



Identification statistique des déterminants des concentrations en PM10 dans le nord de la France

Diogo Oliveira, Esperanza Perdrix, S. Sauvage, Olivier Favez, Véronique Riffault

► To cite this version:

Diogo Oliveira, Esperanza Perdrix, S. Sauvage, Olivier Favez, Véronique Riffault. Identification statistique des déterminants des concentrations en PM10 dans le nord de la France. 8. Edition des Journées Interdisciplinaires de la Qualité de l'Air (JIQA), Feb 2014, Villeneuve d'Ascq, France. ineris-01862259

HAL Id: ineris-01862259

<https://hal-ineris.archives-ouvertes.fr/ineris-01862259>

Submitted on 27 Aug 2018

HAL is a multi-disciplinary open access archive for the deposit and dissemination of scientific research documents, whether they are published or not. The documents may come from teaching and research institutions in France or abroad, or from public or private research centers.

L'archive ouverte pluridisciplinaire **HAL**, est destinée au dépôt et à la diffusion de documents scientifiques de niveau recherche, publiés ou non, émanant des établissements d'enseignement et de recherche français ou étrangers, des laboratoires publics ou privés.

Identification statistique des déterminants des concentrations en PM₁₀ dans le nord de la France

D. OLIVEIRA^{1,2}, E. PERDRIX^{1,2}, S. SAUVAGE^{1,2}, O. FAVEZ³, V. RIFFAULT^{1,2}

diogo.oliveira@mines-douai.fr

¹ Université Lille Nord de France, F-59000, Lille

² Mines Douai, Département Sciences de l'Atmosphère et Génie de l'Environnement, F-59500, Douai

³ INERIS, Parc Technologique ALATA, F-60550, Verneuil-en-Halatte

Résumé :

Afin d'améliorer la qualité de l'air et d'évaluer l'impact sur la santé des populations, il apparaît important d'approfondir la connaissance des sources de particules impactant un territoire soumis à une pollution récurrente, en développant des méthodologies d'identification, de localisation et de caractérisation chimique des sources.

L'objectif de ce travail de thèse est d'identifier, par analyse statistique de la composition chimique des PM₁₀ sur plusieurs sites pendant au moins une année : (i) la nature et l'origine géographique des sources impactant le nord de la France, en distinguant la pollution de fond des apports locaux ; (ii) de documenter les phénomènes physico-chimiques, en particulier la formation d'aérosols secondaires en période froide, et les conditions météorologiques influençant les épisodes de pollution particulaire intense.

La méthodologie proposée repose principalement sur la constitution et l'analyse d'une base de données d'observation des PM₁₀ et de leur composition chimique détaillée, combinée à une classification des rétro trajectoires des masses d'air et des paramètres météorologiques. Des techniques d'analyse de données (classification) et des modèles sources-récepteurs (PMF, Concentration Fields) seront appliqués à plusieurs stations de mesure du nord de la France, en lien avec les programmes CARA/LCSQA (Caractérisation chimique des particules/Laboratoire Central de Surveillance de la Qualité de l'Air) et MERA/EMEP (Mesure des Retombées Atmosphériques/European Monitoring and Evaluation Programme).

La principale originalité de ce travail réside dans l'analyse d'une base de données unique et documentée de la composition chimique des PM₁₀ avec une résolution journalière, par des techniques statistiques complémentaires qui seront développées pour améliorer la localisation spatiale des zones-sources et l'estimation de la contribution de la pollution de fond aux teneurs en particules des zones urbaines.

Mots-clés: PM₁₀, qualité de l'air, émission, sources, PMF, aérosols

Abstract:

To improve air quality and to assess its impact on human health, it is important to improve the current understanding of the sources of particles impacting a territory subject to recurrent pollution, developing methodologies for the identification, location and chemical characterization of sources.

The objective of this work is to identify, by statistical analysis of the chemical composition of PM₁₀ at several sites for at least one year: (i) the nature and geographical origin of sources impacting northern France, distinguishing between background pollution and local inputs; (ii) to document the physical and chemical phenomena, in particular the formation of secondary aerosols during cold weather, and weather conditions affecting episodes of intense particle pollution.

The proposed methodology is based primarily on the creation and analysis of a database of observation of PM₁₀ and their detailed chemical composition, combined with a classification of back trajectories of air masses and meteorological parameters. Data analysis techniques (classification) and source-receptor models (PMF, Concentration Fields) will be applied to several measurement stations in the north of France, in conjunction with the CARA/LCSQA programs (chemical characterization of particles/Laboratory central Monitoring Air Quality) and MERA/EMEP (Measurement of Atmospheric Impact/European Monitoring and Evaluation Programme).

The main originality of this work lies in the analysis of a single database and in the documentation of chemical composition of PM₁₀ with a daily resolution. Statistical techniques will be further developed to improve the spatial location of sources and estimating the contribution of background pollution in levels of particulates in urban areas.

Key-words: PM₁₀, air quality, emissions, sources, PMF, aerosols

1. Contexte de l'étude

Les matières particulaires (PM) sont des particules solides ou liquides en suspension dans l'air ou un autre gaz ^[1]. Les termes PM₁₀, PM_{2,5} et PM₁ correspondent à des particules d'un diamètre aérodynamique inférieur ou égal à 10, 2,5 et 1 µm, respectivement. Les particules peuvent provenir de sources naturelles (sel marin, croûte terrestre, pollens et cendres volcaniques) ou anthropiques (combustion de combustibles dans la production d'énergie thermique, incinération, chauffage domestique pour les ménages, émissions dues au trafic, aux processus industriels et à l'agriculture) ^[2]. Les particules secondaires sont formées dans l'atmosphère par des procédés de conversion gaz-particules tels que la nucléation, la condensation et des réactions chimiques hétérogènes et multiphasiques.

De nombreux effets sur la santé des particules restent inconnus et sont estimés par les études épidémiologiques et toxicologiques. Ces études ont montré une forte corrélation entre la mortalité et l'exposition aux PM₁₀ ou PM_{2,5}, la mortalité étant due à des maladies respiratoires et cardiovasculaires ou des cancers ^[3, 4 & 5]. En outre, les

effets des particules sont associés à leur pénétration pulmonaire. La fraction grossière des PM₁₀, comprise entre 2,5 et 10 µm, est déposée principalement dans les voies supérieures tandis que la fraction fine PM_{2,5} pénètre plus profondément dans le système pulmonaire.

Les aérosols jouent également un rôle important dans l'équilibre climatique global, comme ont pu le montrer les variations naturelles de température à la surface du globe, en particulier en raison d'épisodes d'éruptions volcaniques majeures (ex. du Mont Pinatubo en 1991), qui modifient le bilan radiatif de la Terre. En outre, les activités humaines modifient les concentrations et la composition chimique des aérosols atmosphériques, non seulement près du sol (par exemple, les émissions industrielles), mais également au niveau de la basse stratosphère (où ils sont continuellement émis par les avions), affectant ainsi potentiellement le climat (IPCC).

Afin de protéger la santé humaine et de prévenir les dommages à l'environnement, la Communauté Européenne (CE) a mis en place, par la directive 2008/50/CE, des lignes directrices sur la qualité de l'air, incluant des valeurs limites et programmes de surveillance de certains polluants atmosphériques.

Actuellement, en vertu de cette directive, trois seuils différents sont définis pour les particules fines ^[6]:

- une valeur limite pour les PM₁₀ de 40 µg.m⁻³ en moyenne annuelle ;
- une valeur limite pour les PM₁₀ de 50 µg.m⁻³ en moyenne journalière, à ne pas dépasser plus de 35 jours par an ;
- une valeur cible pour les PM_{2,5} de 25 µg.m⁻³ en moyenne annuelle.

Les épisodes de non-respect de ces seuils sont cependant assez fréquents, surtout dans les zones très peuplées. Ainsi, durant la période 1997-2009, 18 à 49% de la population urbaine dans l'UE-27 a été potentiellement exposée à des concentrations journalières de PM₁₀ dans l'air ambiant supérieures à la valeur limite de l'UE fixée pour la protection de la santé humaine ^[7]. La France est d'ailleurs en contentieux avec la Commission européenne en raison des dépassements constatés depuis 2005 ^[8]. Le nord de la France, en particulier, est une zone de dépassements réguliers de la valeur limite journalière. De plus, ces dépassements concernent un territoire étendu et touchent une très large part de la population. Ainsi, dans la région du Nord-Pas-de-Calais, il a été observé en 2007 que plus de 80% des stations de surveillance des PM₁₀ dépassaient cette limite, représentant un impact sur environ 90% de la population régionale ^[8].

Afin de définir des actions efficaces à mettre en place pour remédier à cette pollution particulaire, des recherches sont menées pour identifier et localiser les sources d'émission de particules les plus impactantes. Ces zones-sources peuvent correspondre à des zones de production de particules primaires ou des zones de génération de précurseurs gazeux de particules secondaires. Le travail présenté ici, initié fin 2013, s'inscrit dans ce cadre et a pour but d'identifier les déterminants des concentrations en PM₁₀ dans le nord de la France, notamment de localiser des zones-sources influentes en vue de pouvoir limiter leur impact. La méthodologie choisie repose sur une modélisation statistique des mesures de composition chimique en PM₁₀, effectuées sur divers sites d'observation du nord de la France. L'analyse de la composition chimiques des particules permet en effet d'identifier les sources impactant un site, par la mesure de certaines espèces chimiques spécifiques

(les traceurs de sources) ou d'associations particulières d'espèces chimiques entre elles (les « signatures chimiques » des sources), tels par exemple :

- Trafic - C, Fe, Ba, Zn, Cu
- Matière minérale - Al, Si, Ca, Fe
- Aérosols marins - Na, Cl, Mg
- Combustion de pétrole - V, Ni, SO_4^{2-}
- Aérosols inorganiques secondaires - SO_4^{2-} , NO_3^- , NH_4^+

La modélisation statistique, quant à elle, permet de distinguer les différentes sources et d'estimer leurs contributions respectives à la pollution d'un site. En association avec les paramètres météorologiques, elle permet également de localiser les zones-sources, c'est-à-dire la provenance géographique des particules.

Cet article a pour but de présenter la méthodologie retenue pour rechercher les déterminants des concentrations en PM_{10} dans le nord de la France, en détaillant notamment les modèles statistiques qui seront utilisés. Dans une première partie, un état de l'art des modèles et techniques statistiques utilisés pour la recherche de sources est présenté. Puis deux exemples d'application de ces modèles seront décrits et commentés. Dans une seconde partie, la méthodologie expérimentale de ce travail sera présentée : description des sites d'observation et justification des espèces chimiques mesurées. Enfin, les perspectives des résultats attendus seront exposées.

2. Estimation des contributions des sources à la pollution atmosphérique d'un site par modélisation statistique

2.1. Modélisation sources-récepteur

La contribution de différentes sources d'émission aux teneurs en polluants atmosphériques observées sur un site donné peut être évaluée soit à partir d'inventaires d'émission ou de profils de sources (connaissance des sources a priori), soit en estimant la contribution de différents facteurs d'émissions aux concentrations mesurées et en les attribuant a posteriori à une ou plusieurs sources.

Ces relations entre émissions de polluants et leurs concentrations dans l'air ambiant peuvent être déterminées en utilisant des techniques de modélisation, dont les plus largement utilisées sont les modèles de dispersion et les modèles sources-récepteur^[9].

- Les modèles de dispersion sont des modèles déterministes, qui utilisent l'inventaire détaillé des émissions des sources de pollution de l'air et des champs de vents locaux pour estimer l'impact de ces sources sur la concentration des polluants à l'endroit souhaité dans la zone d'impact. Ces modèles sont de nature prospective en ce sens qu'ils sont extrêmement utiles pour l'estimation des impacts prévisibles en cas de modification des émissions. Ces modifications peuvent être dues à de nouvelles sources de pollution de l'air ou, au contraire, à une réduction des émissions ;
- Les modèles sources-récepteur sont des modèles statistiques, qui utilisent les mesures des concentrations en polluants pour identifier des

signatures de sources et déterminer leur contribution. Les modèles sources-récepteur sont rétrospectifs dans le sens où ils modélisent une situation passée.

Plus concrètement, les modèles de dispersion nécessitent la connaissance de l'inventaire spatialisé des émissions tandis que les modèles sources-récepteur requièrent un ensemble de mesures dans l'air ambiant. Ces modèles sont complémentaires et leur application à un même jeu de données conduit à une meilleure évaluation des sources de pollution. Par conséquent, une combinaison de ces deux approches permet de mieux comprendre la contribution des sources de polluants à la qualité de l'air et ainsi de fournir aux décideurs des outils pratiques pour identifier et quantifier les différentes sources de pollution de l'air, ce qui augmente leur capacité à mettre en place des stratégies de mesures réglementaires et de contrôle efficaces et pertinentes pour réduire la pollution de l'air à des niveaux acceptables. En outre, les études permettant de mieux estimer la répartition des sources des polluants atmosphériques spécifiques peuvent également être utilisées pour évaluer les impacts climatiques, ou l'impact de stratégies de réduction des émissions de gaz à effet de serre ^[10].

Cette étude se concentre sur la modélisation sources-récepteur et ses différentes approches.

Les modèles à base de récepteurs utilisent les mesures chimiques acquises sur un site d'observation donné (le récepteur) pour calculer les contributions relatives des principales sources polluantes ce site. ^[11]

Le principe fondamental de la modélisation sources-récepteur est l'hypothèse de conservation de la masse qui peut être utilisée pour identifier et répartir les sources de PM dans l'atmosphère ^[12]. Comme représenté dans la Figure 1, l'une des principales différences entre les modèles est le degré de connaissance requis sur les sources avant l'application de modèles statistiques de pollution. Les deux principaux extrêmes des modèles de récepteurs sont le bilan de masse chimique (Chemical Mass Balance, CMB) et les modèles multivariés.

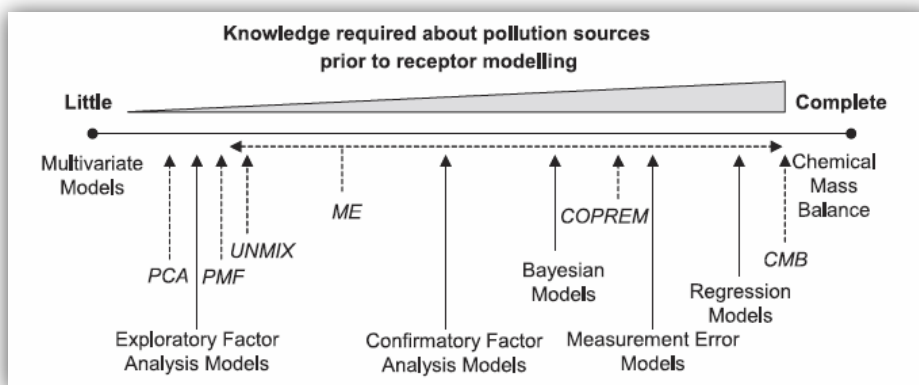


Figure 1 – Classement des différents modèles sources-récepteur selon leur besoin en connaissances préalables ^[13].

L'analyse en composantes principales, ACP (Principal Component Analysis, PCA en anglais) a été largement utilisée comme une méthode d'analyse factorielle statistique capable de séparer les constituants chimiques de l'atmosphère en

fonction de leur source ^[12 & 13]. Toutefois, les inconvénients de l'ACP, qui incluent le problème des contributions négatives, sont bien connus et le modèle Positive Matrix Factorization (PMF) a été utilisé par la suite comme une technique alternative.

Le PMF est une technique de régression multivariée puissante avec des contraintes pour que les solutions soient positives ou nulles et prenant en compte l'incertitude des données observées. ^[14]

Un ensemble de données spécifique peut être considéré comme une matrice de données X de n par m dimensions, où n est le nombre d'échantillons et m sont les espèces chimiques mesurées. L'objectif de cette modélisation est d'identifier le nombre de facteurs p , le profil des espèces chimiques F ($p \times m$) de chaque source, et la contribution massique G ($n \times p$) de chaque facteur à chaque échantillon. ^[15]

Le modèle permet de résoudre l'équation générale

$$X = G * F + E$$

où E est la matrice résiduelle des erreurs (écarts entre valeurs observée/estimée).

Cette équation peut aussi s'exprimer sous la forme :

$$x_{ij} = \sum_{k=1}^p g_{ik} f_{kj} + e_{ij}$$

où x_{ij} est la concentration de l'espèce j mesurée dans le $i^{\text{ème}}$ échantillon, g_{ik} est la fraction massique de la concentration de PM_{10} totale de la source k dans l'échantillon i , f_{kj} est la fraction massique de chaque espèce j composant la source k , et e_{ij} est le résidu pour chaque concentration modélisée. L'objectif est de trouver $G \geq 0$ et $F \geq 0$ en minimisant l'erreur résiduelle E . Pour ce faire, une approche des moindres carrés pondérés est utilisée. Elle implique la minimisation d'une fonction objectif Q , étant donné que :

$$Q = \sum_{i=1}^n \sum_{j=1}^m \frac{e_{ij}^2}{s_{ij}^2}$$

où s_{ij} est une estimation de l'incertitude de mesure de l'espèce j dans le $i^{\text{ème}}$ échantillon. La solution de cette équation est obtenue en utilisant un algorithme itératif de minimisation.

A l'opposé des modèles ACP et PMF (Fig. 1), le modèle CMB suppose une connaissance complète et exhaustive de tous les profils chimiques des sources. De plus, le profil d'une source ne doit pas varier entre la source et le site-récepteur. Si la différence de profil d'une source entre le site-récepteur et la source est considérée comme minimale, alors le CMB peut être utilisé. Toutefois, cette stabilité n'est presque jamais présente, ce qui pose un problème pour l'application du CMB. De plus les aérosols secondaires ne peuvent pas être inclus comme composants des profils de sources d'émission. Cela peut conduire à une modélisation erronée et une mauvaise interprétation des résultats ^[13].

Entre ces deux extrêmes, les modèles hybrides ont été élaborés pour combiner les avantages du modèle CMB et de l'analyse factorielle, notamment pour pouvoir prendre en compte l'existence d'informations partielles sur certaines sources. Ainsi, le modèle Target Transformation Factor Analysis (TTFA) offre la possibilité de « fixer

» ou « libérer » des paramètres spécifiques, selon la prévision théorique du chercheur [16 & 17]. On peut citer aussi le modèle Multilinear Engine, ME [18], qui permet de résoudre les problèmes multilinéaires (la matrice X étant alors le produit de deux ou plusieurs matrices), avec la possibilité d'imposer de nombreux types de contraintes.

2.2. Analyse des rétro trajectoires de masses d'air

Certains modèles sources-récepteur utilisent les rétro trajectoires des masses d'air. Ils sont appliqués généralement pour localiser les sources potentielles de particules atmosphériques impactant un site récepteur donné. Ce type de modèle est utilisé en conjonction avec les concentrations en particules atmosphériques mesurées au site récepteur et sont communément appelé trajectory-based models [19] ou Trajectory Statistical Methods (TSMs) [20]. La représentation cartographique des résultats permet de montrer les zones-sources potentielles affectant un site récepteur. Plusieurs variantes des TSMs existent : Potential Source Contribution Function (PSCF) [19, 21, 22, 23, 24 & 25], Gridded Frequency Distributions (GFD) [26 & 27], Concentration Fields Analysis [28] ou Concentration-Weighted Trajectory (CWT), et Residence Time Weighted Concentration (RTWC) [19]. La principale différence a trait à la façon dont les concentrations de PM sont intégrées aux trajectoires des masses d'air.

Le PSCF, par exemple, estime la probabilité qu'une zone-source en amont contribue à une concentration élevée en polluant au site-récepteur. Les concentrations élevées sont définies comme celles dépassant un certain seuil. Pour cela, dans chaque cellule d'une grille couvrant la zone géographique d'intérêt, on calcule le temps de séjour cumulé des rétro trajectoires associées aux concentrations élevées, rapporté à celui de l'ensemble des rétro trajectoires. Le temps de séjour d'une rétro trajectoire dans une cellule correspond au nombre de points de la rétro trajectoire passant dans cette cellule. La probabilité de présence dans la cellule (i,j) d'une source contribuant aux concentrations élevées sur le site récepteur est alors définie comme :

$$PSCF_{i,j} = \frac{\sum t_{\text{séjour, cellule}_{i,j}} \text{ des rétrotrajectoires de concentrations "élevées" }}{\sum t_{\text{séjour, cellule}_{i,j}} \text{ de toutes les rétrotrajectoires}}$$

Le 75^{ième} ou 90^{ième} percentile de la distribution des concentrations en polluant est souvent utilisé comme critère de concentration élevée. Un ensemble de cellules connexes présentant une forte probabilité suggère une zone-source potentielle. [29]

3. Exemples d'application de modèles sources-récepteurs dans des zones du nord-ouest de l'Europe

Deux études utilisant le modèle PMF sont résumées ici : l'une relative au site de Lens, dans le nord de la France ^[30], l'autre appliquée à divers sites des Pays-Bas ^[31].

3.1. Etude de Waked et al. (2013) à Lens

Pour l'étude portant sur la pollution particulaire par les PM₁₀ à Lens (site urbain) entre 2011 et 2012, une solution du modèle PMF à neuf facteurs a été retenue. La sélection a été faite en tenant compte de la composition chimique de chaque facteur et leur concordance avec des profils de sources réelles connus. Cependant, les incertitudes de mesure ont un effet significatif sur les résultats du modèle et il n'existe pas de méthode normalisée unique pour sa résolution ^[32]. Plusieurs tests et étapes sont donc nécessaires pour trouver une solution adéquate :

- Estimer au mieux les incertitudes ;
- Faire varier le nombre de facteurs (de 8 à 14 dans l'étude de Lens) ;
- Examiner le coefficient de détermination R² entre les concentrations modélisées et mesurées expérimentalement pour différentes espèces, telles que les PM₁₀, OC et EC.

A titre d'exemple, Waked et al. (2013) montrent qu'avec une solution à 8 facteurs, les sources "combustion de fioul" et "aérosols marins vieillis" sont combinés dans un même facteur tandis qu'avec une solution à 10 facteurs on constate que certaines espèces sont déplacées entre deux facteurs et que l'un des facteurs ne peut pas être clairement attribué à une source spécifique.

Dans cette étude, une tendance saisonnière des concentrations de PM₁₀ a été observée, avec des concentrations maximales au printemps ($29 \pm 13 \mu\text{g.m}^{-3}$) et en été ($14 \pm 13 \mu\text{g.m}^{-3}$). Pendant la saison estivale, la contribution des particules primaires augmente avec les émissions biogéniques qui représentent environ 20% en masse de la concentration totale en PM₁₀, tandis que simultanément le facteur « nitrate secondaire » diminue en raison du caractère semi-volatil du nitrate d'ammonium. En hiver, la source de combustion de biomasse est le principal contributeur représentant 25% en masse de la concentration totale de PM₁₀, liés notamment au chauffage au bois.

Lors des 5 épisodes de dépassement du seuil journalier en PM₁₀ ($50 \mu\text{g.m}^{-3}$) observés, les facteurs relatifs aux particules secondaires « enrichies en nitrate » et « enrichies en sulfates » expliquent 55% environ de la masse des PM₁₀ contre 30% en moyenne annuelle. De plus, la composition chimique des PM₁₀ pendant les jours de dépassement est également caractérisée par une hausse du rapport OC/EC (≈ 5 pendant les jours de dépassement par rapport à ≈ 3 pendant les jours de non-dépassement) qui pourrait être en partie liée à la formation d'aérosols organiques secondaires. Ceci illustre l'influence des processus secondaires sur les concentrations en PM₁₀ élevées.

Les neuf sources de pollution particulaire identifiées à Lens traduisent une forte influence des constituants d'origine marine et des aérosols secondaires. Les poussières minérales et la combustion de biomasse sont également des sources

importantes de pollution à Lens. Ces résultats sont relativement spécifiques à cette région européenne, puisque des résultats assez différents ont été trouvés sur d'autres sites urbains européens [13]. Sur la Figure 2, on peut constater que des sites de même typologie, urbaine ou rurale par exemple, peuvent avoir des profils chimiques très distincts.

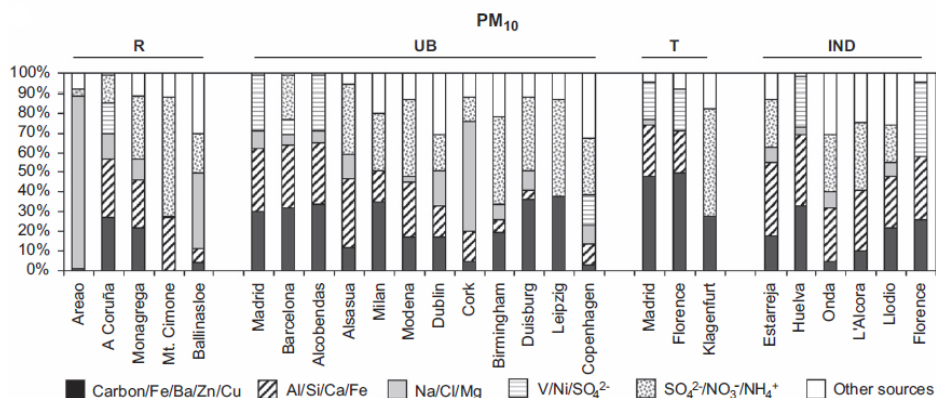


Figure 2 – Contributions relatives de cinq facteurs, chimiquement distincts, à la pollution par les PM10 mesurée sur différents sites européens de typologie variée : rurale (R), urbaine (UB), trafic (T) ou industrielle (IND) [13].

La difficulté de comparer des catégories de sources à travers l'Europe est évidente, compte tenu de leur grande variabilité spatiale. En outre, les différentes études ne s'accordent pas sur la dénomination des sources, ni sur leur profil chimique. Ainsi, les sources identifiées par des dénominations similaires peuvent ne pas inclure les mêmes types d'émissions (par exemple, une source « trafic » peut inclure les émissions des gaz d'échappement et l'usure des pneus et des freins, tandis qu'une autre peut se référer uniquement aux émissions des gaz d'échappement).

3.2. Etude de Mooibroek et al. (2011) aux Pays-Bas

L'étude de Mooibroek et al. (2011) montre des différences de composition chimique des aérosols aux Pays-Bas. Une campagne de mesure intensive d'un an (d'août 2007 à septembre 2008) a été réalisée en cinq sites des Pays-Bas, dont trois de typologie « rurale de fond », un de typologie « urbaine » et le dernier de typologie « trafic ».

Une solution à sept facteurs a été proposée (Figure 3). L'importance du transport à longue distance se reflète dans la faible variabilité spatiale de certains facteurs. En particulier, le facteur « aérosols secondaires riches en nitrate » montre une faible variabilité spatiale comparativement à la moyenne. Cependant, pour d'autres facteurs comme le facteur « trafic et resuspension de poussières », une importante variabilité spatiale est trouvée : il atteint 21% à Rotterdam (site en bordure de route), comparativement à 5% à Hellendoorn (site rural) ou à 10% en moyenne.

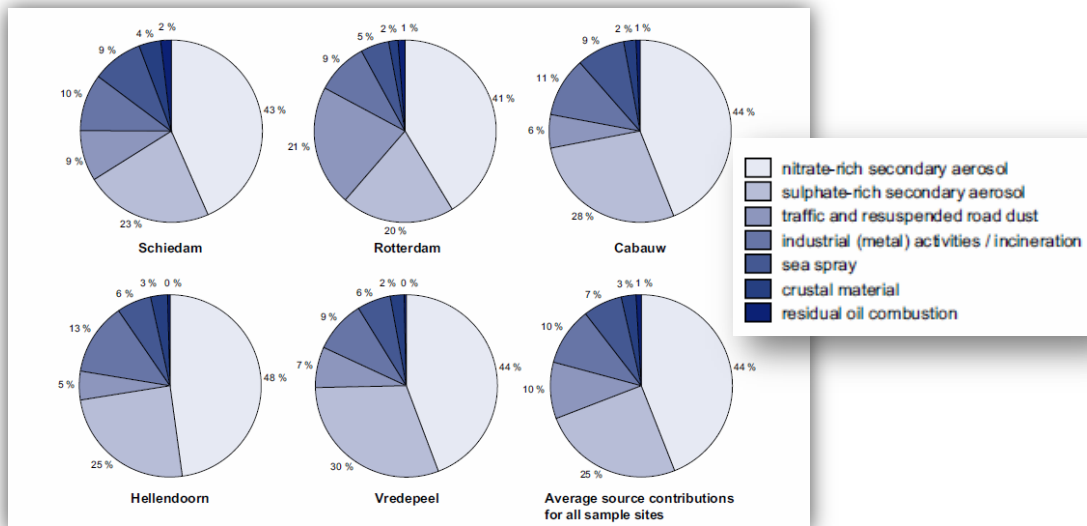


Figure 3 – Contributions relatives de sept facteurs, assimilés à des sources primaires ou à des processus de formation secondaire d'aérosols, à la pollution par les PM₁₀ mesurée sur cinq sites des Pays-Bas^[31].

Cette étude illustre l'avantage d'utiliser divers sites récepteurs pour permettre d'identifier les sources locales et à longue distance. Pour les sources locales, une grande variabilité spatiale est attendue, en fonction de la typologie des sites et de leur proximité avec des émetteurs particuliers de pollution. Le transport à longue distance des aérosols est caractérisé, au contraire, par une contribution relativement constante d'un site à l'autre.

4. Sites d'échantillonnage et paramètres mesurés

Pour cette étude, la stratégie d'échantillonnage est de recueillir des échantillons journaliers de PM₁₀ sur 5 sites récepteurs de typologies différentes : 1 trafic, 3 urbains et 1 fond régional (Figure 4). Le choix de ces typologies variées vise à permettre l'observation de l'impact de différentes sources locales et aussi lointaines (Tableau I). En outre, la situation géographique des sites récepteurs a été pensée afin de faire des observations du sud-ouest au nord-est, dans l'axe des vents dominants, et le long d'un transect perpendiculaire à l'axe des vents dominants et qui correspond à une influence maritime décroissante.

Les échantillons prélevés seront ensuite analysés chimiquement pour constituer une base de données qui pourra être analysée statistiquement. Premièrement, l'analyse statistique sera effectuée pour chaque site séparément à l'aide du PMF afin de déterminer les principales sources et leur contribution. Dans un deuxième temps, les rétro-trajectoires de masses d'air seront associées aux observations dans le but de localiser les zones-sources potentielles. Cette approche sera appliquée en intégrant l'ensemble des sites pour mieux distinguer les sources locales des sources à longue distance. Enfin, les épisodes de forte pollution seront décrits de manière approfondie.

Cette étude sera menée en partenariat avec Atmo Nord-Pas-de-Calais, Atmo Champagne-Ardenne, Atmo Picardie et Atmo Air Normand, sur différents sites du programme CARA géré par le LCSQA (Laboratoire Central de Surveillance de la Qualité de l'Air). Ce programme permet depuis 2008 de fournir une certaine compréhension sur les pics de PM par des prélèvements effectués régulièrement par une douzaine d'AASQA (Associations Agréées de Surveillance de la Qualité de l'Air). Il a également permis la création d'une bibliothèque d'échantillons qui peut être exploitée pour des études multi-sites ou complémentaires.

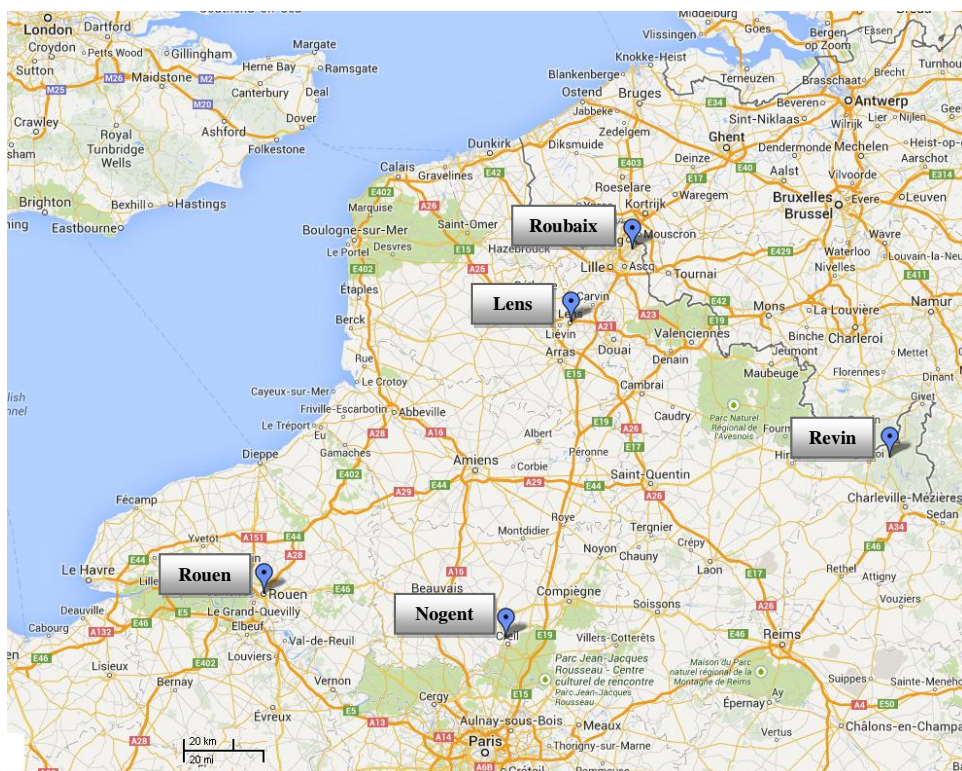


Figure 4 – Localisation des sites d'observation CARA du nord de la France.

Site	Typologie	Densité démographique (hab/km ²)	Sources attendues
Lens	Urbain	3095	Sources urbaines (dont chauffage bois), trafic, pétrochimie, métallurgie et les entreprises industrielles non métallurgiques
Roubaix	Trafic	7331	Trafic, sources urbaines (dont chauffage)
Revin	Distant	233	Aérosols à longue distance et contribution mineure de la combustion de bois
Nogent	Urbain	80	Sources urbaines (dont chauffage bois), trafic, métallurgie
Rouen	Urbain	4986	Sources urbaines, trafic, activité industrielle (raffineries, port fluvial) aérosols maritimes

Tableau I - Sites d'observation et leurs principales caractéristiques

Des échantillons seront prélevés avec un préleveur HVS séquentiel (Digitel DA80) fonctionnant à 30 m³/h (Figure 5). Les filtres utilisés sont des filtres de 150 mm de diamètre en fibres de quartz. La période de collecte est de 24 h, de minuit à minuit, à l'exception des sites d'échantillonnage de Revin et Nogent où la collecte sera faite de 9 heures à 9 heures.

Pour déterminer la représentativité de la composition chimique des particules PM₁₀, il est utile de connaître la masse totale de PM₁₀ par unité de volume d'air ambiant. Pour cela les sites sont équipés d'analyseurs automatiques de la concentration massique. Sur le site de Lens l'analyseur est une jauge bêta (MP101M-RST, Environnement SA) équipée d'une tête de prélèvement PM₁₀ et d'un système de chauffage (RST) contre l'humidité. Sur les autres sites, la concentration en masse des PM₁₀ sera mesurée par un système TEOM-FDMS (microbalance).

Pour déterminer la composition chimique des échantillons prélevés des techniques différentes sont utilisées selon le type de composé analysé (Tableau II).



Figure 5 - Collecteur DIGITEL DA 80

	Méthode	Appareil	Responsable	Référence
Eléments majeurs	ICP-AES	IRIS Intrepid, Thermo-scientific	Mines Douai	Alleman et al., 2010 ^[33]
Eléments traces	ICP-MS	ELAN 6100 DRC, Perkin Elmer	Mines Douai	Alleman et al., 2010 ^[33]
Anions et cations solubles	Chromatographie ionique	IC, Dionex DX-600	LSCE	Sciare et al., 2008 ^[34]
Carbone élémentaire (EC) et Carbone organique (OC)	Transmission thermique optique (TOT)	Analyseur Sunset Lab avec protocole NIOSH 870	LCSQA (Mines Douai et l'INERIS)	Birch et Cary, 1996 ^[35]
Anhydrides de sucre et alcools de sucre	HPAEC (IC-PAD)	Dionex ICS 3000	LSCE	Inuma et al., 2009 ^[36]

Tableau II - Composés analysés, la méthode et les appareils utilisés

5. Conclusions et perspectives

La pollution de l'air en Europe, tout en étant une question transfrontalière, peut également être considérée comme un problème local et régional causé par des émissions de polluants spécifiques, soit directement par des sources d'émission primaire, soit par des réactions chimiques atmosphériques conduisant à des aérosols secondaires. Les PM dans l'air ambiant sont issus de nombreuses sources et constituent un mélange hétérogène complexe. Les tailles et la composition chimique de ce mélange peuvent changer dans le temps et l'espace, selon les sources d'émission et les conditions atmosphériques et météorologiques.

Des modèles dits sources-récepteur peuvent être appliqués pour évaluer statistiquement la contribution de différents facteurs, assimilés à des sources, aux concentrations en PM observées à des sites récepteurs. Le modèle PMF notamment permet de distinguer et de répartir les sources de PM sur la base de corrélations entre les différents composés chimiques mesurés.

Plusieurs sources de PM ont été identifiées à travers des études récentes menées dans le nord-ouest de l'Europe. Les plus communes sont attribuées au trafic, à la matière minérale, à l'aérosol marin, à la combustion de fioul et de biomasse, ainsi qu'aux aérosols secondaires. La caractérisation chimique de chaque source dépend fortement de la localisation géographique de l'étude, mais certains éléments peuvent être attribués à des sources spécifiques en tant que signature.

La variabilité temporelle s'est avérée être un déterminant important dans les analyses de sources. Des concentrations plus élevées de PM sont attendues au cours de l'hiver et au printemps, principalement en raison de l'augmentation de la combustion de bois et de l'occurrence de brouillards photochimiques, comme souligné par l'étude récente concernant le site de Lens.

Dans l'étude de Mooibroeck et al. (2011) aux Pays-Bas, la multiplicité des sites d'observation a permis de distinguer les sources locales des sources lointaines.

Les analyses de rétrotrajectoires sont des outils utilisés pour la localisation des zones-sources potentielles. Ces techniques peuvent être extrêmement utiles pour fournir une meilleure connaissance sur les sources à l'origine d'épisodes de non-respect de valeurs-limites ; cependant, les incertitudes doivent être prises en compte, car elles augmentent de manière significative avec le temps.

L'inclusion des espèces organiques et inorganiques dans les études de la répartition par source est fortement recommandée car elle permet une meilleure détermination de l'influence de différentes sources et de leur contribution aux concentrations en PM.

L'originalité de l'étude des déterminants des concentrations en PM₁₀ dans le nord de la France, initiée récemment et dont la méthodologie a été présentée ici, est basée sur sa dimension régionale (répartition spatiale des sites) et sur ses objectifs de caractérisation simultanée des sources locales et lointaines grâce à la diversification de la typologie des sites d'observation. Les résultats escomptés dans le cadre de ce projet pourront être comparés et complétés par ceux obtenus sur le site du Cap Gris-Nez (géré par l'ULCO), dans le cadre du programme ChemKar (géré par VMM) sur 5 villes flamandes, et dans le contexte du projet européen JOAQUIN (INTERREG IV-B NWE) pour quatre sites d'observation à Lille, Anvers, Amsterdam et Leicester.

Références

1 - Seinfeld, J.; Pandis S.. 1998. Atmospheric Chemistry and Physics: From Air Pollution to Climate Change (2nd ed.). Hoboken, New Jersey: John Wiley & Sons, Inc. p. 97. ISBN 0-471-17816-0.

2 - EEA, 2012c, Particulate matter from natural sources and related reporting under the EU Air Quality Directive in 2008 and 2009, EEA Technical report No 10/2012, European Environment Agency.

3 - Analitis A., Katsouyanni K., Dimakopoulou K., Samoli E., Nikoloulopoulos A.K., Petasakis Y. 2006. Short-term effects of ambient particles on cardiovascular and respiratory mortality Epidemiol, 17, pp. 230–233.

4 - Pope C.A., Brook R.D., Burnett R.T., Dockery D.W. 2011. How is cardiovascular disease mortality risk affected by duration and intensity of fine particulate matter exposure? An integration of the epidemiologic evidence. Air Qual Atmos Health. 4: 5-14.

5 - Brook R.D., Franklin B., Cascio W., Hong Y., Howard G., Lipsett M., Luepker R., Mittleman M., Samet J., Smith S. C., Tager Jr. & I. 2004. Air pollution and cardiovascular disease: a statement for healthcare professionals from the Expert

Panel on Population and Prevention Science of the American Heart Association. *Circulation*, 109, 2655-71.

6 - EEA, 2013. Air quality in Europe. EEA Report No 9/2013, European Environment Agency.

7 - EEA, AirBase 'Produced maps and graphs': <http://www.eea.europa.eu/data-and-maps/figures/airbase-exchange-of-information-2/so2-2008-concentration/fancybox.html>. Published 04/03/2011 and last modified 29/11/2012.

8 - MEDTL. 2011. Les enjeux atmosphériques. Etat des lieux France-Région pour l'élaboration des schémas régionaux climat, air, énergie (SRCAE). Nord-Pas-de-Calais. Ministère de l'Ecologie, du Développement durable, des Transports et du Logement, 8 p.

9 - CPCB, Document on Conceptual guidelines and common methodology for air quality monitoring, emission inventory and source apportionment studies for Indian cities, <http://www.cpcb.nic.in/sourceapportionmentstudies.pdf>, 2007.

10 - Buset, K.C., Evans, G.J., Richard Leitch, W., Brook, J.R., Toom-Saunty, D. 2006. Use of advanced receptor modelling for analysis of an intensive 5-week aerosol sampling campaign. *Atmospheric Environment*, 40 (SUPPL. 2), pp. 482-499.

11 - EPA. 2011. Inventory of U.S. greenhouse gas emissions and sinks: 1990–2009. U.S. Environmental Protection Agency. Washington, DC.

12 - Hopke P.K., Ito K., Mar T., Christensen W.F., Eatough D.J., Henry R.C., Kim E., Laden F., Lall R., Larson T.V., Liu H., Neas L., Pinto J., Stölzel M., Suh H., Paatero P., Thurston, G.D. 2006. PM source apportionment and health effects: 1. Intercomparison of source apportionment results. *Journal of Exposure Science and Environmental Epidemiology* 16, 275–286.

13 - Viana M., Kuhlbusch T. A. J., Querol X., Alastuey A., Harrison R. M., Hopke P. K., Winiwarter W., Vallius M., Szidat S., Prévôt A. S. H., Hueglin C., Bloemen H., Wählin P., Vecchi R., Miranda A. I., Kasper-Giebl A., Maenhaut W., Hitenberger R. 2008. Source apportionment of particulate matter in Europe: a review of methods and results, *J. Aerosol Sci.*, 39, 827–849, doi: 10.1016/j.jaerosci.2008.05.007.

14 - Paatero P., Tapper U. 1994. Positive matrix factorization: a non-negative factor model with optimal utilization of error estimates of data values. *Environmetrics*. 5(2):111–126.

15 - Gupta I., Salunkhe A., Kumar R. 2012. Source Apportionment of PM₁₀ by Positive Matrix Factorization in Urban Area of Mumbai, India. *ScientificWorldJournal*, doi: 10.1100/2012/585791.

16 - Gleser L.J. 1997. Some thoughts on chemical mass balance models. *Chemometrics and Intelligent Laboratory Systems*, 37, 15–22.

17 - Hopke P.K. 1988. Target transformation factor analysis as an aerosol mass apportionment method: A review and sensitivity analysis. *Atmospheric Environment*, 22, 1777–1792.

18 - Paatero, P. 1999. The multilinear engine - a table-driven least squares program for solving multilinear problems, including the n-way parallel factor analysis model. *Journal of Computational and Graphical Statistics*, 8, 854–888.

19 - Han Y.-J., Holsen T. M., Hopke P. K. 2007. Estimation of source locations of total gaseous mercury measured in New York State using trajectory-based models, *Atmos. Environ.*, 41, 6033–6047.

20 - Kabashnikov V.P., Chaikovsky A.P., Kucsera T.L., and Metelskaya N.S. 2011. Estimated accuracy of three common trajectory statistical methods, *Atmos. Environ.*, 45, 5425–5430.

21 - Han Y.-J., Holsen T.M., Hopke P.K., Yi S.-M. 2005. Comparison between back-trajectory based modeling and Lagrangian backward dispersion modeling for locating sources of reactive gaseous mercury, *Environ. Sci. Technol.*, 39, 1715–1723.

22 - Abbott M.L., Lin C.-J., Martian P., Einerson J.J. 2008. Atmospheric mercury near Salmon Falls Creek Reservoir in southern Idaho, *Appl. Geochem.*, 23, 438–453.

23 - Choi H.-D., Holsen T.M., Hopke P.K. 2008. Atmospheric Mercury (Hg) in the Adirondacks: concentrations and sources, *Environ. Sci. Technol.*, 42, 5644–5653.

24 - Xu X., Akhtar U.S. 2010. Identification of potential regional sources of atmospheric total gaseous mercury in Windsor, Ontario, Canada using hybrid receptor modelling, *Atmos. Chem. Phys.*, 10, 7073–7083, doi: 10.5194/acp-10-7073-2010.

25 - Fu X., Feng X., Qiu G., Shang L., Zhang H. 2011. Speciated atmospheric mercury and its potential source in Guiyang, China, *Atmos. Environ.*, 45, 4205–4212, doi: 10.1016/j.atmosenv.2011.05.012.

26 - Weiss-Penzias P. S., Gustin M. S., Lyman S. N. 2011. Sources of gaseous oxidized mercury and mercury dry deposition at two south-eastern US sites, *Atmos. Environ.*, 45, 4569–4579, doi: 10.1016/j.atmosenv.2011.05.069.

27 - Gustin M.S., Jaffe D. 2010. Reducing the uncertainty in measurement and understanding of mercury in the atmosphere, *Environ. Sci. Technol.*, 44, 2222–2227.

28 - Rutter A.P., Snyder D.C., Stone E. A., Schauer J.J., Gonzalez-Abraham R., Molina L.T., Marquez C., Cardenas B., de Foy B. 2009. In situ measurements of speciated atmospheric mercury and the identification of source regions in the Mexico City Metropolitan Area, *Atmos. Chem. Phys.*, 9, 207–220, doi: 10.5194/acp-9-207-2009.

29 - Watson J.G., Chen L.W.A., Chow J.C., Doraiswamy P., Lowenthal D.H. 2008. Source apportionment: findings from the US supersites program, *J. Air Waste Manag. Assoc.*, 58, 265–288, doi: 10.3155/1047-3289.58.2.265.

30 - Waked A., Favez O., Alleman L. Y., Piot C., Petit J.-E., Delaunay T., Verlinden E., Golly B., Besombes J.-L., Jaffrezo J.-L., Leoz-Garziandia E. 2013. Source apportionment of PM₁₀ in a North-Western Europe regional urban background site (Lens, France) using Positive Matrix Factorization and including primary biogenic emissions. *Atmos. Chem. Phys. Discuss.* doi:10.5194/acpd-13-25325-2013.

31 - Mooibroek D., Schaap M., Weijers E.P., Hoogerbrugge R. 2011. Source apportionment and spatial variability of PM_{2.5} using measurements at five sites in the Netherlands. *Atmos. Environ.* 45: 4180–4191.

32 - Hopke P.K., Marshall N.F., Paatero P. 2013. New tools for improved PMF, ISPR Conference, 27–28, February, 2013 in ISPR.

33 - Alleman L.Y., Lamaison L., Perdrix E., Robache A., Galloo J.C. 2010. PM₁₀ metal concentrations and source identification using positive matrix factorization and wind sectoring in a French industrial zone. *Atmos. Res.* 96, 612–625.

34 - Sciare J., Sarda-Estève R., Favez O., Cachier H., Aymoz G., Laj, P. 2008. Nighttime residential wood burning evidenced from an indirect method for calculating real-time concentration of particulate organic matter (POM), *Atmos. Environ.*, 42, 2158–2172..

35 - Birch M.E., Carry R.A. 1996. Elemental carbon based for monitoring occupational exposures to particulate diesel exhaust. *Aerosol Science and Technology* 25, 221-241.

36 - Inuma Y., Engling G., Puxbaum H., Herrmann, H. 2009. A highly resolved anion-exchange chromatographic method for determination of saccharidic tracers for biomass combustion and primary bio-particles in atmospheric aerosol, *Atmos. Environ.*, 43, 1367–1371, 2009.