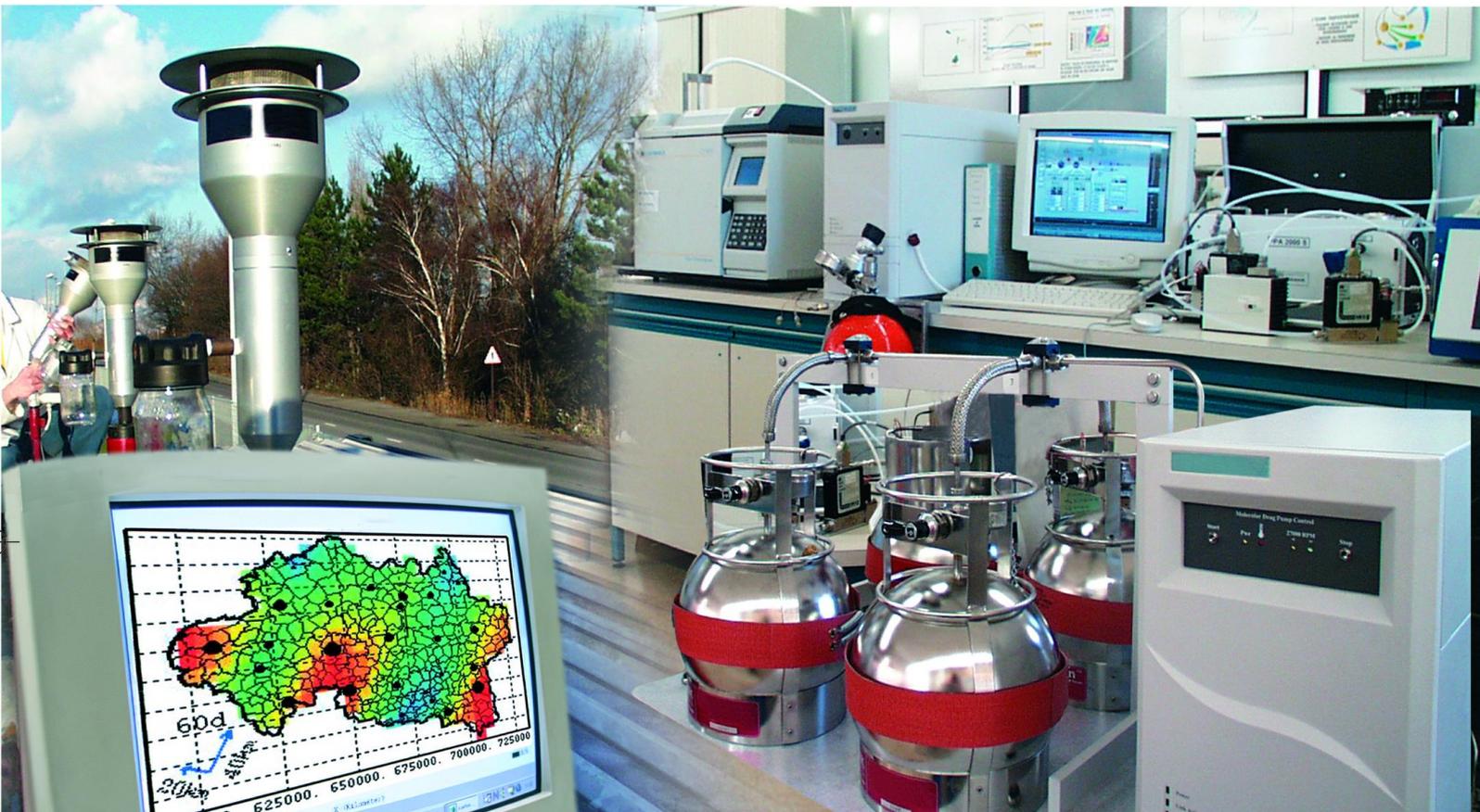




## Laboratoire Central de Surveillance de la Qualité de l'Air



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

### Caractérisation chimique des particules

Evaluation de l'impact sur la qualité de l'air des émissions particulaires du volcan Eyjafjallajökull au cours du mois d'Avril 2010

Décembre 2010  
Programme 2010

O. FAVEZ / A. COLETTE / 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, et en concertation avec les Associations Agréées de Surveillance de la Qualité de l'Air (AASQA). Ces travaux en matière de pollution atmosphérique ont été financés par la Direction Générale de l'Energie et du Climat (bureau de la qualité de l'air) du Ministère de l'Ecologie, du Développement durable, des Transports et du Logement. Ils sont réalisés avec le souci constant d'améliorer le dispositif de surveillance de la qualité de l'air en France en apportant un appui scientifique et technique au MEDDTL et 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 PM<sub>10</sub> et PM<sub>2.5</sub>

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

Décembre 2010

**O. FAVEZ, E. LEOZ, F. GAUTIER, S. VERLHAC, F. GODEFFROY, A. PAPIN, V. MINGUET, N. CHATELIER, C. DENIZE, B. DEFFRENNE, H. BIAUDET, A. COLETTE, B. BESSAGNET, L. CHIAPPINI**

Ce document comporte 27 pages (hors couverture et annexes)

	Rédaction	Vérification	Approbation
NOM	Augustin COLETTE Olivier FAVEZ Laura CHIAPPINI	Bertrand BESSAGNET  Eva LEOZ-GARZIANDIA	Martine RAMEL
Qualité	Ingénieur unité MOCA Ingénieurs unité Chimie Métrologie Essais Direction des Risques Chroniques	Responsable de l'unité MOCA  Responsable de l'unité Chimie Métrologie Essais  Direction des Risques Chroniques	Responsable LCSQA- INERIS  Direction des Risques Chroniques
Visa			



# TABLE DES MATIÈRES

<b>RESUME</b> .....	<b>7</b>
<b>1. CONTEXTE</b> .....	<b>9</b>
<b>2. TROIS SOURCES D'INFORMATION POUR LE SUIVI DU PANACHE</b> .....	<b>9</b>
2.1 Des mesures optiques : les LIDARs.....	9
2.2 Des outils de modélisation : CHIMERE et FLEXPART.....	10
2.3 Des moyens métrologiques : le dispositif CARA .....	11
<b>3. ANALYSE COMBINÉE DU SUIVI DU PANACHE VOLCANIQUE</b> .....	<b>12</b>
3.1 Les données LIDARS.....	12
3.2 La modélisation du panache .....	13
3.3 La mise en œuvre des mesures et des analyses .....	15
<b>4. RESULTATS</b> .....	<b>15</b>
4.1 Mesures automatiques .....	15
4.2 Exercices de fermeture chimique .....	17
4.3 Analyses supplémentaires, recherche de traceurs spécifiques (métaux : Al, Fe, Ti ...).....	19
<b>5. POUR ALLER PLUS LOIN</b> .....	<b>21</b>
5.1 Etude des retombées atmosphériques.....	21
5.2 L'utilisation du MEB.....	23
5.3 Des mesures aéroportées .....	24
5.4 Bilan .....	25
<b>6. CONCLUSIONS</b> .....	<b>26</b>
<b>7. BIBLIOGRAPHIE</b> .....	<b>26</b>



## REMERCIEMENTS

Le LCSQA, Laboratoire Central de Surveillance de la Qualité de l'Air, tient à remercier l'ensemble des AASQA, Associations Agréées de Surveillance de la Qualité de l'Air participant à CARA et en particulier à souligner la réactivité et l'expertise de AIR NORMAND, ATMO Champagne-Ardenne, l'ASPA, ATMO Lorraine Nord, ATMO Franche-Comté, AIRLOR, ATMO Nord Pas de Calais, AIRAQ et ATMO Rhône-Alpes, qui ont mis très rapidement à disposition des filtres pour analyses ainsi que des données complémentaires dans une situation de crise localement très sensible.

La mobilisation des équipes techniques et scientifiques du SIRTA (Site Instrumenté de Recherche par Télédétection Atmosphérique) a permis de collecter des mesures de télédétection d'une qualité exceptionnelle, ce qui fut particulièrement utile en temps réel ainsi que dans l'analyse a posteriori.



## RESUME

A la mi avril 2010, l'Europe a été perturbée par l'éruption du volcan islandais Eyjafjallajokull dont les émissions du nuage de cendres ont entraîné la fermeture de la grande majorité de l'espace aérien d'Europe du Nord pendant plusieurs jours.

La modélisation du panache de cendres, mise en œuvre par l'INERIS et d'autres équipes de modélisation européennes, a permis de prévoir son arrivée dans le nord de la France avec un impact maximal potentiel, dans l'air ambiant, sur le Nord-est, coïncidant avec les épisodes de particules secondaires de nitrate d'ammonium communément observés au printemps. Dans ce contexte, CARA, dispositif de surveillance des PM en France géré par le LCSQA avec l'appui local des AASQA, a été activé afin de répondre à la demande du Ministère de l'Ecologie, de l'Energie, du Développement Durable et de la Mer (MEEDDM) d'évaluer le plus rapidement possible la contribution locale potentielle du nuage de cendres sur la qualité de l'air en France. Pour traiter de cette question, l'INERIS a élaboré une approche combinant trois aspects : des modèles chimie-transport à partir de CHIMERE, des mesures Lidar réalisées sur le plateau de Saclay (Essonne, Institut Pierre Simon Laplace) afin de suivre le passage du nuage dans la couche limite à la verticale de ce point, et des mesures de spéciation chimique des particules au sol en différents sites.

Ce rapport illustre la mise en œuvre de ces trois aspects et montre comment leur synergie a permis d'évaluer l'impact des émissions volcaniques sur la qualité de l'air en France. Il fait suite à un rapport intermédiaire publié en avril 2010, focalisé sur l'activation du dispositif CARA, ainsi que les résultats et conclusions qui ont pu en être tirés.

Le fonctionnement en routine sur l'ensemble de l'année du dispositif CARA, la réactivité et l'efficacité des AASQA ont permis une récupération rapide de filtres d'intérêt et par conséquent d'alimenter quasiment en temps réel l'expertise auprès des pouvoirs publics afin de mettre en place les mesures appropriées.

Le suivi du panache par mesures optiques ainsi que sa modélisation ont permis de localiser les points d'intérêt pour le prélèvement d'échantillons et de faire le lien entre l'éruption islandaise et les pics de PM observés au niveau du sol.

Les analyses réalisées dans le cadre de la présente étude ont révélé un impact des émissions particulaires volcaniques sur la qualité de l'air relativement limité dans l'espace (essentiellement nord-est de la France) et dans le temps (surtout les 18 et 19 avril). Bien que non-négligeable localement, l'apport de cendres volcaniques n'a pas été à l'origine d'une augmentation exceptionnelle des niveaux de PM<sub>10</sub> dans l'air ambiant, restés globalement en deçà de 70 µg.m<sup>-3</sup> en moyenne journalière sur les stations de fond.

Un épisode de nitrate d'ammonium notamment lié aux conditions météorologiques favorables était prévu à cette même période par le système Prev'air et n'a pas eu l'ampleur attendue. La présence de cendres volcaniques dans la couche limite semblerait avoir eu pour conséquence de limiter localement la formation d'aérosols secondaires probablement par le biais d'interactions avec la phase gazeuse

Au-delà de l'évaluation de l'apport du nuage de cendres sur la qualité de l'air, cet évènement a démontré la capacité du dispositif CARA à jouer son rôle d'outil de compréhension des épisodes de pollution en apportant rapidement des éléments d'information y compris lors de situations exceptionnelles. La complémentarité avec les systèmes de modélisation et de prévision numérique de la qualité de l'air mis en œuvre dans le cadre de Prev'air et par l'INERIS a également été établie.

## **1. CONTEXTE**

Le 14 avril 2010, le volcan islandais Eyjafjallajökull entre en éruption. Le jour suivant, le nuage de cendres ainsi émis atteint l'Europe, en haute altitude, entraînant la fermeture de la grande majorité de l'espace aérien d'Europe du Nord pendant plusieurs jours.

La modélisation du panache réalisée par l'INERIS et les équipes de modélisation européennes a permis de prévoir son arrivée dans le nord de la France dès le 16 avril avec un impact maximal potentiel, dans l'air ambiant, sur le Nord-est, simultanément avec les épisodes de pollution particulaire communément observés au printemps (concomitance de situations météorologiques anticycloniques et de certaines activités humaines, notamment les épandages d'engrais).

A la demande du MEEDDM, afin d'évaluer la contribution locale potentielle du nuage de cendres sur la qualité de l'air ambiant en France, l'INERIS a établi sur une approche d'analyse combinant trois aspects :

- 1) des mesures Lidar (réalisées à l'observatoire SIRTA de l'Institut Pierre Simon Laplace<sup>1</sup>) afin de suivre le passage du nuage dans la couche limite,
- 2) des modèles chimie-transport afin de modéliser l'empreinte du panache à la surface (Colette et al., in press)<sup>2</sup>,
- 3) des mesures en air ambiant, à la surface, en différents sites.

Ce rapport présente la mise en œuvre de ces trois aspects, ainsi que les résultats et conclusions qui ont pu en être tirés.

## **2. TROIS SOURCES D'INFORMATION POUR LE SUIVI DU PANACHE**

### **2.1 DES MESURES OPTIQUES : LES LIDARS**

Les LIDARs (Light Detection and Ranging) permettent de détecter à distance des couches d'aérosols atmosphériques, mêmes fines et peu concentrées. Aéroporté (avion ou satellite), il permet d'effectuer des coupes verticales de la composition de l'atmosphère quasi-instantanées. Depuis le sol on peut l'utiliser pour obtenir une coupe espace temps, alors que l'atmosphère défile au dessus du point de mesure.

---

<sup>1</sup> Cf. : <http://sirta.ipsl.polytechnique.fr/>

<sup>2</sup> Le travail de modélisation réalisé pour cette étude est décrit brièvement dans un poster présenté à la conférence de l'European Geophysical Union (Vienne, 2-7 mai 2010) reproduit en Annexe 1 de ce rapport, ainsi qu'à l'IAC et dans une publication scientifique publié dans la revue Atmospheric Environment Colette, A., O. Favez, F. Meleux, L. Chiappini, M. Haeffelin, Y. Morille, L. Malherbe, A. Papin, B. Bessagnet, L. Menut, E. Leoz and L. Rouïl "Assessing in near real time the impact of the April 2010 Eyjafjallajökull ash plume on air quality." Atmospheric Environment **In Press, Corrected Proof**.

Il est en effet difficile d'attribuer à une source distante la responsabilité d'une anomalie observée au sol. Cette difficulté est principalement induite par la présence d'autres sources de pollution pouvant affecter la mesure. La télédétection LIDAR permet de documenter précisément l'intrusion d'une couche d'aérosol depuis la troposphère vers la couche limite alors que les modèles actuels représentent bien le transport de telles couches dans la troposphère libre. Même s'ils sont souvent trop diffusifs, le transport troposphérique étant peu turbulent, on peut envisager de suivre pendant plusieurs jours le transport des couches d'aérosols dans la troposphère. L'utilisation conjointe de la télédétection et de la modélisation du transport troposphérique est donc l'outil le plus approprié pour suivre le transport d'une couche d'aérosols depuis sa source, lors de son transport dans la troposphère libre, et enfin lors de son injection dans la couche limite.

Le Site Instrumenté de Recherche par Télédétection Atmosphérique (SIRTA, <http://sirta.ipsl.polytechnique.fr/>) de l'Institut Pierre-Simon Laplace opère plusieurs LIDARs sur son site de Palaiseau (Essonne). Certains fonctionnent 24/24 toute l'année alors que d'autres, plus perfectionnés, ne peuvent être déployés sans surveillance. Il faut noter que lors de l'épisode d'Avril 2010, c'est grâce à la mobilisation des équipes techniques de l'IPSL qu'il a été possible de conduire des mesures avec l'ensemble de ces outils. En particulier, le LIDAR Nuages Aérosols (LNA) développé afin de restituer les caractéristiques optiques et microphysiques des nuages et des aérosols présents dans la couche limite atmosphérique et dans la troposphère entre 0.1 km et 15 km ainsi qu'un appareil commercial, le LIDAR ALS450, ont été mis en œuvre.

## **2.2 DES OUTILS DE MODELISATION : CHIMERE ET FLEXPART**

Différents modèles furent mis en œuvre pour documenter le transport et l'extension spatiale du panache volcanique (en prévision et a posteriori) et établir un lien sans ambiguïté entre les concentrations en PM mesurées à la surface du sol en France et l'éruption islandaise.

Le modèle CHIMERE (INERIS/CNRS), utilisé quotidiennement pour la prévision de la qualité de l'air en France et en Europe dans Prev'air a été adapté pour fonctionner sur un domaine étendu à l'ouest de l'Islande, et tenir compte d'un nouveau terme source correspondant au volcan, émettant des traceurs passifs en quantité et altitude prescrites par des mesures in-situ et des données de télédétection.

Un second modèle (FLEXPART/NILU) de philosophie complètement différente car reposant sur une approche Lagrangienne fut aussi déployé du fait de sa simplicité et de sa rapidité de mise en œuvre et de sa capacité à étudier le transport à longue distance.

Grâce à ses collaborations internationales et son implication dans les projets Européens tels que MACC (Modelling Atmospheric Composition and Climate), l'INERIS avait par ailleurs un accès privilégié aux travaux en cours de divers partenaires Européens sur ce sujet.

## 2.3 DES MOYENS METROLOGIQUES : LE DISPOSITIF CARA

Le dispositif CARA a été mis en place par le LCSQA (INERIS) suite aux épisodes de pollution par les  $PM_{10}$  du printemps 2007 qui avaient mis en évidence le besoin de compréhension et d'information sur l'origine de ces pics. Basé sur une approche couplée entre la caractérisation chimique des particules (analyse des anions :  $Cl^-$ ,  $NO_3^-$ ,  $SO_4^{2-}$ , et cations :  $Na^+$ ,  $NH_4^+$ ,  $K^+$ ,  $Mg^{2+}$ ,  $Ca^{2+}$ , des fractions de carbone organique OC et élémentaire EC) et la modélisation, ce dispositif mis en œuvre en collaboration avec des AASQA volontaires, consiste à effectuer des prélèvements de particules sur quelques sites en France afin de réaliser une spéciation chimique sur une sélection de ces échantillons (épisodes de forte pollution ou situations de fond d'intérêt), et de confronter les résultats à la modélisation. Il a également permis d'initier des travaux métrologiques et analytiques afin de répondre aux besoins énoncés par la nouvelle directive européenne qui prévoit la mesure de la composition chimique des  $PM_{2.5}$  sur plusieurs sites ruraux en France.

Ayant fonctionné pendant deux ans sur six sites urbains et montré sa capacité à apporter des éléments de réponse à la problématique des origines de PM et à la compréhension des pics de particules survenant en France<sup>3</sup>, il a évolué en 2010 en accord avec les orientations définies par la nouvelle directive européenne (2008/50/CE), en matière de surveillance des particules. Il regroupe aujourd'hui treize sites, présentés sur la figure ci-dessous :

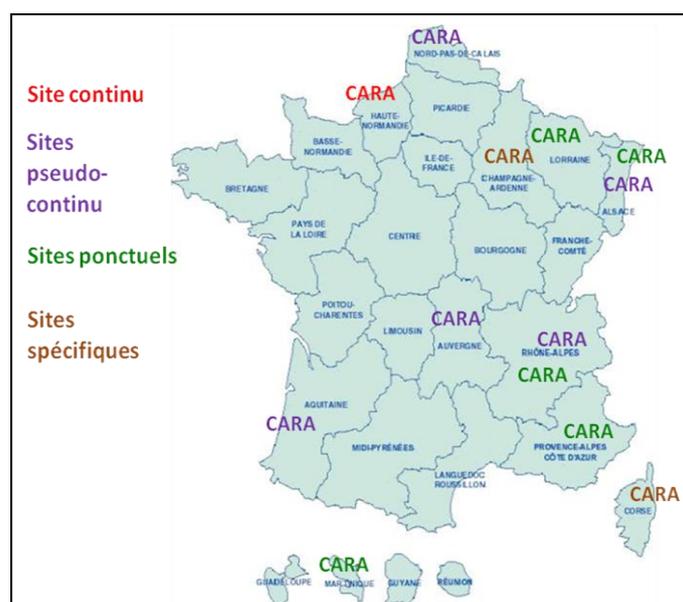


Figure 1 : Répartition des sites intégrés au dispositif CARA

Ces sites sont de typologies différentes et leur mode de fonctionnement varie selon les modalités suivantes :

<sup>3</sup> Rapport LCSQA 2009 : Caractérisation chimique des particules : Bilan des campagnes de mesure de janvier 2008 à janvier 2009, disponible sur : <http://www.lcsqa.org/thematique/metrologie/caracterisation-chimique-des-particules-bilan-des-campagnes-de-janvier-2008-ja>

- 1- un fonctionnement en continu sur un site urbain de façon à prélever en simultané  $PM_{10}$  et  $PM_{2.5}$  sur l'ensemble de l'année,
- 2- un fonctionnement en pseudo continu (les filtres sont prélevés en alternance avec les filtres pour la surveillance des HAP et certains sont choisis pour analyse) sur cinq sites urbains et 2 sites ruraux spécifiques avec analyse des filtres en période de pics ou lors des événements particuliers choisis avec les modélisateurs,
- 3- un fonctionnement ponctuel basé sur des prélèvements réalisés de façon exceptionnelle, en fonction de l'observation et de la prévision de pics de PM par PREV'AIR ou de la sollicitation d'AASQA qui auraient observé en régions des phénomènes particuliers. L'analyse de traceurs supplémentaires tels les métaux ou le lévoglucosan pourraient alors être envisagée en fonction des sites et des épisodes.

Les prélèvements de  $PM_{10}$  et  $PM_{2.5}$  sont réalisés sur des filtres en fibre de quartz par des préleveurs haut-volume DA80 pendant 24 heures (soit  $720 \text{ m}^3$ ).

En pratique, le LCSQA met à disposition les filtres nécessaires et prend en charge le rapatriement (tous les trois mois environ, au maximum) 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 pic de pollution ainsi que d'autres épisodes d'intérêt, définis en commun avec les modélisateurs (situations pour lesquelles les résultats de la modélisation s'écartent des valeurs mesurées ou suscitent des questionnements sur les sources).

Dans le cadre de l'épisode « volcan », l'activation du système (rapatriement des filtres prélevés sur les différents sites des AASQA), a été décidée pour répondre à la situation exceptionnelle.

En plus des sites ainsi disponibles, des prélèvements de particules ont également été réalisés sur le site de l'INERIS à Verneuil en Halatte.

### **3. ANALYSE COMBINEE DU SUIVI DU PANACHE VOLCANIQUE**

#### **3.1 LES DONNEES LIDARS**

Les mesures du Lidar à 532nm du SIRTA sont données sur la Figure 2 pour la période du 16 Avril au 19 Avril 2010. On voit nettement une couche d'aérosol apparaître au dessus de Palaiseau (Essonne) le 16 en fin de journée, puis descendre rapidement avant de stagner à 2km d'altitude pendant près de 48h. A partir de ces seules données, on ne pouvait pas alors conclure à un impact potentiel du panache volcanique sur la qualité de l'air au niveau du sol dès le 16 Avril.

En revanche, à partir du 18 Avril, avec l'augmentation de la profondeur de la couche de mélange (pointillés noirs), on voit nettement que la couche d'aérosol est entrée en contact avec la couche limite, entraînant probablement une dégradation de la qualité de l'air. Nous reviendrons plus loin sur cette dégradation de manière quantitative.

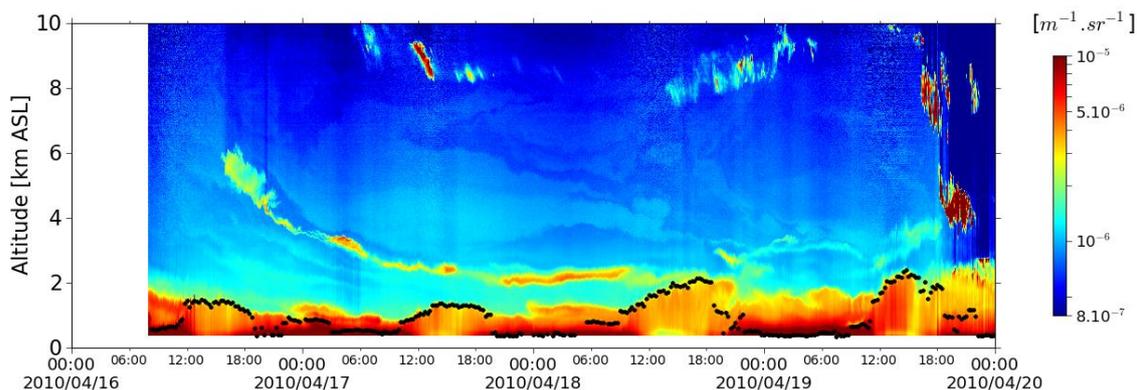


Figure 2 : Coupe temps (abscisse) / altitude (ordonnée) du rapport de rétrodiffusion lidar à 532nm observé depuis le site du SIRTA entre les 16 et 19 Avril 2010. Les masses d'air bleues sont pauvres en aérosols, les nuages (très opaques) sont rouges foncés et le jaune/orangé correspond aux aérosols que ce soit dans la troposphère libre (couche de cendre volcanique) ou dans la couche limite (sous 2km et présentant un cycle diurne prononcé).

### 3.2 LA MODELISATION DU PANACHE

Sont présentés ici les résultats du modèle CHIMERE (Bessagnet et al., 2008) pour les calculs de dispersion du panache volcanique. Ce modèle est déployé quotidiennement par plusieurs organismes dont le LCSQA dans le cadre de la mise en œuvre de PREVAIR<sup>4</sup>, pour effectuer des prévisions de qualité de l'air. La configuration du modèle utilisée ici est très proche du modèle de référence. Le nombre de niveaux verticaux a été porté à 30 pour atteindre 200hPa et mieux représenter la troposphère libre et le domaine géographique a été étendu pour inclure l'Islande.

Un traceur des émissions du volcan a également été ajouté. Ce traceur est « passif » chimiquement et dynamiquement, il est toutefois affecté par le dépôt sec et humide. Il est émis au dessus du volcan en quantité et à l'altitude prescrites par les estimations de la fournies par le Service Hotvolc de l'Université de Clermont-Ferrand ([http://wwwobs.univ-bpclermont.fr/SO/televolc/hotvolc/Islande\\_Avril2010/](http://wwwobs.univ-bpclermont.fr/SO/televolc/hotvolc/Islande_Avril2010/)).

La coupe temps/altitude de la Figure 3 à comparer aux observations lidar de la Figure 2 montre que le modèle capture bien la dynamique du panache : son arrivée en altitude au dessus du site d'observation le 16 en fin d'après-midi, sa rapide subsidence, et son injection dans la couche limite deux jours plus tard. Cette figure confirme les performances du modèle et justifie d'y recourir pour estimer l'empreinte à la surface du panache. On voit celle-ci sur la figure 4 qui donne la concentration moyenne de traceurs en dessous de 1000m. Il apparaît dès lors qu'une grande partie de l'Europe est affectée le 18 Avril par ce panache volcanique et que le nord-est de la France est particulièrement touché.

Ces résultats furent obtenus en temps quasi-réel et nous ont permis d'identifier très rapidement les zones qui seraient les plus touchées. C'est aussi grâce à ces résultats que l'on a pu « extrapoler » l'observation du SIRTA qui montre le panache descendre dans la couche limite mais qui est malheureusement limitée à un point d'observation. Le modèle permet d'avoir une vision globale du panache. Enfin, ces

<sup>4</sup> <http://www.prevoir.org>

résultats de modélisation confirment l'origine volcanique du pic de PM<sub>10</sub> observé pendant cette période. Nous verrons plus loin des preuves expérimentales de cette origine mais les modèles (Chimere « volcan avec la source ponctuelle volcan, Chimere dust, highsplit pour les retro-trajectoires et Flexpart pour la dispersion de panache...) permettent d'éliminer sans ambiguïté d'autres sources telles que les panaches de poussières sahariennes.

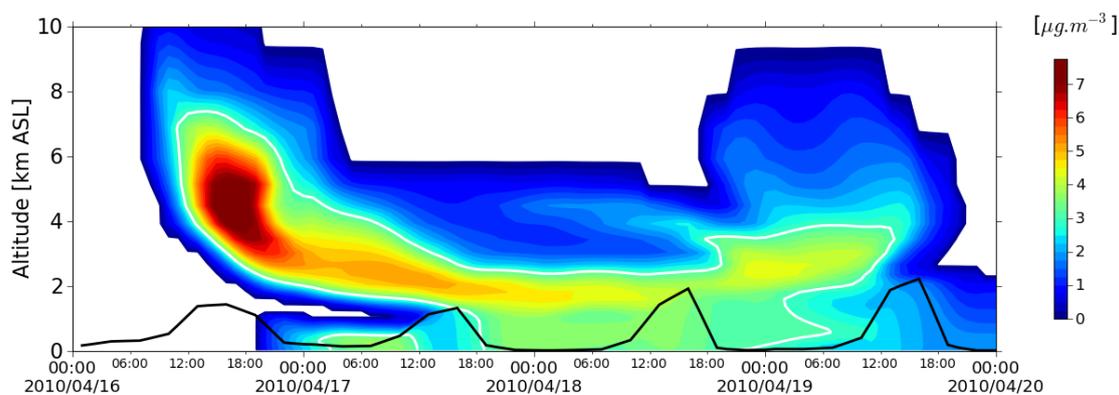


Figure 3 : Concentration de traceurs volcaniques calculée à l'aide du modèle CHIMERE. Coupe temps (abscisse) / altitude (ordonnées) comparable à la visualisation Lidar de la Figure 2.

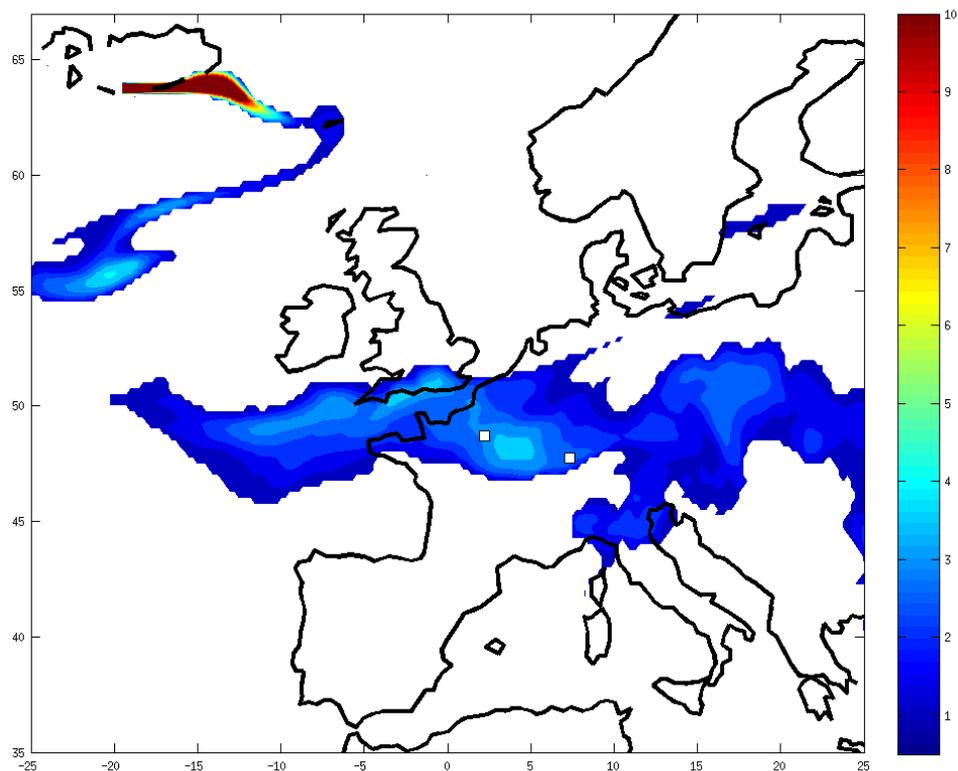


Figure 4 : Concentration de traceurs volcaniques calculée à l'aide du modèle CHIMERE. Moyenne de concentration de traceur volcanique en dessous de 1000m d'altitude le 18 Avril 2010 à 22h00 UT

### **3.3 LA MISE EN ŒUVRE DES MESURES ET DES ANALYSES**

Sur la base des modélisations du panache ainsi que des mesures en continu des concentrations en PM, le rapatriement des filtres prélevés par les AASQA du dispositif CARA du nord de la France identifiées comme étant majoritairement impactées par le passage du panache dans la couche limite, a été déclenché dès le 16 avril, et organisé en urgence le 19 avril pour les filtres prélevés du 15 au 18 avril et dès le 21 pour les filtres prélevés le 19 et le 20 :

- Rouen - Haute Normandie – site urbain
- Revin – Champagne-Ardenne – site rural
- Jonville – Lorraine – site rural
- Mulhouse – Alsace – site urbain

Il a ainsi été possible d'apporter très rapidement, dès le 21 avril, des éléments de réponse sur la composition des particules pouvant potentiellement provenir du nuage de cendres et sa contribution aux niveaux de PM<sub>10</sub> mesurés.

Pour ce faire, les paramètres suivants ont été considérés au niveau de stations situées dans les régions précédemment citées et les analyses suivantes ont été réalisées sur les filtres :

- 1- Mesures automatiques en continu des concentrations en PM<sub>10</sub>, PM<sub>2.5</sub>, PM<sub>10</sub> non volatiles et SO<sub>2</sub> ;
- 2- Exercice de fermeture chimique : Analyses chimiques couramment réalisées dans le cadre de CARA (anions et cations, EC/OC) ;
- 3- Analyses supplémentaires, recherche de traceurs spécifiques : certains métaux (notamment Al, Fe et Ti), ainsi que l'acide fluorhydrique (HF). Ce dernier composé n'a cependant pas été retenu comme marqueur intéressant dans le cadre de cette étude car les analyses réalisées sur les premiers filtres reçus à l'INERIS (filtres échantillonnés à Rouen, Revin et Mulhouse du 16 au 19 avril) ont indiqué des concentrations globalement inférieures au seuil de détection (~160 µg/filtre).

## **4. RESULTATS**

### **4.1 MESURES AUTOMATIQUES**

De premières informations sur les zones potentiellement influencées par les émissions volcaniques ont pu être obtenues à l'aide des mesures automatiques réalisées par les AASQA sur l'ensemble du territoire. En particulier, les mesures de PM<sub>10</sub> non volatile (par TEOM non équipé de module FDMS) et de SO<sub>2</sub> sur les sites de fond se sont révélées être de bons indicateurs spatio-temporels. Comme indiqué par les figures ci-dessous, l'impact principal au sol du nuage de cendres volcaniques sur la qualité de l'air a été limité à la partie nord-est de la France et à la période comprise entre le 18 et le 20 avril.

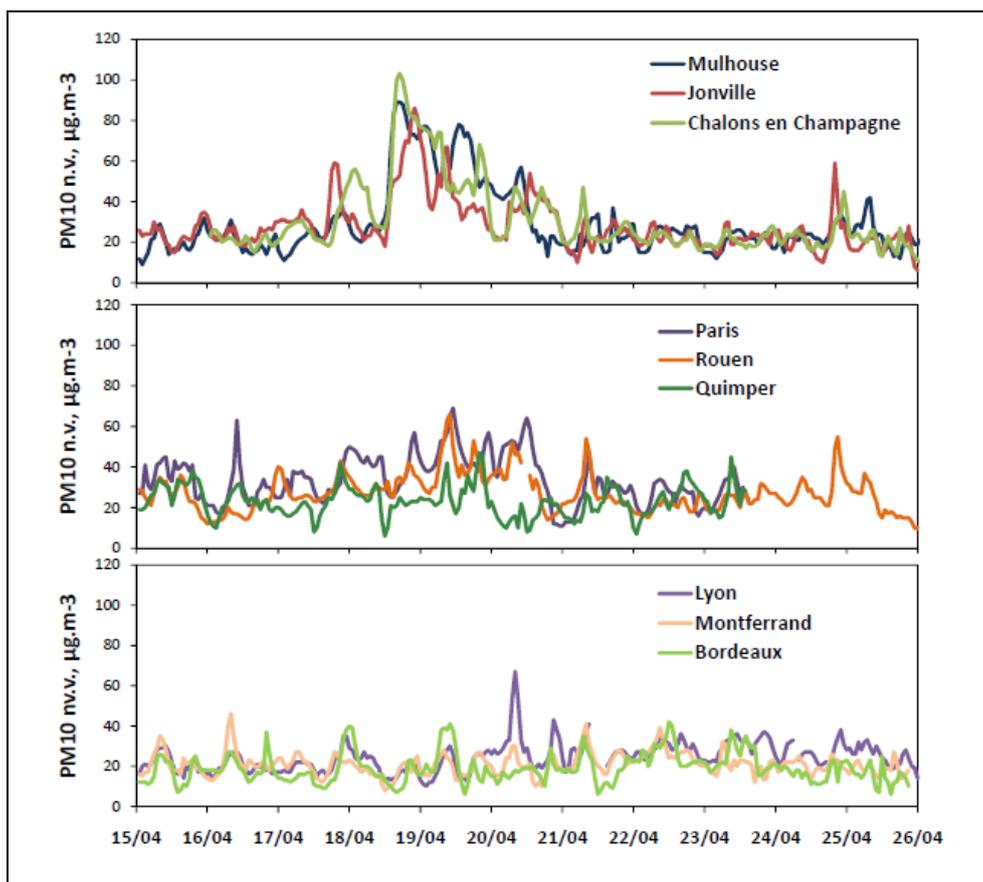


Figure 5: Evolution temporelle des concentrations de  $PM_{10}$  non volatile (données TEOM, moyennes horaires) sur 9 stations de fond françaises. L'augmentation significative de ces concentrations entre le 18 avril après-midi et le 20 avril suggère un impact non négligeable des émissions volcaniques (de nature essentiellement non volatiles) dans le quart nord-est. Une augmentation de moindre ampleur de ces concentrations est également à noter dans le quart nord-ouest. Données BDQA et AASQA.

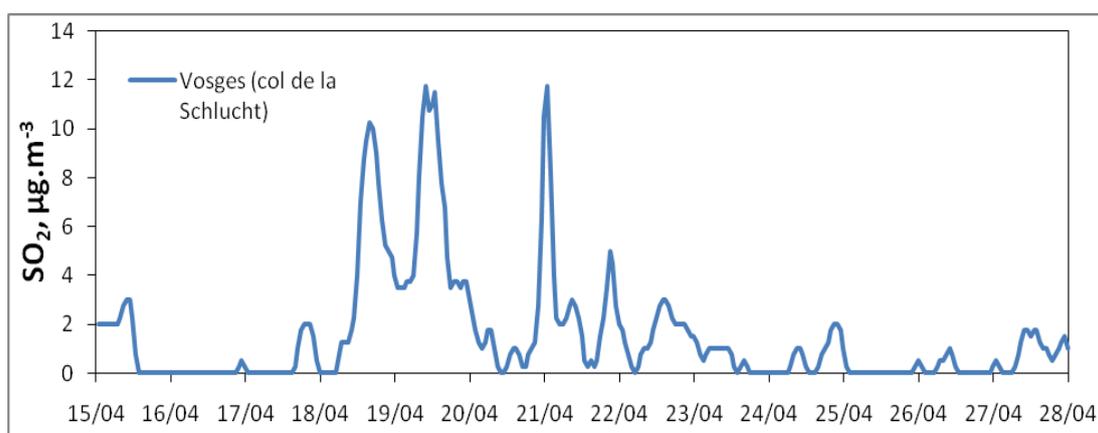


Figure 6 : Suivi des concentrations de  $SO_2$  sur la station du Col de la Schlucht (située à plus de 900m d'altitude). Les fortes concentrations mesurées entre le 18 et le 21 avril 2010 peuvent être attribuées au passage du panache volcanique. Données BDQA et AASQA.

Cette analyse a été confirmée *a posteriori* par un travail de cartographie réalisé à partir des données de PM<sub>10</sub> non volatiles obtenues sur l'ensemble des sites de fond français. Les résultats de cet exercice de cartographie pour la période du 17 au 20 avril 2010 sont présentés sur la Figure 7.

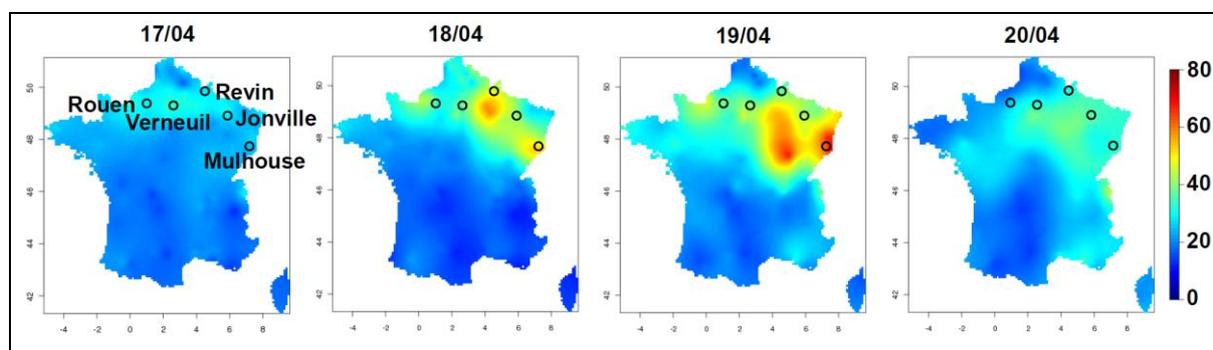


Figure 7: Cartographies des concentrations journalières en PM<sub>10</sub> non volatiles (en  $\mu\text{g}\cdot\text{m}^{-3}$ ) entre le 17 et le 20 avril 2010, réalisées à partir des données TEOM obtenues sur plus de 150 stations de fond (rural et urbain). Cartographie INERIS à partir des données de la BDQA.

Une incertitude relativement importante est associée aux résultats obtenus pour la zone « Sud Champagne-Ardenne / Nord Bourgogne » en raison du faible nombre de points de mesure disponibles pour ces régions. A contrario, une plus grande confiance peut notamment être accordée aux résultats obtenus pour la zone « Bas-Rhin ». Les sites pour lesquels des résultats relatifs à la composition chimique des PM<sub>10</sub> étaient disponibles dès le 21 avril (4 sites appartenant au dispositif CARA et le site de l'INERIS à Verneuil en Halatte) sont présentés sur la carte correspondant au 17 avril.

Il est également à noter que les mesures de PM<sub>2.5</sub> réalisées en parallèle des mesures de PM<sub>10</sub> indiquent que cette composante non-volatile supplémentaire se trouve majoritairement dans la fraction grossière de la phase particulaire (cf. Annexe 1), tendant à confirmer un possible impact non négligeable des émissions volcaniques dans la partie nord-est de la France autour du 19 avril.

## 4.2 EXERCICES DE FERMETURE CHIMIQUE

Les analyses chimiques classiquement réalisées dans le cadre du dispositif CARA (détermination de EC, de OC et des principales espèces ioniques) permettent de réaliser un bilan de masse des concentrations totales en PM<sub>10</sub> mesurées par TEOM-FDMS et de déterminer leurs sources principales. Une comparaison des premiers résultats obtenus avec des épisodes de pollution observés au mois d'Avril 2009 est présentée pour les sites de Rouen et Mulhouse (Figure 8).

A Rouen, une augmentation de l'ordre de 10% de la part des espèces non volatiles (obtenue par différence entre mesures TEOM-FDMS et mesures TEOM, parties noires diagrammes de gauche) ainsi que de la part des espèces non carbonées et insolubles (parties blanches sur les diagrammes de droite) est observée pour l'épisode d'avril 2010 par rapport à celui de la même époque, l'année précédente (avril 2009). Pour Mulhouse cette augmentation s'élève à environ 30% en moyenne pour les 18 et 19 avril 2010.

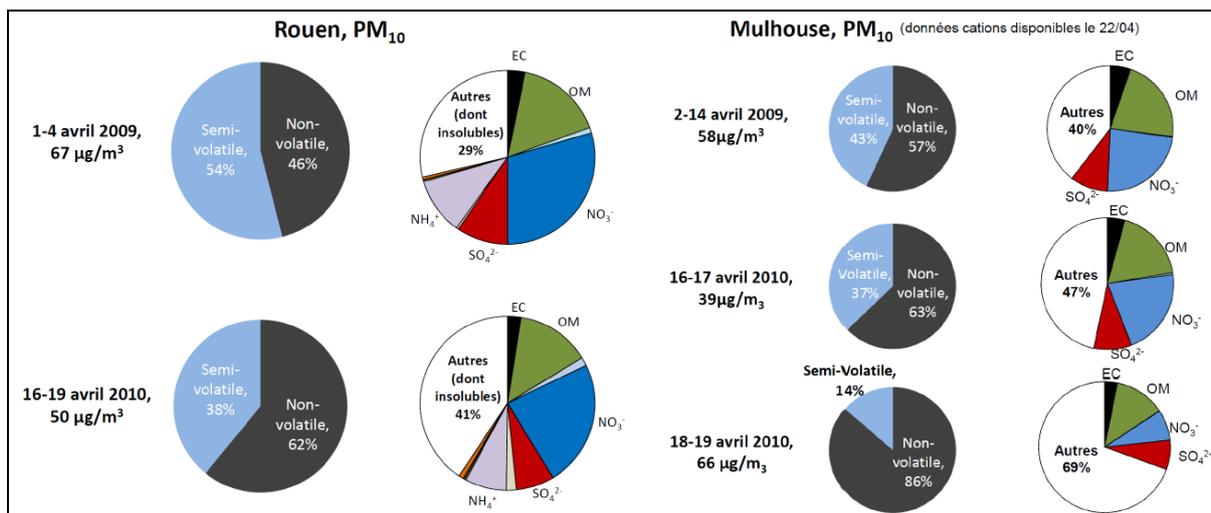


Figure 8 : Exercices de fermeture chimique à Rouen et Mulhouse au cours des mois d'avril 2009 et 2010.

Ces résultats indiquent la présence d'une part anormalement importante de la fraction non volatile, non carbonée et insoluble à la mi-avril 2010, en particulier à Mulhouse. Ils suggèrent ainsi une forte augmentation des concentrations de particules terrigènes, potentiellement d'origine volcanique, à Mulhouse. Cette hypothèse a été validée par les résultats obtenus par analyse de métaux (cf. paragraphe 4.3 ci-dessous) permettant une première estimation, dès le 21 avril, de la contribution des cendres volcaniques, de l'ordre de 10% des PM<sub>10</sub> à Rouen et de 30% des PM<sub>10</sub> à Mulhouse les 18 et 19 avril. Ces résultats ont été complétés et confirmés par la suite à l'aide des analyses réalisées sur les filtres collectés sur les autres sites et à des dates ultérieures, comme indiqué sur les Figure 9 et Figure 10.

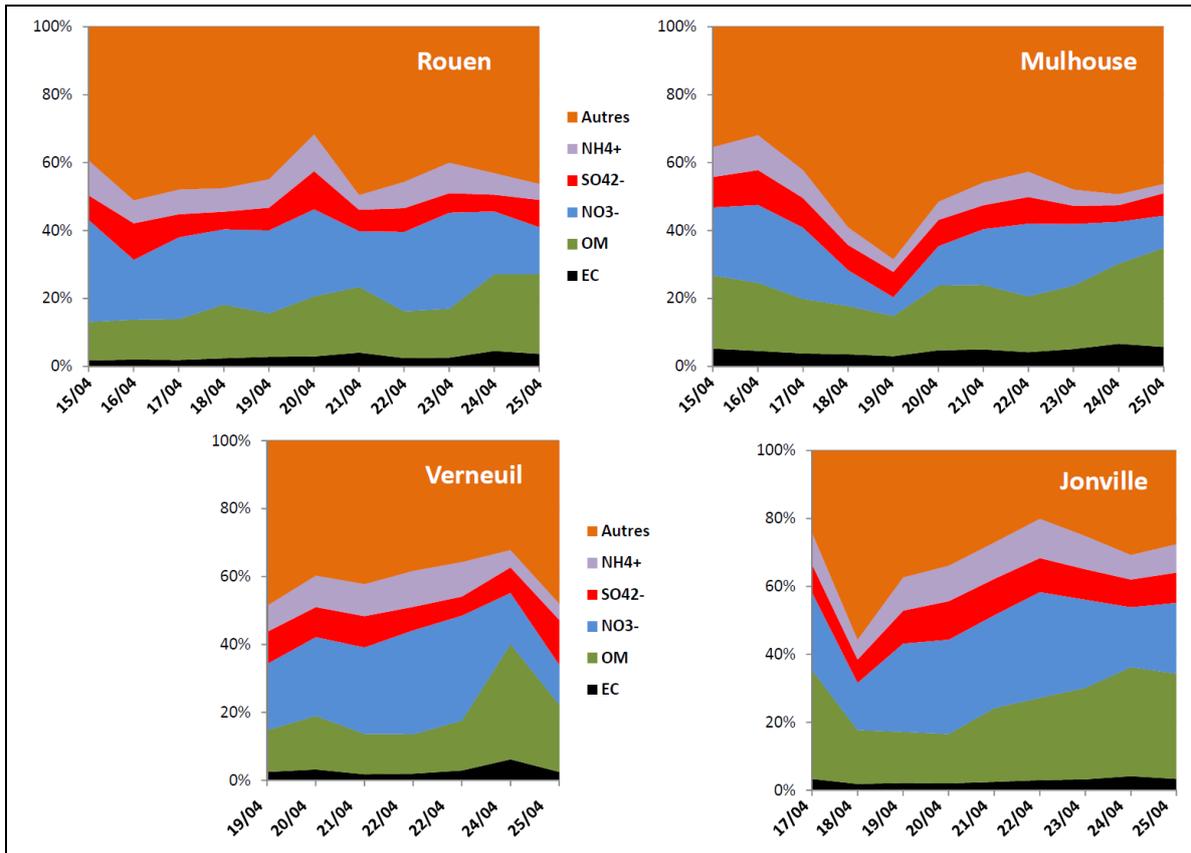


Figure 9 : Exercices de fermeture chimique des  $PM_{10}$  à Rouen, Mulhouse, Verneuil et Jonville au cours du mois d'avril 2010

Ces résultats confirment l'augmentation significative (environ 30%) de la part des espèces non carbonées et insolubles dans l'Est de la France (sites de Jonville et Mulhouse) les 18 et 19 avril. Des augmentations moins importantes sont observées à Verneuil (environ 15%) et Rouen (environ 10%). Un impact de faible ampleur (<10%) des émissions volcaniques sur les concentrations en  $PM_{10}$  est également à envisager les 24 et 25 avril 2010. En raison de souci technique sur le TEOM-FDMS, ce type d'exercice n'a pu être réalisé pour le site de Revin.

#### 4.3 ANALYSES SUPPLEMENTAIRES, RECHERCHE DE TRACEURS SPECIFIQUES (METAUX : AL, FE, TI ...)

Etant donné la nature minérale des cendres volcaniques, des analyses de métaux ont été réalisées sur les échantillons prélevés dans le cadre de cette étude. La Figure 10 présente les résultats obtenus pour l'aluminium, le fer et le titane, pour lesquels une augmentation significative a pu être observée entre le 18 et le 20 avril 2010.

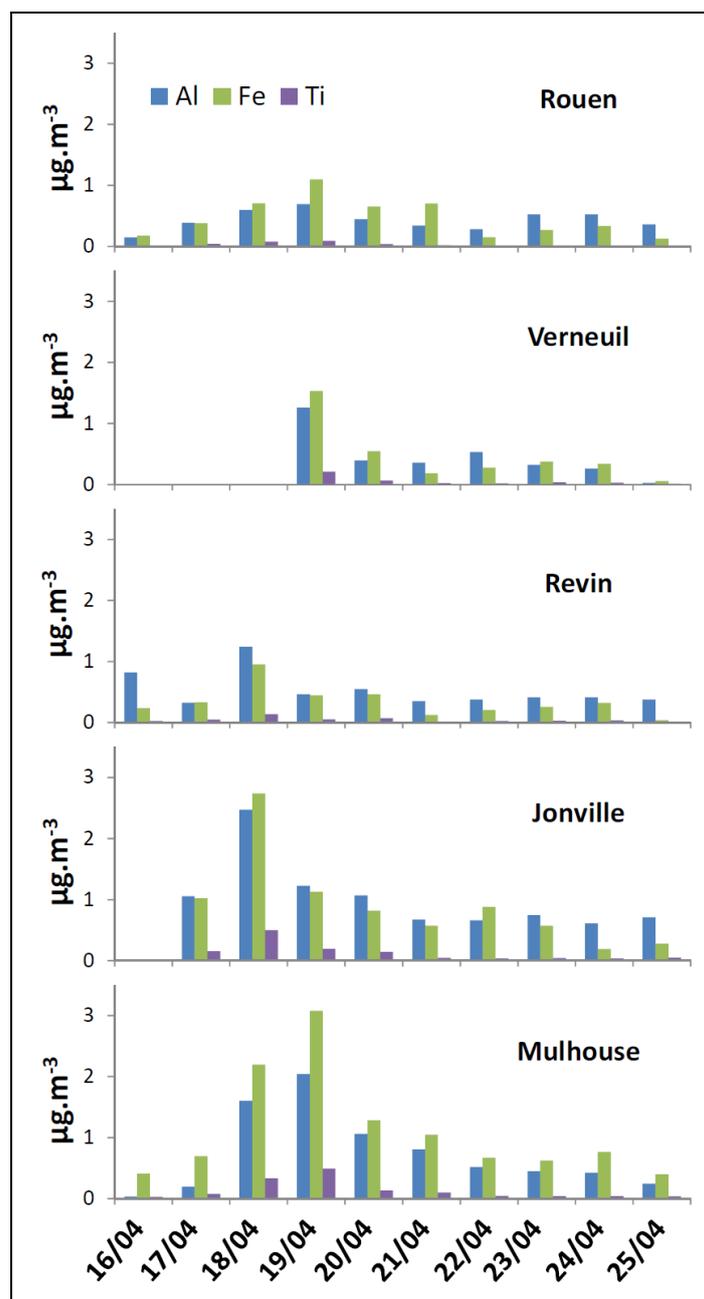


Figure 10: Suivi des concentrations en Aluminium (Al), Fer (Fe) et Titane (Ti) au cours de la deuxième quinzaine entre le 16 et le 25 Avril 210 sur les sites de Rouen, Verneuil, Revin, Jonville et Mulhouse.

Chacun des trois métaux étudiés ici sont présents dans les cendres volcaniques émises lors d'une éruption volcanique. Selon l'institut Islandais des sciences de la Terre<sup>5</sup> (*Icelandic Institute of Earth Sciences / Nordic Volcanic Center*), ils représentent respectivement 8,3%, 7,5% et 1,0% des émissions particulières du volcan Eyjafjallajökull autour du 15 avril 2010.

<sup>5</sup> N., 2010, Eruption in Eyjafjallajökull, Chemical composition, Icelandic Institute of Earth Sciences, Nordic Volcanological Center, <http://www2.norvol.hi.is/page/IES-EY-CEMCOM>

Il convient de souligner que ces analyses significatives de particules primaires naturelles d'origine crustale (croûte terrestre) auraient également pu provenir de transport à longue distance de poussières désertiques. De tels épisodes n'étant pas survenus pendant toute cette période (paragraphe 3.2), le profil de la charge particulaire peut donc être attribué à la seule présence de cendres volcaniques.

A partir de ces informations et de l'estimation des excédents de concentrations en Al, Fe et Ti pouvant être liés à la présence de cendres, il a été possible de réaliser une estimation de l'impact des émissions volcaniques sur les concentrations en PM<sub>10</sub> observées dans le nord de la France (avec une incertitude de l'ordre de 50%). Pour ce faire chacun des trois éléments a été considéré comme un traceur des particules volcaniques et une concentration globale de ces particules a été déterminée comme la moyenne des résultats obtenus à partir de ces trois éléments. L'impact moyen des émissions volcaniques pour les 18 et 19 avril a ainsi été estimé à environ :

- 5 µg.m<sup>-3</sup> en Haute-Normandie,
- 10 µg.m<sup>-3</sup> en Picardie et Champagne-Ardenne,
- 20 µg.m<sup>-3</sup> en Lorraine,
- et 25 µg.m<sup>-3</sup> en Alsace.

Ces concentrations sont en bon accord avec les résultats et interprétations scientifiques exposés dans les paragraphes 4.1 et 4.2.

Il est également à noter que des analyses supplémentaires indiquent des concentrations de cendres volcaniques de l'ordre de 5 µg.m<sup>-3</sup> à Lens les 18 et 19 avril, et à Lyon le 20 Avril..

## **5. POUR ALLER PLUS LOIN**

### **5.1 ETUDE DES RETOMBÉES ATMOSPHERIQUES**

Afin de quantifier les éventuels dépôts atmosphériques secs (sédimentation des particules) et humides (lessivage par les précipitations) liés aux émissions du volcan, des jauges de collecte des retombées atmosphériques ont été placées en urgence en fin du mois d'avril par différentes AASQA et sur le site de l'INERIS. Ces jauges répondent aux normes NF X43-014 2003; NF EN 15841, 2010.

Ces jauges ont été analysées par l'INERIS (ICP-OES) afin de rechercher les métaux traceurs Al, Fe et Ti et évaluer ainsi les pertes par déposition et en particulier le lessivage du nuage de poussières volcaniques.

La majorité des jauges n'ont été exposées sur le terrain que quelques jours afin de récupérer uniquement les retombées atmosphériques potentiellement impactées par les poussières volcaniques.

Pour le site de Verneuil-en-Halatte, une première jauge a été retirée le 26 avril 2010 avant l'arrivée de précipitations afin d'évaluer les dépôts secs. Une seconde a été mise en place le vendredi 30 avril 2010 au matin, des précipitations étaient prévues pour la journée et la fin de semaine à venir. Elle a été retirée le 05 mai 2010 et représente donc le dépôt humide. Les deux dernières jauges sont restées sur le site de l'INERIS à Verneuil pendant un mois.

Le tableau ci-dessous présente les résultats d'analyses des métaux dans les retombées atmosphériques collectées en Champagne-Ardenne, Alsace, Normandie, Pays de la Loire et Picardie.

Tableau 1 : Flux de dépôt de métaux ( $\mu\text{g}/\text{m}^2/\text{jour}$ ) – retombées atmosphériques collectées quelques jours après « l'épisode volcan »

Lieu / dates d'exposition	Al	Ba	Fe	S	Sr	Ti	Zr
ASPA 30/04- 03/05/10	184	<LD	155	1200	<LD	9	<LD
CA Reims 30/04- 03/05/10	206	22	337	2612	79	13	<LD
CA Bethenville 30/04- 03/05/10	639	60	664	2855	64	46	<LD
Sarthe 30/04- 02/05/10	1571	30	1685	5622	39	144	<LD
Sarthe 30/04- 02/05/10	1469	28	1583	2772	35	0	<LD
AN Rouen 30/04- 03/05/10	293	47	395	3192	16	0	<LD
Verneuil 20- 26/04/10 (dépôt sec)	137	<LD	98	62	<LD	7	<LD
Verneuil 30/04- 03/05/10	76	<LD	92	303	<LD	22	<LD
Verneuil 20/04- 21/05/10	6	<LD	5	12	<LD	1	<LD
Verneuil 20/04- 21/05/10	9	<LD	7	12	<LD	<LD	<LD

Pour ce qui est des retombées atmosphériques de métaux ici recherchés, aucune valeur de dépôts représentative du bruit de fond régional de ces métaux n'est

disponible. Il aurait été pertinent de mettre en place des jauges dès le début de l'épisode en prévision d'éventuelles précipitations.

Il est cependant possible de constater que les flux de métaux mesurés pendant quelques jours sont tous largement supérieures aux valeurs correspondant aux prélèvements d'un mois.

Ainsi, malgré le manque de précision de ces résultats, il semblerait qu'il y ait eu une augmentation ponctuelle des concentrations en métaux traceurs au cours des jours qui ont suivi l'arrivée du panache volcanique sur la France.

Même s'ils ne permettent pas de tirer de conclusions rigoureuses sur l'impact des poussières volcaniques sur les dépôts atmosphériques ayant suivi l'épisode, ce travail a permis d'éprouver ce type de méthode de mesure et de préparer d'éventuels futurs épisodes en les intégrant dans les moyens métrologiques à déployer pour répondre aux questionnements posés par ces situations de crise.

## 5.2 L'UTILISATION DU MEB

Dès l'annonce de l'arrivée du panache sur la France, non seulement le dispositif CARA a été déclenché, mais des mesures de PM ont également été réalisées sur le site de l'INERIS à Verneuil. Ainsi, des prélèvements ont pu être effectués sur les filtres en polycarbonates, analysables en Microscope Electronique à Balayage, MEB, les filtres en Quartz du dispositif CARA n'étant pas adaptés.

Les diagrammes ternaires ci-dessous, positionnent l'intégralité des particules dans le triangle des trois composantes majoritaires des cendres volcaniques : Si/Al/Fe. et présentent les résultats d'analyse de deux filtres prélevés le jour du passage du panache de cendres dans la couche limite et quelques jours plus tard.

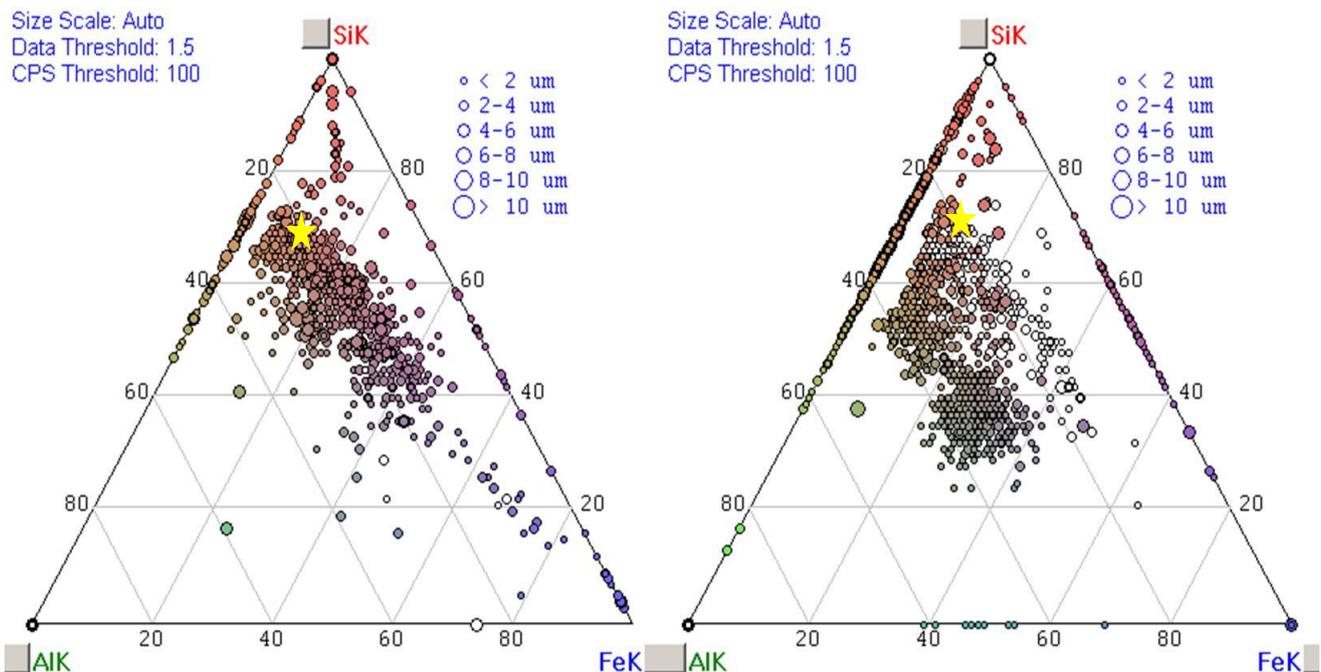


Figure 11 : Diagrammes ternaires Si-Fe-Al : le jour de l'impact (19/04/2010, à gauche, et après l'impact (21/04/2010, à droite) L'étoile jaune représente la composition théorique des cendres telle que mesurées à proximité du volcan

Le nombre de particules contenant une proportion significative ( $> 8\%$  atomiques) de silicium (élément majoritaire dans les cendres et scories) passe de  $77\%$  le 19/04/2010, à  $29\%$  le 21/04/10.

Le 19/04/10, ces particules ont une composition proche de celle des cendres et scories du volcan (représentée par une étoile jaune sur la figure), alors que le 21/04/10 elle s'en éloigne significativement (décroissance du fer, augmentation de l'aluminium : caractéristique de poussières telluriques).

Cette même technique de mesure a été mise en œuvre lors de mesures aéroportées.

### 5.3 DES MESURES AEROPORTEES

Un vol instrumenté sur l'avion ATR 42 de l'équipe SAFIRE a été organisé le 12/05/2010 au large de La Corogne (Espagne) afin de caractériser le panache (Figure 12).



Figure 12 : Vues extérieures et intérieures de l'ATR 42 SAFIRE

Des instruments de comptage optique des particules, de mesure de distribution granulométrique mais également de prélèvements sur filtres et sur grilles MET ont été embarqués à bord de l'avion et mis en œuvre par l'INERIS.

Les résultats d'analyse des particules au MEB sont présentés ci-dessous.

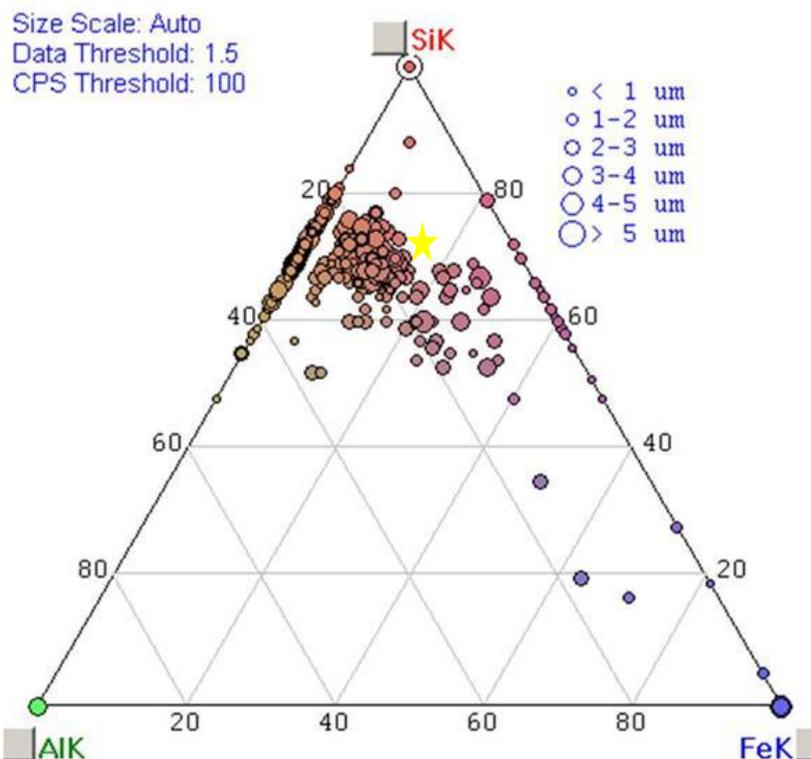
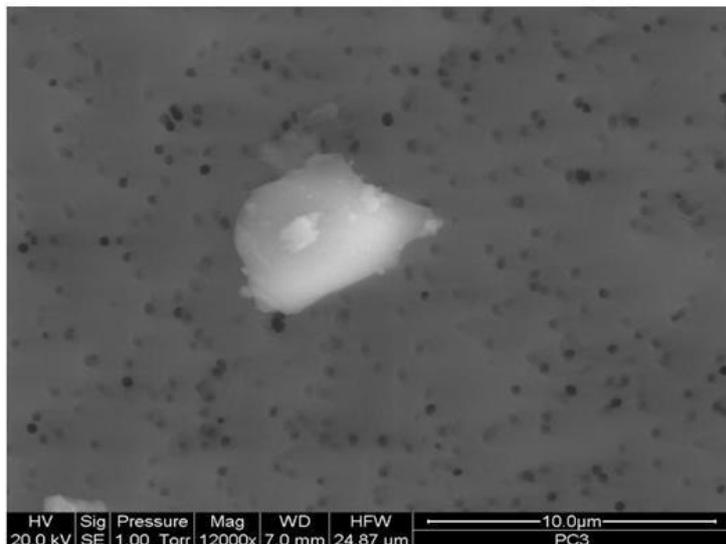


Figure 13 : Particule prélevée dans le panache (vue MEB) à gauche et diagramme ternaire Si-Fe-Al à l'intérieur du panache à droite. L'étoile jaune représente la composition théorique des cendres telle que mesurées à proximité du volcan

Il est ainsi possible de constater qu'une large majorité des particules possède une composition voisine de la composition des cendres volcaniques prélevées à proximité du volcan le 15/04/10 juste après le début de l'éruption. Cette composition est représentée par une étoile jaune sur la Figure 13 et la composition de la plupart des particules analysées gravite autour d'elle.

Par ailleurs, quelques clichés de particules ont été réalisés et leur morphologie évoque des fragments de verres amorphes, que l'on peut retrouver dans les cendres volcaniques.

Enfin, des lames de microscope sur lesquelles des pollens ont été récupérés par Atmo Champagne Ardenne, ont fait l'objet d'analyses MEB. En raison du traitement nécessaire aux analyses de pollens et du grand nombre de particules de nature diverse prélevé sur les lames, les images obtenues sont peu probantes.

## 5.4 BILAN

Dans le contexte de cet épisode, la mise en œuvre de ces moyens de mesure (déploiement de préleveurs supplémentaires sur le site de l'INERIS, mesures MEB, participation à des campagnes aéroportées, a permis d'apporter des éléments de réponse supplémentaires aux analyses des filtres fournis par le dispositif CARA, de consolider les bases de nos moyens techniques et humains et de ce fait d'améliorer notre capacité d'anticipation et de réaction à des épisodes exceptionnels nécessitant d'apporter rapidement des informations aux pouvoirs publics.

## 6. CONCLUSIONS

La survenue soudaine de cet épisode exceptionnel présentant des enjeux économiques et potentiellement sanitaires a nécessité d'apporter rapidement des réponses objectives aux pouvoirs publics sur l'impact du nuage de cendres sur les niveaux de PM en France. La réactivité de l'INERIS et sa capacité à mettre en œuvre de manière concertée un ensemble de moyens d'évaluation fiables et appropriés ont permis d'apporter ces réponses en temps quasi-réel pour le suivi de la crise. Il est ainsi important de noter l'efficacité du travail en réseau pour obtenir ces résultats. L'INERIS a logiquement travaillé en étroite collaboration avec les AASQA (notamment pour la récupération rapide des filtres de mesure PM) mais également avec les équipes scientifiques nationales (SIRTA, Météo France, SAFIRE) et internationales (NILU<sup>6</sup>, ECMWF<sup>7</sup>).

Les analyses combinées réalisées dans le cadre de la présente étude indiquent que l'impact des émissions particulaires volcaniques sur la qualité de l'air a été relativement limité dans l'espace (essentiellement nord-est de la France) et dans le temps (surtout 18 et 19 avril). Bien que non-négligeable localement, l'apport de cendres volcaniques n'a pas été à l'origine d'une augmentation exceptionnelle des niveaux de PM<sub>10</sub> dans l'air ambiant. Ceux-ci sont globalement restés en deçà de 70 µg.m<sup>-3</sup> en moyenne journalière sur les stations de fond, alors qu'un épisode de pollution particulaire, lié notamment aux conditions climatiques et à la formation d'aérosols secondaires, était prévu.

Il est à noter que la présence de cendres volcaniques dans la couche limite semble même avoir eu pour conséquence de limiter localement la formation d'aérosols secondaires par le biais d'interactions avec la phase gazeuse. Cette dernière hypothèse reste néanmoins à vérifier au travers d'analyses complémentaires.

Au-delà de l'évaluation de l'apport du nuage de cendres sur la qualité de l'air ambiant, cet évènement a démontré l'efficacité du centre ministériel de veille opérationnelle et d'alerte, la synergie des trois compétences, télédétection, modélisation et métrologie et leur capacité à jouer leur rôle d'outil de gestion des épisodes de pollution en apportant rapidement des éléments de compréhension lors d'une situation exceptionnelle. Par ailleurs, la gestion de cet épisode a également permis de consolider les bases de nos moyens techniques et humains afin de répondre encore plus rapidement et plus efficacement à d'éventuelles alertes exceptionnelles à venir.

## 7. BIBLIOGRAPHIE

Bessagnet, B., L. Menut, G. Curci, A. Hodzic, B. Guillaume, C. Liousse, S. Moukhtar, B. Pun, C. Seigneur and M. Schulz (2008). "Regional modeling of carbonaceous aerosols over Europe—focus on secondary organic aerosols." Journal of Atmospheric Chemistry **61**(3): 175-202.

---

<sup>6</sup> NILU, Norwegian Institute for Air research, [http://www.nilu.no/index.cfm?lan\\_id=3](http://www.nilu.no/index.cfm?lan_id=3)

<sup>7</sup> ECMRWF, European Centre for Medium-Range Weather Forecasts, <http://www.ecmwf.int/>,

Colette, A., O. Favez, F. Meleux, L. Chiappini, M. Haeffelin, Y. Morille, L. Malherbe, A. Papin, B. Bessagnet, L. Menut, E. Leoz and L. Rouil "Assessing in near real time the impact of the April 2010 Eyjafjallajökull ash plume on air quality." Atmospheric Environment **In Press, Corrected Proof**.

Colette, A., O. Favez, F. Meleux, L. Chiappini, M. Haeffelin, Y. Morille, L. Malherbe, A. Papin, B. Bessagnet, L. Menut, E. Leoz and L. Rouil (in press). "Assessing in near real time the impact of the April 2010 Eyjafjallajökull ash plume on air quality." Atmospheric Environment **In Press, Accepted Manuscript**.

NF EN 15841 (2010). "Qualité de l'air ambiant - Méthode normalisée pour la détermination des dépôts d'arsenic, de cadmium, de nickel et de plomb." janvier 2010.

NF X43-014 (2003). "Qualité de l'air - Air ambiant - Détermination des retombées atmosphériques totales - Échantillonnage - Préparation des échantillons avant analyses." Novembre 2003.

#### Liste des annexes

<b>Repère</b>	<b>Désignation</b>	<b>Nombre de pages</b>
ANNEXE 1	Poster présenté à l'European Geophysical Union (Vienne, 2-7 mai 2010)	2
ANNEXE 2	Article paru dans la revue Atmospheric Environment	5



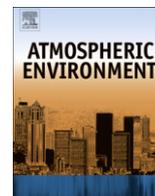






Contents lists available at ScienceDirect

## Atmospheric Environment

journal homepage: [www.elsevier.com/locate/atmosenv](http://www.elsevier.com/locate/atmosenv)

## Short communication

## Assessing in near real time the impact of the April 2010 Eyjafjallajökull ash plume on air quality

Augustin Colette<sup>a,\*</sup>, Olivier Favez<sup>a</sup>, Frédéric Meleux<sup>a</sup>, Laura Chiappini<sup>a</sup>, Martial Haeffelin<sup>b</sup>, Johann Morille<sup>c</sup>, Laure Malherbe<sup>a</sup>, Arnaud Papin<sup>a</sup>, Bertrand Bessagnet<sup>a</sup>, Laurent Menut<sup>c</sup>, Eva Leoz<sup>a</sup>, Laurence Rouil<sup>a</sup>

<sup>a</sup> INERIS, BP2, 60550 Verneuil-en-Halatte, France<sup>b</sup> Institut Pierre-Simon Laplace, CNRS, Ecole Polytechnique, 91128 Palaiseau Cedex, France<sup>c</sup> Laboratoire de Météorologie Dynamique, Institut Pierre-Simon Laplace, CNRS, Ecole Polytechnique, 91128 Palaiseau Cedex, France

## ARTICLE INFO

## Article history:

Received 16 June 2010

Received in revised form

27 September 2010

Accepted 29 September 2010

## Keywords:

Air quality

Eyjafjallajökull

Long range transport

Lidar remote sensing

Chemistry transport modelling

## ABSTRACT

The eruption of the Eyjafjallajökull in April 2010 led to the injection in the troposphere of an important quantity of volcanic ash whose advection towards densely populated areas raised serious concerns regarding potential impacts on air quality. Here we investigate to what extent air quality in France was altered using exclusively quantitative data that was available in near real-time. We rely on a combination of atmospheric dispersion modelling, ground-based remote sensing, and chemical characterization of airborne particles. One week after the onset of the eruption we were able to conclude that the Eyjafjallajökull ash plume was locally responsible for an increase of up to  $30 \pm 10 \mu\text{g m}^{-3}$  of total PM<sub>10</sub> (particulate matter finer than 10  $\mu\text{m}$ ) that reached  $65 \mu\text{g m}^{-3}$  on 18 and 19 April 2010. The methodology presented in this letter offers promising perspectives in terms of emergency response strategy when facing such unforeseen atmospheric dispersion events.

© 2010 Elsevier Ltd. All rights reserved.

## 1. Introduction

In the first days of the eruption, the Eyjafjallajökull plume presented an unusual load of fine volcanic ash, smaller in size than 10  $\mu\text{m}$  (Thordarson, 2010). Such particles do not settle gravitationally as fast as very coarse ash, and can thus be transported over long distances. Their long range transport is favoured by anticyclonic meteorological conditions – as were observed during that period – when wet deposition of aerosols is limited. In addition, PM<sub>10</sub> are known to have a detrimental impact on health (Pope and Dockery, 2006). There is evidence of past Icelandic eruptions affecting human health in Western Europe, the Laki 1783 eruption being perhaps the most dramatic of such events (Grattan et al., 2003).

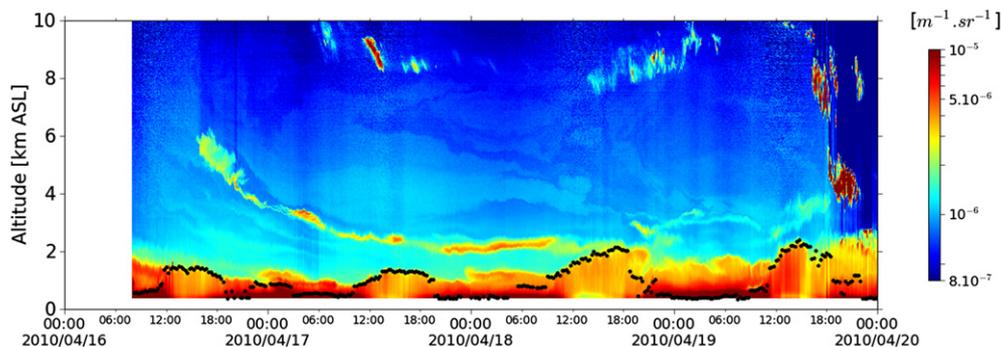
The Eyjafjallajökull April 2010 plume constitutes a textbook example of long range transport of trace species in the atmosphere (Stohl, 2001). The fact that the plume affected areas densely covered by a variety of monitoring instruments (Pappalardo and Mattis, 2010; Schumann et al., 2010; Baltensperger et al., 2010) probably makes this event one of the most documented atmospheric long range transport case studies to date. In addition, this plume

presented a clear microphysical and chemical signature so that it could be discriminated amongst background trace species in the planetary boundary layer (PBL) whereas this discrimination is notoriously difficult in the context of long range transport of ubiquitous trace species (Colette et al., 2007).

To illustrate the challenges of assessing in near real-time the impact of such an unforeseen event, we choose to rely exclusively on elements that were available in the course of the episode. The structure of the paper reflects the chronology in which these elements became available for decision making. A special focus is given to impacts in France as – unfortunately – most existing operational near real-time air quality monitoring procedures were designed at the national level. The detection of the ash plume by means of ground-based remote sensing constituted the first hint of a possible impact on air quality as the altitude of the plume was decreasing in time above the observatory. The implementation of dedicated forecasts based on an operational chemistry and transport model confirmed the expected intrusion of volcanic ash at the surface. Meanwhile, an emergency air quality monitoring procedure was activated to document the event by means of fast track analysis of filters collected at surface stations. This analysis of in-situ measurements led us to conclude within a few days about the actual impact of the ash plume on air quality.

\* Corresponding author. Tel.: +33 3 44 55 64 82.

E-mail address: [augustin.colette@ineris.fr](mailto:augustin.colette@ineris.fr) (A. Colette).



**Fig. 1.** Time series of the vertical profile of linearly polarized Lidar attenuated backscatter at 532 nm ( $m^{-1}sr^{-1}$ ) between 16 and 20 April 2010 at the SIRTA observatory (2.2E, 48.7 N) showing the apparent decrease of altitude in time and injection into the planetary boundary layer of the Eyjafjallajökull ash plume. The black line shows the diurnal variations of the mixing layer depth derived from Lidar observations.

## 2. Remote sensing of the ash layer in the free troposphere

The possible interference of the Eyjafjallajökull plume with the PBL over France was first detected by the atmospheric backscattering Lidars (Light detection and ranging) operated by Institut Pierre-Simon Laplace at the SIRTA observatory 20 km South of Paris (Haeffelin et al., 2005). Fig. 1 displays the continuous record of the attenuated backscatter at 532 nm between the 16 and 19 April together with the depth of the PBL inferred with the STRAT algorithm (Morille et al., 2007). Although the remote sensing setup at SIRTA offers a comprehensive documentation of optical properties of the ash layer, we choose to present here exclusively the attenuated backscatter that was the only quantity available in near real-time whereas other physical properties necessitate further post-processing.

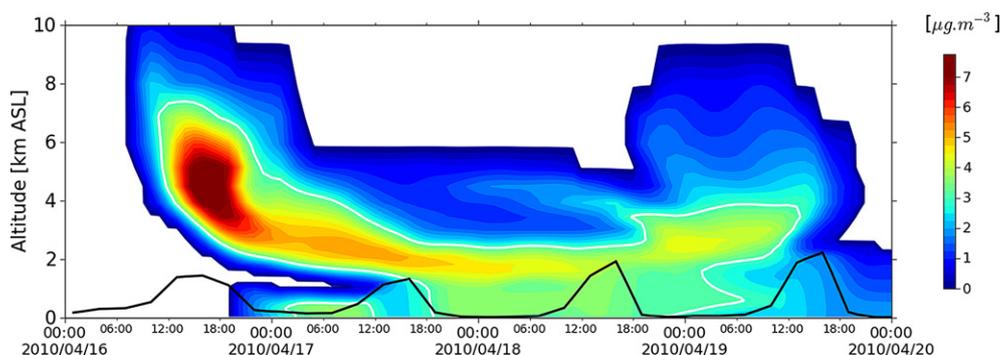
The Eyjafjallajökull plume was first observed above the SIRTA observatory at 16UTC on 16 April as a 1000 m thick layer with a base height at 5000 m above ground level. The particle depolarization ratio at 532 nm ranged between 0.3–0.4 showing that the plume was mainly constituted of non-spherical particles. The 440–870 nm column-integrated Angström exponent measured by a sun-photometer of the Aeronet network decreased significantly from 1.7 to 1.1 at 16UTC, we could thus conclude that the lofted plume contained particles significantly larger than aerosols found in the mixing layer (Dubovik et al., 2002).

In the first 8 h, a relatively fast decrease of the altitude of the volcanic plume was observed. From 17 April 00UTC onwards, the plume sampled above the observatory was much thinner (about 300 m) and stabilized at about 2500 m asl while the depth of the mixing layer did not exceed 1300 m asl. On 18 April, the enhanced vertical development of the mixing layer, reaching 2000 m asl, led to the intrusion of volcanic ash into the PBL.

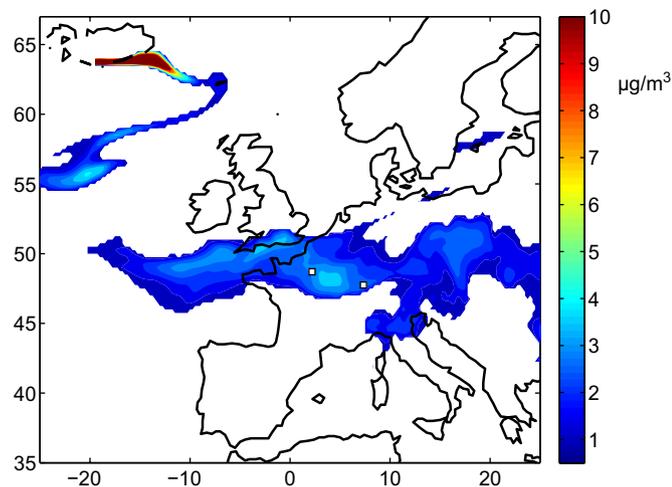
## 3. Modeled spatial footprint of the ash layer

On 15 April, while the London Volcanic Ash Advisory Centre forecasts suggested that the Eyjafjallajökull ash plume might be advected above France, a dedicated air quality forecasting product was designed to assess its possible impact on air quality at the surface using the Chimere regional chemistry and transport model (CTM) (Bessagnet et al., 2009). One of the motivations was to detect if the combined impacts of the volcanic ash plume and anthropogenic particulate pollution sources (industrial activities, transports, and ammonia-rich fertilizer spreading – which is commonplace in spring) would yield detrimental PM10 level.

The Chimere model is a state of the art CTM recognized for its skills at capturing air pollution episodes at the regional scale. It is implemented as part of the official French national air quality forecasting system ([www.prevoir.org](http://www.prevoir.org)) (Rouil et al., 2009) and contributes to the Monitoring Atmospheric Composition and Climate (MACC) pre-operational atmospheric service of the GMES Initiative coordinated by the European Centre for Medium-Range Weather Forecasts (ECMWF). In the version used for this study, the model had 30 hybrid sigma-pressure vertical levels extending up to 200 hPa and it was driven by meteorological forcing fields of the ECMWF IFS forecast model at 25 km horizontal resolution. The results presented here were obtained with ECMWF large scale fields covering the April 14th to April 21st period and released on 21 April, so that these simulations can be considered as a near real time analysis of the event. A passive gaseous tracer was released at the location of the Eyjafjallajökull following the quantitative emission estimates provided by the Hotvolc Service (Labazuy et al., 2010, [www.obs.univ-bpclermont.fr/SO/televolc/hotvolc/](http://www.obs.univ-bpclermont.fr/SO/televolc/hotvolc/)) reflecting the best knowledge we had on 21 April of the volcanic emissions. The fraction of PM finer in size than



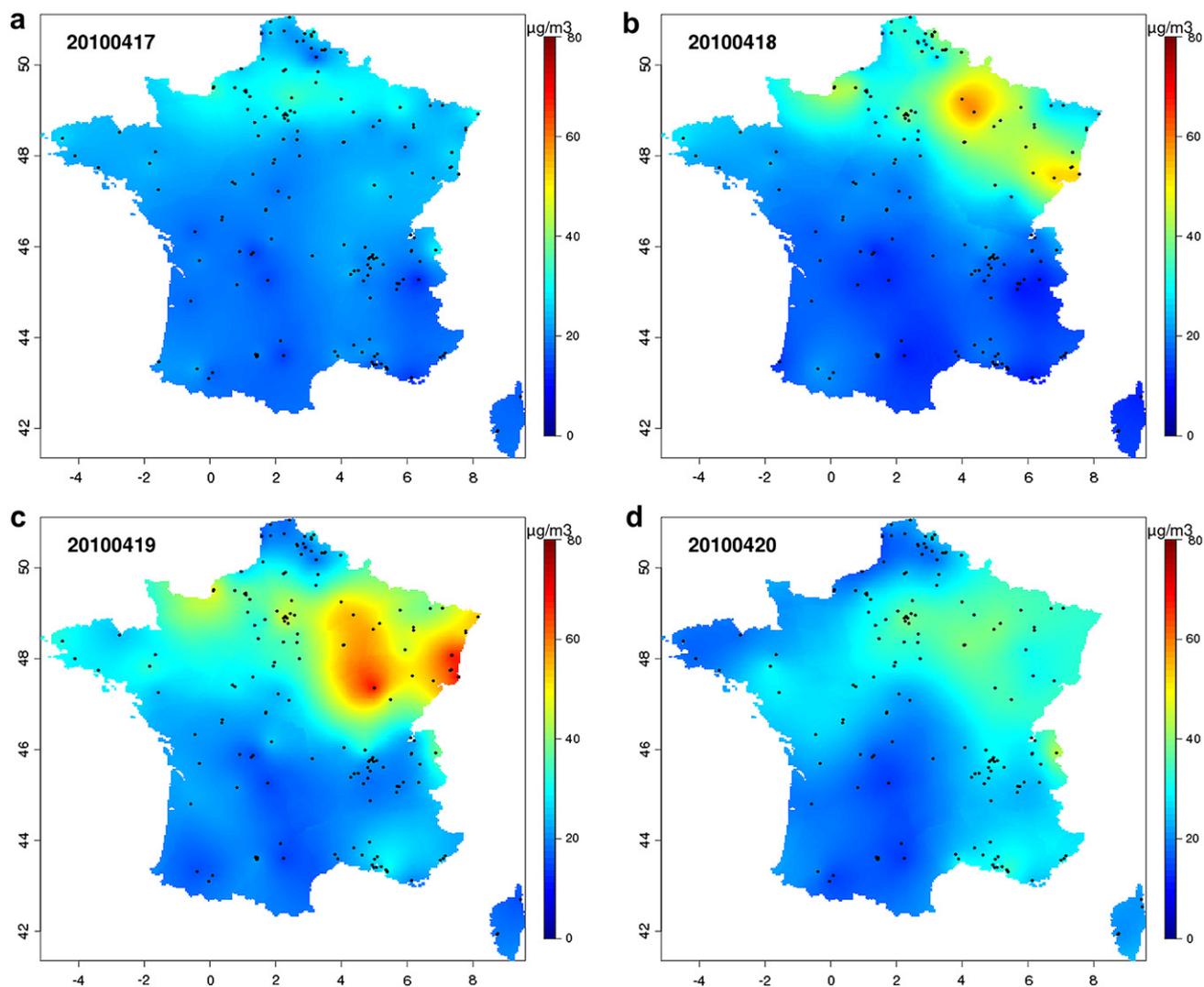
**Fig. 2.** Time series of the vertical profile of modeled concentrations of volcanic tracer ( $\mu g m^{-3}$ ) above the SIRTA observatory between 16 and 20 April 2010. The black line shows the diurnal variations of the modeled planetary boundary layer and the white line highlights the  $3 \mu g m^{-3}$  isocontour.



**Fig. 3.** Geographical footprint of the modeled volcanic plume on 18 April 2010 at 22UTC (vertically averaged below 1000 m of altitude). The two dots indicate (from West to East) the position of the SIRTA observatory and Mulhouse surface station, respectively.

10  $\mu\text{m}$  and thus susceptible to be advected over long distance (20%) was inferred from a granulometry of ash samples collected at the surface in the vicinity of the volcano (N. Óskarsson, unpublished data, 2010, available from the Nordic Volcanological Center, <http://www2.norvol.hi.is/page/IES-EY-CEMCOM>). Nevertheless a gaseous tracer was preferred to particulate matter to avoid further speculation about the particle size distribution in the lofted plume. Total particulate matter was derived (Pavolonis et al., 2006) using Terra-MODIS satellite data and uniformly distributed in the model between the volcano's vent and the maximum altitude of the plume derived from local observations of the Icelandic Meteorological Office and obtained from the Hotvolc service.

Fig. 2 shows the time slice of the modeled concentration of tracers above the SIRTA observatory and can be directly compared to the Lidar data provided in Fig. 1. A number of features of the volcanic plume are well reproduced: its timing of arrival above the observatory, the decrease of its altitude in time and thinning in the first 48 h and its intrusion towards the surface on 18 April. Other aspects are in disagreement with observations, particularly the modeled increase of surface concentrations starting 17 April and the quantitative concentrations at the surface: about  $5 \mu\text{g m}^{-3}$  – which is much lower than estimates derived from in-situ samples discussed hereafter. Both reflect the very high uncertainties related to the



**Fig. 4.** Maps of daily averaged non-volatile PM<sub>10</sub> concentrations ( $\mu\text{g m}^{-3}$ ) between 17 and 20 April 2010 obtained by geostatistical kriging of urban and rural background stations.

emission source (particle size distribution, injection height, mass flux, temporal variation, etc...). Nevertheless, the qualitative agreement of the timing and morphology of the volcanic plume between model simulations and Lidar observations demonstrates that it is appropriate to make use of the model to extrapolate the horizontal footprint of the event beyond the SIRTa observatory.

Fig. 3 shows the modeled concentration of tracers averaged below 1000 m of altitude on 18 April 2010 at 18UT. Note that over France, the signal was confined to the North-eastern part of the country, which suggests that the impact of the Eyjafjallajökull plume at the surface would be enhanced in that area. This result is confirmed by real-time measurements of non-volatile PM10 as seen on Fig. 4 that displays daily averages obtained by geostatistical kriging of about 150 surface stations. A clear anomaly is observed in North-Eastern France on April 18th and 19th.

#### 4. Source apportionment and impact on air quality

On the basis of real-time Lidar measurements and preliminary model computations following the methodology presented in section 3 (yet using forecast fields instead of the posterior analysis) an emergency air quality monitoring procedure (CARA) was activated on 16 April 2010 in order to investigate the chemical composition of PM10. This procedure has been operated since 2008 by the French central laboratory for air quality monitoring (LCSQA) to monitor and document particulate matter pollution episodes. It builds on an existing monitoring network and includes fast-track chemical analysis at INERIS of PM10 and PM2.5 routinely collected onto 24 h high volume quartz fiber filters samples at up to thirteen rural and urban background sites in France by local air quality monitoring networks. The chemical characterization included the thermo-optical determination of carbonaceous aerosols (elemental carbon and organic matter) (Cavalli et al., 2010), and the analysis of major soluble species (Nitrate, Sulphate, Ammonium, Calcium and Sodium) using ion chromatography (Mihalopoulos et al., 1997). As volcanic particulate emissions are primarily composed of non carbonaceous and insoluble material, some metals (Aluminium, Iron, and Titanium) were also quantified for the present study by means of inductively coupled plasma optical emission spectrometry after conventional microwave extraction (Maaney and Winberry, 1999). Non-volatile PM2.5/PM10 concentrations are monitored in France by means of Tapered Element Oscillating Microbalance (TEOM), while total PM2.5/PM10 concentrations are monitored using TEOM equipped with Filter Dynamics Measurement systems (FDMS), providing real-time particulate matter information (Favez et al., 2007).

In the week following the Eyjafjallajökull eruption, the CARA emergency procedure was activated at three rural background stations (Jonville, Revin, and Verneuil) and three urban background stations (Rouen, Lens, and Mulhouse) all of them located in Northern France. Amongst these stations, the PM10 record obtained at the Mulhouse station (geographical position represented on Fig. 3) exhibited the most outstanding signature of volcanic tracers during that period. Similar features, yet more moderate in magnitude, were observed at the five other sampling stations.

As presented in Fig. 5a, a significant increase of PM10 levels was observed at the Mulhouse station during the afternoon of 18 April with an important contribution of coarse and non volatile particles that remained at relatively high levels for about two days. More specifically, non-volatile PM10 reached  $56 \mu\text{g m}^{-3}$  on average on 18 and 19 April against  $22 \mu\text{g m}^{-3}$  on average for the two previous days – a  $34 \mu\text{g m}^{-3}$  excess of non-volatile PM10. This feature rules out a possible significant impact of semi-volatile secondary aerosols such as ammonium nitrate as was initially forecasted – independently of the occurrence of the Eyjafjallajökull eruption – by the Prev'air System for 19 April as a result of the combination of nitric

acid formation and agricultural fertilizer spreading (and subsequent ammonia emissions).

Chemical analyses performed on daily filter samples confirmed the crustal origin of the particles responsible for this PM10 anomaly. On average over 18 and 19 April, the amount of non-carbonaceous and insoluble materials reached up to  $42 \mu\text{g m}^{-3}$ , representing 65% of total PM10 whereas on 16 and 17 April they constituted less than 35% of total PM10: a more usual figure at urban background sites (Putaud et al., 2004). The overall excess of non-carbonaceous and insoluble PM10 observed on 18 and 19 April was thus  $28 \mu\text{g m}^{-3}$  in good agreement with the non-volatile PM10 excess mentioned above. The plume dispersion footprint presented in Section 3 and validated against the remote sensing data discussed in Section 2 rules out a possible significant contribution of Saharan dust to these high concentrations of crustal particles. It was also confirmed by means of Lagrangian trajectory and plume dispersion modelling (not shown).

A last quantitative estimate of the impact of the Eyjafjallajökull plume at the surface was provided by the analysis of Aluminium (Al), Iron (Fe) and Titanium (Ti) on sampled filters. Their synchronous increase and subsequent decrease during that episode in Mulhouse (Fig. 5b) is quite unusual in ambient air (Gotschi et al., 2005). Compared to levels observed on 16 and 17 April, the respective anomaly of Al, Fe, and Ti reached 1.7, 2.1, and  $0.35 \mu\text{g m}^{-3}$  on average on 18 and 19 April. Estimates of the chemical composition of the Eyjafjallajökull plume provided by the Icelandic Institute of Earth Sciences (N. Óskarsson, unpublished data, 2010, available from the Nordic Volcanological Center, <http://www2.norvol.hi.is/page/IES-EY-CEMCOM>) indicate that Al, Fe, and Ti constituted about 8.3%, 7.5% and 1.0% of the ash and scoria collected in the vicinity of the volcano. These estimates constituted the best knowledge available at that time of the chemical composition of the Eyjafjallajökull plume. Assuming that these ratios can be applied to our samples, we could derive a rough estimate of the ash concentration in Mulhouse: from 20 to  $38 \mu\text{g m}^{-3}$  on average over 18 and 19 April.

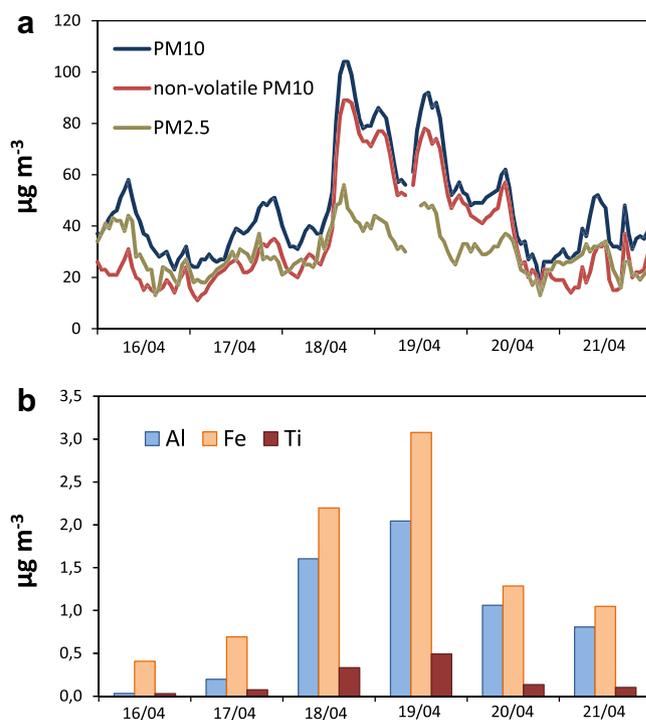


Fig. 5. (a) Hourly time series of total PM10, non-volatile PM10 and total PM2.5 concentrations ( $\mu\text{g m}^{-3}$ ) measured at the Mulhouse station between 16 and 21 April 2010. (b) Daily concentrations ( $\mu\text{g m}^{-3}$ ) of aluminium (Al), iron (Fe) and titanium (Ti) in PM10 at the Mulhouse station between 16 and 21 April 2010.

## 5. Conclusion

All these estimations carry significant uncertainties, including aerosol sampling artefacts, instrumental and analytical errors, chemical composition of the emissions, and chemical transformation in the ash plume during its transport. Nevertheless, our assessment is strengthened by the diversification of the proxies since we relied on 5 independently measured quantities (Al, Fe, Ti, non volatile PM10, non-carbonaceous and insoluble PM10). Altogether, these estimates point towards a concentration of volcanic ash in the PBL of about  $30 \pm 10 \mu\text{g m}^{-3}$  on average over 18 and 19 April in Mulhouse. This estimate constitutes probably an upper bound of the impact of the April 2010 Eyjafjallajökull eruption on air quality in France as the signal in Mulhouse was the most significant in the whole dataset available for this study (six in-situ sampling stations and 150 + automated non-volatile PM10 recorders). While we conclude that the April 2010 Eyjafjallajökull ash plume did have an impact at the surface, we also find that it cannot be considered as a major event of long range transport impacting surface air quality.

Beyond these conclusions, the present paper also illustrates the relevance of multidisciplinary approaches in operational environmental forecasting and monitoring. Building on the lessons learnt from the Eyjafjallajökull April 2010 eruption the authors advocate to foster the development of such approaches using existing frameworks such as the European Global Monitoring for Environment and Security (GMES) initiative.

## Acknowledgements

We wish to acknowledge the dedication of the SIRTA technical team providing uninterrupted measurements during the April 2010 episode as well as all the local French air quality monitoring agencies participating in the CARA network for surface measurements. Observatoire de Physique du Globe de Clermont-Ferrand provided the estimate of the volcanic emissions through the Hotvolc Service. Aerosol optical depth data was obtained from the AERONET network.

## References

- Baltensperger, U., Bukowiecki, N., Zieger, P., Juranyi, Z., Gysel, M., Weingartner, E., Neisinger, B., Hueglin, C., Ulrich, A., Wichser, A., Kaegi, R., 2010. In situ measurements of physical and chemical properties of the volcanic ash aerosol from the Eyjafjallajökull eruption. *Geophysical Research Abstracts* 12, 15711.
- Bessagnet, B., Menut, L., Curci, G., Hodzic, A., Guillaume, B., Liousse, C., Moukhtar, S., Pun, B., Seigneur, C., Schulz, M., 2009. Regional modeling of carbonaceous aerosols over Europe – focus on secondary organic aerosols. *Journal of Atmospheric Chemistry* 61, 175–202.
- Cavalli, F., Viana, M., Yttri, K.E., Genberg, J., Putaud, J.-P., 2010. Toward a standardised thermal-optical protocol for measuring atmospheric organic and elemental carbon: the EUSAAR protocol. *Atmospheric Measurement Techniques* 3, 79–89.
- Colette, A., Menut, L., Haefelin, M., Morille, Y., 2007. Impact of the transport of aerosols from the free troposphere towards the boundary layer on the air quality in the Paris area. *Atmospheric Environment* 42, 390–402.
- Dubovik, O., Holben, B., Eck, T.F., Smirnov, A., Kaufman, Y.J., King, M.D., Tanré, D., Slutsker, I., 2002. Variability of absorption and optical properties of key aerosol types observed in worldwide locations. *Journal of the Atmospheric Sciences* 59, 590–608.
- Favez, O., Cachier, H., Sciare, J., Le Moulllec, Y., 2007. Characterization and contribution to PM<sub>2.5</sub> of semi-volatile aerosols in Paris, France. *Atmospheric Environment* 41, 7969–7976.
- Gotschi, T., Hazenkamp-von Arx, M.E., Heinrich, J., Bono, R., Burney, P., Forsberg, B., Jarvis, D., Maldonado, J., Norback, D., Stern, W.B., Sunyer, J., Toren, K., Verlató, G., Villani, S., Kunzli, N., 2005. Elemental composition and reflectance of ambient fine particles at 21 European locations. *Atmospheric Environment* 39, 5947–5958.
- Grattan, J., Durand, M., Taylor, S., 2003. Atmospheric, climatic and environmental impacts of volcanic emissions. In: Oppenheimer, C., Pyle, D.M., Barclay, J. (Eds.), *Volcanic Degassing*, vol. 213. Geological Society of London, pp. 401–414.
- Haefelin, M., Barthès, L., Bock, O., Boitel, C., Bony, S., Bouniol, D., Chepfer, H., Chiriaco, M., Cuesta, J., Delanoë, J., Drobinski, P., Dufresne, J.-L., Flamant, C., Grall, M., Hodzic, A., Hourdin, F., Lapouge, F., Lemaître, Y., Mathieu, A., Morille, Y., Naud, C., Noël, V., O'Hirok, W., Pelon, J., Pietras, C., Protat, A., Romand, B., Scialom, G., Vautard, R., 2005. SIRTA, a ground-based atmospheric observatory for cloud and aerosol research. *Annales Geophysicae* 23, 253–275.
- Labazuy, P., Gouhier, M., Hervo, M., Freville, P., Quehennec, B., Donnadiou, F., Guehenneux, Y., Cacaault, P., Colomb, A., Gayet, J.-F., Pichon, J.-M., Rivet, S., Schwarzenböck, A., Sellegri, K., 2010. Monitoring the Eyjafjöll volcanic plume using OPGC platforms: remote sensing and in-situ measurements. *Geophysical Research Abstracts* 12, 15763.
- Mainey, A., Winberry, W.T., 1999. Chemical species analysis of filter-collected suspended particulate matter, Method IO-3.1: selection, preparation, and extraction of filter material. In: Manning, J.A., Burckle, J.O., Hedges, S., McElroy, F.F. (Eds.), *Compendium of Methods for the Determination of Inorganic Compounds in Ambient Air*. US-EPA, Cincinnati.
- Mihalopoulos, N., Stephanou, E., Kanakidou, M., Pilitsidis, S., Bousquet, P., 1997. Tropospheric aerosol ionic composition above the Eastern Mediterranean Area. *Tellus B* 49, 314–326.
- Morille, Y., Haefelin, M., Drobinski, P., Pelon, J., 2007. STRAT: An automated algorithm to retrieve the vertical structure of the atmosphere from single-channel lidar data. *Journal of Atmospheric and Oceanic Technology* 24, 761–775.
- Pappalardo, G., Mattis, I., 2010. Dispersion and evolution of the Eyjafjallajökull ash plume over Europe: vertically resolved measurements with the European LIDAR network EARLINET. *Geophysical Research Abstracts* 12, 15731.
- Pavolonis, M.J., Feltz, W.F., Heidinger, A.K., Gallina, G.M., 2006. A daytime complement to the reverse absorption technique for improved automated detection of volcanic ash. *Journal of Atmospheric and Oceanic Technology* 23, 1422–1444.
- Pope III, C.A., Dockery, D.W., 2006. Health effects of fine particulate air pollution: lines that connect. *Journal of Air Waste Management* 56, 709–742.
- Putaud, J.-P., Raes, F., Van Dingenen, R., Brüggemann, E., Facchini, M.-C., Decesari, S., Fuzzi, S., Gehrig, R., Hüglin, C., Laj, P., Lorbeer, G., Maenhaut, W., Mihalopoulos, N., Müller, K., Querol, X., Rodriguez, S., Schneider, J., Spindler, G., ten Brink, H., Torseth, K., Wiedensohler, A., 2004. A European aerosol phenomenology—2: chemical characteristics of particulate matter at kerbside, urban, rural and background sites in Europe. *Atmospheric Environment* 38, 2579–2595.
- Rouil, L., Honoré, C., Bessagnet, B., Malherbe, L., Meleux, F., Vautard, R., Beekmann, M., Flaud, J.-M., Dufour, A., Martin, D., Peuch, A., Peuch, V.-H., Elichegaray, C., Poisson, N., Menut, L., 2009. PREV'Air: an operational forecasting and mapping system for air quality in Europe. *Bulletin of the American Meteorological Society* 90, 73–83.
- Schumann, U., Weinzierl, B., Reitebuch, O., Minikin, A., Schlager, H., Rahm, S., Scheibe, M., Lichtenstern, M., Forster, C., 2010. Volcanic ash cloud observations with the DLR-Falcon over mid-europe during and after airspace. *Geophysical Research Abstracts* 12, 15736.
- Stohl, A., 2001. A 1-year Lagrangian “climatology” of airstreams in the Northern Hemisphere troposphere and lowermost stratosphere. *Journal of Geophysical Research* 106, 7263–7279.
- Thordarson, T., 2010. The 2010 Eyjaföll eruptions, south Iceland: on-site observations and first analytical results. *Geophysical Research Abstracts* 12, 15729.