.3.5 ISOTOPES DU CARBONE

La mesure des isotopes du carbone permet la détermination des sources du l'aérosol carboné dans la mesure où elle différencie le carbone fossile du carbone moderne. En effet, naturellement formé dans l'atmosphère par irradiation du ^{14}N , le carbone ^{14}C est oxydé en CO_2 et intègre ainsi le cycle de la photosynthèse. Chaque être vivant est de fait intrinsèquement marqué par un rapport $^{14}\text{C}/^{12}\text{C}$ caractéristique. Une matière carbonée présentant un rapport $^{14}\text{C}/^{12}\text{C}$ actuel est qualifiée de moderne par opposition à une matière carbonée dérivée de composés fossiles dans laquelle la part de ^{14}C est nulle (Bench et al. 2004).

Ainsi, cette technique a permis à Szidat et al. 2004 de déterminer les contributions biotiques et anthropiques du carbone organique à l'aérosol urbain à Zurich, en supposant la combustion de la biomasse négligeable et d'estimer cette dernière en période hivernale, à Zurich (Szidat et al. 2006).

La mesure du ratio $^{14}\text{C}/^{12}\text{C}$ seule ne permet en effet pas de différencier les sources anthropiques des biotiques (Gelencser; A. et al. 2007), le carbone dit moderne correspondant à la combinaison d'émissions naturelles, de combustion de la biomasse ainsi que de sources anthropiques comme la cuisine par exemple. Cependant, l'association de cette technique à d'autres types de mesures et/ou de méthodes statistiques « modèle-récepteur » permet de mieux contraindre les études de sources de PM.

Notons que l'étude d'isotopes d'autres éléments peut également permettre d'identifier les sources de PM. C'est ainsi que l'étude des isotopes du plomb et de l'azote a permis de quantifier la contribution des sources de PM_{2.5} à Paris (Widory 2006; Widory 2007).

3.3.6 MESURES D'ABSORPTION

La mesure d'absorption de la lumière par les aérosols peut être une méthode d'identification de sources. Ainsi, une méthode simple basée sur des mesures d'absorption à l'aide d'un aethalomètre à deux longueurs d'ondes (370 et 880 nm) a permis à Sandradewi et al. 2008 d'attribuer les sources trafic et de combustion de la biomasse dans une vallée alpine, en corrélant des différences d'absorption fonction de l'origine de la matière organique (trafic ou combustion du bois) et des mesures de NO_x et CO.

3.3.7 COMBINAISON DE DIFFERENTES METHODES DE MESURES ET STATISTIQUES

Les mesures isotopiques du carbone peuvent être associées à des mesures de traceurs de sources spécifiques tels le levoglucosan pour la combustion de la biomasse ou la cellulose pour le carbone organique primaire d'origine végétale. Ainsi, par un traitement des analyses de $^{14}\text{C}/^{12}\text{C}$, de levoglucosan et EC/OC par la méthode statistique, type Monte Carlo, Latin-hypercube sampling, LHS, Szidat et al. 2009 ont différencié les parts attribuables à la combustion de la biomasse et celles attribuables au trafic. Le même traitement statistique des mesures du ratio $^{14}\text{C}/^{12}\text{C}$, EC/OC ainsi que des traceurs spécifiques de la combustion de la biomasse (levoglucosan) et de la matière végétale primaire (cellulose) a permis à Gelencser; A. et al. 2007 de différencier les sources primaires des secondaires, biotiques des anthropiques, fossiles des biotiques dans le cadre du programme CARBOSOL en Europe.

Des analyses de ^{14}C combinées à des analyses de traceurs organiques ont été exploitées par CMB. Zheng et al. 2006 ont ainsi permis l'évaluation de l'impact de la source « combustion fossile » dans le sud-est des Etats-Unis.

La combinaison de mesures isotopiques à des techniques telles que l'AMS traitée par des modèles hybrides (Lanz et al. 2008) ainsi qu'à des mesures d'absorption par aethalomètre (Sandradewi et al. 2008) permettent d'approfondir et améliorer les études de sources de PM.

Ces méthodes commencent à être intégrées aux programmes d'étude et de recherche sur la pollution particulaire en France où la mesure des isotopes du carbone est réalisée par le « Laboratoire de mesure du carbone 14 » du CEA à Saclay (site internet <http://www-lmc14.cea.fr>). Les demandes d'analyse doivent se faire via la réponse à un appel d'offre INSU qui ne finance pas forcément la totalité des analyses demandées. Ces dernières sont longues et le délai de rendu des résultats peut prendre plusieurs mois. Il existe des laboratoires à l'étranger mais le coût d'une analyse est particulièrement élevé (de l'ordre de 1500 euros).

4. ETAT DES LIEUX DES ETUDES DE SOURCES EN FRANCE

En avril 2009, une journée a été organisée par l'ADEME afin de faire un premier tour d'horizon des études de sources menées sur le territoire.

Le tableau ci-dessous recense les principales études menées actuellement en France sur la spéciation chimique des PM et l'évaluation de leurs sources. La plus grande majorité est basée sur de la spéciation chimique, l'analyse de traceurs spécifiques nourrissant les modèles.

Tableau 1 : Résumé des différentes études portant sur la pollution particulaire en France

Etude	Objectif	Principe	Espèces mesurées / moyen métrologiques	Type de prélèvement	Partenaires
CARA	Documenter origine pics PM10 et situation de fond urbain Améliorer modélisation	Spéciation chimique / modélisation	Anions, cation, EC/OC	6 sites DA80 24h, PM10	INERIS, AASQA....
Particules en Ile de France	Estimation de la contribution des sources de PM en Ile de France	Basée sur données métrologiques-étude de sites de typologie différente	Anions, cation, EC/OC, OC soluble, métaux (ICP-MS)	6 sites, 2 filtres par jour HV 24h, PM10/PM2,5	AIRPARIF LSCE
Particul'Air	Caractérisation de la pollution particulaire en zone rurale/chauffage au bois	Spéciation chimique - CMB sur certaines campagnes	HAP, Dioxines, furanes, Métaux, Levoglucosan, EC/OC, granulométrie, et autres traceurs sur 50% de la BdD	9 sites 7 filtres par semaine PM10/PM2,5 TEOM/TEOM-FDMSD DA80 24h	Atmo Poitou-Charentes, AASQA, LGGE, LCME...
Chauffage au bois	Contribution de la source chauffage au bois aux concentrations en HAP et PM	Spéciation chimique/rapports caractéristiques	HAP et PM ₁₀ (mesure réglementaire), levoglucosan, methoxyphenol, EC/OC	4 sites, 1 prélèvement tous les 3 jours en hiver, tous les 6 en été, DA80, 24h	INERIS, LCME, LGGE, AASQA...
FORMES	Intercomparaison des méthodes d'estimations des sources dans des environnements urbains contrastés (Marseille, Grenoble).	Spéciation chimique / méthode statistique modèle - récepteur	traceurs organiques (hopanes, stéranes, levoglucosan...) - 14C, Métaux, sources primaires propriétés physiques - sources secondaires	2 campagnes intensives, hivernale et estivale, de 15 j, DA80 12h AMS...	LCP-IRA, LGGE, LCME, LaMP, IRCELyon....
Projet Européen MEGAPOLI	Evaluer impact mégacités sur qualité de l'air, chimie atmosphérique, climat... échelle locale, régionale, globale...	Spéciation chimique /modélisation/méthode statistique modèle - récepteur	COVs, particules,...	2 campagnes intensives d'un mois, hivernale et estivale, DA80, SMPS, AMS, PTRMS, PILS-IC, PILS-TOC, mesures aéroportées....	LISA, LSCE, LGGE, LCP-IRA, LCME...

Etude	Objectif	Principe	Espèces mesurées / moyen métrologiques	Type de prélèvement	Partenaires
Etude Vallée du Peillon	Origine industrielle des dépassements des VL (remontées air marin, écobuage, cimenterie, trafic routier)?	Spéciation chimique / méthode statistique modèle - récepteur	HAP, lévoglucosan, EC/OC, anions, cations, traceurs organiques, métaux	4 sites (2 cimenteries, site rural, site trafic), 1 campagne été, 1 hiver	ATMO PACA, LGGE, LCP-IRA
Impact chaudières bois en Alsace	Impact de 10 chaufferies au bois sur la qualité de l'air	Mesures à l'émission air ambiant / modélisation	HAP, PM ₁₀	Digitel	ASPA
Particules sub-microniques	Documenter la situation française sur le thème de la pollution par les particules submicroniques, et tout particulièrement ultrafines	Distribution taille – nombre Exploitation statistique des données	Aérosols dans les gammes 10 – 500 nm et 0.5 – 20 µm	SPMS - AMS	AIRFOBEP, AIRPARIF,, ATMO PACA, ATMO RHONE-ALPES INERIS
CHARMEX	Réactivité chimique, formation d'AOS	Spéciation chimique /modélisation/méthode statistique modèle - récepteur	COVs, particules,...	DA80, SMPS, AMS, mesures aéropartées....	LISA, LSCE, LCP-IRA, INERIS...
CHIMERE-Urban	Identification des sources de PM en fonction de leur distribution granulométrique	Modélisation			INERIS
Autre					

Parmi toutes ces études, certaines sont de portée nationale, servant d'appui aux pouvoirs publics et d'outil d'aide à la décision, d'autres de portée régionale, s'appliquant à caractériser la pollution particulaire localement. Enfin, regroupant un grand nombre de laboratoires de recherche et de moyens humains et matériels, certaines se positionnent beaucoup plus en amont et ont pour vocation de comprendre les phénomènes, développer et mettre en œuvre des techniques nouvelles...

4.1 LES ETUDES DE CARACTERISATION DE LA POLLUTION PARTICULAIRE DE PORTEE NATIONALE

Compte tenu des enjeux à la fois sanitaires et règlementaires que représente la gestion de la pollution particulaire, un besoin fort est exprimé par les pouvoirs publics de se doter d'outils de compréhension des phénomènes et d'aide à la décision afin d'appliquer la Directive 2008/50/CE du Parlement européen et du Conseil, du 21 mai 2008 et de mettre en œuvre des plans de réduction des sources de PM en France. C'est pourquoi le dispositif CARA a été créé et que des campagnes de mesures sont menées sur le territoire pour suivre des traceurs spécifiques de certaines pollutions tel le chauffage au bois (étude « chauffage au bois ») et caractériser la pollution particulaire dans des zones spécifiques telles les zones rurales par exemple (étude Particul'Air).

4.1.1 CARA

Principe et objectifs : Afin d'anticiper d'éventuels épisodes de fort dépassement des valeurs limites en PM10 et d'apporter des éléments sur les niveaux moyens de concentrations mesurés, le LCSQA a mis en œuvre, depuis le début de l'année 2008, un dispositif de caractérisation chimique des PM, appelé **CARA**. Ce dispositif consiste à effectuer des prélèvements de particules sur quelques sites en France, en vue d'en réaliser une spéciation chimique. Un deuxième objectif de ce dispositif réside en l'amélioration du modèle CHIMERE en comparant les mesures aux sorties de modèles.

Valorisation : Les résultats des travaux menés dans le cadre de la mise en œuvre de ce dispositif ont déjà fait l'objet de trois rapports LCSQA⁴.

Conclusions : Les deux années de mise en œuvre du dispositif ont démontré son intérêt pour l'amélioration des connaissances des épisodes de dépassement d'un point de vue global, au niveau national et l'identification des limites et problèmes des modèles. Par ailleurs, la réalisation de cette spéciation chimique participe à la mise au point de méthodes de mesure de la composition chimique des PM_{2.5}, homogènes avec ce qu'il est prévu de mettre en place dans les zones rurales en France, dans le cadre de l'application de la directive européenne (Directive 2008/50/CE 2008).

⁴ Rapport 2008 Caractérisation chimique des particules (G Aymoz), disponible sur <http://www.lcsqa.org/thematique/metrologie/caracterisation-chimique-des-particules>

Rapport 2009, Caractérisation chimique des particules : Bilan des campagnes de janvier 2008 à janvier 2009 (G Aymoz, L Chiappini) disponible sur <http://www.lcsqa.org/thematique/metrologie/caracterisation-chimique-des-particules-bilan-des-campagnes-de-janvier-2008-ja>

Rapport 2009, Etude des épisodes de pollution 2008 – 2009 dans le cadre du dispositif CARA (B Bessagnet)

Etat d'avancement : Démarré en janvier 2008, le dispositif s'inscrit dans une logique de pérennisation en tant qu'outil de gestion des épisodes de pollution (compréhension des situations de dépassement / impact des réductions des sources).

4.1.2 PARTICUL'AIR

Principe et objectifs : L'objectif de cette étude réside en la caractérisation de la pollution particulaire en zone rurale avec un intérêt particulier pour l'apport du chauffage au bois. Elle s'étale ainsi sur l'ensemble du territoire, regroupant huit sites ruraux (voir Figure 2). Outre la spéciation chimique telle que décrite au Tableau 1, cette étude est basée, pour une meilleure évaluation des sources, sur la caractérisation des sites de prélèvement (Caractérisation des sources locales, activité industrielle, cadastres d'émissions, données Météo France...) et la réalisation d'enquêtes sur les pratiques locales (équipement des particuliers en appareil de chauffage au bois, nature du bois utilisé, pratiques communales, écobuage...). Certaines des données des campagnes de mesure réalisées devraient être exploitées par des modèles récepteurs et en particulier par Chemical Mass Balance tel que cela a été décrit au paragraphe 3.3.1.

Valorisation et état d'avancement : Les campagnes de mesures ont démarré en mars 2009 et devraient se poursuivre jusqu'au début de l'année 2010. Les premiers résultats sont en cours d'exploitation et le rapport est prévu pour fin 2010.

4.1.3 « CHAUFFAGE AU BOIS »

Principe et objectifs A la fin de l'année 2006, une étude concernant la présence et la validité du suivi d'un traceur spécifique de la source « combustion du bois », capable de donner des informations sur la contribution de cette source aux concentrations ambiantes d'autres polluants plus classiques, comme les HAP par exemple a été demandé par le Ministère de l'environnement à l'INERIS. Cette étude avait pour but d'obtenir des informations concernant les niveaux de concentrations ambiantes de ces composés et de proposer par la suite une surveillance à long terme afin d'évaluer l'effet de la mise en place des programmes du type bois énergie, voire les effets de la mise en place des systèmes de réduction des émissions liées à l'utilisation du chauffage au bois en France.

Des mesures des traceurs spécifiques du chauffage au bois (levoglucosan et méthoxyphénols) ont été réalisées durant l'hiver 2006/2007 dans quatre grandes agglomérations françaises (Paris, Lille, Strasbourg et Grenoble) en collaboration avec les quatre AASQA respectives (AIRPARIF, ATMO Nord Pas de Calais, ASPA et ATMO Rhône-Alpes GIE/ASCOPARG). Grenoble poursuit les mesures et Toulouse a joint le dispositif entre juin et septembre 2008.

Valorisation : Ces travaux ont fait l'objet d'un rapport LCSQA⁵, de deux publications dans la revue française Pollution Atmosphérique (Leoz-Garzandia et al. 2009; Pissot et al. 2009) et d'une présentation à la conférence internationale IGAC (Pissot et al. 2008).

⁵ Rapport 2007, Surveillance des Hydrocarbures Aromatiques Polycycliques (E Leoz-Garzandia), disponible sur <http://www.lcsqa.org/thematique/metrologie/surveillance-des-hap-2>

Conclusions : Les premières campagnes de mesure basées sur le suivi de traceurs organiques de combustion, ont permis d'estimer l'impact de la combustion du bois sur la qualité de l'air ambiant des villes de Grenoble, Gennevilliers, Lille et Gelspolsheim pendant l'hiver 2006/2007. Le suivi des concentrations en lévoglucosan et des paramètres globaux des aérosols (OC, EC, PM10) ont montré des contributions de cette source différentes suivant les villes. Par ailleurs, si un lien peut être fait entre les concentrations moyennes en HAP particulaires et les concentrations en lévoglucosan, il semble nécessaire de poursuivre des études parallèles de ces composés afin d'évaluer la part de la combustion du bois sur la concentration ambiante de cette famille de polluant.

Etat d'avancement : Compte tenu des objectifs de l'étude consistant à suivre l'évolution des traceurs du chauffage au bois sur le long terme afin d'évaluer l'impact de politique de réduction de sources, elle a vocation à être pérenne. Elle est ainsi proposée aux programmes de la fiche CARA du LCSQA 2010.

4.1.4 PARTICULES SUBMICRONIQUES

Principe et objectifs Depuis 2003, le LCSQA réalise des travaux prospectifs sur le thème des particules submicroniques. Cette action répond à la demande de différents acteurs (OMS, programme CAFE, toxicologues, etc.), pour lesquels le suivi des PM₁₀ et PM_{2,5} nécessite d'être complété par une démarche spécifique pour les particules dont la taille est inférieure au micron, celles dont l'impact sur la santé est le plus important. L'approche proposée est basée sur l'étude de la variabilité des concentrations de ces particules fines et ultrafines dans le temps et dans l'espace en réalisant systématiquement, chaque année, une campagne de mesure de la granulométrie des PM par SMPS (10 – 500 nm) et APS (0.5 – 2 µm) sur un même site (site urbain d'AIRPARIF à Gennevilliers) à la même période. Cinq campagnes hivernales, de 2003 à 2007, ainsi qu'une estivale en 2005, ont été réalisées. Une exploitation statistique de ces données a été réalisée afin de déterminer les facteurs influençant les concentrations en particules ultrafines. Des sites de typologies différentes tels des sites résidentiels sous influence industrielle ont également été étudiés (station « la Mède » AIRFOBEP).

Valorisation : Ce travail permet en premier lieu de constituer une base de données sur les niveaux en particules fines et ultrafines. Ces travaux ont par ailleurs fait l'objet de quatre rapports LCSQA⁶ ainsi que de communications dans des congrès français et européens (Le Bihan et al. 2004; Le Bihan et al. 2006; Malherbe et al. 2009).

⁶ Rapport 2004 : Surveillance des particules ultrafines submicroniques (O Le Bihan) disponible sur <http://www.lcsqa.org/thematique/metrologie/surveillance-des-particules-ultrafines-submicroniques>

Rapport 2005 : Surveillance des particules ultrafines submicroniques (O Le Bihan, F Mathé) disponible sur <http://www.lcsqa.org/thematique/metrologie/surveillance-des-particules-submicroniques>

Rapport 2006 : Connaissance de la pollution par les particules submicroniques (O Le Bihan, F Mathé) disponible sur <http://www.lcsqa.org/thematique/metrologie/connaissance-de-la-pollution-par-les-particules-submicroniques>

Rapport 2008 : Connaissance de la pollution par les particules submicroniques (O Le Bihan, L Malherbe, disponible sur <http://www.lcsqa.org/thematique/metrologie/connaissance-de-la-pollution-par-les-particules-submicroniques-3>.

Conclusions : Des résultats différents ont été observés selon les typologies de sites. Alors que la station située en zone résidentielle sous influence industrielle est soumise à des caractéristiques d'exposition extrêmement variables d'un point de vue de l'évolution temporelle des concentrations que de l'origine géographique des particules, la station urbaine de Gennevilliers se caractérise par des profils de concentration relativement répétables d'une campagne de mesure à une autre. Par ailleurs, l'analyse statistique des données recueillies depuis 2003 sur le site urbain de Gennevilliers a mis en lumière l'influence du chauffage urbain, du trafic, et des conditions météorologiques sur les niveaux de particules ultrafines.

Etat d'avancement : Cette étude est pérenne et se poursuivra dans le cadre des travaux 2010 du LCSQA.

4.2 LES ETUDES DE CARACTERISATION DE LA POLLUTION PARTICULAIRE DE PORTEE REGIONALE

Parallèlement à ces études destinées à caractériser la pollution particulaire d'un point de vue global, de nombreuses études sont en cours pour caractériser les particules localement, au niveau régional, et estimer par exemple l'apport des activités locales (industrie, trafic...).

4.2.1 PARTICULES EN ILE DE FRANCE

Principe et objectifs : Menée en collaboration entre AIRPARIF et le Laboratoire des Sciences du Climat et de l'Environnement (LSCE), cette étude a pour objectif l'estimation de la contribution des différentes sources de particules, aux niveaux mesurés dans la région Ile de France, afin d'améliorer la connaissance des sources sur lesquelles il est possible d'agir. Elle est basée sur la méthode Lenschow décrite au paragraphe - et qui suppose que les niveaux mesurés sur le site trafic résultent de la combinaison des contributions des différents environnements, niveau régional urbain et contribution trafic. Ainsi, cinq sites de mesure ont été choisis afin de déterminer les contributions de l'import, de la production locale au niveau urbain et périurbain, du trafic local. Une spéciation chimique des PM_{2.5} et/ou PM₁₀ sera réalisée quotidiennement, par des prélèvements de 24 heures pendant un an.

Valorisation : Cette étude devrait permettre, outre l'estimation des contributions des différentes sources aux concentrations en PM en Ile de France, de constituer une base de données de la composition chimique des particules sur des sites de typologie différente sur toute une année.

Etat d'avancement : Cette étude a débuté en septembre 2009 et devrait durer un an.

4.2.2 VALLEE DU PEILLON

Principe et objectifs : Réalisée en partenariat entre ATMO PACA, le LGGE et le LCP, cette étude a pour but d'identifier les sources de dépassement de seuils en PM dans la vallée du Peillon, située au nord de l'arrière pays niçois et caractérisée par une forte propension à l'accumulation de polluants atmosphériques (régime de brises de vallée, inversions thermiques, présence de carrières, cimenterie, incinérateur d'ordures ménagères, trafic routier,...). La spéciation chimique des

PM est réalisée sur des sites de typologie différente : dans la vallée même, sous influence du trafic routier, à proximité des cimenteries, en milieu rural.

Les résultats des analyses des traceurs et espèces chimiques sont exploités par Chemical Mass Balance tel que cela a été décrit au paragraphe 3.3.1.

Conclusions : La spéciation chimique des particules sur les différentes stations a permis de tirer les premières conclusions quant à la détermination de l'origine des PM et la contribution des différentes sources d'émission en particules dans les vallées. Ces premiers résultats montrent que les dépassements de la valeur limite en PM₁₀ résultent probablement de la conjonction de différentes sources d'émission (routière, urbaine, industrielle, brûlage de déchets) et de conditions météorologiques peu dispersives entraînent une accumulation des niveaux de particules. Des phénomènes plus sporadiques, tels que les brûlages de déchets verts, s'ajoutent également certaines journées aux émissions anthropiques de la vallée.

D'autres traceurs (alcanes, hopanes, stéranes, vanadium,...) font actuellement l'objet d'analyse au LCP pour chacune des deux campagnes. Les analyses CMB sont en cours. Les résultats permettront d'affiner la contribution des différentes sources d'émission en particules sur les vallées de Contes et Peillon.

Valorisation et état d'avancement : La campagne hivernale a été menée de novembre 2008 à janvier 2009, l'estivale de mai à septembre 2009. Le rapport final est prévu pour le printemps 2010.

4.2.3 IMPACT CHAUFFERIES BOIS EN ALSACE

Principe et objectifs : L'objectif de cette étude est d'évaluer l'impact de différents types de chaufferies au bois en Alsace. Elle est basée sur des mesures de PM et de HAP à la fois à l'émission et en air ambiant.

Etat d'avancement : Cette étude est en cours et aucun résultat n'est pour l'instant disponible.

4.3 LES PROJETS DE RECHERCHE NATIONAUX ET EUROPEENS

En amont de ces projets nationaux et régionaux, des programmes de recherche sont élaborés afin d'améliorer les connaissances sur la formation, l'évolution, la composition chimique des aérosols, la réactivité au sein des particules, leur implication sur la chimie de l'atmosphère, le climat d'un point de vue local et global, la santé. Ces programmes permettent le développement et la valorisation de nouvelles techniques de mesures, l'amélioration de modèles, la mise au point de méthodologie d'étude des particules en général, des attributions des sources en particulier.

4.3.1 FORMES

Principe et objectifs : Le projet FORMES (Fraction Organique de l'aérosol urbain : Méthodologie d'Estimation des Sources) s'inscrit dans les projets financés par PRIMEQUAL 2 dans le cadre de son appel à projets sur le thème « Pollution de proximité : entre traceurs et indicateurs ». Co-coordonné par J.L. Jaffrezo du

LGGE et N. Marchand du LCP-IRA, les objectifs de ce programme sont de déterminer de manière quantitative les contributions relatives des différentes sources primaires de l'aérosol organique par une approche de type modèle récepteur (CMB – paragraphe 3.3.1), d'évaluer les contributions des sources secondaires en confrontant plusieurs approches basées sur la caractérisation physico-chimique des particules par mesures AMS telles que décrites au paragraphe 3.3.2 et 3.3.7. Deux campagnes de mesure intensives ont été menées sur des sites de typologie très différente : à Marseille en période estivale, à Grenoble en période hivernale. L'analyse des traceurs organiques exploitée par les modèles de spéciation des sources primaires (CMB) est complétée par des analyses isotopiques de ^{14}C décrites au paragraphe 3.3.5 et l'utilisation de modèles-récepteur « multivariés » décrits au paragraphe 3.3.2.

Valorisation : En appliquant pour la première fois en France l'approche CMB, en comparant un grand nombre de méthodes d'attribution de sources existantes (CMB, PMF, UNMIX...) et en travaillant sur la réactivité des traceurs et les profils de source, l'ensemble de ce programme a apporté une meilleure connaissance des sources et des processus d'une part et proposé une méthodologie d'étude des principales sources primaires des PM. L'approche employée pour l'attribution des sources primaires impliquant l'analyse d'un grand nombre de traceurs chimiques, est maintenant adoptée par de nombreux autres programmes (CARA, lors de certains épisodes – paragraphe 4.1.1, Particul'AIR – paragraphe 4.1.2, Vallée du Peillon – paragraphe 4.2.2). La campagne de mesure d'hiver a fait l'objet d'une publication en cours de révision, Favez et al. 2009, sur la comparaison des différentes méthodes d'attribution de source étudiées dans le cadre du programme pour l'identification de l'aérosol provenant de la combustion de la biomasse : la méthode CMB (3.3.1), l'application du PMF aux données AMS (3.3.2), les mesures d'absorption de la lumière par aethalomètre (3.3.6). Les travaux sur les profils de la source trafic ont également fait l'objet d'une publication (El Haddad et al. 2009)

Etat d'avancement : La mise en œuvre du programme est terminée et le rapport est prévu pour Mars 2010.

4.3.2 MEGAPOLI

Principe et objectifs : Le projet européen MEGAPOLI, "Megacities: Emissions, urban, regional and Global Atmospheric POLLution and climate effects, and Integrated tools for assessment and mitigation", a pour objectif d'apporter une description globale, qualitative et quantitative, de l'impact présent et futur des mégacités (métropoles de plus de 5 millions d'habitants) sur la qualité de l'air, la chimie atmosphérique et le climat, aux échelles locale, régionale et globale. Ce programme, piloté par le DMI (Danemark), rassemble 23 partenaires de 11 pays européens, originaires des différents domaines concernés par le sujet : laboratoires de recherche en chimie atmosphérique, météorologie, climat et organisations de surveillance et de contrôle de la qualité de l'air. Les moyens mis en œuvre vont de la mesure à l'élaboration de modèles numériques.

L'étude de la pollution atmosphérique particulaire en Ile de France - choisie du fait de la densité élevée de sa population, de sa charge en polluants relativement importante et de sa situation géographique représentative des latitudes tempérées - constitue un temps fort du projet qui se traduit notamment par l'organisation de deux campagnes de mesure d'envergure, en juillet 2009 et durant l'hiver 2009/2010. L'accent est mis sur les aérosols carbonés, primaires et secondaires, dont les sources, les processus d'évolution et les impacts sont encore mal connus et quantifiés. La campagne de juillet 2009 a ainsi vu la mise en œuvre d'un vaste éventail instrumental sur différentes plateformes cernant l'agglomération parisienne et regroupant :

Des mesures à partir de deux sites fixes, l'un urbain, l'autre périurbain afin d'étudier les variabilités spatiale et temporelle des polluants dans l'agglomération, des observations mobiles au sol, des observations aéroportées, l'utilisation d'un réseau de mesures par télédétection active (notamment lidars) et passive (par spectrométrie) pour la détermination de la distribution verticale de certains polluants au-dessus de la région, des observations aéroportées, avec une dizaine de vols de l'avion français ATR-42, pour l'évaluation de la dynamique de la formation des aérosols organiques secondaires dans le panache de l'agglomération et des observations à partir d'un ballon captif, afin d'étudier l'homogénéité verticale de la pollution.

Valorisation : Ce projet a déjà fait l'objet d'un grand nombre de publications Baklanov et al. 2008; Baklanov et al. 2009; Beekmann et al. 2009... et de présentations (Lawrence M. et al. 2008; Baklanov et al. 2009; Finardi S. 2009; Lawrence M. 2009)

Etat d'avancement : La première campagne du projet a eu lieu au mois de juillet 2009, la seconde est prévue pour janvier 2010.

4.3.3 CHARMEX

Principe et objectifs Le programme proposé dans le cadre du projet CHARMEX, the Chemistry-Aerosol MEditerranean Experiment s'intéresse à la réactivité dans le bassin méditerranéen et l'un des ses groupes de travail auquel l'INERIS participe, à la formation d'aérosols organiques secondaires (AOS) plus particulièrement.

Le bassin méditerranéen suscite l'intérêt des chimistes de l'atmosphère en raison de sa situation géographique particulière, à la frontière entre trois continents, et des contributions diverse qu'elle implique. Il est en effet sous l'influence de nombreuses grandes villes telles Le Caire, Athènes, Barcelone, Marseille ou Milan et les polluants ainsi émis depuis ces zones urbaines, sont soumis à une forte réactivité photochimique menant à la formation entre autre d'AOS. Ces composés, jouant un rôle prépondérant sur le climat et la santé, sont parmi les espèces atmosphériques dont les modes de formation, la composition chimique et l'évolution sont les moins bien compris (Hallquist et al. 2009). Ces AOS y sont en interaction avec des particules de types différents, des aérosols carbonés et inorganiques provenant de phénomènes de combustion, des aérosols désertiques et marins.... Le bassin méditerranéen semble donc être une région adaptée à l'étude de la formation d'AOS et des interactions gaz-particules. Les aérosols

inorganiques, d'origine désertique ou marine, offrent en effet une surface de réaction aux espèces gazeuses présentes. De plus, les contributions d'origine anthropique et biotique comme l'isoprène par exemple, COV biotique largement émis et précurseur d'AOS reconnu, en font un lieu de choix pour l'étude des différents précurseurs. Comme MEGAPOLI, le projet CHARMEX regroupe un grand nombre de laboratoires et met en commun d'importants moyens matériels (mesures au sol, aéroportées, maritimes...) et humains.

Etat d'avancement : la proposition de projet est en cours d'élaboration et les demandes de financement engagées. La première campagne intensive devrait avoir lieu en 2011.

4.4 CONCLUSIONS ET PERSPECTIVES

La figure ci-dessous représente la répartition sur l'ensemble du territoire de l'ensemble des sites de mesure intégrés dans les études citées précédemment.



Figure 2 : Etat des lieux de la répartition des sites d'étude de la pollution particulaire en France en octobre 2009.

Il est ainsi possible de remarquer qu'en France, au même moment, une trentaine de sites est instrumentée pour la caractérisation des particules et que simultanément sont organisés des campagnes à l'échelle régionale et à l'échelle nationale.

Qu'elles soient un outil des pouvoirs publics, aient pour objectif la caractérisation d'une pollution locale ou la compréhension des phénomènes, toutes participent à la connaissance de la pollution particulaire en France et sont ou seront à l'origine d'une masse importante de données. Lors du séminaire LCSQA sur la caractérisation chimique des particules du 20 novembre 2009, il a clairement été mis en exergue par l'ensemble des participants le besoin de cohérence nationale pour la mise en œuvre tels projets afin que les méthodes de mesures soient harmonisées pour une meilleure exploitation des données et que les différents projets soient coordonnés pour apporter les réponses adaptées à la problématique nationale posée par la pollution particulaire : réduction des sources, estimation de l'exposition, application de la Directive...

5. APPLICATION DE LA METHODE « CMB » AUX DONNEES CARA 2009

5.1 L'EPISODE DE JANVIER 2009

Le mois de janvier 2009 a été marqué par des épisodes de fortes concentrations en PM₁₀ sur l'ensemble du territoire ainsi que le montre la figure ci-dessous

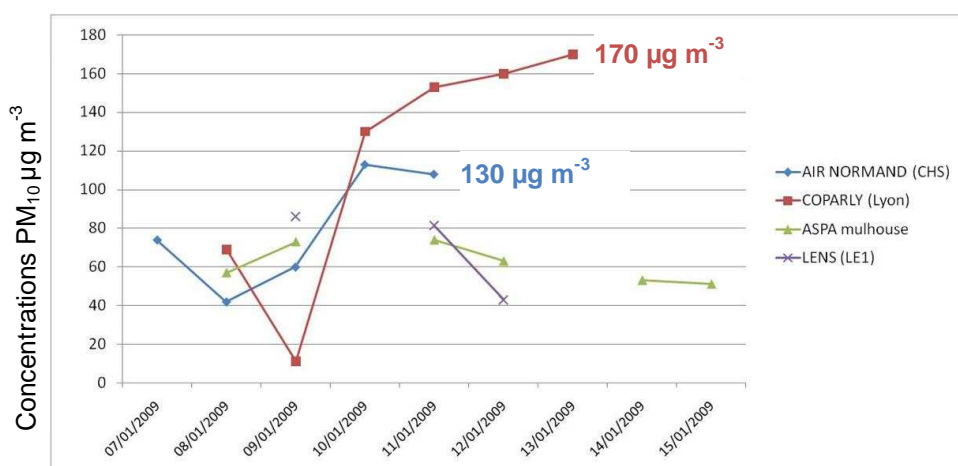


Figure 3 : Concentrations en PM₁₀ mesurées sur quatre sites du 7 au 15 janvier 2009

Compte tenu du caractère exceptionnel de ces épisodes, il a été décidé d'élargir les champs d'investigation du dispositif CARA en réalisant une analyse plus détaillée de la composition chimique de ces 13 échantillons et en exploitant les résultats de ces analyses par des modèles-récepteur CMB.

La méthode «CMB» telle qu'utilisée dans FORMES et décrite au paragraphe 4.3.1 a été appliquée par les laboratoires LGGE et LCP-IRA, aux analyses de filtres prélevés dans deux AASQA, COPARLY et AIR NORMAND, au cours de ce mois de janvier

Deux séries d'échantillons ont été prélevées durant les épisodes de fortes concentrations observés début janvier 2009, 6 à Lyon du 8 au 13 janvier, et 7 à Rouen du 7 au 11 janvier 2009. Les niveaux de PM_{10} y avaient en effet atteint des valeurs de 170 et 130 $\mu g m^{-3}$ respectivement.

5.2 ESPECES CHIMIQUES ANALYSEES ET CHOIX DES PROFILS DE SOURCE

Sur l'ensemble des 13 filtres collectés, les analyses suivantes ont été réalisées :

- carbone organique, OC et carbone élémentaire, EC (Méthodologie EUSAAR-2).
- traceurs de sources véhiculaires, hopanes : 17 α (H)-Trisnorhopane, 17 α (H)-21 β (H)-Norhopane, 17 α (H)-21 β (H)-Hopane .
- traceurs de source de combustion, alcanes linéaires nombre de carbones impair : n-Heptacosane, n-Nonacosane, n-Hentriacontane.
- traceurs de sources de biogéniques primaires, alcanes linéaires nombre de carbones pair : n-Octacosane, n-Triacontane.
- traceurs de sources de la combustion de la biomasse : levoglucosan
- traceur de source de tout type de combustion : Benzo-e-pyrene.
- traceurs de sources naturelles (poussières minérales et sels marins), nitrate, ammonium, sulfates, anions et cations présents dans la fraction soluble des PM_{10} : NO_3^- , SO_4^{2-} , Cl^- , NH_4^+ , Na^+ , K^+ , Mg^{2+} et Ca^{2+} .

Les résultats d'analyse des traceurs organiques cités ci-dessus sont utilisés pour résoudre l'équation de conservation de la masse représentant la concentration de chaque traceur comme la combinaison linéaire des compositions chimiques des différentes sources, principe de base du CMB tel que décrit au paragraphe 3.3.1.

La résolution de ce système d'équation repose sur l'hypothèse que les facteurs d'émissions des sources sont constants dans le temps et bien évidemment, connus.

Il est ainsi nécessaire, pour attribuer les sources par CMB, de choisir les sources impliquées et leur facteur d'émission.

Dans le cas du traitement des épisodes de janvier 2009, les sources associées de leur facteur ont été choisies comme suit :

- **Émissions véhiculaires** : El Haddad et al. 2009
- **Débris végétaux** : Rogge et al. 1993.
- **Combustion de gaz naturel** : Rogge et al. 1993
- **Combustion de bois** : Fine et al. 2002

5.3 RESULTATS DES ANALYSES

5.3.1 EC, OC, LEVOGLUCOSAN, HOPANE ET B [A]P

Le Tableau 2 pour Rouen et le Tableau 3 pour Lyon présentent les concentrations en PM₁₀ et les résultats d'analyse de EC, OC, lévoglucosan, hopane et B(a)P. Les concentrations en PM₁₀ atteignent 113 µg m⁻³ à Rouen, et 170 µg m⁻³ à Lyon en fin d'épisode. Les concentrations de EC, mais particulièrement de OC, lévoglucosan et B[a]P sont extrêmement importantes quand les PM₁₀ sont maximales. Ainsi, les concentrations de lévoglucosan de 2,3 µg m⁻³ pour 26,6 µg m⁻³ de OC à Rouen, et de 4,2 µg/m³ pour 49 µg/m³ de OC à Lyon présentent des niveaux élevés, du même ordre de grandeurs de manière générale que les niveaux maximaux (~2.5 µg m⁻³) mesurés à Grenoble en période hivernale lors de l'étude quatre villes du LCSQA (Leoz-Garzandia et al. 2009).

Tableau 2 : Concentrations en PM10, EC, OC, lévoglucosan, hopane et B[a]P mesurées sur les échantillons provenant de Rouen

Rouen	PM ₁₀ (µg/m ³)	EC (µg/m ³)	OC (µg/m ³)	Levoglucosan (µg/m ³)	Hopane (ng/m ³)	BaP (ng/m ³)
7-janv.-09	74	6,0	20,1	1,3	1,20	5,36
8-janv.-09	42	1,7	8,2	0,7	0,43	1,09
9-janv.-09	60	3,6	14,1	1,3	0,33	1,49
10-janv.-09	113	5,8	28,3	2,7	1,00	3,97
11-janv.-09	108	4,5	26,6	2,3	0,36	2,64

Tableau 3 : Concentrations en PM10, EC, OC, lévoglucosan, hopane et B[a]P mesurées sur les échantillons provenant de Lyon

Lyon	PM ₁₀ (µg/m ³)	EC (µg/m ³)	OC (µg/m ³)	Levoglucosan (µg/m ³)	Hopane (ng/m ³)	BaP (ng/m ³)
08/01/2009	64	2,8	8,5	0,5	0,32	0,96
09/01/2009	111	6,9	23,3	2,5	0,45	3,00
10/01/2009	130	6,3	27,7	2,7	0,36	2,28
11/01/2009	153	6,2	33,1	3,5	0,53	3,97
12/01/2009	160	8,7	49,0	4,2	2,04	5,63
13/01/2009	170	7,5	37,7	3,3	1,04	6,10

Pour illustrer l'intensité du phénomène observé, les concentrations en PM, OC, EC, B[a]P et lévoglucosan mesurées lors des épisodes de janvier 2009 sont comparées aux concentrations mesurées à Grenoble en période hivernale lors des campagnes FORMES et 4 villes. Les concentrations en PM, BaP et lévoglucosan y étaient 3 à 4 fois plus importantes. En revanche, les rapports lévoglucosan/OC, sont semblables, de l'ordre de 9%, sur l'ensemble des études. Ces valeurs sont caractéristiques des émissions de combustion de la biomasse, des facteurs compris entre 5 et 12 ayant été déterminé par (Puxbaum et al. 2007).

Tableau 4 : Comparaison des concentrations en PM10, PM2.5, OC, EC, B[a]P et lévoglucosan mesurées en janvier 2009, au cours de la campagne hivernale du projet FORMES à Grenoble et de l'étude 4 villes, à Grenoble

	Concentrations moyennes mesurées						
	µg m-3				ng m-3		%
	PM10	PM2.5	OC	EC	BaP	Levoglucosan	Levoglucosan/OC
Lyon	113 [64 - 170]	nd	30 [9 - 49]	6 [3 - 9]	4 [1 - 6]	2783 [500 - 4200]	9
Rouen	79 [42 - 113]	nd	19 [8 - 28]	4 [2 - 6]	3 [1 - 5]	2100 700 - 2700]	11
Grenoble (FORMES)	33 [3 - 66]	30 [6 - 53]	9 [2 - 24]	2 [0.5 - 4]	1 [0 - 5]	~ 800	~ 9
Grenoble (4 villes)	35 [18 - 64]	nd	14 [5 - 28]	1 [0.2 - 4]		1049 [268 - 2469]	7

5.3.2 ANIONS ET CATIONS (NO₃⁻, SO₄²⁻, CL⁻, NH₄⁺, NA⁺, K⁺, MG²⁺ ET CA²⁺)

Le nitrate est présent en abondance lors de ces épisodes, de manière légèrement plus marquée à Rouen (environ 19% des PM₁₀) qu'à Lyon (entre 10 et 19% des PM₁₀). Le sulfate et l'ammonium sont également présents en quantité non négligeable sur les deux sites (entre 5 et 9 % des PM₁₀). Les sources inorganiques secondaires contribuent donc systématiquement entre 25 et 33% des PM₁₀ sur les épisodes considérés.

Tableau 5 : Concentrations en PM10, anions et cations mesurées sur les échantillons provenant de Rouen

Rouen	PM10	Cl-	NO3-	SO42-	Na+	NH4+	K+	Mg2+	Ca2+
07/01/2009	74	1,7	7,2	5,2	2,5	3,4	0,6	<dl	0,3
08/01/2009	42	1,2	6,9	3,7	2,6	3,0	0,4	<dl	0,1
09/01/2009	60	1,1	12,9	3,7	2,4	4,3	0,5	<dl	0,2
10/01/2009	113	1,3	21,8	7,9	2,5	7,3	1,1	0,1	0,4
11/01/2009	108	1,4	20,1	6,9	2,3	6,9	1,1	<dl	0,3

Tableau 6 : Concentrations en PM10, anions et cations mesurées sur les échantillons provenant de Lyon

Lyon	PM10	Cl-	NO3-	SO42-	Na+	NH4+	K+	Mg2+	Ca2+
08/01/2009	64	0,3	7,5	3,9	<dl	3,5	0,4	<dl	0,1
09/01/2009	111	1,0	18,4	7,0	<dl	6,9	1,1	0,1	0,6
10/01/2009	130	0,9	25,4	7,3	<dl	8,2	1,3	<dl	0,4
11/01/2009	153	1,1	28,8	9,7	<dl	10,1	1,4	0,1	0,3
12/01/2009	160	2,5	23,4	8,7	<dl	8,3	1,5	0,1	1,3
13/01/2009	170	1,3	22,0	14,8	<dl	10,1	1,3	0,1	0,9

5.4 ESTIMATION E LA CONTRIBUTION DE DIFFERENTES SOURCES

5.4.1 ESTIMATION DE LA CONTRIBUTION DE LA SOURCE MARINE ET DES POUSSIÈRES CRUSTALES

Plusieurs méthodes existent pour estimer ces contributions à partir des concentrations en chlore, sodium et calcium. Il est proposé ici d'appliquer les méthodes basées sur les données de composition chimique, selon le guide diffusé par le JRC en 2007⁷. Une description plus précise de ces méthodes (résumées dans le Tableau 5) est proposée dans le rapport LCSQA de 2008 consacré au dispositif CARA. Notons que la contribution de la source marine (notée Sels Marins) peut contenir des sels de salage des routes, et la source crustale (notée Poussières crustales) des poussières remises en suspension par le trafic automobile, notamment.

Tableau 7 : Méthode d'estimation des contributions moyennes des sources marine et crustale

Origine	Équation utilisée
Sels Marins	$2.54 \times [\text{Na}^+]$
Poussières crustales	$[\text{nssCa}^{2+}] \times 5.6$

Les résultats obtenus en utilisant ces méthodes sont présentés dans le Tableau 8. La contribution des poussières crustales est généralement de l'ordre du pourcent sur les deux sites, et atteint au maximum 7% le 12 janvier à Lyon. Enfin, le sel de mer représente environ 5% des PM₁₀ à Rouen, alors qu'il n'est pas détecté à Lyon. Il est donc probable que l'impact du sel de salage des routes soit négligeable à Lyon sur ces épisodes. Il est également possible de noter que les concentrations en ion chlorure à Lyon ne sont pas liées à la source marine, et pourraient donc être liées à des sources industrielles.

Il est important de rappeler, en ce qui concerne l'estimation des sources naturelles à partir de l'analyse des anions et cations, la difficulté d'analyser le sodium et le calcium à l'aide de prélèvements réalisés sur filtre Quartz, et de souligner la variabilité du facteur de conversion concentrations en Ca²⁺ - poussières crustales qui peuvent également être estimées en analysant certains métaux tels Si, AL et Ti dont les oxydes sont présents dans les sols (Malm et al. 1994).

⁷ Marelli, L. 2007. Contribution of natural sources to air pollution levels in the EU - a technical basis for the development of guidance for the Member States. JRC, Rapport EUR 22779 EN.

Tableau 8 : Estimation de la contribution des sels marins et des poussières crustales aux PM10 à Rouen et Lyon comparée aux données de l'étude CARA janvier 2008 - janvier 2009 et de Putaud et al. 2004

Rouen	PM ₁₀ µg m ⁻³	Sels Marins µg m ⁻³	% PM ₁₀	% PM ₁₀ CARA - Putaud	Poussières crustales µg m ⁻³	% PM ₁₀	% PM ₁₀ CARA - Putaud
07/01/2009	74	6	8	6 - 4	2	3	4 - 9
08/01/2009	42	7	17	6 - 4	1	2	4 - 9
09/01/2009	60	6	10	6 - 4	1	2	4 - 9
10/01/2009	113	6	5	6 - 4	2	2	4 - 9
11/01/2009	108	6	6	6 - 4	1	1	4 - 9
Lyon	PM ₁₀ µg m ⁻³	Sels Marins µg m ⁻³	% PM ₁₀	% PM ₁₀ CARA - Putaud	Poussières crustales µg m ⁻³	% PM ₁₀	% PM ₁₀ CARA - Putaud
08/01/2009	64	-	-	6 - 4	1	2	4 - 9
09/01/2009	111	-	-	6 - 4	3	3	4 - 9
10/01/2009	130	-	-	6 - 4	2	2	4 - 9
11/01/2009	153	-	-	6 - 4	2	1	4 - 9
12/01/2009	160	-	-	6 - 4	7	4	4 - 9
13/01/2009	170	-	-	6 - 4	5	3	4 - 9

5.4.2 ESTIMATION DES SOURCES DE LA MATIERE ORGANIQUE – APPLICATION DU CMB

A partir des concentrations en traceurs et des facteurs d'émission définis précédemment (paragraphe 5.2), l'équation de conservation de la masse, base de la méthode CMB, peut être résolue et les sources attribuées. Notons que le terme « modélisation » s'applique à l'utilisation du modèle CMB. Les sorties de ce modèle donnent accès aux estimations des sources.

Bilan de masse du carbone organique

Ainsi, la part des quatre sources, combustion de la biomasse, trafic automobile, débris végétaux et combustion de gaz naturel, à la masse totale de carbone organique, peut être déterminée. Une part notée « autre » est également estimée et pourrait correspondre à la matière organique secondaire non déterminée par le CMB. Il est important de noter qu'en l'absence de mesure des métaux, d'éventuelles sources industrielles n'ont pu être considérées dans les modélisations.

En ce qui concerne Rouen, la modélisation de ces sources primaires de la matière organique particulaire est représentée ci-dessous :

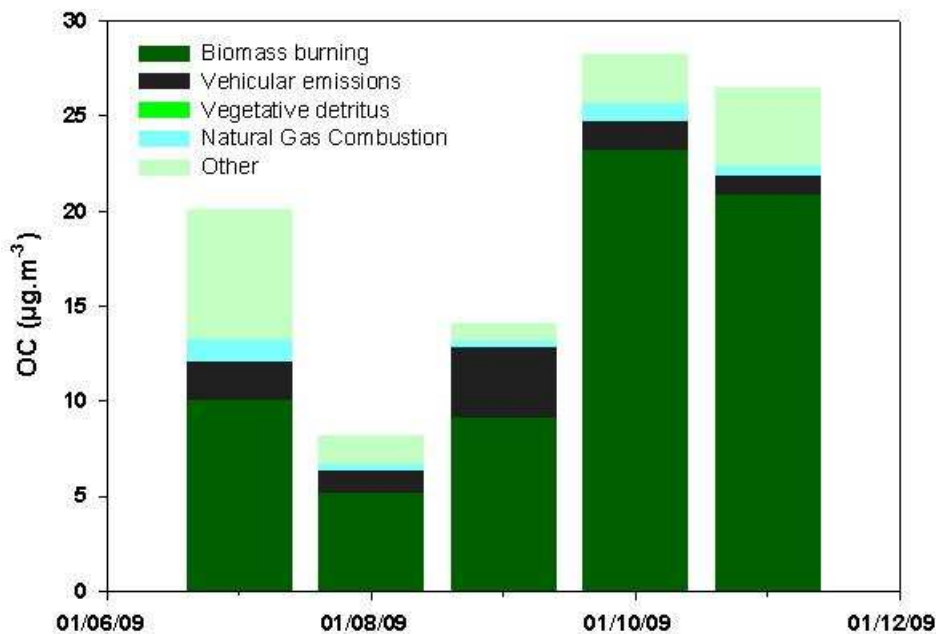


Figure 4 : Modélisation des principales sources primaires du carbone organique lors des épisodes de janvier 2009 à Rouen

Globalement, sur l'ensemble de l'épisode, la combustion de la biomasse contribue à $66 \pm 10\%$ au carbone organique total, alors que le trafic correspond à $12 \pm 5\%$. Notons que le carbone dit « autre » compte pour $16 \pm 6\%$.

Les profils sont similaires pour la ville de Lyon ainsi que le montre la figure ci-dessous :

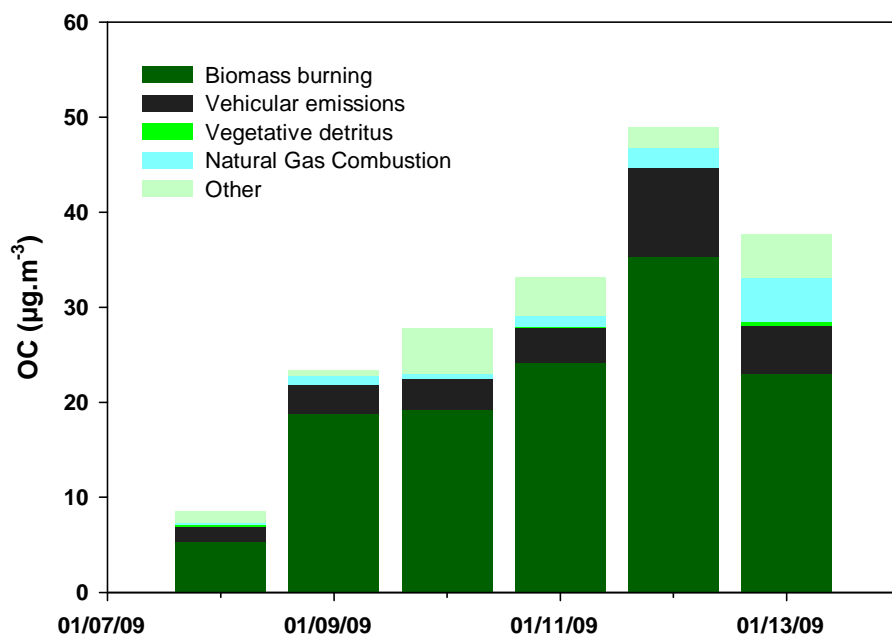


Figure 5 : Modélisation des principales sources primaires du carbone organique lors des épisodes de janvier 2009 à Lyon

En effet, la combustion de la biomasse représente $69 \pm 12\%$, les émissions véhiculaires $15 \pm 7\%$ et le carbone organique « autre » $10 \pm 8\%$.

Bilan de masse du carbone élémentaire

Le même exercice que précédemment peut être réalisé pour évaluer la contribution de chaque source au carbone élémentaire des PM_{10} .

Les deux figures ci-dessous en présente les résultats pour les villes de Rouen et Lyon.

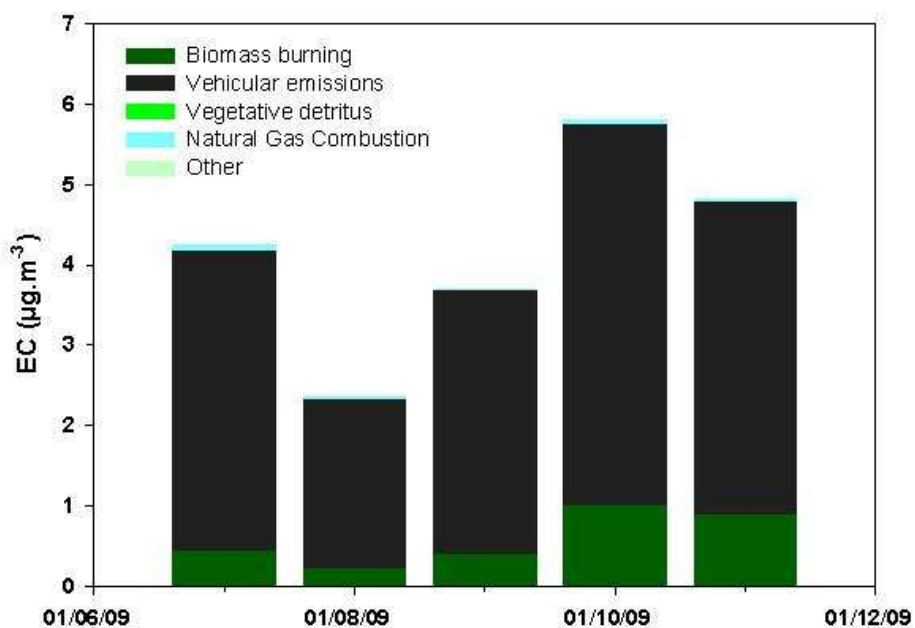


Figure 6 : Modélisation des principales sources primaires du carbone élémentaire lors des épisodes de janvier 2009 à Rouen

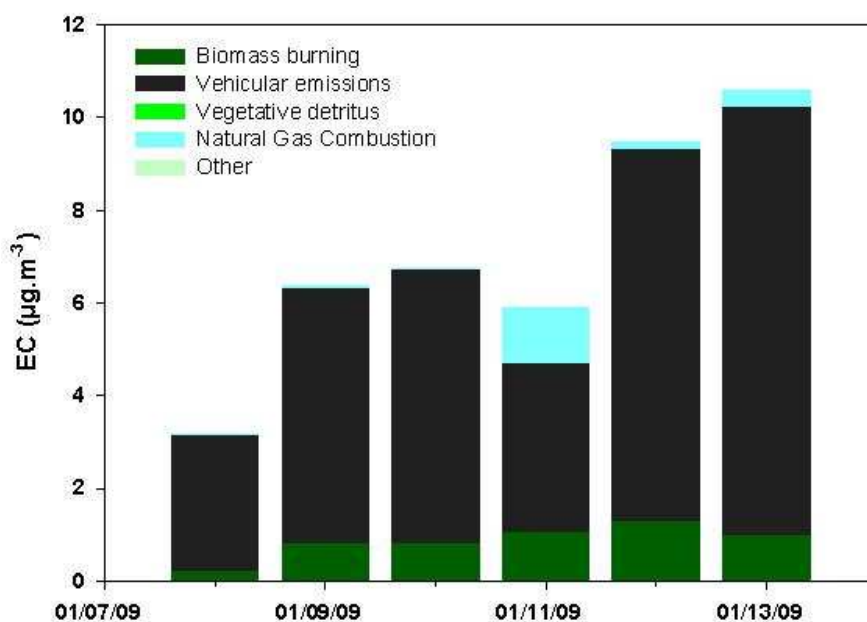


Figure 7 : Modélisation des principales sources primaires du carbone élémentaire lors des épisodes de janvier 2009 à Lyon

Que ce soit pour Rouen ou pour Lyon, le carbone élémentaire provient essentiellement du trafic avec une contribution de 80 ± 12 et $85 \pm 14\%$ respectivement avec une faible part de combustion de la biomasse comptant pour $13 \pm 7\%$ et $10 \pm 6\%$

Bilan de masse des PM₁₀

En tenant compte des autres espèces déterminées, sulfates, nitrates, ammonium, et en considérant leur contribution aux différentes émissions primaires considérées) et en intégrant les données relatives à OC et EC précédemment décrite, il est possible de réaliser un bilan de masse total des PM₁₀. Le facteur de conversion OM/OC appliquée dans le cadre de cette étude est de 1.78 ; facteur déterminé à Grenoble à la même période (FORMES). Les sels de mers et poussières crustales (5.4.1) ont également été ajoutés. Les résultats sont présentés Figure 8 pour Rouen et Figure 9 pour Lyon. La masse totale des PM₁₀ mesurée par TEOM-FDMS y a également été représentée.

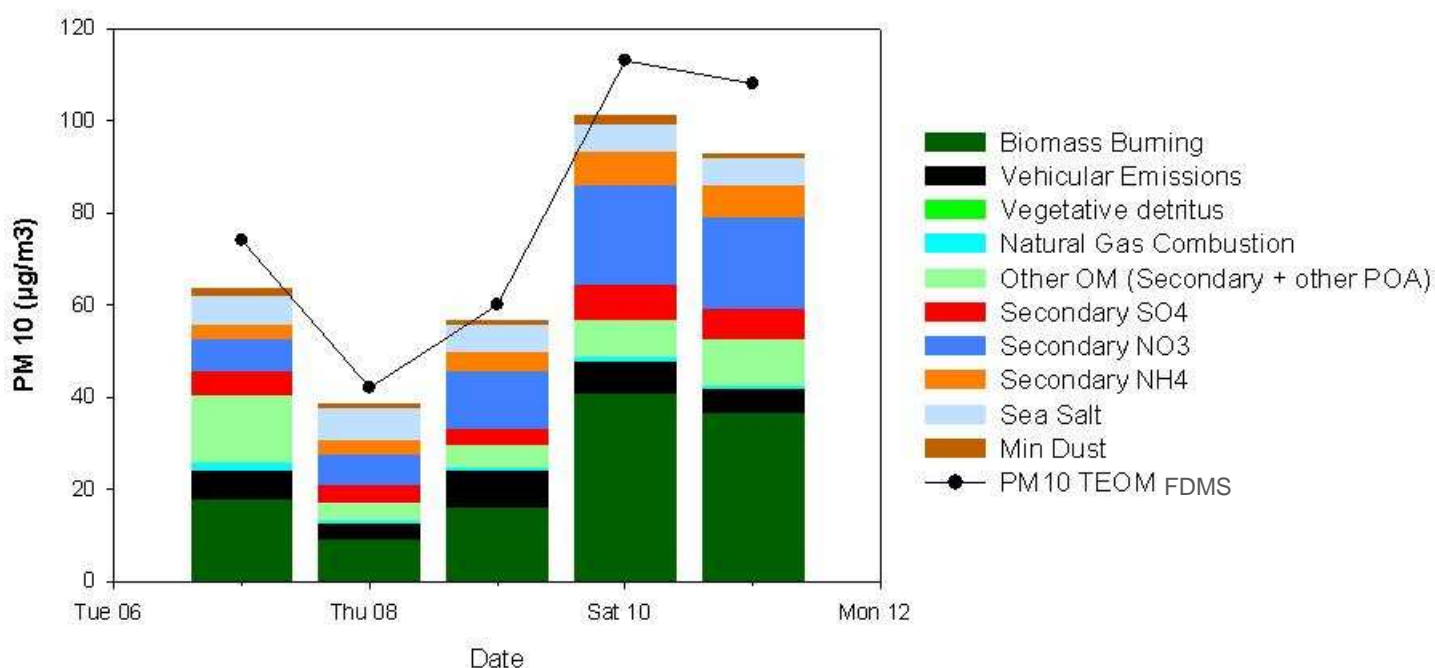


Figure 8 : Modélisation des principales sources primaires des PM₁₀ lors des épisodes de janvier 2009 à Rouen

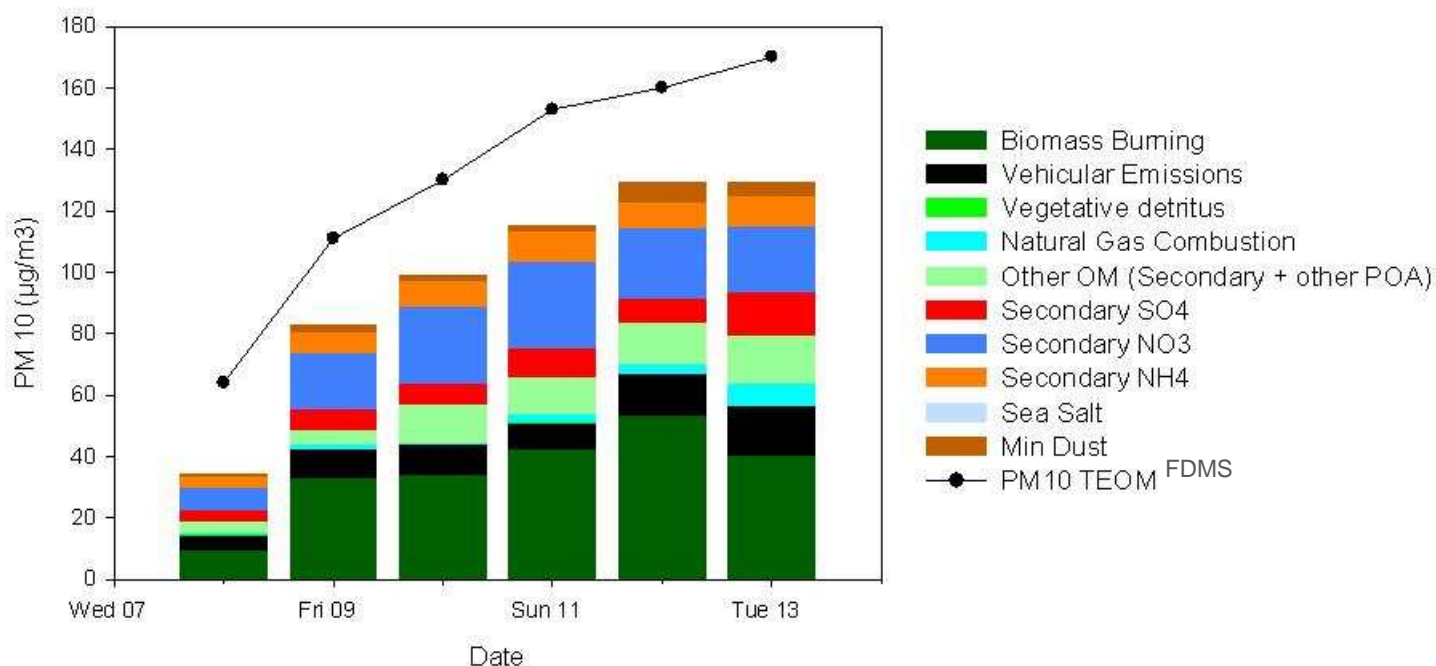


Figure 9 : Modélisation des principales sources primaires des PM₁₀ lors des épisodes de janvier 2009 à Lyon

Tableau 9 : Contributions des sources déterminées par CMB à Lyon et Rouen, en %.

Contribution de chaque source %		
	Rouen	Lyon
Combustion biomasse	32 ± 8	35 ± 5
Trafic	10 ± 3	11 ± 2
Ions secondaires	33 ± 5	38 ± 5
Poussières crustales	2 ± 1	3 ± 1
Sels marins	8 ± 5	-
Autre OM	12 ± 6	10 ± 6
PM expliqué	87 ± 3	73 ± 10

5.4.3 CONCLUSIONS

La modélisation CMB appliquée aux résultats d'analyse des filtres CARA a permis d'évaluer la contribution des sources de combustion de la biomasse, du trafic, de la combustion du gaz naturel, des débris végétaux, des espèces ioniques secondaires et des sources naturelles (poussières crustales et sels marins).

Il apparaît ainsi que la combustion de biomasse représente entre 30 et 35 % des PM₁₀, les émissions véhiculaires (primaires) ~10 % et la fraction ionique secondaire ~30 - 40%.

Il est également intéressant de noter la grande homogénéité des contributions relatives spatiales c'est-à-dire entre les villes mais également temporelle à savoir au sein d'une même ville pendant l'épisode. Cette observation confirme les conclusions du rapport LCSQA sur l'étude CARA des campagnes de janvier 2008 à janvier 2009. En effet, les profils chimiques mesurés lors des dépassements du seuil de $50 \mu\text{g m}^{-3}$ montraient que ces dépassements ne semblent pas être liés à la contribution intense d'une source spécifique, mais bien à des conditions de dispersion favorisant l'accumulation d'un ensemble des sources. Le travail d'attribution des sources semble également indiquer, dans le cas des épisodes de janvier 2009, que l'augmentation des est PM plus liée à des phénomènes dynamiques qu'à des effets de sources.

6. CONCLUSIONS GENERALES ET PERSPECTIVES

La caractérisation de la pollution particulaire ainsi que l'identification de ses sources constitue un véritable enjeu politique, réglementaire et sanitaire pour les pouvoirs publics. Ainsi, des outils robustes et fiables de compréhension des phénomènes et d'aide à la décision sont indispensables afin d'appliquer la Directive 2008/50/CE et de mettre en œuvre des plans de réduction des sources de PM en France. C'est le sens du dispositif pérenne CARA qui doit réussir à s'intégrer dans la multitude d'autres études, ponctuelles, de recherche ou de surveillance, menées au niveau national ou régional, et évoluer avec elles.

Les programmes de recherche valident, développent et mettent au point des outils et des méthodes permettant de mieux comprendre la pollution particulaire. En particulier, le programme FORMES a permis d'appliquer en France des méthodes d'attribution de sources (CMB, PMF...) et de développer ainsi un savoir faire en comparant ces méthodes. L'enjeu actuellement est d'être capable de faire le lien entre ces programmes de recherche menés en amont avec les programmes nationaux de surveillance des PM afin que les objectifs de chacun soient cohérents et complémentaires.

Il est important à ce niveau de souligner qu'il n'existe pas à ce jour de méthode de référence pour l'attribution de sources et que cet « exercice » est à approfondir et améliorer et reste à ce jour du ressort de la recherche. Chacune des méthodes existantes, que ce soit le CMB, le couplage PMF-AMS, les mesures isotopiques ou d'absorption de la lumière, présentant toutes des avantages et des inconvénients, ne s'intéressant pas toutes aux mêmes espèces, sont complémentaires et doivent continuer à être appliquées et intercomparées afin de les améliorer et de combler les lacunes encore existantes en terme d'attribution de source et en particulier en ce qui concerne l'aérosol organique secondaire qu'aucune méthode n'est aujourd'hui capable d'estimer correctement.

L'état des lieux de ces différentes études françaises réalisé dans le cadre de ce travail a mis en valeur l'impérieuse nécessité de se donner les moyens de gérer les données issues de ces nombreuses études et d'harmoniser les mesures pour une meilleure exploitation des ces données.

Le travail de veille sur l'ensemble des études de spéciation chimique et d'attribution des sources de PM sera poursuivi en faisant la synthèse de

l'ensemble des résultats et conclusions des différents programmes et campagnes menés sur le territoire mais également à l'étranger.

Suite aux discussions et conclusions du séminaire LCSQA sur la caractérisation chimique des particules du 20 novembre 2009, il semble également important de mettre en place une réflexion nationale afin de gérer, orienter, harmoniser les différentes études en cours et futures afin d'exploiter au mieux la masse de données qui en résulte et d'avoir ainsi une vision globale et critique sur l'ensemble des travaux menés en France sur les PM.

7. BIBLIOGRAPHIE

Alleman, L. Y., L. Lamaison, et al. (2010). "PM10 metal concentrations and source identification using positive matrix factorization and wind sectoring in a French industrial zone." Atmospheric Research **96**(4): 612-625.

Baklanov, A., M. Lawrence, et al. (2008). New EC 7FP Project MEGAPOLI: Megacities: Emissions, urban, regional and Global

Atmospheric pollution and climate effects, and Integrated tools for assessment and mitigation. Geophysical Research Abstracts. **Vol. 10, EGU2008-A-08126**.

Baklanov, A. A., M. Lawrence, et al. (2009). "MEGAPOLI: concept and first results of multi-scale modelling of megacity impacts." Abstracts of the 9th European Meteorological Society (EMS-2009) Annual Meeting, 28 Sep - 2 Oct 2009, Toulouse, France; Vol 6, EMS2009-598.

Beekmann, M., U. Baltensperger, et al. (2009). "The MEGAPOLI Paris campaign for urban aerosol characterisation -first results." Abstracts of the 9th European Meteorological Society (EMS-2009) Annual Meeting, 28 Sep - 2 Oct 2009, Toulouse, France; Vol 6, EMS2009-433.

Bench, G. and P. Herckes (2004). "Measurement of contemporary and fossil carbon contents of PM2.5 aerosols: Results from Turtleback Dome, Yosemite National Park." Environmental Science & Technology **38**(8): 2424-2427.

Bruno, P., M. Caselli, et al. (2006). Application of receptor models to airborne particulate matter. 1st International Symposium on Multivariate Analysis and Chemometrics for Cultural Heritage and Environment, Nemi, ITALY, Elsevier Science Bv.

Directive 2008/50/CE (2008). "Directive 2008/50/CE du Parlement Européen et du Conseil du 21 mai 2008 concernant la qualité de l'air ambiant et un air pur pour l'Europe."

El Haddad, I., N. Marchand, et al. (2009). "Comprehensive primary particulate organic characterization of vehicular exhaust emissions in France." Atmospheric Environment **doi: 10.1016/j.atmosenv.2009.09.001, 2009**.

El Haddad, I., N. Marchand, et al. (2009). "Comprehensive primary particulate organic characterization of vehicular exhaust emissions in France." Atmospheric Environment **43**: 6190-6198.

Escudero, M., X. Querol, et al. (2007). "A methodology for the quantification of the net African dust load in air quality monitoring networks." Atmospheric Environment **41**(26): 5516-5524.

Favez, O., I. El Haddad, et al. (2009). "Inter-comparison of source apportionment models for the estimation of wood burning aerosols during wintertime in an Alpine city (Grenoble, France)." Atmos. Chem. Phys D **in press**.

Finardi S. (2009). "European initiatives on air quality modelling to support air quality management." Italian National Meeting of the Piemonte Regional Environmental Protection Agency, 24-27 Mar 2009, Piemonte, Italy.

Fine, P. M., G. R. Cass, et al. (2002). "Chemical characterization of fine particle emissions from the fireplace combustion of woods grown in the Southern United States." Environmental Science & Technology **36**: 1442-1451.

Gelencser; A., B. May, et al. (2007). "Source apportionment of PM_{2.5} over Europe: Primary/secondary, natural/anthropogenic, fossil/biogenic origin." Journal of geophysical research **112**: D23S04.

Hallquist, M., Wenger; J. C., et al. (2009). "The formation, properties and impact of organic aerosol: current and emerging issues." Atmos. Chem. Phys. Discuss. **9**: 3555-3762.

Henry, R. C., Y.-S. Chang, et al. (2002). "Locating nearby sources of air pollution by nonparametric regression of atmospheric concentrations on wind direction." Atmospheric Environment **36**(13): 2237-2244.

Hopke, P. K., K. Ito, et al. (2006). "PM source apportionment and health effects: 1. Intercomparison of source apportionment results." Journal of Exposure Science and Environmental Epidemiology **16**(3): 275-286.

Hu, S., R. McDonald, et al. (2006). "UNMIX modeling of ambient PM_{2.5} near an interstate highway in Cincinnati, OH, USA." Atmospheric Environment **40**(Supplement 2): 378-395.

Karanasiou, A. A., P. A. Siskos, et al. (2009). "Assessment of source apportionment by Positive Matrix Factorization analysis on fine and coarse urban aerosol size fractions." Atmospheric Environment **43**(21): 3385-3395.

Kim, E. and P. K. Hopke (2007). "Comparison between sample-species specific uncertainties and estimated uncertainties for the source apportionment of the speciation trends network data." Atmospheric Environment **41**(3): 567-575.

Kim, E., P. K. Hopke, et al. (2003). "Analysis of Ambient Particle Size Distributions Using Unmix and Positive Matrix Factorization." Environmental Science & Technology **38**(1): 202-209.

Lanz, V. A., M. R. Alfarra, et al. (2008). "Source attribution of submicron organic aerosols during wintertime inversions by advanced factor analysis of aerosol mass spectra." Environ. Sci. Technol **42**: 214-220.

Lawrence M. (2009). "Megacity Pollution Effects from Urban to Global Scales: An Overview of the MEGAPOLI Project." Session - AS3.8: Megacities: Air Quality and Climate Impacts from Local to Global Scales. European Geosciences Union General Assembly (EGU-2009), Vienna, Austria, 19-24 Apr 2009.

Lawrence M., A. Baklanov, et al. (2008). "Megacity Pollution Effects from Urban to Global Scales: Overview of the new EC 7FP Project "MEGAPOLI" and Initial Results on Comparing Emissions, Pollution Levels and Pollutant Export from Megacities Worldwide." IGAC 10th International Conference "Bridging the scales in Atmospheric Chemistry: Local to Global", 7-12 Sep 2008, Annecy, France; (poster A4, A3 format).

Le Bihan, O., S. Geoffroy, et al. (2006). "Size distribution and number concentration of the 10 nm-20µm aerosol at an urban background site, Gennevilliers, Paris area." congrès IUAPPA Lille, septembre 06.

Le Bihan, O., P. Godard, et al. (2004). "Size distribution and number concentration of the 10-500 nm aerosol at an urban background site, Gennevilliers, Paris Area " European Aerosol Conference Budapest, September 2004.

Lenschow, P., H. J. Abraham, et al. (2001). "Some ideas about the sources of PM₁₀." Atmospheric Environment **35**: S23-S33.

Leoz-Garzandia, E., J. L. Besombes, et al. (2009). "Contribution du chauffage au bois à la qualité de l'air extérieur :

données existantes et études en cours en France." Pollution Atmosphérique **Numéro spécial mars 2009**.

Malherbe, L., O. Le Bihan, et al. (2009). "Determination of the main sources and influence factors of submicronic particles pollution. Study of a French urban site." European Federation of Clean Air and Environmental Protection Associations (EFCA) International Symposium Brussels, Belgium, May 19 and 20, 2009.

Malm, W. C., J. F. Sisler, et al. (1994). "Spatial and seasonal trends in particle concentration and optical extinction in the United States." Journal of geophysical research **99**: 1347-1370.

Park, S. S. and Y. J. Kim (2005). "Source contributions to fine particulate matter in an urban atmosphere." Chemosphere **59**(2): 217-226.

Pissot, N., J. L. Besombes, et al. (2008). Quantification of residential wood burning in large French cities IGAC. Annecy, France.

Pissot, N., J. L. Besombes, et al. (2009). "Impact de la combustion du bois sur la qualité de l'air ambiant de quatre villes de France : Evaluation de l'approche par traceurs organiques." Pollution Atmosphérique in press.

Putaud, J.-P., F. Raes, et al. (2004). "A European aerosol phenomenology--2: chemical characteristics of particulate matter at kerbside, urban, rural and background sites in Europe." Atmospheric Environment **38**(16): 2579-2595.

Puxbaum, H., A. Caseiro, et al. (2007). "Levoglucosan levels at background sites in Europe for assessing the impact of biomass combustion on the European aerosol background." Journal of geophysical research **112**: D23S05.

Robinson, A. L., R. Subramanian, et al. (2006). "Source apportionment of molecular markers and organic aerosol. 2. Biomass smoke." Environmental Science & Technology **40**: 7811-7819.

Robinson, A. L., R. Subramanian, et al. (2006). "Source Apportionment of Molecular Markers and Organic Aerosol. 3. Food Cooking Emissions." Environmental Science & Technology **40**(24): 7820-7827.

Robinson, A. L., R. Subramanian, et al. (2006). "Source Apportionment of Molecular Markers and Organic Aerosol. 1. Polycyclic Aromatic Hydrocarbons and Methodology for Data Visualization." Environmental Science & Technology **40**(24): 7803-7810.

Rogge, W. F., L. M. Hildemann, et al. (1993). "Sources of Fine Organic Aerosol. 4. Particulate Abrasion Products from Leaf Surfaces of Urban Plants." Environmental Science & Technology **13**: 2700-2711

Rogge, W. F., L. M. Hildemann, et al. (1993). "Sources of Fine Organic Aerosol. 5. Natural-Gas Home Appliances." Environmental Science & Technology **13**: 2736-2744.

Sandradewi, J., A. S. H. Prévôt, et al. (2008). "A study of wood burning and traffic aerosols in an Alpine valley using a multi-wavelength Aethalometer." Atmospheric Environment **42**(1): 101-112.

- Sandradewi, J., Prévôt; A., et al. (2008). "Using aerosol light absorption measurements for the quantitative determination of wood burning and traffic emission contributions to particulate matter." Environmental Science & Technology **42**: 3316-3323.
- Shi, G.-L., X. Li, et al. (2009). "Combined source apportionment, using positive matrix factorization-chemical mass balance and principal component analysis/multiple linear regression-chemical mass balance models." Atmospheric Environment **43**(18): 2929-2937.
- Shrivastava, M. K., R. Subramanian, et al. (2007). "Sources of organic aerosols: Positive matrix factorization of molecular marker data and comparison of results from different source apportionment models." Atmospheric Environment **41**: 9353-9369.
- Szidat, S., T. M. Jenk, et al. (2004). "Radiocarbon (^{14}C)-deduced biogenic and anthropogenic contributions to organic carbon (OC) of urban aerosols from Zürich, Switzerland." Atmospheric Environment **38**: 4035-4044.
- Szidat, S., T. M. Jenk, et al. (2006). "Contributions of fossil fuel, biomass-burning, and biogenic emissions to carbonaceous aerosols in Zurich as traced by ^{14}C " Journal of geophysical research **111**: D07206.
- Szidat, S., M. Ruff, et al. (2009). "Fossil and non-fossil sources of organic carbon (OC) and elemental carbon (EC) in Göteborg, Sweden." Atmospheric Chemistry and Physics **9**: 1521-1535.
- Turpin, B. J. and J. J. Huntzicker (1995). "Identification of secondary organic aerosol episodes and quantitation of primary and secondary organic aerosol concentrations during SCAQS." Atmospheric Environment **29**(23): 3527-3544.
- Viana, M., T. A. J. Kuhlbusch, et al. (2008). "Source apportionment of particulate matter in Europe: A review of methods and results." Journal of Aerosol Science **39**(10): 827-849.
- Widory, D. (2006). "Lead isotopes decipher multiple origins within single PM10 samples in the atmosphere of Paris." Isotopes Environ Health Stud **42**: 97-105.
- Widory, D. (2007). "Nitrogen isotopes: Tracers of origin and processes affecting PM10 in the atmosphere of Paris." Atmospheric Environment **41**(11): 2382-2390.
- Yatkin, S. and A. Bayram (2008). "Source apportionment of PM10 and PM2.5 using positive matrix factorization and chemical mass balance in Izmir, Turkey." Science of The Total Environment **390**(1): 109-123.
- Zhang, Q., M. R. Alfarra, et al. (2005). "Deconvolution and Quantification of Hydrocarbon-like and Oxygenated Organic Aerosols Based on Aerosol Mass Spectrometry." Environmental Science & Technology **39**(13): 4938-4952.
- Zhang, Q., D. R. Worsnop, et al. (2005). "Hydrocarbon-like and oxygenated aerosols in Pittsburg: insights into sources and processes of organic aerosols" Atmospheric Chemistry and Physics **5**: 3289-3311.
- Zheng, M., L. Ke, et al. (2006). "Spatial distribution of carbonaceous aerosol in the southeastern United States using molecular and carbon isotope data." Journal of geophysical research **111**: D10S06.

8. LISTE DES ANNEXES

Référence	Désignation	Nombre de pages
Annexe 1	Fiche CARA LCSQA 2009	5

Annexe 1

Fiche CARA programme LCSQA 2009

THEME 3 METROLOGIE DES PARTICULES PM10 ET PM2.5

ETUDE N 3.3 Dispositif CARA - Caractérisation chimique des particules

Institut responsable de l'étude: INERIS

Objectifs:

Le besoin de développer au plan national la spéciation chimique des PM est lié à plusieurs problématiques :

1 - Besoin de compréhension des niveaux observés

La prise en compte, depuis le 1er janvier 2007, de la fraction volatile des PM dans la surveillance réglementaire a engendré un saut des concentrations de PM, pouvant être accentué lors des situations de fortes concentrations. Parallèlement, le besoin de compréhension et de communication sur l'origine de ces pics a fortement augmenté. Le LCSQA a donc été chargé d'organiser un dispositif de caractérisation chimique des PM, appelé CARA. Ce dispositif a pour objectif de contribuer à apporter des informations sur l'origine des PM, en situation de fortes concentrations ou d'autres situations d'intérêts. Il est important de noter qu'il ne s'agit pas d'une étude quantitative des sources de particules.

2 – Besoins liés à la nouvelle directive

La nouvelle directive européenne prévoit la mesure de la composition chimique des PM sur plusieurs sites ruraux en France. Il est donc nécessaire de développer une méthodologie complète, et judicieuse que cette méthodologie soit cohérente avec la spéciation réalisée en sites urbains dans le cadre de CARA, et plus généralement avec les méthodes développées à l'échelle européenne. Un travail normatif débutera sur ce thème courant 2009.

Les objectifs de cette étude sont donc de :

- Développer une méthodologie robuste de spéciation chimique des PM, applicable sur des sites urbains et ruraux.
- Mettre en œuvre cette méthodologie sur quelques sites en France métropolitaine (collaboration avec les AASQA), en vue de réaliser une spéciation chimique des particules sur une sélection de ces échantillons (épisodes de forte pollution ou situations de fond d'intérêt), et de diffuser les résultats.

3 – Veille sur les études de source

Si la spéciation chimique telle que réalisée ici apportera des éléments très importants quant à la compréhension de l'origine des PM, une approche quantitative des contributions des différentes sources est plus complexe. Les futurs enjeux de la surveillance de la qualité de l'air, en particulier les possibles objectifs de réduction de l'Indice d'Exposition Moyenne au PM_{2,5}, nécessiteront pourtant probablement ce type d'approche.

Il est donc proposé, en complément du dispositif CARA, de suivre les projets de recherche visant à définir l'origine des particules, notamment en milieu urbain, qui doivent se dérouler dans les prochaines années en France.

Contexte et travaux antérieurs:

En cours d'année 2007, la commission de suivi "Surveillance des particules en suspension " a demandé à ce qu'une action soit engagée pour permettre l'étude des épisodes de concentrations importantes de particules. Le LCSQA a donc développé un dispositif de prélèvement de PM10 sur filtres, organisé la collecte et l'analyse de ces filtres (composants majeurs des aérosols tels que décrit dans la nouvelle directive européenne pour la spéciation des PM2.5 en zone rurale), et exploité ces résultats, notamment par le biais de la modélisation.

L'ensemble de ces actions a été finalisé à la fin de l'année 2007, et le dispositif est entré en fonction au 1er janvier 2008. Le choix des sites, devant être revu chaque année, a été validé à la suite de discussions entre les représentants des AASQA au CPT, le MEDAD, l'ADEME et le LCSQA. L'organisation retenue pour 2008 était la suivante :

- **3 sites « continus »** : **Lyon, Mulhouse, Rouen**, sur lesquels des prélèvements sont réalisés tout au long de l'année 2008.
- **6 sites « non continus »** : **Bordeaux, Lens, Rennes, Marseille, Clermont-Ferrand, La Mède** sur lesquels des prélèvements seront réalisés selon les possibilités et besoins des AASQA.
- En pratique, le LCSQA met à disposition les filtres nécessaires et prend en charge le rapatriement et l'analyse des échantillons. Concernant la sélection des échantillons à analyser, le choix est opéré par le LCSQA sur les filtres non utilisés par l'AASQA pour ses propres besoins d'analyses de HAP. Les situations privilégiées pour effectuer les analyses sont :
- En priorité les épisodes de pointes de pollution (compte tenu de l'hétérogénéité des amplitudes et durées des épisodes, il n'est pas possible de définir un seuil de concentration à partir duquel les analyses seraient systématiques)
- D'autres épisodes d'intérêt (situations où les résultats de la modélisation ne sont pas en accord avec les valeurs mesurées et autres situations où des questions peuvent se poser sur les sources).

Il est à noter que les échantillons sont rapatriés tous les 3 mois environ, ce qui exclut des analyses rapides systématiques en cas d'événement.

Travaux proposés:

Les travaux proposés en 2009 visent à assurer une continuité du dispositif, une optimisation de la méthodologie et à poursuivre la veille sur les méthodes de détermination plus quantitatives des sources de PM.

La proposition initiale prévoyait, en 2010, un bilan de cette étude, basé sur l'ensemble des données accumulées en 2008 et 2009, pour adapter la suite à donner à ces travaux, en fonction des objectifs fixés par l'ensemble de la communauté de la surveillance de la qualité de l'air (continuité, format, espèces chimiques ciblées...). Il a été demandé que ce bilan se fasse plus rapidement, courant 2009, afin de préparer des éléments de base pour une réflexion sur ces points lors d'un séminaire LCSQA à l'automne 2009. Notons que la préparation de ce premier bilan n'est pas triviale, du fait de la complexité de l'interprétation des données accumulées.

Il est donc proposé pour 2009 :

- d'assurer la continuité du dispositif, en fonction des réponses à l'appel à collaboration lancé en octobre 2008,
- de réaliser un bilan, préparatoire au séminaire LCSQA de l'automne 2009, à partir des résultats de mesures disponibles,
- de continuer les travaux sur le développement de la méthode de mesure,
- de continuer la veille sur les études quantitatives de source de particules,
- d'organiser un séminaire à l'automne 2009 sur la composition chimique des particules.

Continuité du dispositif

Le choix des sites, parmi ceux proposés par les AASQA volontaires, devra être opéré en Commission de Suivi "Surveillance des particules en suspension". Tout comme en 2008, des sites "non continus" peuvent être retenus, mais une ossature composée de quelques sites continus sur des sites de référence dispersés en France est préférable afin de faciliter le fonctionnement général du dispositif (depuis l'organisation à l'interprétation des résultats).

L'année 2008 a été une année de lancement de cette étude, qui a permis de répondre à des questions de faisabilité de mise en place du dispositif, de protocoles, et de prise en main de techniques analytiques (en particulier la mesure de EC et OC).

Liens avec la modélisation

Le lien avec la modélisation se situe à deux niveaux : lors du choix des échantillons à analyser, puis lors de l'interprétation des résultats : Le choix des échantillons à analyser est ainsi, dans la mesure du possible, guidé par la modélisation afin de focaliser sur certains épisodes de forte pollution ou situations de fond d'intérêt. Il est proposé de continuer cette interaction en 2009.

Pour la partie consacrée à l'interprétation, les résultats de spéciation chimique obtenus par la mesure seront confrontés directement aux résultats de modélisation, afin :

- de mieux comprendre les éventuels écarts avec les observations (identification plus précise d'une, ou de plusieurs, espèce(s) chimique à l'origine du désaccord, lien avec le modèle en lui-même ou avec les cadastres des émissions, etc.)
- d'apporter des informations complémentaires à l'interprétation directe des données de spéciation chimique sur les sources de particules à l'origine des niveaux de PM observés.

Bilan sur le potentiel et les limites du dispositif CARA

Il est proposé que ce bilan soit focalisé sur l'interprétation des données 2008 (interprétation directe et couplée à la modélisation), et de réaliser un premier bilan sur les informations apportées ou non par le dispositif dans sa configuration actuelle. L'objectif est de donner les éléments de base à chacun pour définir l'orientation à donner à ce dispositif à partir de 2010. Ce document devra être disponible à la fin du premier semestre 2009.

Méthodologie / Mise en œuvre technique du dispositif

La mise en place s'est déroulée de manière assez satisfaisante sur l'année 2008. Un point important est que le prélèvement soit effectué dans des conditions de température proches de 20°C, afin de ne pas volatiliser les espèces chimiques sensibles à ce phénomène, de même que les conditions de transport et stockage des filtres doit être contrôlé.

Il apparaît que le maintien à 20°C de la température à l'intérieur des stations de mesure est assez difficile à réaliser, et que le transport à une température inférieure à 4°C est très coûteux. Il est donc proposé de tester l'influence de la température d'échantillonnage et lors du transport et stockage des échantillons.

Concernant la température de prélèvement, il est proposé de réaliser des prélèvements parallèles à deux températures différentes. Pour le transport et le stockage, il est proposé de conserver les portions de filtres à des températures différentes. Ces portions de filtres seront analysées à des temps différents, depuis quelques jours jusqu'à quelques mois.

L'influence sur les espèces volatiles (nitrates d'ammonium et espèces organiques) pourra ainsi être étudiée, et les protocoles de prélèvement et transport adaptés, le cas échéant. Les mêmes tests étant prévus pour l'étude des HAP, une mise en œuvre commune est proposée dans la mesure du possible.

Méthodologie / Analyse de EC et OC

La méthode d'analyse de EC et OC n'est pas encore fixée, mais des travaux de normalisation vont débuter. Cette normalisation s'appuiera notamment sur les résultats du programme européen EUSAAR, dont un objectif est de mettre au point une méthode robuste permettant d'envisager des mesures homogènes en Europe. De plus, il est possible que le JRC organise une intercomparaison européenne sur ce type d'analyse. Il est donc proposé de suivre les travaux européens réalisés dans le cadre d'EUSAAR, et de participer aux éventuelles intercomparaisons qui seront organisées.

Veille sur les études de sources

Le LCSQA propose d'assurer des liens avec les projets de recherche basés sur des sites multi-instrumentés, futurs ou en cours, afin de profiter des synergies entre les différents travaux et de mutualiser les efforts. Cette approche permettra aussi de proposer un retour d'information à l'ensemble de la communauté de la surveillance de la qualité de l'air sur ces travaux de recherche : ils sont en effet généralement présentés comme d'intérêt à terme pour la surveillance opérationnelle. En particulier, l'un des objectifs du projet FORMES, (Fraction Organique de l'aérosol urbain : Méthodologie d'Estimation des Sources), financé dans le cadre de Primequal 2 est de proposer une méthodologie simplifiée d'étude des sources de PM, opérationnelle pour une large gamme de sites urbains. Un rapprochement avec les AASQA partenaires et les coordinateurs du projet permettra de suivre l'avancement des travaux et éventuellement de participer à la campagne de terrain prévue en 2009 à Grenoble (implication déjà prévue dans le cadre de l'étude sur les particules submicroniques). Le suivi, d'autres projets pourra être étudié au cas par cas, et notamment sur proposition des AASQA impliquées, en fonction de l'objectif du projet et de la synergie pouvant être dégagée d'une participation du LCSQA.

Par ailleurs, et afin de renforcer l'étude de source initiée dans le cadre de CARA (à l'aide d'outils simple à mettre en œuvre par rapports aux projets de recherche mentionnés ci-dessus), il est proposé de continuer une veille sur les traceurs de sources non ambiguës permettant d'avoir, par une approche méthodologique simple, des informations plus précises sur des sources de PM d'intérêt, au travers des actions suivantes :

- renforcer les interactions avec l'étude des traceurs de combustion de biomasse (type lévoglucosan) de l'étude HAP. Les éventuelles analyses de lévoglucosan seront prises en charge dans le cadre de l'étude HAP.
- réaliser une bibliographie sur l'apport, en terme d'étude des sources, de mesures de carbone 14 (^{14}C , traceur non ambiguë des combustions d'énergie fossile), et, dans la mesure du possible, tester, sur une sélection d'échantillons ciblés, ce type d'analyses, très prometteur. Un premier retour de faisabilité (coût, contraintes) sera réalisé.

Titre de l'étude	Dispositif CARA ; caractérisation chimique des particules
Personne responsable de l'étude	L Chiappini
Travaux	pérennes
Durée des travaux pluriannuels	
Collaboration AASQA	oui
Heures d'ingénieur	EMD : INERIS : 550 LNE
Heures de technicien	EMD : INERIS : 900 LNE
Document de sortie attendu	Rapports d'étude Un bilan préparatoire au séminaire prévu à l'automne 2009
Lien avec le tableau de suivi CPT	
Lien avec un groupe de travail	CS Particules
Matériel acquis pour l'étude	