

## Note technique

OBSERVATION ET ANALYSE EN TEMPS QUASI-REEL  
DES EPISODES DE POLLUTION PARTICULAIRE DE  
MARS 2015

O. Favez, T. Amodeo, Eva Leoz-Garziandia (LCSQA/INERIS)

## SYNTHESE

D'importants épisodes de pollution particulaire ont impacté la métropole (en particulier le grand quart Nord-Est de la France et le bassin Rhône-Alpin) au cours du mois de mars 2015. La présente note synthétise les résultats de caractérisation physico-chimique obtenus en temps quasi-réel au cours de cette période, notamment à l'aide des instruments de type AE33 et ACSM récemment implantés sur quelques sites du dispositif national de surveillance.

La pollution particulaire de la période étudiée ici (du 5 au 24 mars 2013) était surtout constituée des particules fines (prédominance des  $PM_{2.5}$  au sein des  $PM_{10}$ ). La deuxième semaine du mois de mars était caractérisée par des concentrations relativement élevées à très élevées ( $> 80 \mu\text{g}/\text{m}^3$ , en particulier en Lorraine) et par la prédominance des aérosols carbonés (carbone suie et matière organique) principalement issus des émissions locales de sources de combustion (dont chauffage au bois et transport routier). Ces émissions locales sont restées importantes au cours de la troisième semaine de mars, période correspondant à la survenue d'épisodes de pollution très importants (en particulier entre le 18 et le 21 mars). A ces émissions s'est rajouté le nitrate d'ammonium (composé secondaire formé à partir du  $\text{NH}_3$  agricole et des  $\text{NO}_x$  du transport routier) devenant majoritaire.

Les éléments disponibles ici ne permettent pas de conclure de manière quantitative sur la contribution des phénomènes d'import et de « production locale ». Si des phénomènes d'advection ont pu être mis en évidence entre l'amont et l'aval de l'agglomération parisienne et à plus large échelle spatiale, il semble nécessaire de pouvoir réaliser une meilleure estimation des mécanismes de formation locale de nitrate d'ammonium à l'aide de modèles de chimie-transport ainsi que grâce à l'implémentation d'instruments de mesure sur quelques sites stratégiques supplémentaires.

## 1. CONTEXTE

---

Depuis 2012, la France fait l'objet d'une procédure de contentieux européen pour non-respect, sur une quinzaine de ZAS (Zones Administratives de Surveillance), des valeurs limites fixées par la Directive 2008/50/CE pour les particules atmosphériques de type PM<sub>10</sub>. Ce dernier paramètre correspond à la concentration massique totale des particules de diamètre aérodynamique inférieur à 10µm. La valeur limite relative à ce polluant la plus contraignante correspond au seuil journalier de 50µg/m<sup>3</sup> à ne pas dépasser plus de 35 jours par an. L'occurrence ponctuelle d'épisodes de pollution persistants et de large échelle spatiale joue un rôle notable dans le non-respect de cette valeur limite.

Les PM<sub>10</sub> sont constituées d'une grande diversité d'espèces chimiques provenant d'une multitude de sources et de processus de formation. Ainsi, une meilleure maîtrise de la qualité de l'air passe notamment par une bonne détermination de la composition chimique des particules, et le dispositif national de surveillance de la qualité de l'air (MEDDE, LCSQA et AASQAs) s'est doté depuis 2008 d'un programme d'amélioration des connaissances (« programme CARA ») visant cet objectif. Reposant initialement sur l'analyse au laboratoire de filtres prélevés par les AASQA, ce programme s'enrichit aujourd'hui de mesures en temps réel.<sup>1</sup>

## 2. INTRODUCTION

---

De fortes concentrations de PM<sub>10</sub>, entraînant de nombreux dépassements de valeurs limites, sont régulièrement observées entre mi-novembre et mi-avril du fait de la conjonction entre les activités anthropiques (chauffage, transport, agriculture) et la survenue de conditions météorologiques favorables à l'accumulation et/ou à la transformation des polluants atmosphériques.<sup>2</sup> A titre d'illustration, la Figure 1 reprend la composition chimique des PM<sub>10</sub> lors des principaux épisodes de pollution ayant pu être observés sur la station de fond urbain de Petit-Quevilly (agglomération de Rouen) de novembre 2010 à avril 2011.

Les événements de début d'hiver se développent généralement dans des situations météorologiques stables et froides (régime anticyclonique), propices à une forte utilisation du chauffage domestique, et notamment du chauffage au bois, permettant d'expliquer leur forte teneur en matière carbonée. Des épisodes de ce type ont également pu être observés fin 2014 - début 2015 (note LCSQA « Eléments de compréhension des épisodes de pollution particulaire de fin décembre 2014 - début janvier 2015, DRC-15-152341-02681A).

Les épisodes de fin de l'hiver - début du printemps présentent une composition chimique différente, fortement influencée par un composé inorganique secondaire : le nitrate d'ammonium. Ces épisodes résultent également de conditions météorologiques très stables, avec des températures froides la nuit et le matin qui se réchauffent dans la journée. Ainsi on observe comme en début d'hiver des inversions thermiques marquées qui capturent les polluants dans les zones fortement émettrices.

---

<sup>1</sup> Note LCSQA 2014 (O. Favez et E. Leoz-Garziandia): <http://www.lcsqa.org/rapport/2014/ineris/description-programme-cara-dispositif-national-surveillance-qualite-air>.

<sup>2</sup> Caractéristiques et origines principales des épisodes de pollution hivernaux aux PM<sub>10</sub> en France. O. Favez, J.-E. Petit, B. Bessagnet, et al. *Pollution Atmosphérique*, numéro spécial de Novembre 2012.

Mais ces épisodes coïncident généralement avec une période d'épandage d'engrais azotés dans les zones agricoles, qui peuvent être à l'origine d'émissions d'ammoniac par volatilisation. L'ammoniac ainsi disponible dans l'atmosphère réagit avec l'acide nitrique, dérivé des oxydes d'azote émis notamment par le trafic automobile et les activités industrielles, selon la réaction:  $NH_3 + HNO_3 \rightarrow NH_4NO_3$ . Les épisodes de début de printemps restent également marqués par des niveaux élevés de matière organique, provenant des émissions primaires (e.g., chauffage au bois) et de la formation d'aérosols organiques secondaires (AOS) à partir de composés organiques volatils (COVs) anthropiques et/ou biogéniques. Enfin, une forte contribution de sulfate d'ammonium (autre composé inorganique secondaire) est généralement révélatrice d'un transport méso-échelle à partir des zones fortement émettrices de  $SO_2$  par combustion de fioul lourd (centrales thermiques, industries pétrochimique, transport maritime).

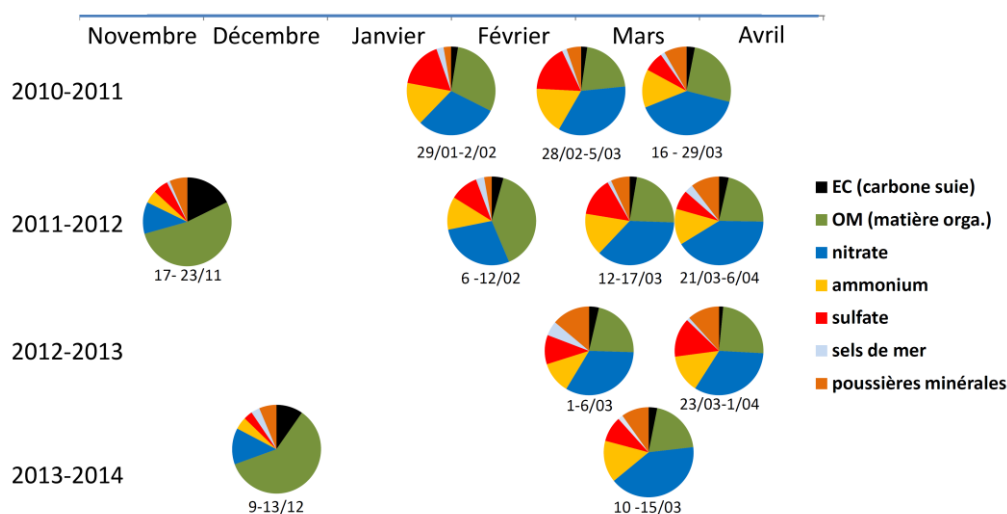


Figure 1: répartition des espèces chimiques majeures des  $PM_{10}$  lors des dix principaux épisodes de pollution particulaire entre novembre 2010 et mars 2014 sur la station de fond urbain de Petit-Quevilly

Comme les années précédentes, le mois de mars 2015 a été soumis à des épisodes de pollution particulaire de large échelle. La présente note synthétise les résultats de caractérisation chimique en temps réel obtenus dans le cadre du programme CARA pour la période la plus impactée par ces épisodes (6 au 23 mars). Le jeu de données exploité ici est le fruit des mesures automatiques réalisées par les AASQAs sur l'ensemble du territoire national et par l'INERIS et le Laboratoire des Sciences du Climat et de l'Environnement (LSCE) sur le Site Instrumental de Recherche par Télédétection Atmosphérique (SIRTA, plateau de Saclay, Essonne) et à la station urbaine de Creil « Faïencerie » (ATMO Picardie – LCSQA). Ce jeu de données pourra être consolidé en cours d'année 2015, notamment à l'aide de mesures sur filtres.

### 3. INFLUENCE DES EMISSIONS PRIMAIRES DE COMBUSTION

---

Les résultats présentés dans ce chapitre ont été obtenus à l'aide d'Aethalomètres multi-longueurs d'onde de type AE33 ayant pour première vocation d'assurer la surveillance du *Black Carbon* (BC). Ce composé est aujourd'hui considéré comme un bon indicateur de l'impact sanitaire des émissions anthropiques par combustion. Bien que généralement considérée comme inerte, son noyau « graphitisé » est mélangé à des espèces avérées cancérigènes (telles que HAP ou métaux lourds) et se trouve majoritairement dans la fraction (ultra-)fine des PM. On assiste ainsi au développement de la surveillance de ce paramètre au sein des dispositifs de surveillance de la qualité de l'air européens et l'AE33 semble aujourd'hui particulièrement adapté aux besoins et objectifs des réseaux de surveillance opérationnels. Outre sa robustesse et son faible coût de fonctionnement, il tire profit de la mesure des propriétés d'absorption à 7 longueurs d'ondes différentes (de 370 à 950nm) pour proposer également une estimation de l'impact des émissions par combustion de dérivés du pétrole et par combustion de biomasse sur les concentrations de BC.

Les contributions obtenues peuvent ensuite être utilisées pour estimer (avec une précision de l'ordre de  $\pm 50\%$ ) les concentrations de PM attribuables à ces deux familles de sources. Il est à noter que pour le transport routier (compris au sein des émissions par combustion de dérivés du pétrole), ces estimations ne sont représentatives que des émissions primaires et ne tiennent pas compte de l'influence de cette source sur la formation d'aérosols secondaires (nitrate d'ammonium et AOS).

Comme illustré par la Figure 2, les mesures réalisées par AE33 suggèrent un impact globalement limité des émissions primaires de combustion sur les niveaux élevés de PM<sub>10</sub> enregistrés au cours de la troisième semaine de mars 2015 (du 18 au 21 mars). En particulier, la contribution de ces sources ne dépasse pas 20% des PM<sub>10</sub>, pour les sites étudiés ici, lors de cette période. Néanmoins, cette contribution est significativement plus importante lors de la deuxième semaine de mars, notamment pour les sites de Lyon et Poitiers où la combustion de biomasse pourrait expliquer à elle seule près de 40% des pics de PM<sub>10</sub> observés autour du week-end des 7 et 8 mars. Des contributions équivalentes, voire plus importantes, de cette dernière source ont également été mesurées pour la même période sur d'autres sites du dispositif national (e.g., à Grenoble et Bordeaux). Une analyse plus approfondie de l'influence de ces sources de combustion pourra être réalisée une fois l'ensemble des données AE33 transmises par les AASQA au LCSQA et après analyse au laboratoire des filtres prélevés dans le cadre du programme CARA.

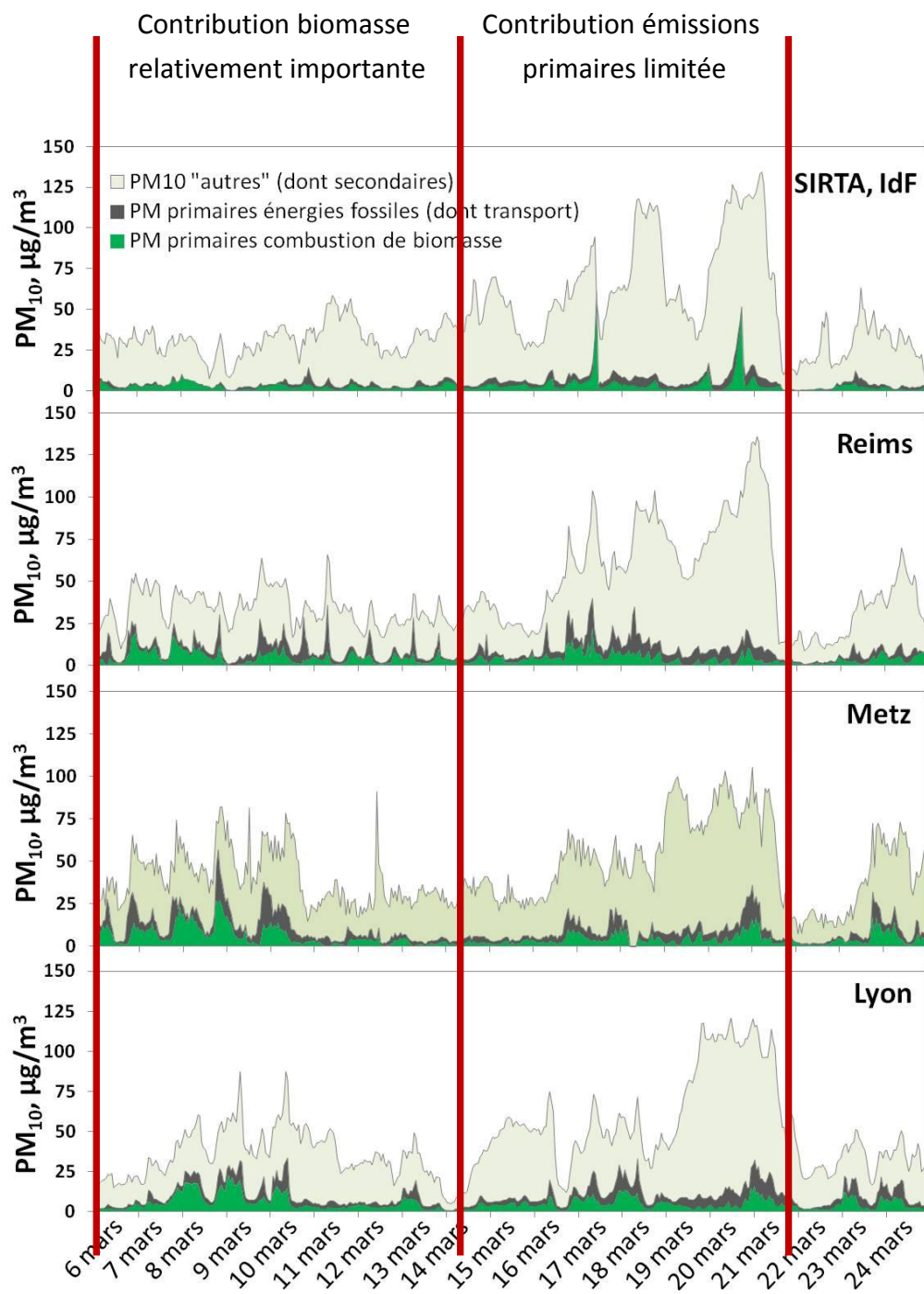


Figure 2 : Influence des émissions primaires de combustion sur les niveaux de  $PM_{10}$  au Sirta (fond régional en IdF) et sur 3 stations de fond urbain à Reims, Metz et Lyon

#### 4. IMPORTANCE DES PARTICULES FINES (PM<sub>2.5</sub>) ET SEMI-VOLATILES

Comme illustré par les Figures 3 et 4, les niveaux de concentrations les plus élevés au cours de la période d'étude sont caractérisés par leur faible granulométrie et leur volatilité. En effet, à l'image des épisodes printaniers précédents, l'essentiel des PM<sub>10</sub> est en réalité compris dans la fraction PM<sub>2.5</sub>, alors que les concentrations de PM<sub>10</sub> non-volatiles (mesurés par TEOM dépourvus de système FDMS) restent relativement stables par rapport aux PM<sub>10</sub> totales (mesurées par TEOM-FDMS ou par radiomètres β). Les particules primaires naturelles étant plutôt comprises dans la fraction grossière des PM<sub>10</sub> (entre 2.5 et 10μm), ces informations, combinées à la faiblesse relative de la contribution des émissions primaires anthropiques (cf. ci-dessus), indiquent un impact prépondérant des aérosols secondaires, et en premier lieu du nitrate d'ammonium (principal espèce particulaire semi-volatile), sur les niveaux de PM<sub>10</sub> les plus élevés (en particulier lors de la troisième semaine de mars).

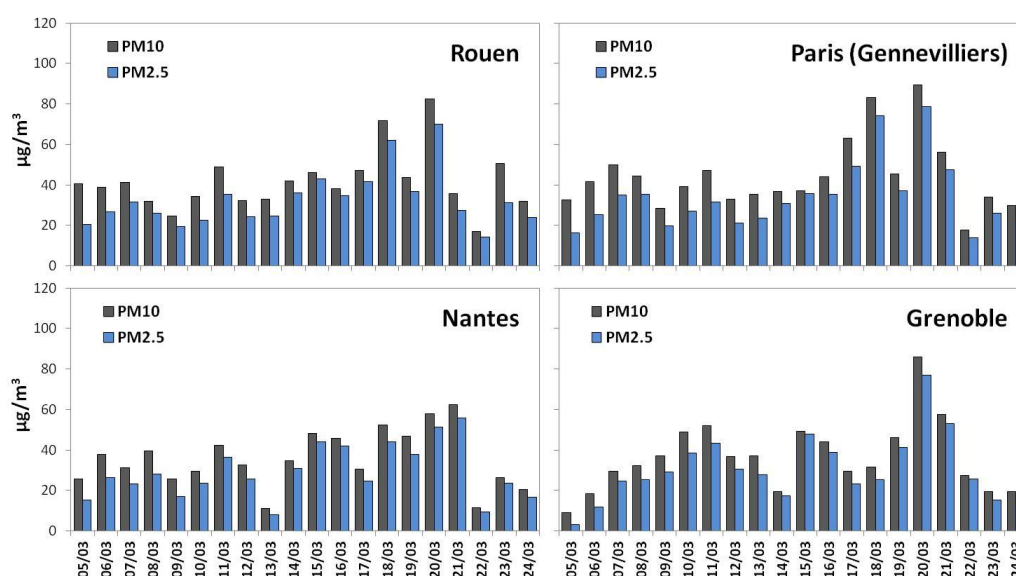


Figure 3 : prédominance des PM<sub>2.5</sub> au sein des PM<sub>10</sub> sur 4 sites de fond urbain

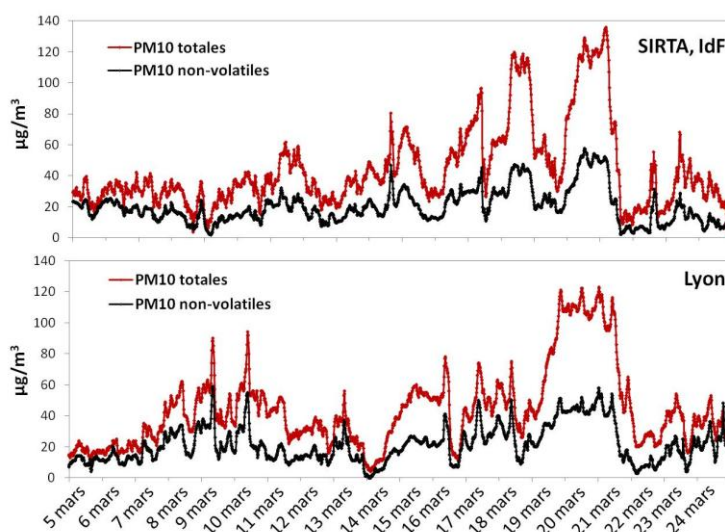


Figure 4 : forte influence des particules semi-volatiles au cours de la troisième semaine de mars 2015, observées par différences entre les mesures PM<sub>10</sub> par TEOM-FDMS et les mesures PM<sub>10</sub> non-volatiles par TEOM seul



## 5. MESURES EN TEMPS REEL DES ESPECES CHIMIQUES MAJEURES (DONT NITRATE D'AMMONIUM)

---

Ce chapitre présente l'évolution temporelle des concentrations massiques des espèces non-réfractaires (i.e., volatile à 600°C) de la fraction submicronique des particules, mesurées à l'aide des 4 ACSM (Aerosol Chemical Speciation Monitor) actuellement en opération en France. L'ACSM repose sur l'utilisation d'un spectromètre de masse et permet notamment la mesure rapide du nitrate, du sulfate, de l'ammonium et de la matière organique. Couplé à des mesures de (BC), obtenues avec l'AE33, cet instrument permet de mesurer la quasi-totalité des particules présentes dans la fraction PM<sub>1</sub>. La Figure 5 synthétise l'ensemble des résultats obtenus à l'aide de cet instrument entre les 5 et 24 mars 2015. Deux des quatre séries de mesure proviennent d'ACSM mis en œuvre par Air Lorraine (sur le site de fond urbain de Metz-Borny) et Air Rhône-Alpes (sur le site de fond urbain de Lyon centre), tandis que les deux autres résultent de la collaboration entre l'INERIS et le LSCE à partir de deux ACSM installés respectivement sur le site de fond régional du SIRTÀ (Essone, IdF) et sur la station urbaine de CREIL « Faïencerie » (ATMO Picardie - LCSQA).

Chacune de ces séries temporelles peuvent se découper en trois périodes distinctes :

- (i) la deuxième semaine du mois de mars (en particulier du 5 au 13 mars), caractérisées par des concentrations de particules non-réfractaires relativement élevées à très élevés (en particulier à Metz-Borny) et par la prédominance de carbone organique. Comme suggéré par les mesures AE33, et par la faiblesse des concentrations de sulfate d'ammonium, cette période semble principalement sous influence des émissions locales de combustion (dont chauffage au bois).
- (ii) la période couvrant la troisième semaine de mars (en particulier du 17 au 21 mars), dominée par les aérosols inorganiques secondaires, et en premier lieu par le nitrate d'ammonium. Ces observations sont cohérentes avec la forte influence des aérosols semi-volatiles observée par différence entre TEOM-FDMS et TEOM seul (Figure 4). Il est néanmoins à noter que les concentrations de matière organique restent relativement stables par rapport à celles observées lors de la période précédente. Enfin, l'augmentation significative des concentrations de sulfate d'ammonium suggère une influence non-négligeable des phénomènes de transports de polluants.
- (iii) la période postérieure au 21 mars caractérisée par une chute des concentrations (en raison notamment de l'augmentation des vitesses de vent, données Météo-France non présentées ici).

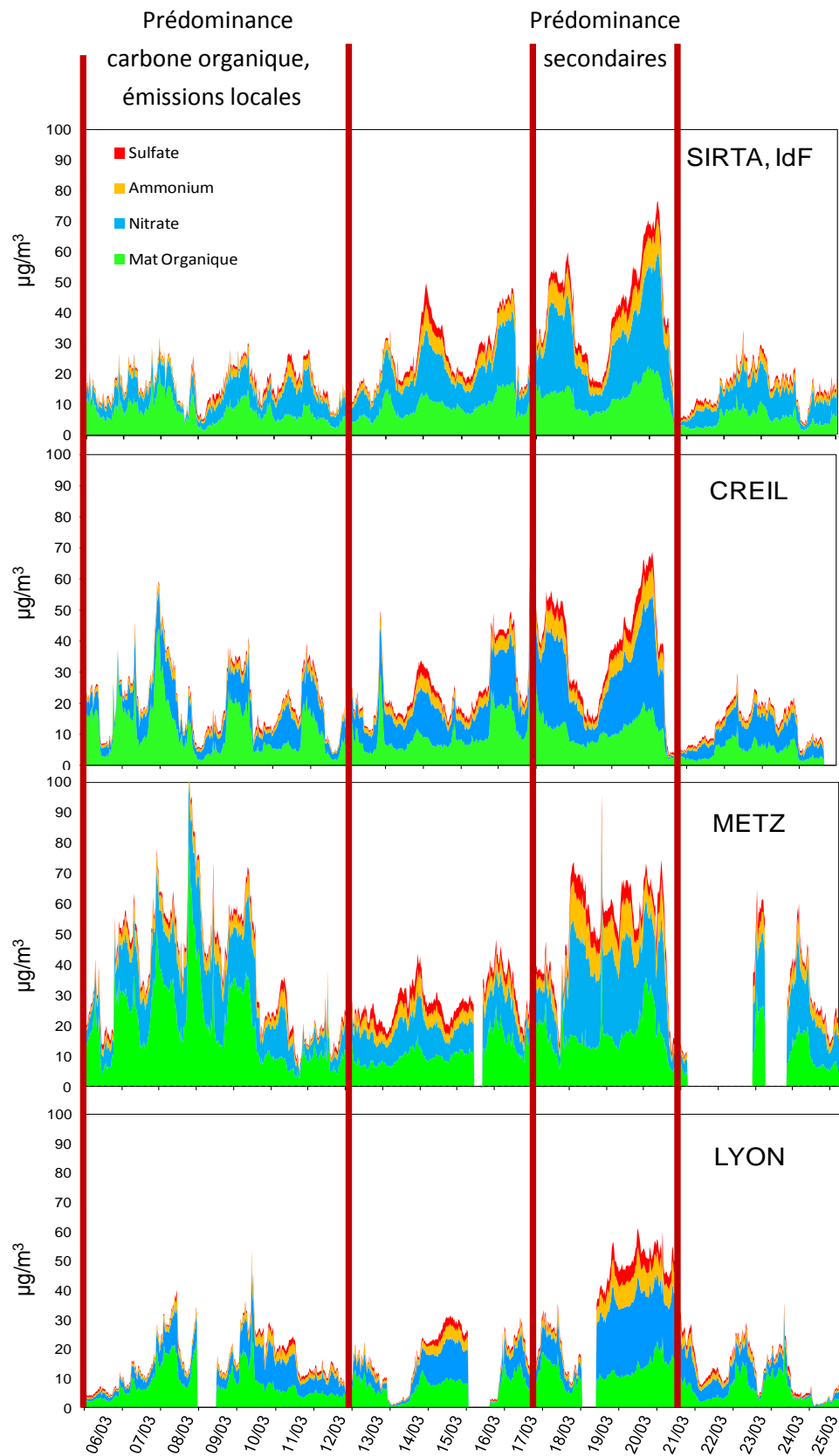


Figure 5 : suivi temporel des espèces non-réfractaires mesurées par ACSM au sein des particules submicroniques



## 6. TRANSPORT ET TRANSFORMATIONS DU NITRATE D'AMMONIUM

La Figure 6 propose un focus sur l'évolution des concentrations de nitrate (d'ammonium) à Creil et au SIRTA lors de la période la plus polluée (i.e., du 18 au 21 mars). Cette période étant intégralement sous influence du secteur de vent Nord – Nord-Est, ces deux sites se trouvent ici situés respectivement en amont et en aval de l'agglomération parisienne. La comparaison entre les séries temporelles obtenues pour ces deux sites permet de mettre en évidence les phénomènes de transport de polluants liés à l'avection des masses d'air. La figure 6 présente les évolutions temporelles relatives au nitrate (d'ammonium). On constate des niveaux de concentrations équivalents mais apparaissant à Creil entre une demi-heure et deux heures avant qu'elles ne soient présentes au SIRTA.

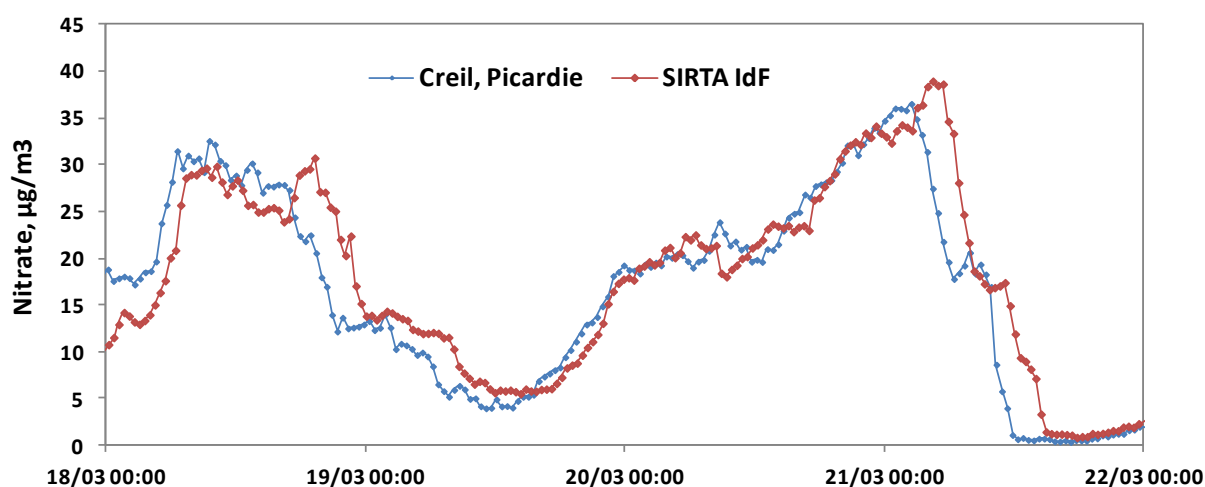


Figure 6: suivi des concentrations de nitrate (présent sous forme de nitrate d'ammonium au sein des PM) au SIRTA et à Creil entre le 18 et la 21 mars 2015.

Ce résultat suggère une nette prédominance des phénomènes d'import interrégional du nitrate d'ammonium sur la région parisienne (par rapport aux phénomènes de production locale). Néanmoins, il convient de modérer cette interprétation en raison des incertitudes de mesure (de l'ordre de 20% pour le nitrate) et d'éléments indiquant le fait que les productions locales ne peuvent être exclues. En effet, les vitesses de vent enregistrées au cours de cet épisode (15-20 km/h) impliquent un décalage temporel légèrement supérieur (3-4h) à celui pouvant être observé sur la Figure 6. Par ailleurs, les phénomènes de transport atmosphérique sont associés à des mécanismes de dispersion et de dilution incompatibles avec la stricte conservation des niveaux de concentration au long du parcours. A plus large échelle, il est par exemple possible d'observer une diminution notable des concentrations de  $PM_{10}$  entre Paris et Poitiers puis Bordeaux (cf. Figure 7) entre le 17 et le 20 mars. Ainsi, il est probable que des mécanismes de production de nitrate d'ammonium compensent la dispersion/dilution de ce polluant entre Creil et le SIRTA. Notons enfin que ce dernier site ne représente pas les niveaux les plus importants de  $PM_{10}$  relevés dans l'agglomération parisienne ou sous le vent de cette dernière. Une caractérisation des propriétés physico-chimiques des particules (fines et grossières) en proximité du trafic routier permettrait notamment de mieux appréhender les différentes contributions locales et d'affiner les éléments disponibles pour l'aide à la décision.

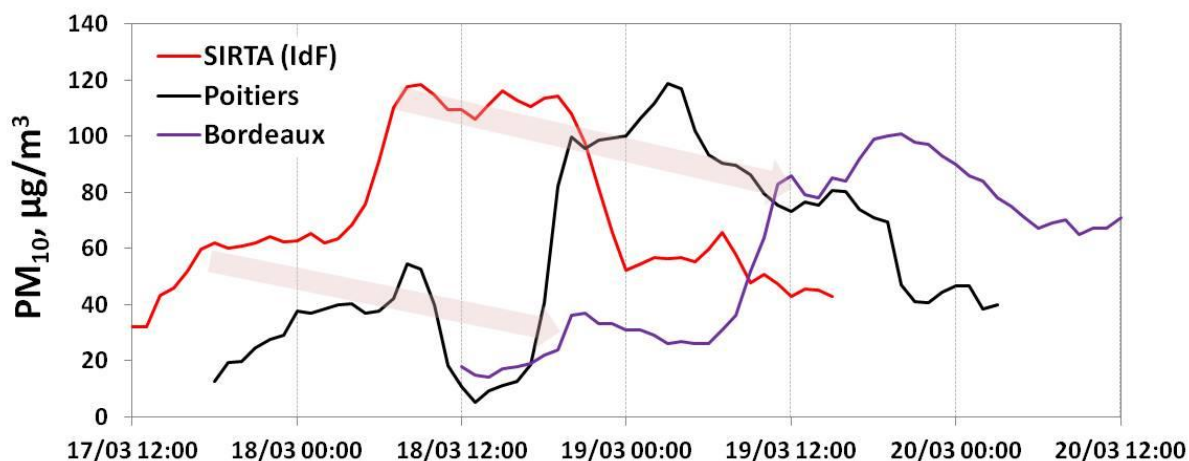


Figure 7: décalage temporel dans l'observation de structures similaires sur les courbes de concentration de  $PM_{10}$  entre Paris, Poitiers et Bordeaux

Des investigations plus approfondies seront également menées dans les semaines qui viennent de façon à interpréter ces résultats qui suggèrent une combinaison de processus :

- la formation chimiques du nitrate d'ammonium induite par la disponibilité de l'ammoniac dans les zones rurales et celles d'oxydes d'azote dans les zones urbanisées (par exemple l'agglomération parisienne)
- le transport du nitrate des particules parfois sur de très longues distances.

## 7. CONCLUSION ET PERSPECTIVES

Le développement de l'utilisation d'instruments de mesure automatique des PM dans le cadre du programme CARA a permis l'observation et une analyse préliminaire en temps quasi-réel des épisodes de pollution du mois de mars 2015. Ces épisodes sont globalement similaires à ceux survenus à la même époque au cours des années précédentes. On retiendra notamment l'importance des contributions de la matière organique (issue principalement des émissions par combustion) lors de la deuxième semaine de mars 2015, ainsi que la prédominance du nitrate d'ammonium la semaine suivante (cette dernière étant « la plus polluée » à l'échelle nationale).

Les éléments disponibles ici ne permettent pas de conclure de manière quantitative sur la contribution des phénomènes d'import et de « production locale ». Si des phénomènes d'advection ont pu être mis en évidence entre l'amont et l'aval de l'agglomération parisienne et à plus large échelle spatiale, il semble nécessaire de pouvoir réaliser une meilleure estimation des mécanismes de formation locale de nitrate d'ammonium à l'aide de modèles de chimie-transport ainsi que grâce à l'implémentation d'instruments de mesure (ACSM ou MARGA) sur quelques sites stratégiques supplémentaires (e.g., Ouest, Sud-Est).