

Laboratoire Central de Surveillance de la Qualité de l'Air

Travaux INERIS

IMPACT DE LA COMBUSTION DE BIOMASSE SUR LES CONCENTRATIONS DE PM₁₀ DANS 10 AGGLOMERATIONS DU PROGRAMME CARA AU COURS DE L'HIVER 2014-2015

Olivier FAVEZ, Alexandre ALBINET, Robin AUJAY (LCSQA/INERIS)
en partenariat avec Jean-Luc JAFFREZO, Benjamin GOLLY, Yann COHEN (LGGE)

Programme LCSQA 2015

	Rédaction	Vérification	Approbation
NOM	Olivier FAVEZ	Caroline MARCHAND	Nicolas ALSAC
Qualité	Ingénieur de l'Unité CIME Direction des Risques Chroniques	Responsable de l'Unité CIME Direction des Risques Chroniques	Responsable du Pôle CARA Direction des Risques Chroniques
Visa			



LE LABORATOIRE CENTRAL DE SURVEILLANCE DE LA QUALITE DE L'AIR

Le Laboratoire Central de Surveillance de la Qualité de l'Air est constitué des laboratoires de Mines Douai, de l'INERIS et du LNE. Il mène depuis 1991 des études et des recherches 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'Énergie et du Climat (bureau de la qualité de l'air) du Ministère de l'Écologie, du Développement durable et de l'Énergie (MEDDE). 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 MEDDE 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.

TABLE DES MATIERES

RESUME	7
REMERCIEMENTS ET COLLABORATIONS.....	8
1. INTRODUCTION	9
2. STRATEGIE EXPERIMENTALE	11
2.1 Choix des sites d'étude	11
2.2 Prélèvements et analyses chimiques	11
2.3 Méthodologie de traitement de données.....	13
3. RESULTATS ET DISCUSSIONS	14
3.1 Facteurs de conversion	14
3.2 Contributions aux PM ₁₀	15
4. CONCLUSIONS ET PERSPECTIVES	19
5. REFERENCES	21

Cette étude s'inscrit dans la continuité des travaux menés depuis une dizaine d'années par le LCSQA (en étroite collaboration avec des laboratoires de recherche, dont le LGGE) afin de mieux évaluer l'impact du chauffage résidentiel au bois sur les niveaux de PM_{10} enregistrés sur différentes stations du dispositif national de surveillance. Pour réaliser ce type d'étude, il est généralement recouru à l'analyse de marqueurs organiques spécifiques, tel que le levoglucosan, prélevés sur filtres. Il est ensuite possible d'estimer la quantité de matière particulaire (PM) provenant de la combustion de biomasse en appliquant différents facteurs multiplicatifs aux concentrations obtenues pour ces marqueurs. Ces dernières années ont également vu l'émergence d'analyseurs automatiques de la composition chimique des particules permettant notamment l'identification et la mesure en temps réel des particules liées à cette source. En particulier, de récents tests en AASQA ont permis de vérifier la robustesse et la fiabilité de l'Aethalomètre multi-longueurs d'onde de type AE33, conduisant à son implantation sur différents sites urbains de fond du dispositif national entre 2013 et 2014. Dans le cadre de ses travaux pour le LCSQA, l'INERIS a alors proposé de réaliser une étude combinant des mesures sur filtres et des mesures par AE33 au cours de l'hiver 2014-2015. Le présent rapport rend compte des résultats obtenus à l'aide des mesures sur filtres, réalisées pour 10 sites de fond urbain du programme CARA au sein de grandes agglomérations françaises (constituant à ce jour le plus large panel de sites étudiés simultanément en France).

Les prélèvements ont été réalisés sur une période hivernale élargie s'étendant de mi-novembre 2014 à mi-avril 2015. Sur cette période, les contributions journalières moyennes aux PM_{10} de la combustion de biomasse sont globalement comprises entre 18% et 36%, les plus faibles niveaux étant obtenus pour Marseille et les plus élevés pour Grenoble. Parmi les autres agglomérations étudiées, Bordeaux et Poitiers présentent également des contributions journalières très élevées (environ 30%). Pour les autres sites (Rouen, Reims, Strasbourg, Nantes, Lyon, et Nice), cette contribution est estimée à environ 20%. Ces résultats sont en bon accord avec ceux obtenus précédemment, pour certains de ces sites ou pour d'autres agglomérations françaises, confirmant l'importance de l'influence du chauffage résidentiel au bois sur la qualité de l'air de l'ensemble du territoire métropolitain en hiver.

Les résultats obtenus dans le cadre de la présente étude permettront d'affiner la méthodologie d'exploitation des données issues de la mesure automatique.

REMERCIEMENTS ET COLLABORATIONS

Ce travail a été réalisé en étroite collaboration avec le Laboratoire de Glaciologie et de Géophysique de l'Environnement (LGGE, CNRS-Université de Grenoble) et les Associations Agréées de Surveillance de la Qualité de l'Air (AASQA) suivantes : AirAq, Air Normand, Air PACA, Air Pays de la Loire, Air Rhône-Alpes, ASPA, Atmo Champagne-Ardenne, Atmo Franche-Comté, et Atmo Poitou-Charentes.

Sans pouvoir être totalement exhaustif, les auteurs du présent rapport remercient chaleureusement pour leur précieuse implication l'ensemble des personnels ayant participé de près ou de loin à la collecte et à la gestion des filtres, dont : Vincent Tribout, Floran Pin et Pierre-Yves Guernion (AirAq) ; Michaël Morand, Sébastien Lemeur et Nicolas Lepelley (Air Normand) ; Aurélie Stoerckel, Jérémie Soubise, Grégory Gille et Boualem Mesbah (Air PACA) ; Arnaud Tricoire et Florence Guillou (Air Pays de la Loire) ; Didier Grenier, Emmanuel Moussu, Clément Bret, Marie-Pierre Vagnot et Yann Pellan (Air Rhône-Alpes) ; Eric Herber, Didier Steiger et Cyril Pallares (ASPA) ; Anne Arounothayn Eve Chrétien et Bastien Gal (Atmo Champagne-Ardenne) ; Hélène Moritz, Claire Labartette et Anaïs Detournay (Atmo Franche-Comté) ; Nathalie Delaunay, Régis Piet et Agnès Hulin (Atmo Poitou-Charentes). Fanny Masson (LGGE), Laura Creve et Bruno Triart (INERIS).

1. INTRODUCTION

Les particules (PM₁₀ et PM_{2.5}) correspondent actuellement, avec les oxydes d'azotes, aux polluants atmosphériques les plus préoccupants en termes de santé publique et de non-respect des valeurs limites fixées par les Directives européennes sur la qualité de l'air ambiant. Elles proviennent d'une multitude de sources d'émission et de processus de transformation dans l'atmosphère, expliquant la grande diversité et la complexité de leurs propriétés physico-chimiques. Les combustions de biomasse et d'énergie fossile sont tout particulièrement responsables de fortes concentrations d'aérosols carbonés dans l'atmosphère, sous forme de carbone suie (EC) et de matière organique (OM). La France est identifiée comme le premier émetteur européen de ces dernières, du fait de l'importance des émissions liées au chauffage résidentiel au bois [1].

Ce n'est que relativement récemment (depuis 5-6 ans) que l'ensemble de la communauté scientifique internationale s'accorde à considérer cette source comme l'une des activités anthropiques les plus polluantes. En France, le programme POVA (PRIMEQUAL 2 / PREDIT) a permis, il y a une dizaine d'années, de mettre en évidence l'importance de ce phénomène dans les vallées alpines [2]. A la demande du ministère en charge de l'environnement, l'INERIS s'est ensuite associé au LGGE, au LCME (Laboratoire de Chimie Moléculaire de l'Environnement de l'Université de Savoie) et à plusieurs Associations Agréées de Surveillance de la Qualité de l'Air (AASQA) afin de mieux appréhender l'influence du chauffage au bois comme source de matière organique au sein de 4 grandes agglomérations (Paris, Grenoble, Strasbourg et Lille). Cette étude novatrice a permis d'illustrer l'intérêt de ce type de travaux, indiquant des contributions à la matière organique de l'ordre de 20 à 50%, selon les sites, au cours de l'hiver 2006-2007 [3]. Toutes les études réalisées depuis, ont confirmé que le chauffage résidentiel au bois constitue une source majeure de PM₁₀ dans les différentes agglomérations françaises ayant pu être investiguées (e.g., Clermont-Ferrand, Paris, Grenoble, Rouen, Lens, Bordeaux, Lyon) [4-9], et que cette source peut expliquer la survenue d'importants épisodes de pollution en début d'hiver [8-10].

Il n'existe pas de méthodologie permettant de mesurer directement les concentrations de particules provenant de la combustion de biomasse. Néanmoins, la présence de ce type de particules peut être identifiée via l'analyse chimique de marqueurs organiques spécifiques, en particulier le levoglucosan provenant de la dégradation thermique de la cellulose [11-12]. Il est ensuite possible d'estimer la quantité de carbone organique puis de PM provenant de la combustion de biomasse, en appliquant successivement plusieurs facteurs multiplicatifs aux concentrations de levoglucosan mesurées. La valeur de ces facteurs dépend des paramètres de combustion, dont la nature du combustible (e.g., bois dur versus bois tendre, bois sec versus bois humide, bois bûche versus granulés, etc ..), la nature de l'installation utilisée (e.g., cheminée ouverte versus poêle), et le type de combustion (e.g., allure nominale versus allure réduite, en fonction de la quantité d'oxygène apportée) [12-13]. Ces facteurs peuvent donc prendre différentes valeurs selon le site d'étude [14-15], et leur détermination (généralement empirique) est un point crucial autant qu'incertain dans ce type d'étude.

Ces dernières années ont également vu l'émergence d'analyseurs automatiques de la composition chimique des particules permettant la mesure en temps réel d'autres marqueurs des particules émises par la combustion de biomasse. En particulier, de récents tests en AASQA ont permis de vérifier la robustesse et la fiabilité de l'Aethalomètre multi-longueurs d'onde de type AE33 (*Magee Scientific*) pour la mesure du *black carbon* (BC) et la discrimination entre ses origines « combustion de biomasse » et « combustion de dérivé du pétrole » [9, 16]. Cet analyseur présente, en outre, un coût d'investissement modéré et un faible coût de fonctionnement, de sorte qu'une dizaine d'AASQA ont pu procéder à son implantation sur différents sites urbains de fond du dispositif national entre 2013 et 2014. Comme pour les études basées sur la mesure des concentrations de levoglucosan, l'interprétation des données obtenues à l'aide de l'AE33 nécessite la détermination d'un facteur multiplicatif permettant de convertir les concentrations de BC liées à la combustion de biomasse (BC_{wb}) en concentrations de PM liées à cette même source (PM_{wb}).

C'est dans ce contexte que le LCSQA a proposé de réaliser une étude combinant des mesures sur filtres et des mesures par AE33 au cours de l'hiver 2014-2015, afin :

- 1) de dresser, à l'aide d'une méthodologie harmonisée, une phénoménologie de l'impact du chauffage au bois sur les niveaux de PM au sein d'un large panel d'agglomérations françaises ;
- 2) d'apporter les éléments nécessaires aux AASQA pour les guider dans la détermination du facteur de conversion entre BC_{wb} et PM_{wb} spécifique pour leur(s) site(s) équipé(s) d'un AE33.

Le présent rapport rend uniquement compte des résultats obtenus à l'aide de mesures sur filtres pour les 10 sites de fond urbain du programme CARA [17] équipés d'un AE33 à la fin de l'année 2014. La méthodologie appliquée est détaillée au chapitre 2. Elle a été choisie de façon à éviter les risques de surestimation des concentrations de PM liées à la combustion de biomasse. Lorsque cela était possible, les résultats obtenus pour cette étude sont finalement comparés aux données déjà disponibles pour certaines des agglomérations étudiées ici (chapitre 3).

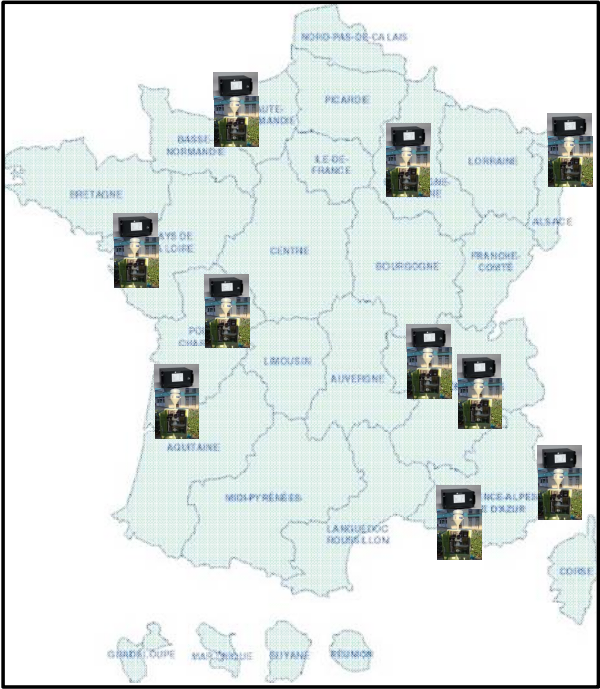
Les résultats obtenus dans le cadre de la présente étude pourront ensuite être utilisés lors de collaborations bilatérales avec les AASQA concernées afin d'affiner le choix du facteur multiplicatif devant être appliqué localement pour estimer la part de PM₁₀ liée à la combustion de biomasse à partir des concentrations de BC_{wb} issues des mesures AE33.

2. STRATEGIE EXPERIMENTALE

2.1 Choix des sites d'étude

Les sites étudiés sont détaillés sur la figure 1. Comme expliqué précédemment, ils correspondent aux stations de fond urbain du programme CARA équipés d'un Aethalomètre de type AE33 à la fin de l'année 2014.

Agglomération	Station
Rouen	Petit-Quevilly
Reims	Jean d'Aulan
Strasbourg	STG Nord
Nantes	CIM Bouteillerie
Poitiers	Augouard
Lyon	Lyon Centre
Grenoble	Les Frênes
Bordeaux	Talence
Marseille	5 Avenues
Nice	Arson



The map shows the geographical distribution of the 10 study sites across France. The sites are marked with small icons corresponding to the stations listed in the table: Rouen (Normandie), Reims (Champagne-Ardenne), Strasbourg (Alsace), Nantes (Pays de la Loire), Poitiers (Nouvelle-Aquitaine), Lyon (Auvergne-Rhône-Alpes), Grenoble (Auvergne-Rhône-Alpes), Bordeaux (Nouvelle-Aquitaine), Marseille (Provence-Alpes-Côte d'Azur), and Nice (Provence-Alpes-Côte d'Azur).

Figure 1: liste et localisation des sites de fond urbain étudiés ici.

2.2 Prélèvements et analyses chimiques

La période d'étude correspond à la période de l'année regroupant la grande majorité des épisodes de pollution particulaire observés en France, soit une période hivernale élargie de mi-novembre à mi-avril [9, 18]. Le nombre de prélèvements analysés pour chaque site est décrit dans le tableau 2. Pour des raisons budgétaires, il n'a pas été possible de procéder à l'analyse systématique de filtres prélevés tous les jours sur l'ensemble de la période d'étude. Néanmoins, la représentativité temporelle de cette étude a été assurée via l'analyse de prélèvements journaliers (de minuit à minuit) collectés sur un pas de temps régulier et relativement court, permettant de balayer les différentes conditions météorologiques hivernales. Ce pas de temps a été fixé partout à 3 jours, bien qu'il ait dû finalement être ramené à 4 jours pour Nice et à 6 jours pour Marseille. Les préleveurs étaient opérationnels au 16 novembre 2014 sur chacun des sites, à l'exception de Reims et de Strasbourg pour lesquels des prélèvements étaient disponibles respectivement à partir du 26 novembre et du 23 décembre 2014.

Enfin, les prélèvements ont pu être effectués jusqu'au 15 avril sur tous les sites, hormis à Strasbourg où le préleveur a dû être retiré le 17 mars 2015.

Tableau 1 : Détail des périodes investiguées, de la fréquence d'échantillonnage des filtres analysés et du nombre total de filtres analysés pour chaque site.

Agglomération	Plage d'étude effective	Fréquence	Nombre de filtres
Rouen	16/11/2014 - 15/04/2015	1 jour sur 3	50
Reims	28/11/2014 - 15/04/2015	1 jour sur 3	45
Strasbourg	25/12/2014 - 16/03/2015	1 jour sur 3	28
Nantes	16/11/2014 - 15/04/2015	1 jour sur 3	49
Poitiers	16/11/2014 - 15/04/2015	1 jour sur 3	50
Lyon	16/11/2014 - 15/04/2015	1 jour sur 3	50
Grenoble	14/11/2014 - 16/04/2015	1 jour sur 3	50
Bordeaux	16/11/2014 - 15/04/2015	1 jour sur 3	49
Marseille	16/11/2014 - 15/04/2015	1 jour sur 6	23
Nice	16/11/2014 - 15/04/2015	1 jour sur 4	32

Les prélèvements ont été réalisés dans la fraction PM₁₀ par le personnel des AASQA, selon le mode de fonctionnement habituel du programme CARA [19], à l'aide d'échantillonneurs haut-débit de type DA80 (Digitel)¹ et de filtres en fibre de quartz fournis par le LCSQA. Avant envoi aux AASQA, ces filtres ont été calcinés à 500°C pendant 2h, afin de limiter l'influence de possibles artefacts positifs.

Les analyses chimiques ont été confiées au LGGE. Pour les besoins de la présente étude, ces analyses chimiques correspondent au dosage :

- du carbone élémentaire (EC) et du carbone organique (OC, i.e., concentrations d'atomes de carbone contenus au sein de la matière organique), par méthode thermo-optique à l'aide d'un analyseur de type Sunset Lab. (*Sunset Inc.*) et selon le protocole européen EUSAAR 2 [20] ;
- du levoglucosan par chromatographie liquide à haute performance de type DX500 couplée à un détecteur ampérométrique de type ED40 (HPLC-PAD, *Dionex*) [21].

Le LGGE effectue ce type de mesures en routine et participe régulièrement avec succès à différents exercices nationaux et européens de comparaisons inter-laboratoires sur ces techniques analytiques [22-23].

¹ Pour des raisons de disponibilité de matériel, le site de Marseille 5 Avenues était équipé d'un préleveur bas-débit de type Partisol 2025 (*Thermo*).

2.3 Méthodologie de traitement de données

Le levoglucosan est universellement utilisé comme marqueur en air ambiant des émissions par combustion de biomasse car il est l'un des principaux constituants de la matière organique issue de cette source et est considéré comme relativement stable dans l'atmosphère [11-12]. Les études basées sur sa mesure s'attache en premier lieu à déterminer les concentrations de OC liée à la combustion de biomasse (OC_{biomasse}) à l'aide d'un facteur multiplicatif (f) tel que :

$$OC_{\text{biomasse}} = f \times \text{levoglucosan},$$

où f correspond au ratio $(OC/\text{levoglucosan})_{\text{biomasse}}$ considéré comme représentatif de la source ou du mélange de source étudié. A noter que OC_{biomasse} est calculé ici plutôt que OM_{biomasse} car les méthodologies classiques de mesure sur filtre ne permettent pas l'analyse directe d'OM.

Les valeurs de f reportées dans la littérature, et déterminées par des mesures à l'émission et/ou empiriquement à partir de données obtenues en air ambiant, varient quasiment d'un ordre de grandeur et sont généralement comprises entre 3 et 15 [13-15]. Comme mentionné en introduction, ces écarts s'expliquent en premier lieu par la grande diversité de composition chimique des particules émises en fonction des paramètres de combustion. Le choix d'une valeur de 7, précédemment utilisée par Puxbaum et al. (2007) pour différents sites de fond européen [14], permet de se placer au milieu de cette gamme. Néanmoins, **afin de limiter les risques de surestimation, il est proposé ici de fixer une borne supérieure en se basant également sur les mesures de OC (total) et en considérant que la valeur de f ne peut pas être supérieure à la moyenne des 3 ratios journaliers ($OC_{\text{total}}/\text{levoglucosan}$) les plus faibles pour chaque site d'étude.** De cette manière, OC_{biomasse} reste logiquement inférieur à OC_{total} .

La concentration de PM_{biomasse} peut ensuite être estimée par application successive de 2 nouveaux facteurs multiplicatifs, permettant de convertir OC_{biomasse} en OM_{biomasse} puis OM_{biomasse} en PM_{biomasse} (en intégrant la part de carbone élémentaire provenant de la combustion de biomasse). En se basant sur la littérature [24-26], ces facteurs ont été choisis ici comme respectivement égaux à 1,8 et 1,1, de sorte que :

$$PM_{\text{biomasse}} = f \times \text{levoglucosan} \times 1,8 \times 1,1$$

Il est alors possible de comparer les ratios $PM_{\text{biomasse}}/\text{levoglucosan}$ obtenus ici pour Rouen, Grenoble, Lyon et Bordeaux à ceux obtenus précédemment pour ces mêmes agglomérations à l'aide d'une méthodologie plus sophistiquée (e.g., *Positive Matrix Factorization*, ne pouvant être mise en œuvre dans le cadre de la présente étude pour des raisons budgétaires) [9, 16, 24]. Ces comparaisons permettent d'évaluer la pertinence globale de la méthodologie décrite ci-dessus. A noter également qu'il est raisonnable de considérer que les plages d'incertitudes des facteurs de conversion $OC_{\text{biomasse}}-OM_{\text{biomasse}}$ et $OM_{\text{biomasse}}-PM_{\text{biomasse}}$ varient respectivement entre 1,6 et 2,2 et entre 1,05 et 1,25 [13, 27-28], de sorte que le choix des valeurs de 1,8 et 1,1 limitent à nouveau les risques de surestimation des concentrations de PM_{biomasse} .

Enfin, ces concentrations de PM_{biomasse} peuvent être rapportées aux concentrations totales de PM_{10} mesurées par les AASQA sur les sites d'étude à l'aide d'un TEOM-FDMS ou d'une jauge beta.

3. RESULTATS ET DISCUSSIONS

3.1 Facteurs de conversion

Les facteurs de conversion obtenus à l'aide de la méthodologie décrite ci-dessus sont détaillés dans le tableau 2 ci-dessous.

Tableau 2 : Dates, moyennes, écart-types des trois valeurs de ratio OC/levoglucosan les plus faibles pour chaque site, et facteurs de conversion levoglucosan-PM_{biomasse} utilisés dans cette étude. Pour Rouen, Lyon, Grenoble et Bordeaux, ces facteurs de conversion sont comparés à ceux trouvés lors d'études antérieures.

Agglomération	(OC/levoglucosan) _{min}		(PM ₁₀ /levoglucosan) _{biomasse}	
	Dates	Moy.±écart type	Cette étude	Autres études
Rouen	07 & 25/12/2014, 03/01/2015	5,5 ± 0,5	10,9	10,4*
Reims	31/12/2014, 03 & 18/01/2015	6,8 ± 0,2	13,5	
Strasbourg	01, 04 & 07/03/2015	4,0 ± 0,4	7,9	
Nantes	13 & 25/12/2014, 03/01/2015	5,2 ± 0,5	10,3	
Poitiers	25 & 31/12/2014, 18/01/2015	5,1 ± 0,2	10,1	
Lyon	22 & 31/12/2014, 03/01/2015	6,1 ± 0,3	12,1	11,4*
Grenoble	23/11 & 23/12/2014, 04/01/2015	5,9 ± 0,4	11,7	11,9**
Bordeaux	04, 22 & 31/12/2014	4,6 ± 0,4	9,1	8,9*
Marseille	16/11/2014, 05/01 & 14/02/2015	9,6 ± 0,2	10,7	
Nice	10/12/2014 10 & 20/01/2015	5,3 ± 2,4	10,5	

* Résultats issus d'études PMF réalisées précédemment, en collaboration avec les AASQA, le LSCE et le LGGE dans le cadre du programme CARA (en 2010-2011 pour Rouen, 2012 pour Lyon et 2012-2013 pour Bordeaux) [9, 16]

** Résultat issu de la campagne FORMES réalisée en janv.-fev. 2009 [24-25]

A l'exception de Marseille, toutes les agglomérations étudiées ici présentent des ratios (OC/levoglucosan) minimum inférieurs à la valeur de 7,1 préconisé par Puxbaum et al. (2007). Dans la plupart des cas, ces ratios minimum ont été obtenus le week-end ou lors des vacances de Noël (16 et 23 novembre 2014, 7 et 13 décembre 2014, du 20 décembre 2014 au 4 janvier 2015, 18 janvier 2015, 14 février 2015, 1 et 7 mars 2015), périodes pendant lesquelles il n'est pas illogique de considérer la combustion de biomasse comme source ultra-majoritaire de OC. Ces ratios sont par ailleurs en bon accord avec les facteurs de conversion levoglucosan-OC_{biomasse} précédemment déterminés pour différentes agglomérations françaises et européennes, e.g., Grenoble (6,0), Paris (6,2) et Milan (5,3) [24, 29-30]. Ils peuvent donc raisonnablement être considérés comme de bonnes estimations des valeurs de f à appliquer pour chaque site d'étude (hormis Marseille).

Le tableau 2 détaille les valeurs des facteurs de conversion levoglucosan-PM_{biomasse} obtenu en multipliant les ratios (OC/levoglucosan)_{min} par 1,8 puis 1,1 (cf. chapitre 2) et pouvant ainsi être utilisées pour chaque agglomération (hormis Marseille). Ces facteurs de conversion varient entre 7,9 (pour Strasbourg) et 13,5 (pour Reims), et présentent une valeur médiane de 10,5 ainsi qu'une valeur moyenne de $10,7 \pm 1,7$. Les résultats obtenus ici pour Rouen, Grenoble, Lyon et Bordeaux sont également en très bon accord avec ceux obtenus précédemment à l'aide d'outils statistiques élaborés (e.g., *Positive Matrix Factorization*), notamment dans le cadre du programme CARA, confirmant à nouveau la fiabilité de la méthodologie appliquée dans le cadre de la présente étude.

Seuls les résultats obtenus pour Marseille pourraient induire un fort risque de surestimation de l'influence de la combustion de biomasse sur les niveaux de PM₁₀, avec un ratio (OC/levoglucosan)_{min} de 9,6 et un facteur de conversion vers PM_{biomasse} potentiellement égal à 19. Bien que ce type de valeur élevée aient déjà été reporté dans la littérature [15], il a été choisi d'appliquer ici la valeur moyenne de 10,7 obtenue pour l'ensemble des 9 autres agglomérations françaises.

3.2 Contributions aux PM₁₀

La figure 2 présente les concentrations moyennes de PM_{biomasse} calculées pour chaque agglomération pour le début (mi-novembre à fin janvier) et la fin (début février à mi-avril) de la période hivernale élargie étudiée ici. Dans la plupart des cas, **on constate une nette prédominance de ces concentrations lors des premiers mois d'hiver, avec des valeurs environ 2 fois plus importantes que pour la fin d'hiver - début de printemps**. Ces résultats s'expliquent notamment par des conditions météorologiques favorisant (i) l'accumulation des polluants dans une couche limite atmosphérique de faible épaisseur en début d'hiver, (ii) une plus forte dilution des polluants sous l'effet notamment de l'augmentation de cette hauteur de couche limite en mars-avril. Le début du printemps connaît également des températures plus clémentes, s'accompagnant d'une diminution de l'utilisation du chauffage résidentiel. Enfin, une dégradation partielle du levoglucosan sous l'effet de réactions photochimiques lors des épisodes de pollution printaniers ne peut être exclue [31], conduisant à une possible sous-estimation de la contribution de la combustion de biomasse à cette époque de l'année par la méthodologie utilisée ici.

Notons par ailleurs que les résultats obtenus pour Marseille indiquent des concentrations de PM_{biomasse} relativement stables tout au long de la période hivernale élargie étudiée ici, et que ceux obtenus pour Strasbourg semblent révéler des concentrations légèrement plus importantes en fin d'hiver-début de printemps qu'en début d'hiver. L'absence de données disponibles entre mi-novembre et fin décembre pour ce dernier site pourrait expliquer ce phénomène (qui reste à confirmer, notamment par l'étude des données AE33 au cours des prochains hivers).

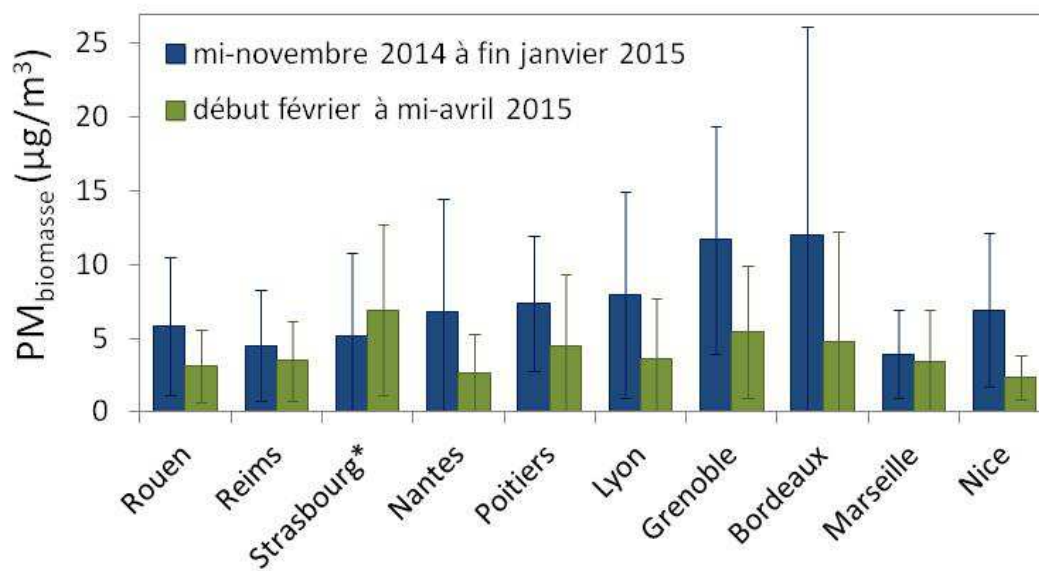


Figure 2 : Moyennes et écart-types des concentrations de PM_{biomasse} obtenues sur chaque site pour le début et la fin de la période d'étude. * Pour Strasbourg, ces deux plages de temps correspondent respectivement à fin décembre 2014-fin janvier 2015 et début février-fin mars 2015.

Les concentrations de PM_{biomasse} les plus élevées ont été estimées pour les agglomérations de Grenoble et Bordeaux, déjà connues pour l'importance de leurs émissions liées au chauffage résidentiel aux bois [9, 16, 24]. Sur ces deux sites, les concentrations journalières de PM_{biomasse} peuvent atteindre des valeurs de plusieurs dizaines de $\mu\text{g}/\text{m}^3$, pour une concentration moyenne d'environ $8,5 \mu\text{g}/\text{m}^3$ sur l'ensemble de la période étudiée. Par rapport à Grenoble, Bordeaux présente une plus forte variabilité journalière, se traduisant par un écart-type de l'ordre de $12 \mu\text{g}/\text{m}^3$ (contre $7 \mu\text{g}/\text{m}^3$ à Grenoble).

Marseille et Reims présentent de leur côté les concentrations les plus faibles avec une moyenne globale légèrement inférieure à $4 \mu\text{g}/\text{m}^3$.

Les contributions de ces concentrations aux niveaux de PM_{10} relatifs à chaque agglomération sont présentées dans le tableau 3. **Pour l'ensemble de la période d'étude, la contribution moyenne globale (i.e., rapport entre les concentrations moyennes de PM_{biomasse} et de PM_{10}) est comprise entre 15% et 25% pour quasiment tous les sites, hormis Poitiers, où elle est d'environ 30%, et Grenoble et Bordeaux, où elle est légèrement supérieure à 35%.**

Ces valeurs reflètent également celles des contributions journalières moyennes estimées pour chaque agglomération, à l'exception de Bordeaux qui présente une contribution journalière moyenne d'environ 30%. Pour ce dernier site, l'écart entre contribution moyenne globale et contribution journalière moyenne s'explique par la très forte influence des émissions par combustion de biomasse sur les niveaux de PM₁₀ les plus élevés. **A noter que la prise en compte des résultats relatifs à la fin d'hiver - début de printemps tend à minimiser ces contributions, qui sont globalement 2 fois plus importantes si l'on ne se réfère qu'à une période correspondant au début de l'hiver.**

Tableau 3 : Contribution moyenne globale et contribution journalière moyenne (\pm écart-type) de la combustion de biomasse aux PM₁₀ pour l'ensemble de la période d'étude.

Ville	Contribution hivernale moyenne (hiver 2014-15)	Contribution journalière en hiver (2014-15)
Rouen	20 %	20 \pm 13 %
Reims	19 %	20 \pm 11 %
Strasbourg	20 %	19 \pm 10 %
Nantes	22 %	21 \pm 18 %
Poitiers	29 %	28 \pm 16 %
Lyon	21 %	19 \pm 12 %
Grenoble	36 %	36 \pm 20 %
Bordeaux	37 %	29 \pm 23 %
Marseille	17 %	18 \pm 13 %
Nice	20 %	19 \pm 13 %

Les résultats obtenus ici sont concordants avec ceux observés précédemment pour certains de ces sites. A titres d'exemples, l'exploitation, sur une période hivernale élargie identique à celle investiguée ici, des résultats obtenus par analyses PMF dans le cadre du programme CARA indiquent des contributions journalières moyennes de 18% à Rouen en 2010-2011 et de 27% à Bordeaux en 2012-2013. Par ailleurs, une série temporelle relative au levoglucosan est disponible en continu à Grenoble depuis mi-2011, grâce au suivi régulier de la concentration de différentes espèces chimiques des PM₁₀ sur le même site de fond urbain (Les Frênes) [9]. Il est donc possible d'y comparer les résultats de l'hiver 2014-2015 à ceux des 3 années précédentes, en appliquant la même méthodologie pour chacun des hivers 2011-2012, 2012-2013 et 2013-2014. Comme illustré par la figure 3 ci-après, la contribution journalière moyenne obtenue en 2014-2015 est très comparable à celle de l'hiver précédent (38 \pm 24%), et significativement supérieure à celles estimées pour les hivers 2012-2013 (23 \pm 16%) et 2011-2012 (21 \pm 16%).

Ces derniers résultats s'accompagnent d'une augmentation de la contribution hivernale de la fraction carbonée (EC + OM) aux PM₁₀ (de l'ordre de 50% en 2011-2012 et 2012-2013, contre environ 60% en 2013-2014 et 2014-2015). Cette dernière observation semble confirmer une plus forte influence des émissions dues au chauffage résidentiel au bois sur la qualité de l'air au cours des deux derniers hivers, validant à nouveau la pertinence de la méthodologie appliquée pour cette étude. Cette tendance reste néanmoins à étudier en détail dans le cadre du programme CARA et du maintien de cette étude de spéciation chimique sur filtres en collaboration avec Air Rhône-Alpes et le LGGE.

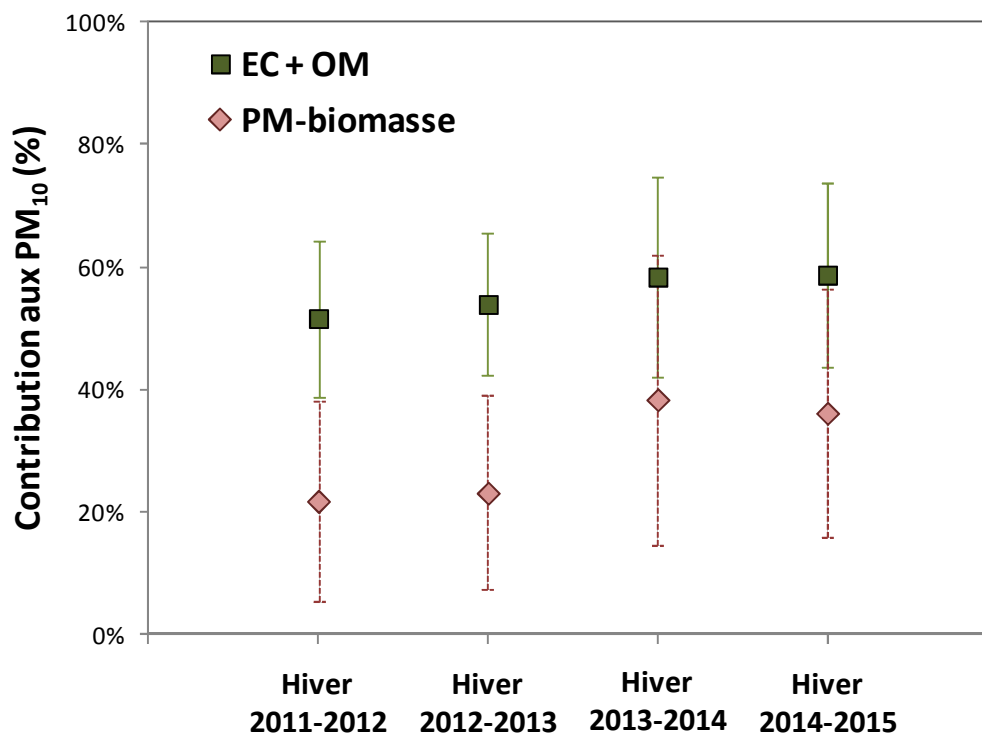


Figure 3 : Contribution journalière moyenne (\pm écart-type) de la fraction carbonée (EC + OM) et de PM_{biomasse} aux PM₁₀ à Grenoble lors des hivers 2011-2012, 2012-2013, 2013-2014, et 2014-2015

Bien qu'inférieure aux contributions mesurées à Grenoble et Bordeaux (et, dans une moindre mesure, à Poitiers), la part imputable à la combustion de biomasse sur les autres sites de cette étude reste conséquente et comparable à celle estimée précédemment pour d'autres agglomérations françaises, telles que Lens et Paris [32-33], confirmant la nécessité de considérer cette source comme l'un des principaux leviers d'action pour l'amélioration de la qualité de l'air urbain. A noter enfin, que le chauffage résidentiel au bois constitue également une source importante de PM en milieu rural. Pour illustration, une campagne ponctuelle de prélèvement sur filtres (et de mesures AE33) a été menée par Atmo Franche-Comté à Montlebon (commune isolée d'environ 1200 habitants) en parallèle de la présente étude. Les résultats obtenus en appliquant la même méthodologie que celle décrite ci-dessus indiquent une contribution journalière moyenne aux PM₁₀ de $42 \pm 16\%$ sur une période comprise entre mi-novembre 2014 et début mars 2015 (avec un facteur de conversion levoglucosan - PM_{biomasse} de 12,3).

4. CONCLUSIONS ET PERSPECTIVES

Cette étude s'inscrit dans la continuité des travaux menés depuis une dizaine d'années par le LCSQA (en étroite collaboration avec des laboratoires de recherche, dont le LGGE) afin de mieux évaluer l'impact du chauffage résidentiel au bois sur les niveaux de PM_{10} enregistrés sur différentes stations du dispositif national de surveillance. A ce jour, elle constitue la plus large étude intégrant simultanément un panel de différents sites urbain de fond dans des grandes agglomérations françaises. Elle confirme clairement l'importance de l'influence de la combustion de biomasse sur la qualité de l'air pour l'ensemble du territoire métropolitain en hiver.

Compte-tenu de ces résultats, il semble utile de poursuivre les efforts de pédagogie envers le public sur cette thématique ainsi que de conforter les travaux visant à assurer un suivi régulier des concentrations de particules émises par le chauffage résidentiel au bois dans les années à venir. Ces travaux permettront en outre d'apporter des éléments utiles pour l'optimisation et l'évaluation des plans et programmes visant l'amélioration de la qualité de l'air en France.

Dans ce contexte, les mesures automatiques par Aethalomètre multi-longueurs d'onde (AE33) mises en œuvre en AASQA au cours de ces deux dernières années s'avèrent particulièrement intéressantes. Les résultats obtenus dans le cadre de la présente étude peuvent ainsi être utilisés par les AASQA afin d'affiner le choix du facteur multiplicatif devant être appliqué localement pour estimer la part de PM_{10} liée à la combustion de biomasse à partir des concentrations de BC_{wb} issues des mesures AE33, comme illustré par la figure 4.

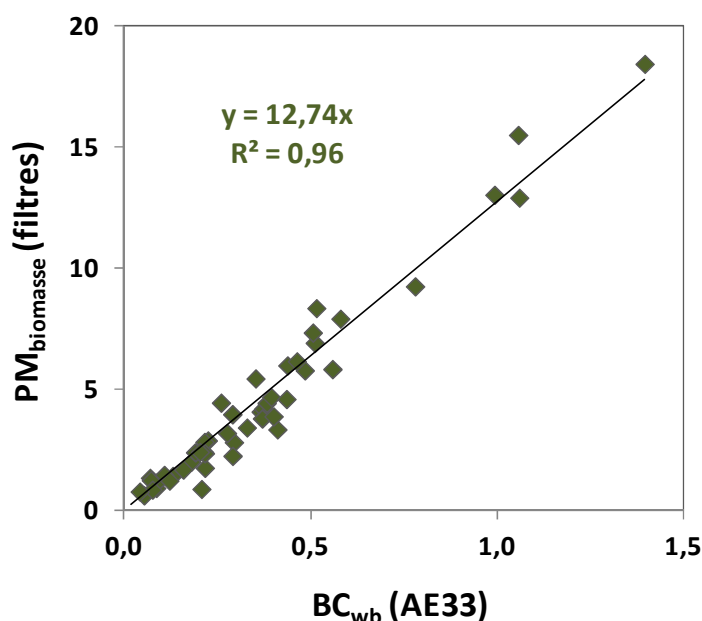


Figure 4 : Corrélation entre BC_{wb} et $PM_{biomasse}$ lors de l'hiver 2014-2015 à Rouen (station de fond urbain de Petit-Quevilly)

Cet exemple présente la corrélation entre les concentrations de PM_{biomasse} (calculées pour la présente étude à partir des mesures de levoglucosan) et les données de BC_{wb} issues de l'AE33, pour la station Petit-Quevilly dans l'agglomération rouennaise. On note une très bonne corrélation entre ces deux paramètres, confortant la pertinence des deux approches indépendantes de suivi des émissions issues de la combustion de biomasse. La valeur de 12,7 correspondant à la pente de la droite de corrélation semble donc pouvoir être directement utilisée pour l'interprétation des données AE33 obtenues sur la station Petit-Quevilly.

Le LCSQA collabore actuellement avec les différentes AASQA possédant un AE33 afin de procéder à l'estimation du facteur de conversion semblant le plus approprié pour chacun de leur site.

5. REFERENCES

- [1] Particulate emissions from residential wood combustion in Europe - revised estimates and an evaluation. Denier van der Gon et al., *Atmospheric chemistry and Physics*, 15, 6503-6519, 2014.
- [2] POVA (Pollution des Vallées Alpines). Rapport final, Programme PRIMEQUAL 2 / PREDIT, 2005. <http://www.primequal.fr/pages/public/files/doc/e44e6e9e57417781.pdf>
- [3] Etude exploratoire sur la présence des traceurs spécifiques de la source « combustion du bois » dans les grandes agglomérations françaises. Rapport INERIS, 2007. Disponible via: <http://www.lcsqa.org/rapport/2007/ineris/surveillance-hap>
- [4] Nighttime residential wood burning evidenced from an indirect method for estimating real-time concentration of particulate organic matter (POM). Sciare et al., *Atmospheric Environment*, 42, 2158-2172, 2008.
- [5] Evidence for a significant contribution of wood burning aerosols to PM_{2.5} during the winter season in Paris, France. Favez et al., *Atmospheric Environment*, 43, 3640-3644, 2009.
- [6] Caractérisation chimique des particules : comparaison modèle/mesure. Rapport LCSQA, 2010. <http://www.lcsqa.org/rapport/2010/ineris/caracterisation-chimique-particules-comparaison-modelemesure>
- [7] Polluants atmosphériques organiques particulières en Rhône-Alpes : caractérisation chimique et sources d'émission. Thèse de Doctorat de Christine Piot, 2011. https://tel.archives-ouvertes.fr/file/index/docid/661284/filename/35623_PIOT_2011_archivage.pdf
- [8] Synthèse des travaux 2012 du programme CARA. Rapport LCSQA, 2012. <http://www.lcsqa.org/rapport/2012/ineris/metrologie-particules-pm10-pm25-caracterisation-chimique-particules-synthese-tra>
- [9] Synthèse des travaux 2013 du programme CARA. Rapport LCSQA, 2013. <http://www.lcsqa.org/rapport/2013/ineris/synthese-travaux-2013-programme-cara>
- [10] Eléments de compréhension des épisodes de pollution particulaire de fin décembre 2014 - début janvier 2015. Note LCSQA, 2015. <http://www.lcsqa.org/rapport/2015/ineris/elements-comprehension-episodes-pollution-particulaire-fin-decembre-2014-debut-j>
- [11] Levoglucosan, a tracer for cellulose in biomass burning and atmospheric particles. Simoneit et al., *Atmospheric Environment*, 33, 173-182, 1999.
- [12] Measurement of emissions from air pollution sources. 3. C1-C29 organic compounds from fireplace combustion of wood. Schauer et al., *Environmental Science and Technology*, 35, 1716-1728, 2001.
- [13] Chemical characterisation of fine particle emissions from wood stove combustion of common woods growing in the mid-European Alpine regions. Schmidl et al., *Atmospheric Environment*, 42, 126-141, 2008.
- [14] Levoglucosan levels at background sites in Europe for assessing the impact of biomass combustion on the European aerosol background. Puxbaum et al., *Journal of Geophysical Research*, 112, D23S05, 2007.

- [15] Overview of the impact of wood burning emissions on carbonaceous aerosols and PM in large parts of the Alpine region. *Atmospheric Environment*, 48, 64-75, 2014.
- [16] Caractérisation des particules sur l'agglomération bordelaise (33) - bilan des mesures réalisées en 2012-2013. Rapport AirAQ 2014. http://www.airaq.asso.fr/fileadmin/user_upload/redacteur/Rapport_CARA_ETPE1402.pdf
- [17] Description du programme CARA du dispositif national de surveillance de la qualité de l'air. Note LCSQA 2014. <http://www.lcsqa.org/rapport/2014/ineris/description-programme-cara-dispositif-national-surveillance-qualite-air>
- [18] Caractéristiques et origines principales des épisodes de pollution hivernaux aux PM10 en France. Favez et al., *Pollution Atmosphérique*, Numéro spécial de novembre 2013.
- [19] Caractérisation chimique des particules - aspects techniques et métrologiques. Rapport LCSQA 2009. <http://www.lcsqa.org/rapport/2009/ineris/caracterisation-chimique-particules-aspects-techniques-metrologiques>
- [20] Toward a standardised thermal-optical protocol for measuring atmospheric organic and elemental carbon: the EUSAAR protocol, Cavalli et al., *Atmospheric Measurement Techniques*, 3, 79-89, 2010.
- [21] Quantification of levoglucosan and its isomers by High Performance Liquid Chromatography - Electrospray Ionization tandem Mass Spectrometry and its applications to atmospheric and soil samples. Piot et al., *Atmospheric Measurement Techniques*, 5, 141-148, 2012.
- [22] ECOC comparison exercise with identical thermal protocols after temperature offset correction - instrument diagnostics by in-depth evaluation of operational parameters. Panteliadis et al., *Atmospheric Measurement Techniques*, 8, 779-792. 2015.
- [23] Comparaison inter laboratoires organisée pour les laboratoires européens impliqués dans l'analyse du levoglucosan et de ses isomères. Rapport LCSQA 2013. <http://www.lcsqa.org/rapport/2013/ineris/comparaison-inter-laboratoires-organisee-laboratoires-europeens-impliques-analys>
- [24] Inter-comparison of source apportionment models for the estimation of wood burning aerosols during wintertime in an Alpine city (Grenoble, France). Favez et al., *Atmospheric Chemistry and Physics*, 10, 5295-5314, 2010.
- [25] FORMES: Fraction organique des aerosols - Méthodologie d'estimation des sources. Rapport de fin de contrat dans le cadre du programme PRIMEQUAL, 2010. http://lgge.osug.fr/IMG/pdf/Rapport_final_FORMES_Science.pdf
- [26] Submicron aerosol source apportionment of wintertime pollution in Paris, France by double positive matrix factorization (PMF²) using an aerosol chemical speciation monitor (ACSM) and a multi-wavelength Aethalometer. Petit et al., *Atmospheric Chemistry and Physics*, 14, 13773-13787, 2014.
- [27] Species contribution to PM2.5 mass concentrations : revisiting common assumptions for estimating organic mass. Turpin & Lim, *Aerosol Science and Technology*, 35, 602-610, 2001.

- [28] O/C and OM/OC ratios of primary, secondary and ambient organic aerosols with high-resolution time-of-flight aerosol mass spectrometry. Aiken et al., *Environmental Science and Technology*, 42, 4478-4485, 2008.
- [29] Large contribution of water insoluble organic aerosols in the region of Paris (France) during wintertime. Sciare et al. , *Journal of Geophysical Research*, 116, D22203, 2011.
- [30] Estimates of wood burning contribution to PM by the macro-tracer method using tailored emission factor. Piazzalunga et al., *Atmospheric Environment*, 45, 6642-6649, 2011.
- [31] Degradation kinetics of levoglucosan initiated by hydroxyl radical under different environmental conditions. Lai et al., *Atmospheric Environment*, 91, 32-39, 2014.
- [32] Source apportionment of PM₁₀ in a north-western Europe regional urban background site using positive matrix factorization and including primary biogenic emissions. Waked et al., *Atmospheric Chemistry and Physics*, 14, 8813-8839, 2014.
- [33] Sources and geographical origins of fine aerosols in Paris (France). Bressi et al., *Atmospheric Chemistry and Physics*, 14, 3325-3346, 2014.



direction et secrétariat du LCSQA

INERIS - parc technologique Alata - BP 2 - F60550 Verneuil-en-Halatte
tél. 03 44 55 64 04 - www.lcsqa.org