

Contribution du chauffage au bois à la qualité de l'air extérieur : données existantes et études en cours en France

Impact of woodburning on outdoor air quality : Existing French data and current studies

Eva LEOZ-GARZIANDIA*, Jean-Luc BESOMBES**, Nicolas PISSOT**,
Nadine ALLEMAND***, Corinne MANDIN*, Serge COLLET*, Jacques RIBERON****, Jean-Luc JAFFREZO*****

Résumé

Les études françaises visant à mieux cerner la contribution des différentes sources de particules, dont le chauffage au bois, à la qualité de l'air extérieur se généralisent. Quantifier l'influence d'une source particulière sur la qualité de l'air nécessite de disposer de paramètres mesurables spécifiques à cette source. Dans ce contexte, de nombreuses études ont été axées sur la détermination, dans des échantillons atmosphériques, de composés dits sources-spécifiques ou couramment appelés traceurs.

Les travaux français effectués depuis 2000 concernant l'étude de la contribution de la source « combustion du bois » se sont basés sur l'utilisation de certains traceurs comme le lévoglucosan et les métoxyphénols, en confrontant les résultats de mesures obtenus aux caractéristiques globales de l'aérosol atmosphérique telles que les concentrations en carbone organique (OC), en carbone élémentaire (EC), en PM₁₀ ou PM_{2,5}, ainsi qu'aux hydrocarbures aromatiques polycycliques (HAP).

Les résultats obtenus dans les différentes études présentées dans cet article montrent l'intérêt mais également les limites d'une telle approche, ainsi que le besoin de développer et de compléter les études en cours afin de mieux quantifier la contribution des différentes sources de particules à la qualité de l'air.

Mots clés

Combustion du bois. Traceurs organiques. HAP. Lévoglucosan.

Abstract

French source apportionment studies of air quality including the wood combustion source become widespread. Quantify a single source contribution to air quality requires to be provided with a specific measurable data to this source. For that reason, numerous studies have focused on the determination, in the atmospheric samples, of the source-specific compounds, usually called molecular tracers.

Since 2000, trend works focused on the "wood combustion" contribution to air quality have been based on the use of some tracers such as levoglucosan and methoxyphenols. Obtained results have been compared to atmospheric particles global characteristics : organic carbon (OC), elementary carbon (EC), PM₁₀, PM_{2.5} and polycyclic aromatic hydrocarbons (PAH).

The results presented in this article show not only the interest but also the limits of such an approach, as well as the need to develop and complete the current studies in order to quantify the different sources contribution to air quality.

Keywords

Wood combustion. Organic tracers. PAHs. Levoglucosan

* Institut national de l'environnement industriel et des risques (INERIS) – E-mail : Eva.leoz@ineris.fr

** Laboratoire de Chimie Moléculaire et Environnement (LCME) de l'Université de Savoie.

*** Centre interprofessionnel technique d'études de la pollution atmosphérique (CITEPA).

**** Centre scientifique et technique du bâtiment (CSTB).

***** Laboratoire de Glaciologie et Géophysique de l'Environnement (LGGE UMR CNRS) de Grenoble.

1. Introduction

Les travaux Européens sur la détermination de la contribution des différentes sources à la qualité de l'air extérieur, et notamment aux concentrations atmosphériques des aérosols sont de plus en plus nombreux. Au-delà de l'intérêt scientifique des travaux, notamment focalisés sur l'origine primaire et/ou secondaire de certains composés et des phénomènes de formation et d'évolution de ceux-ci, l'enjeu premier vise à aider les pouvoirs publics à mettre en place des politiques de réduction des émissions ciblées par polluant et par secteur d'activité.

Les inventaires nationaux réalisés par le Centre interprofessionnel technique d'études de la pollution atmosphérique (CITEPA) et mis à jour en février 2007 montrent que la part du secteur « résidentiel tertiaire » dans les émissions françaises est importante. Elle représenterait plus de 77 % des émissions françaises d'hydrocarbures aromatiques polycycliques (HAP), 40 % des émissions de particules PM_{2,5}, environ 31 % des émissions de composés organiques volatils non méthaniques (COVNM) dont 62 % des émissions de benzène [1]. Depuis quelques années la combustion du bois a été identifiée comme étant la source principale de certains de ces polluants. Dans le cas des HAP et du benzène par exemple, elle représenterait 90 % des émissions totales du secteur « résidentiel tertiaire ».

Cet article propose un aperçu des travaux effectués en France sur l'étude de la contribution de la source « combustion du bois » à partir de différentes méthodes (qualitatives et quantitatives) et en s'intéressant à différents polluants. Les travaux ainsi présentés ne se veulent pas exhaustifs et sont majoritairement issus d'études menées par l'Institut national de l'environnement industriel et des risques (INERIS) dans le cadre du Laboratoire central de surveillance de la qualité de l'air (LCSQA), de programmes réalisés pour le ministère de l'Écologie, de l'Énergie, du Développement durable et de l'Aménagement du territoire (MEEDDAT) et pour l'Agence de l'environnement et de la maîtrise de l'énergie (ADEME). Cet article s'appuie également sur les travaux de recherche menés depuis quelques années par plusieurs laboratoires sur la caractérisation chimique des aérosols atmosphériques dont le Laboratoire de chimie moléculaire et environnement (LCME) de l'Université de Savoie, le Laboratoire de glaciologie et géophysique de l'environnement (LGGE UMR-CNRS) de Grenoble et le pôle environnement du Laboratoire de chimie de Provence (LCP équipe IRA UMR-CNRS) de Marseille.

2. Traceurs et indicateurs de la combustion de biomasse les plus couramment utilisés

La caractérisation chimique des phases gazeuse et particulaire est indispensable à l'étude des impacts des différentes sources d'émission sur la qualité de l'air. Plus particulièrement, l'influence de ces sources

sur la composition des atmosphères ambiantes peut être appréhendée par la quantification de deux classes de composés :

- les composés sources-spécifiques émis par un seul type de source ;
- les composés non spécifiques de sources, c'est-à-dire émis par plusieurs types de sources. Celles-ci se distinguent alors souvent par des différences soit des niveaux d'émission, soit des contributions relatives des composés, y compris au sein d'une même famille d'espèces étudiées.

Les composés étudiés seront différents selon que l'on s'intéresse à la phase gazeuse ou à la phase particulaire.

2.1. Composés sources-spécifiques

Quantifier l'influence d'une source particulière sur la qualité de l'air nécessite de disposer de paramètres mesurables spécifiques à cette source. Pour cette raison, de nombreuses études ont été axées sur la détermination, dans les échantillons atmosphériques, de composés traceurs. Cependant, si ce dernier terme témoigne de l'unicité de la source pour le composé caractérisé, il suppose également une structure chimique non évolutive et donc une relative stabilité vis-à-vis des oxydants atmosphériques. Or, cette dernière condition est parfois difficile à vérifier. Le terme d'indicateur sera alors, dans ce cas, préféré.

La combustion de biomasse s'accompagne d'émissions importantes de particules en suspension (TSP). **Chimiquement, ces particules se caractérisent par une fraction organique importante, avec des taux d'émission de carbone organique (OC) très supérieurs à ceux des combustibles fossiles** [2, 3]. La recherche de traceurs ou d'indicateurs de la combustion de biomasse a donc été réalisée majoritairement au sein des familles chimiques qui constituent l'OC des particules (phase particulaire).

Deux groupes principaux de composés peuvent être distingués, issus soit de la pyrolyse de la cellulose et de l'hémicellulose, soit de la pyrolyse de la lignine.

2.1.1. Les composés issus de la pyrolyse de la cellulose : le lévoglucosan

Le lévoglucosan (1,6-anhydro- β -D-glucopyranose, Figure 1), est le produit de dégradation le plus abondant, devant ses isomères, le galactosan et le mannosan, avec des facteurs d'émission compris entre 650 et 1 900 mg/kg lors de la combustion de différents bois (chêne, pin, eucalyptus) [4, 5]. Il est de plus très résistant aux processus de dégradation atmosphérique [6].

Le lévoglucosan qui a déjà été utilisé pour identifier la contribution des feux de biomasse aux concentrations ambiantes en particules [6-8], commence également à être très utilisé dans différents pays comme traceur de la source « chauffage domestique au bois » [9, 10].

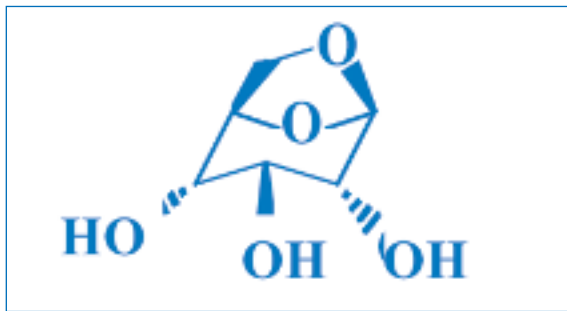


Figure 1.
Structure chimique du lévoglucosan.
Chemical structure of levoglucosan.

C'est la grande stabilité atmosphérique de ce composé peu réactif, couplé à de forts taux d'émission [11], qui en font un bon traceur de la source combustion du bois. Des études scientifiques ont estimé la stabilité atmosphérique du levoglucosan à plus de 10 jours.

Dans les études de sources, le lévoglucosan peut être utilisé seul ou en combinaison avec les concentrations en OC [7, 11] ou en particules en suspension (PM₁₀ ou PM_{2,5}) [9].

Les rapports entre les différents isomères du lévoglucosan sont également utilisés dans les études de sources, pour différencier entre autres, la combustion issue du bois dur ou tendre [12, 13].

2.1.2. Les composés issus de la pyrolyse de la lignine : les méthoxyphénols

La combustion des lignines donne naissance à de nombreux produits de dégradation (alcools, acides, carbonyles) de la famille des méthoxyphénols [4, 5, 14]. Cependant, les facteurs d'émission sont généralement beaucoup plus faibles que ceux du lévoglucosan. On peut citer par exemple les résultats [4, 5] rapportés pour les composés de type guaiacyl : la vanilline (15 mg.kg⁻¹), le coniferyl aldéhyde (125 mg.kg⁻¹) ou le guaiacol (0,4 mg.kg⁻¹) et pour les composés de type syringyl : le syringaldéhyde (35-41 mg.kg⁻¹), l'acétosyringone (17-31 mg.kg⁻¹) et le syringol (2 mg.kg⁻¹).

Il est de plus connu que les méthoxyphénols peuvent évoluer chimiquement très rapidement dans l'atmosphère [15, 16] et leur utilisation dans l'étude des sources des aérosols est parfois rendue difficile par le caractère semi-volatil de certains d'entre eux induisant leur présence dans un processus d'équilibre à la fois dans la phase gazeuse et la phase particulaire. Des travaux récents ont montré qu'ils constituaient des indicateurs de la combustion de la biomasse plutôt appropriés dans le cadre de sites d'observation fortement impactés par cette source en raison notamment de la proximité et de l'intensité des émissions [17].

2.1.3. Les diterpénoïdes

Enfin, la littérature rapporte une dernière catégorie majeure d'indicateurs de combustion de bio-

masse constituée par les diterpénoïdes présents essentiellement dans la résine des conifères et leurs produits de dégradation thermique [14]. Ces composés sont de la famille des acides pimariques et abiétiqes et leurs produits d'altération thermique sont majoritairement les acides 8,15-pimaradien-18-oïques et déhydroabiétiqes. Parmi eux, l'acide déhydroabiétiqes est l'un des composés les plus fortement émis (30-400 mg.kg⁻¹) lors de ces combustions [2, 5, 18]. Enfin, le rétène, HAP alkylé (1-méthyl-7-isopropylphénanthrène), considéré comme traceur univoque de ces combustions [19], est également un produit d'altération thermique des diterpénoïdes.

2.2. Composés non sources spécifiques

Les composés non sources-spécifiques sont souvent utilisés, seuls ou en combinaison avec les composés précédemment cités, pour les études de sources.

Pour cela, la signature chimique ou l'abondance relative de ces composés dans les échantillons prélevés, et/ou l'étude des valeurs des rapports caractéristiques entre certains d'entre eux, sont souvent utilisées. L'utilisation de ces composés en tant que traceurs de sources reste de ce fait un outil qualitatif.

Les familles des composés non sources spécifiques les plus couramment utilisées dans la littérature sont :

2.2.1. Les hydrocarbures aromatiques polycycliques (HAP)

Les HAP sont formés lors de la combustion incomplète ou lors des processus pyrolytiques à haute température mettant en œuvre des combustibles fossiles, ou plus généralement des composés contenant du carbone et de l'hydrogène. Ainsi, les principales sources de HAP sont la combustion de pétrole ou de charbon, l'incinération de déchets (agricoles, ménagers, ou industriels), la combustion du bois, les feux de forêts, la production du gaz, les usines de traitement du bois et les gaz d'échappement automobile.

Compte tenu des nombreuses sources de HAP, leur utilisation seuls en tant que traceurs est difficile mais très répandue, en particulier, sur des profils ou des rapports caractéristiques [20]. Ainsi, certaines études mettent en évidence une proportion importante de chrysène (CHR), benzo[b]fluoranthène (B[b]F), et benzo[k]fluoranthène (B[k]F) dans les émissions de la combustion du bois [18, 20, 21]. De la même manière, d'autres auteurs signalent la présence de HAP sur les particules de diamètre inférieur à 2 µm pour cette même source [22]. En ce qui concerne les rapports caractéristiques, certains auteurs utilisent l'abondance relative du coronène (COR) et du benzo[g,h,i]perylène (B[ghi]P) par rapport au benzo[a]pyrène (B[a]P) pour différencier les émissions dues aux sources mobiles de celles des autres combustions dont le bois. De la même façon, une valeur élevée pour : indeno[1,2,3-cd]pyrène/indeno

[1,2,3-cd]pyrène + benzo[g,h,i]perylène serait représentative d'une contribution importante de la combustion du bois [22].

2.2.2. Les composés organiques volatils (COV)

Les COV sont beaucoup moins utilisés que les HAP pour les études de sources. Des études finlandaises observent néanmoins un rapport toluène/benzène plus élevé dans le cas de la combustion du bois que dans le cas des émissions véhiculaires [23, 24, 25].

2.2.3. Les espèces inorganiques

Certains auteurs préfèrent l'utilisation des espèces inorganiques comme indicateurs de la source « combustion de biomasse », qui se caractérisent par des fortes concentrations en potassium (K) et en zinc (Zn). Grâce à une bonne connaissance de la composition en espèces inorganiques de nombreuses sources émettrices, et une analyse multivariable, cette approche est, pour certains, préférée à celle de l'utilisation du lévoglucosan [26]. Une utilisation plus simplifiée des espèces inorganiques par l'étude des ratios Fe/K et K/Ca est également possible [25]. D'autres espèces inorganiques comme par exemple le manganèse (Mn) et le cuivre (Cu) pourraient potentiellement devenir des traceurs éventuels de la combustion du bois [27].

D'autres auteurs par contre, mettent en garde sur l'utilisation du potassium comme traceur de la combustion du bois du fait de la présence de cet élément dans d'autres sources en zones urbaines (la cuisine faite par les particuliers, l'incinération...) [4, 11, 14, 28].

3. Contribution de la combustion de biomasse : approches qualitatives et quantitatives

L'ensemble des espèces citées ci-dessus a été utilisé pour proposer des méthodologies d'évaluation de la contribution des sources d'émission à la pollution atmosphérique. Dans le cas de la source « combustion de biomasse », ces travaux se sont principalement axés ces dernières années sur l'étude de la phase particulaire en raison de l'importante fraction organique qui caractérise les particules émises. Ainsi, c'est le plus souvent par l'identification d'indicateurs et l'étude des profils de grandes familles chimiques (HAP, alcanes, acides) présents dans la matière organique particulaire des PM₁₀ ou des PM_{2,5} que la contribution de cette source a pu être dans un premier temps appréhendée de manière qualitative.

Cette approche s'appuie essentiellement sur **une confrontation de la caractérisation chimique des aérosols en atmosphère ambiante avec la caractérisation chimique des émissions**. Une illustration importante de cette démarche concerne la famille des HAP qui a fait l'objet de nombreux travaux pour

discerner les origines des pollutions atmosphériques et ceci, soit par l'étude des contributions relatives des différents composés à la concentration totale en HAP, soit par l'étude de rapports caractéristiques entre chaque HAP. Ces composés étant émis par tous types de combustion, c'est donc une approche qualitative de l'influence des différentes sources de combustion qui est alors réalisée. Cependant, elle se heurte à la grande variabilité des données d'émission des différentes sources prises en compte. Cet aspect est d'ailleurs largement commenté dans l'article de Marchand *et al.* [20]. Il apparaît alors plus pertinent d'associer à la détermination des HAP, l'identification de traceurs plus spécifiques comme le lévoglucosan pour préciser l'influence de la combustion de la biomasse.

Enfin, pour affiner encore cette approche qualitative, il est indispensable de confronter les données de l'ensemble de ces indicateurs ou traceurs aux caractéristiques globales de l'aérosol atmosphérique telles que les concentrations en carbone organique (OC), le carbone élémentaire (EC) et les PM₁₀ ou PM_{2,5} [10, 20, 29, 30].

Pour la combustion de la biomasse, une première évaluation quantitative peut être réalisée en comparant les rapports des concentrations en lévoglucosan et en OC à l'émission et en atmosphère ambiante [10, 31].

D'autres méthodes d'évaluation quantitative se sont développées grâce à l'utilisation d'outils mathématiques basés principalement sur des approches statistiques. **L'approche la plus largement rapportée utilisée pour assigner une contribution des sources aux concentrations ambiantes des composés particulaires, est la technique du bilan matière (Chemical Mass Balance – CMB)**. Cette méthode a été développée dès 1973 par Friedlander et son application à la matière organique particulaire a été proposée par Schauer *et al.* [32]. Elle présente l'intérêt de pouvoir quantifier dans le même modèle plusieurs sources d'émission. Elle permet de plus de prendre en compte des familles de composés non source spécifique mais dont l'empreinte chimique est dépendante du type de source d'émission. Dans la méthode CMB, la concentration des constituants d'un échantillon ambiant donné est alors décrite comme résultant d'une combinaison linéaire des compositions chimiques relatives des sources. Ainsi, suivant les espèces utilisées, ce modèle peut établir les contributions des différentes sources soit aux concentrations en OC, soit aux concentrations en PM. Cependant, la connaissance des profils d'émissions est un facteur prépondérant à la représentativité des contributions calculées par CMB [33]. Or, la connaissance exacte des profils d'émissions des sources de la zone étudiée peut être difficile à obtenir.

Ainsi, au cours de ces dernières années s'est développé un intérêt grandissant pour des approches statistiques plus flexibles en termes de connaissance des sources. Des approches statistiques telles que UNMIX, l'analyse en composante principale ou la

méthode PMF (*Positive Matrix Factorization*) [34-37] se sont également développées.

Ces différentes méthodologies d'évaluation quantitative de la contribution des sources font l'objet actuellement d'étude d'intercomparaison en vue notamment de leurs applications dans les études d'impact sanitaire de l'exposition aux PM [38, 39, 40].

3.1. Combustion de biomasse et combustion du bois

Pour rappel, le terme « combustion de biomasse » regroupe les sources « feux de biomasse » et « combustion du bois » permettant ainsi de les différencier de la « combustion des produits fossiles ».

De ce fait, dans la plupart des études scientifiques, la différenciation entre la biomasse et la combustion du bois, ou l'attribution des contributions observées à l'une ou à l'autre source est réalisée :

- en tenant compte de la typologie du site de prélèvement, de la période des mesures ainsi que de la présence ou non sur le même site d'autres sources potentielles [7, 9, 12, 17, 41] ;
- par l'étude des rapports entre le lévoglucosan et ses isomères ;
- par l'étude des facteurs d'émissions des différents polluants ayant des valeurs différentes pour le bois habituellement utilisé comme bois de chauffage et les feux de biomasse [4, 13, 22].

4. Résultats des mesures de terrain en France

Les études sur la contribution du chauffage au bois sont nombreuses, notamment à l'étranger, et tout particulièrement au Canada où les travaux sont les plus nombreux*. Ils montrent l'impact significatif de la combustion résidentielle de bois, notamment sur les concentrations en particules fines dans l'air ambiant [42].

Dans les paragraphes suivants sont présentés les résultats obtenus au cours des différentes études réalisées en France depuis 2000.

4.1. Programme de recherche Pollution des vallées alpines (POVA) : 2000-2003

Le programme scientifique POVA a été initié à la suite de l'incendie du tunnel du Mont-Blanc en mars 1999. Les conditions exceptionnelles de circulation alors générées dans les vallées de Chamonix et de la Maurienne ont servi de cadre pour étudier plus généralement la qualité de l'air en vallée alpine encaissée, qui présente de grandes spécificités par rapport aux situations plus généralement rencontrées par ailleurs.

Une dizaine de groupes de recherche a participé à ce programme coordonné conjointement par le LGGE de Grenoble et l'Association agréée de surveillance de la qualité de l'air, Air de l'Ain et des Pays de Savoie (AIR APS). Les objectifs de POVA étaient spécifiquement de comparer la qualité de l'air des deux vallées, d'évaluer la part respective des différentes sources d'émission, et de développer un outil de modélisation de la chimie atmosphérique pour la réalisation d'études de scénarios. D'une durée de cinq ans, le programme s'est appuyé sur quatre périodes d'observation intensive d'une semaine dans chacune des vallées (été 2000, hiver 2001 et hiver, été 2003) ayant pour but une analyse détaillée des évolutions spatiales et temporelles d'espèces chimiques gazeuses et particulaires, complétées par un suivi de longue durée (entre février 2001 et juin 2003), pour une sélection plus restreinte d'espèces atmosphériques. Dans le cadre de POVA, un accent particulier a été mis sur la chimie des PM₁₀ afin notamment de mieux appréhender les sources de l'aérosol dans les deux vallées étudiées (<http://transalpair.eu/POVA/>).

Même si globalement, les mesures de profils de COV, ainsi que la caractérisation chimique des PM₁₀ ont permis de montrer que le trafic routier des poids lourds semble responsable d'une large part des concentrations atmosphériques en polluants, elles ont également nettement mis en évidence l'influence d'autres sources anthropiques. C'est le cas notamment du chauffage individuel et plus particulièrement celui au bois.

Ainsi la caractérisation chimique des PM₁₀ a permis de mettre en évidence l'influence de cette source à la fois par l'étude des signatures chimiques en HAP et l'identification des traceurs de type méthoxyphénol et du lévoglucosan [20, 43]. La confrontation des concentrations de ces indicateurs avec les paramètres globaux de l'aérosol (PM₁₀, OC et EC) a montré l'importance de cette source sur la qualité de l'air dans les vallées alpines en hiver. Ainsi, les observations faites à Chamonix montrent de fortes corrélations entre la concentration totale en méthoxyphénols et les autres paramètres de l'aérosol (coefficients de corrélation de Pearson de la concentration totale en méthoxyphénols vs PM₁₀ : $r = 0,85$, vs OC : $r = 0,78$, vs EC : $r = 0,79$; et vs Σ_{PAH} $r = 0,82$ lors de la campagne d'observation en hiver 2001).

De plus, l'étude des concentrations en lévoglucosan a permis d'évaluer quantitativement la contribution de la combustion du bois au carbone organique des PM₁₀. Une contribution moyenne de 25 % a ainsi été déterminée dans les zones suburbaines étudiées dans les deux vallées. Cette contribution augmente jusqu'à 30 % pour des zones plus rurales. Les observations faites dans le cadre de ce programme mettent également en évidence le caractère local de cette source.

* www.qc.ec.gc.ca/dpe/Francais/dpe_main_fr.asp?air_qualit_rdp – www.mddep.gouv.qc.ca/air/chauf-bois/index-en.htm

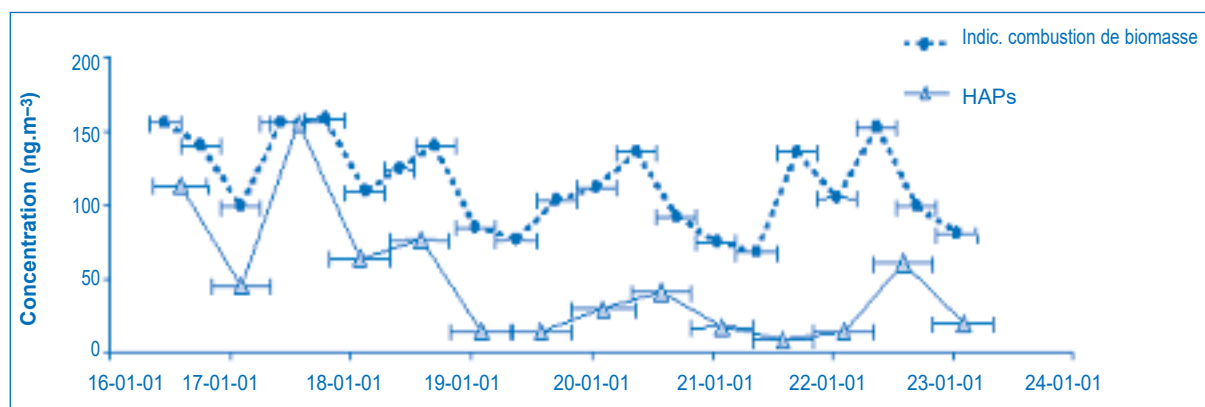


Figure 2.

Co-évolution temporelle de la concentration totale en HAP et de la concentration totale en composés indicateurs de la source combustion de biomasse sur le site d'étude du Clos de l'Ours (Programme POVA, Chamonix, campagne d'hiver 2001).

Parallel time evolution of total concentration of PAH and of total concentration of typical compounds of biomass combustion source in the site of Clos de l'Ours (POVA Programme, Chamonix, winter 2001 campaign).

Enfin, l'ensemble des mesures réalisées dans le cadre du programme POVA a confirmé très largement la grande sensibilité des vallées alpines, parfois plus polluées que les grandes zones urbaines. Dans ces sites où la topographie et la météorologie sont parfois très pénalisantes, les niveaux de concentration peuvent localement augmenter par accumulation. Cette situation est particulièrement marquée pour les espèces primaires, durant les périodes anticycloniques hivernales sous inversion de température. Ainsi, en hiver, de fortes concentrations en HAP ont été observées dans les deux vallées avec des valeurs moyennes s'étendant de 1 à 48 ng.m⁻³ sur les sites suburbains comparables à celles de grandes agglomérations [44-48]. Dans le contexte des vallées alpines, une part importante de ces concentrations semble imputable à la combustion du bois par les foyers domestiques.

4.2. Programme de recherche CARBOSOL : 2002-2004

Le programme européen CARBOSOL* d'étude de la pollution particulière en composés carbonés a été conduit entre 2001 et 2004. Ses objectifs étaient de faire un état des lieux de la quantité et de la composition des aérosols carbonés à l'échelle de l'Europe pour des atmosphères de fond dans des sites d'altitude et des sites ruraux, et d'en déterminer les sources. Il s'agissait notamment de définir les parts respectives des combustibles fossiles (transport, industrie, chauffage au fioul et au gaz) et de la biomasse (chauffage au bois, feux de végétaux) à cette pollution. Les recherches développées par ce programme, ont été coordonnées par le LGGE.

Les principales méthodes utilisées dans ce programme faisaient appel à des traceurs chimiques et au carbone 14 (¹⁴C). Le lévoglucosan s'est avéré un excellent traceur chimique permettant de relever sans ambiguïté les émissions dues à la combustion de biomasse. Le ¹⁴C, quant à lui, est un isotope radioactif du carbone qui se désintègre trop vite pour se trouver dans les combustibles fossiles, mais qui est présent dans la biomasse. Les chercheurs ont ainsi établi qu'en hiver, 50 à 70 % de la masse des aérosols carbonés proviennent de la combustion de biomasse, ceci partout en Europe et aussi bien pour les masses d'air étudiées près du sol qu'en altitude. Les sites de mesure allaient en effet de la côte portugaise à la Hongrie, en passant par les observatoires du Puy-de-Dôme (1 400 m) et du Mont-Blanc (4 300 m) [10, 49].

4.3. Étude sur les HAP dans l'Isère : 2004-2005

Le village de Méaudre, situé en moyenne montagne, dans le massif du Vercors, a été retenu pour étudier l'influence du chauffage domestique au bois sur les concentrations en HAP dans le cadre d'une étude du LCSQA. En effet, dans cette commune rurale, le bois est très utilisé par la population pour le chauffage domestique.

Les mesures ont été faites du 18 novembre 2004 au 21 janvier 2005. Dans une première phase, l'INERIS a réalisé une campagne de 7 jours consécutifs suivie de prélèvements hebdomadaires de l'ASCOPARG**. En parallèle, ASCOPARG a réalisé une autre série de prélèvements à la même période sur deux sites Grenoblois, un site trafic et un site urbain de fond.

* « Present and retrospective state of organic versus inorganic aerosol over Europe: implications for climate ».

** ASCOPARG : Association Agréée de Surveillance de la qualité de l'air dans la région Grenobloise.

Tableau 1.
Concentrations en HAP totaux et en B[a]P sur les trois sites.
Concentrations of total PAH and B[a]P in the three sites.

	Site	22-11-04	24-11-04	29-11-04	17-12-04	23-12-04	04-01-05	10-01-05
Somme HAP (ng/m ³)	Trafic	82	135	39	77	107	97	100
	Urbain de fond	77	81	21	66	86	70	111
	Rural	67	31	39	26	80	145	136
B[a]P (ng/m ³)	Trafic	3	5	1	2	4	4	4
	Urbain de fond	3	2	0,4	2	3	3	4
	Rural	3	1	1	0,5	3	5	4

Dans le tableau 1 sont présentés les résultats obtenus pour les HAP ainsi que pour le B[a]P (seul HAP réglementé à ce jour) sur les trois sites de mesure et pour les journées pendant lesquelles les prélèvements étaient effectués en simultanément [50, 51].

On observe que les concentrations obtenues sont assez similaires sur les trois sites malgré leur typologie différente, avec néanmoins des concentrations plus élevées sur les sites grenoblois (site trafic suivi du site urbain de fond) lors de la première période de la campagne, avec une nette augmentation des concentrations en HAP et en B[a]P sur le site rural dans la deuxième période.

Compte tenu des sources de HAP et de la typologie des sites, l'augmentation des concentrations en HAP sur le site rural ne peut pas être expliquée par la

seule augmentation des émissions véhiculaires, comme cela pourrait être le cas sur le site trafic de Grenoble.

La connaissance des émissions par l'ASCOPARG confirmant la forte utilisation du chauffage au bois sur le site rural de Méaudre, l'abondance du chrysène (CHR) dans les échantillons du site rural a été étudiée pour toute la période de prélèvement.

Sur la figure 3 sont présentés les résultats obtenus pour le CHR. Ils ont été comparés aux concentrations en HAP totaux et à la température ambiante.

Les résultats obtenus sur le site rural montrent une très bonne correspondance entre la concentration en HAP totaux et la température ambiante, avec des concentrations en HAP maximales durant les journées les plus froides (04 et 16 janvier 2005).

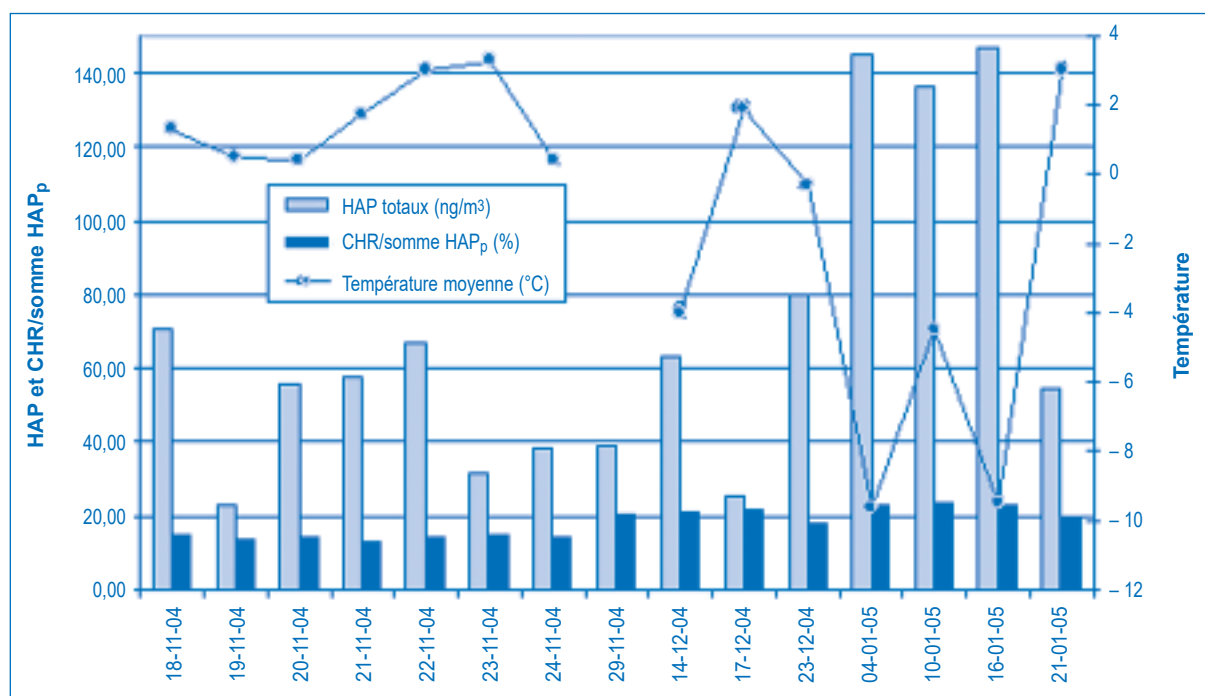


Figure 3.
Concentrations en HAP totaux, abondance en CHR et température ambiante sur le site rural.
Total PAH concentration, presence of CHR and temperature in the rural site.

L'augmentation de la proportion du CHR dans le mélange total des HAP est également observée pour la période la plus froide, avec les valeurs maximales observées entre le 4 et le 16 janvier 2005. L'utilisation des HAP comme traceurs ne pouvant donner que des renseignements qualitatifs, les résultats observés sur le site rural de Méaudre suggèrent une contribution importante de la source « combustion du bois » aux concentrations en HAP observées. Cette hypothèse se base également sur les concentrations élevées en HAP observées, valeurs proches de celles observées sur un site trafic voire urbain de fond, sur une zone reconnue comme étant utilisatrice de ce type de chauffage au bois et peu habitée. Ceci limite également la présence d'autres sources, comme les émissions automobiles par exemple.

4.4. Étude exploratoire sur la présence des traceurs spécifiques de la source « combustion du bois » dans les grandes agglomérations françaises : 2006-2007

Compte tenu des résultats obtenus lors de l'étude précédente, une nouvelle étude a été réalisée par l'INERIS à la demande du MEEDDAT afin d'étudier la validité d'un traceur spécifique de la source « combustion du bois », susceptible de donner des informations sur la contribution de cette source aux concentrations ambiantes de polluants, comme les HAP. Le lévoglucosan et les métoxyphénols ont été choisis dans ce contexte.

Des mesures de ces composés ont été réalisées durant l'hiver 2006/2007 dans quatre grandes agglomérations françaises sur des sites urbains de fond (Paris, Lille, Strasbourg et Grenoble) en collaboration avec les quatre Associations agréées de surveillance de la qualité de l'air (AASQA) respectives (AIRPARIF, ATMO Nord-Pas-de-Calais, ASPA et ATMO Rhône-Alpes GIE/ASCOPARG), le LCME de Chambéry et le LGGE de Grenoble [31].

Le lévoglucosan est le composé traceur majoritaire sur les quatre villes étudiées. La quantification des métoxyphénols s'est avérée difficile du fait de la réactivité de ces composés.

Les concentrations en lévoglucosan observées sur les quatre villes (Tableau 2) sont du même ordre de grandeur que celles observées sur d'autres sites étrangers [6, 9, 21]. Bien que les concentrations les

plus importantes soient observées durant les périodes les plus froides, aucune corrélation ne peut être mise en évidence entre la concentration en lévoglucosan et la température ambiante.

La caractérisation globale des aérosols a été réalisée par les mesures de PM₁₀, du carbone organique (OC) et du carbone élémentaire (EC).

Les concentrations les plus importantes en PM₁₀ (Tableau 2) sont mesurées sur les sites de Grenoble et de Lille avec respectivement des valeurs moyennes de 35 et de 40 µg.m⁻³. Les fortes concentrations en PM₁₀ mesurées à Grenoble sont associées à une composante organique importante, jusqu'à 60 %, avec des concentrations moyennes de l'ordre de 14 µg.m⁻³ de OC. Ces valeurs enregistrées à Grenoble correspondent à des gammes plutôt hautes de la littérature pour des sites similaires. Les valeurs pour les trois autres villes sont très similaires entre elles et dans la moyenne de celles présentées dans la littérature pour des sites de fond urbain.

Par ailleurs, les concentrations moyennes en carbone élémentaire pour les quatre villes étudiées sont très significativement plus élevées à Grenoble que dans les trois autres villes étudiées, avec cependant un écart type important (Tableau 2). Ces concentrations restent toutefois dans des gammes moyennes pour des milieux urbains européens. Les sources d'émission du carbone élémentaire sont essentiellement les combustions, avec des fractions significatives dues aux émissions diesel et aux combustions de la biomasse.

Compte tenu des différences importantes observées à la fois pour EC, OC et le lévoglucosan sur la ville de Grenoble, un impact important de la « combustion de biomasse » semble se profiler pour cette agglomération. Compte tenu de l'époque de l'année et de la typologie du site, l'impact de la « combustion de biomasse » peut être attribué à la « combustion du bois ».

Pour les deux villes présentant les concentrations les plus importantes en lévoglucosan, des corrélations assez étroites sont observées entre les concentrations en OC et en lévoglucosan. Les coefficients de corrélation sont en effet de 0,80 et de 0,86 respectivement à Grenoble et Strasbourg (n = 16 et n = 9, respectivement). On retiendra de plus des ordonnées à l'origine faibles dans les deux cas, permettant d'émettre l'hypothèse d'une source « combustion de

Tableau 2.
Moyennes et niveaux de concentration obtenues dans les différentes villes.

Ville	Lévoglucosan (ng.m ⁻³)	Mannosan (ng.m ⁻³)	Galactosan (ng.m ⁻³)	OC (µg.m ⁻³)	EC (µg.m ⁻³)	PM ₁₀ (µg.m ⁻³)
Paris	234 (1-1 224)	28 (1-152)	16 (0-85)	6 (2-15)	1 (0,2-2)	21 (8-47)
Lille	259 (31-697)	27 (2-89)	12 (1-37)	5 (2-9)	0,4 (0,2-0,6)	40 (8-110)
Strasbourg	439 (4-1 300)	73 (6-269)	36 (3-157)	5 (1-14)	0,4 (0,1-1)	26*
Grenoble	1 049 (268-2 469)	101 (32-237)	46 (10-129)	14 (5-28)	1 (0,2-4)	35 (18-64)

* Mesurées en fond sur l'agglomération de Strasbourg.

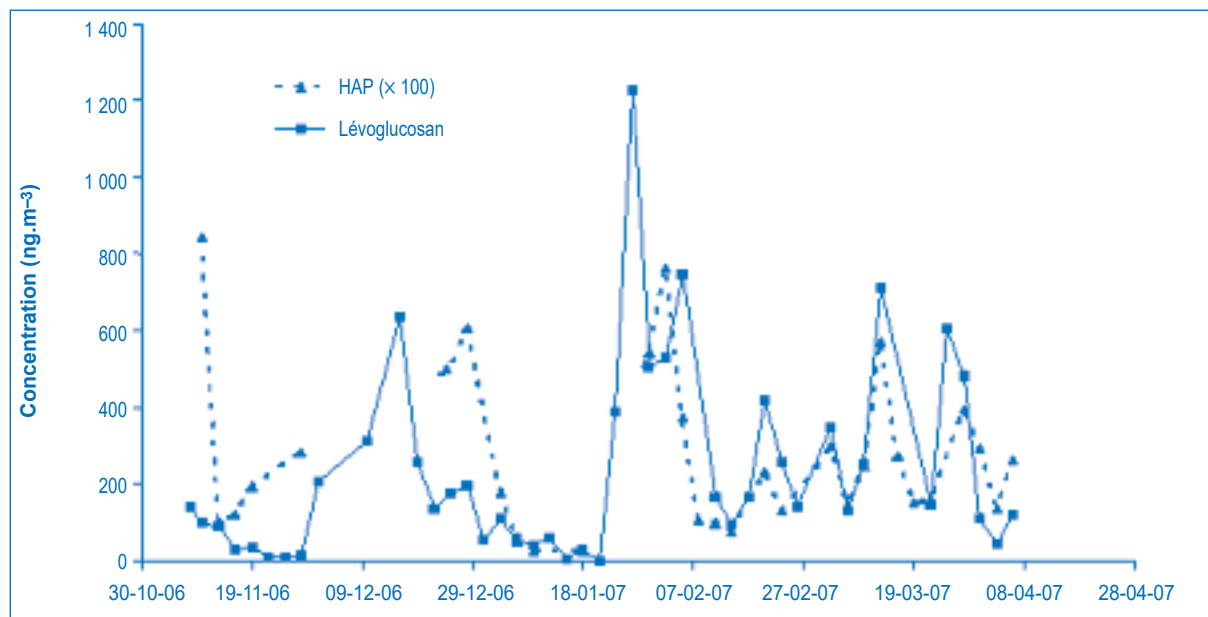


Figure 4.

Évolution temporelle des concentrations en lévoglucosan et en HAP particuliers à Paris.

biomasse » très majoritaire à cette époque de l'année. Finalement, on note une pente similaire pour les deux villes, mettant en avant des processus de génération et d'évolution de la matière organique particulaire sans doute très proches pour les deux villes.

À Paris et Lille, les corrélations sont beaucoup plus faibles ($R^2 = 0,52$ dans les deux cas ; $n = 42$ et $n = 10$, respectivement) avec une proportion de OC provenant de la combustion du bois probablement moins importante.

Des prélèvements conjoints des traceurs spécifiques de la source « combustion de biomasse » et des HAP ont eu lieu essentiellement sur Paris (Figure 4).

Malgré quelques données manquantes en HAP entre le 22/11/06 et le 19/12/06 ainsi qu'entre le 12/01/07 et le 27/01/07, les deux composés semblent avoir une évolution similaire. On retiendra cependant que la corrélation entre les deux espèces est meilleure sur la période à partir du 18 janvier 2007.

Enfin, une estimation de la contribution de la source « combustion du bois » a été réalisée à partir des données de lévoglucosan et OC dans les quatre villes. Malgré une grande incertitude liée au choix de certaines données numériques nécessaires au calcul des contributions, la ville de Grenoble présente la contribution de cette source la plus importante avec des valeurs comprises entre 32 et 53 % de la matière organique particulaire.

5. Études de terrain en cours en France

Dans les paragraphes suivants sont présentées quelques études françaises en cours, visant à identifier les sources des différents polluants atmosphériques y compris la combustion du bois.

5.1. Évaluation de l'impact des appareils de chauffage à bois sur la qualité de l'air intérieur et extérieur

Depuis 2006, l'INERIS, le CSTB, le LCME et le CITEPA, réalisent une étude financée par l'ADEME et le MEEDDAT dont l'objectif est de quantifier la contribution des appareils de chauffage domestique au bois sur la qualité de l'air intérieur et extérieur, par la caractérisation des polluants classiques émis par la combustion du bois, ainsi que des composés traceurs dans les conditions réelles de fonctionnement des équipements.

Ainsi, ce travail permettra également de mieux cerner les émissions des foyers domestiques en prenant en compte le rendement énergétique et en réalisant des essais sur site dans des conditions réelles de fonctionnement des appareils. Une attention toute particulière est également portée à la mesure du taux de renouvellement de l'air et de la perméabilité des habitations afin de mieux interpréter les données.

Pour ce faire, des mesures à l'émission, ainsi qu'à l'intérieur et l'extérieur des habitations équipées de foyers représentatifs du parc actuel de type et d'âge différente (2 foyers ouverts, 2 poêles et 2 foyers fermés), ont été réalisées.

Les résultats de cette étude seront disponibles fin 2008 et permettront :

- d'améliorer la qualité des données relatives aux facteurs d'émission des polluants classiques retenus dans le cadre de l'inventaire national d'émission réalisé par le CITEPA avec des valeurs plus représentatives du fonctionnement réel des appareils. Les données existantes sont en effet issues principalement d'études réalisées sur des installations pilotes censées simuler le fonctionnement normal des appareils notamment. Une partie des facteurs d'émission

obtenus dans cette étude est présentée dans l'article intitulé « Les émissions de polluants par les foyers domestiques » publié dans ce même numéro ;

- d'aider à améliorer la spéciation des espèces de COV utilisées dans l'inventaire et les caractéristiques granulométriques des particules (PM_{2,5} et PM₁₀) ;
- de rechercher un ou plusieurs traceurs de la combustion du bois afin de quantifier la contribution de cette source sur la qualité de l'air intérieur des habitations et extérieur, au voisinage immédiat des équipements étudiés ;
- d'évaluer l'impact du chauffage domestique au bois sur l'apport de polluants problématiques en termes d'exposition et d'effets sur la santé (PM₁₀, CO, HAP dont le B[a]P) en atmosphères intérieures et extérieures.

5.2. Étude exploratoire sur la présence des traceurs spécifiques de la source « combustion du bois » dans les grandes agglomérations françaises : 2006-2007

Suite à l'étude préliminaire présentée dans le paragraphe 4.4., il s'est avéré que la surveillance de certains traceurs de la combustion du bois (lévoglucosan et métoxyphénols), ainsi que du carbone élémentaire et du carbone organique (EC/OC), en complément de la mesure des HAP pourrait donner des informations intéressantes quant à la contribution de la « combustion de bois » aux concentrations atmosphériques à l'extérieur.

De ce fait, la poursuite de cette opération en collaboration avec les AASQA sur les grandes agglomérations françaises a été reconduite en 2008 dans le cadre des travaux de l'INERIS pour le LCSQA, toujours en collaboration avec le LCME de l'Université de Savoie, et le LGGE de l'Université de Grenoble.

Pour cela, des prélèvements de 24 heures, un jour sur 3 ou un jour sur 6, sont effectués avec un appareil haut débit sur des filtres en fibres de quartz **sur une durée d'un an minimum. Les prélèvements des traceurs de la combustion de bois sont faits dans des zones urbaines de fond des grandes agglomérations françaises, en parallèle et sur le même site où les HAP sont mesurés.**

Les résultats obtenus seront disponibles dans le premier semestre 2009, sur le site Internet du LCSQA (www.lcsqa.org).

5.3. Programme FORMES

Ce programme se propose quant à lui d'étudier de façon plus large l'ensemble des sources majoritaires de la matière organique particulaire en milieu urbain. Le programme FORMES (fraction organique de l'aérosol urbain : méthodologie d'estimation des sources), est piloté par le LGGE de Grenoble et le pôle environnement du LCP de Marseille et financé dans le cadre du programme Primequal.

Il est proposé dans ce programme de développer une étude de démonstration pour une méthodologie

de détermination quantitative de l'influence des différentes sources sur la fraction organique de l'aérosol urbain (fractions primaires et secondaires). Cette étude est menée dans des environnements et conditions météorologiques et photochimiques très différenciés, avec des campagnes à Marseille l'été (Juillet 2008), et Grenoble en hiver (Janvier 09). Les objectifs du programme FORMES sont de :

- déterminer quantitativement l'évolution des contributions relatives des principales sources primaires de l'aérosol organique par une approche de type CMB ;
- évaluer la contribution des processus secondaires par confrontation de plusieurs approches (chimiques et physiques) permettant de prendre en compte les principales caractéristiques des particules atmosphériques ;
- proposer au terme du programme, une méthodologie simplifiée d'étude des sources à la fois primaires et secondaires, opérationnelle pour une large gamme de sites.

La méthodologie adoptée est ambitieuse et pluri-approches. Tout d'abord, la spéciation des sources primaires sera réalisée au moyen de l'approche CMB, méthode de référence pour l'US EPA, qui s'appuie principalement sur des traceurs organiques (hopanes, stéranes, lévoglucosan, alcanes linéaires, acides carboxyliques, HAP...). Cette méthodologie sera contrainte par d'autres approches complémentaires comme l'étude des isotopes du carbone, ou l'utilisation de méthodes statistiques plus souples en terme de connaissance des profils de sources (UNMIX, PMF).

Ensuite, la contribution de la fraction secondaire, beaucoup plus complexe à appréhender, sera évaluée principalement selon deux approches :

- la première, basée sur les résultats obtenus par AMS (*Aerosol Mass Spectrometer, Aerodyne*) pouvant être traités en termes de fractions primaires et secondaires ;
- la seconde, plus exploratoire, visant à étudier les relations entre les propriétés physiques des particules (volatilité et hygroscopicité) et les processus photochimiques donnant naissance à l'aérosol organique secondaire.

Ce programme constitue certainement l'étude la plus poussée jamais réalisée en France pour la caractérisation de la physico-chimie et de la détermination des sources des polluants particulaires en milieu urbain.

6. Conclusion

On retiendra que les études françaises relatives à la connaissance de la contribution des différentes sources à la qualité de l'air extérieur, y compris le chauffage au bois se généralisent. Les nombreuses études en cours en France, mais également en Europe, sont la preuve de l'importance de ce type d'étude. Pour cela, le choix d'un composé traceur et/ou indicateur approprié est important afin de mieux

appréhender la contribution des différentes sources à la qualité de l'air extérieur, et/ou intérieur.

Les études présentées dans cet article, montrent des résultats encourageants quant à l'utilisation du lévoglucosan comme traceur de la source « combustion du bois ». Cependant, une meilleure connaissance des facteurs d'émission de ce composé ainsi que de la fraction organique des différentes sources de combustion de biomasse (bois, feux des forêts, brûlage des déchets...) est nécessaire afin de consolider son utilisation.

Dans ce contexte, l'utilisation de nouveaux traceurs se développe en Europe. Le recours au carbone 14 et au traçage isotopique moléculaire

(¹³C/¹²C) pour les HAP et d'autres molécules organiques, constitue un exemple des travaux en cours dans ce domaine en France.

Remerciements

Les auteurs remercient l'Agence de l'environnement et de la maîtrise de l'énergie (ADEME) et le ministère de l'Écologie, de l'Énergie, du Développement durable et de l'Aménagement du Territoire (MEEDDAT) pour le soutien apporté à ces travaux. Nous voulons également remercier AIRPARIF, ATMO Nord-Pas-de-Calais, ASPA et ATMO Rhône-Alpes GIE/ASCOPARG pour leur collaboration et leur disponibilité.

References

- [1] CITEPA : www.citepa.org
- [2] Oros DR, Simoneit BRT. Identification and emission factors of molecular tracers in organic aerosols from biomass burning Part 1. Temperate climate conifers. *Appl. Geochem* 2001 ; 16 : 1513-44.
- [3] Oros DR, Simoneit BRT. Identification and emission factors of molecular tracers in organic aerosols from biomass burning Part 2. Deciduous trees. *Appl. Geochem* 2001 ; 16 : 1545-65.
- [4] Nolte CG, Schauer JJ, Cass CR, Simoneit BRT. Highly polar organic compounds presents in wood smoke and in the ambient atmosphere. *Environ. Sci. and Technol* 2001 ; 35 : 1912-9.
- [5] Schauer JJ, Kleeman MJ, Cass GR, Simoneit BRT. Measurement of Emissions from Air Pollution Sources. 3. C1-C29 Organic Compounds from Fireplace Combustion of Wood. *Environ. Sci. and Technol* 2001 ; 35 : 1716-28.
- [6] Fraser MP, Lakshmanan K. Using levoglucosan as a molecular marker for the long-range transport of biomass combustion aerosols. *Environ. Sci. and Technol* 2000 ; 34 : 4560-4.
- [7] Leithead A, Li SM, Hoff R, Cheng Y, Brook J. Levoglucosan and dehydroabietic acid : evidence of biomass burning impact on aerosols in the Lower Fraser Valley. *Atmos Environ* 2006 ; 40 : 2721-34.
- [8] Medeiros PM, Conte MH, Weber JC, Simoneit BRT. Sugars as source indicators of biogenic organic carbon in aerosols collected above the Howland Experimental Forest, Maine. *Atmos Environ* 2006 ; 40 (9) : 1694-705.
- [9] Jordan TB, Seen AJ and Jacobsen GE. Levoglucosan as an atmospheric tracer for woodsmoke. *Atmos Environ* 2006 ; 40 : 5316-5321.
- [10] Puxbaum H, Caseiro A, Sanchez-Ochoa A *et al.* Levoglucosan levels at background sites in Europe for assessing the impact of biomass combustion on the European aerosol background. *Journal of Geophysical Research* 2007 ; 112 : D23S05.
- [11] Zhang T, Claeys M, Cachier H *et al.* Identification and estimation of the biomass burning contribution to Beijing aerosol using levoglucosan next term as a molecular marker. *Atmos Environ* 2008 ; in press.
- [12] Schmidl C, Marr IL, Caseiro A *et al.* Chemical characterisation of fine particles emissions from wood stove combustion of common woods growing in mid-European Alpine regions. *Atmos Environ* 2008 ; 42 : 126-41.
- [13] Oliveira C, Pio C, Alves C *et al.* Seasonal distribution of polar organic compounds in the urban atmosphere of two large cities from the North and South of Europe. *Atmos Environ* 2007 ; 41 : 5555-701.
- [14] Simoneit BRT. Biomass burning – a review of organic tracers for smoke from incomplete combustion. *Applied Geochemistry* 2002 ; 17 : 129-62.
- [15] Hawthorne SB, Miller DJ, Langenfeld JJ and Krieger MS. PM₁₀ high-volume collection and quantitation of semi- and nonvolatile phenols, methoxylated phenols, alkanes, and polycyclic aromatic hydrocarbons from winter urban air and their relationship to wood smoke emissions. *Environ Sci and Technol* 1992 ; 26 : 2251-62.

- [16] Simpson CD, Paulsen M, Dills RL, Sally Liu LJ and Kalman DA. Determination of methoxyphenols in ambient atmospheric particulate matter: tracers for wood combustion. *Environ Sci and Technol* 2005 ; 39 : 631-7.
- [17] Marchand N, Aymoz G, Jaffrezo JL, Besombes JL. Biomass burning indicators in the aerosol of alpine valleys. *Atmos Environ* soumise 2008.
- [18] Rogge WF, Hildemann LM, Mazurek MA, Cass GR. Sources of Fine Organic Aerosol. 9. Pine, Oak, and Synthetic Log Combustion in Residential Fireplaces. *Environ Sci and Technol* 1998 ; 32 : 13-22.
- [19] Ramdahl T. Retene – a molecular marker of wood combustion in ambient air. *Nature* 1983 ; 306 : 580-2.
- [20] Marchand N, Besombes JL, Masclet P, Aymoz G. and Jaffrezo JL. Polycyclic aromatic hydrocarbons (PAHs) in the atmospheres of two French alpine valleys: sources and temporal patterns. *Atmospheric Chemistry and Physics* 2004 ; 4 : 1167-81.
- [21] Schauer JJ, Cass GR. Source apportionment of wintertime gas phase and particle phase air pollutants using organic compounds as tracers. *Environ Sci and Technol* 2000 ; 34 : 1821-32.
- [22] Ravindra K, Sokhi R, Van Grieken R. Atmospheric polycyclic hydrocarbons: source attribution, emission factors and regulation. *Atmos Environ* 2008 ; 42 : 2895-921.
- [23] Hellen H, Hakola H, Pirjola L, Laurila T, Pystynen KH. Ambient Air Concentrations, Source Profiles, and Source Apportionment of 71 Different C2-C10 Volatile Organic Compounds in Urban and Residential Areas of Finland. *Environ Sci and Technol* 2006 ; 40 : 103-8.
- [24] Hellen H, Hakola S, Haaparanta S, Pietarila H, Kauhaniemi M. Influence of residential wood combustion on local air quality. *Science of the Total Environment* 2008 ; in press.
- [25] Hedberg E, Kristensson A, Ohlsson M *et al.* Chemical and physical characterization of emissions from birch wood combustion in a wood stove. *Atmos Environ* 2002 ; 36 : 4823-37.
- [26] Hedberg E, Johansson C, Johansson L, Swietlicki E, Brorström-Lundén. Is levoglucosan a suitable quantitative tracer for wood burning. Comparison with receptor modeling on trace elements in Lycksele, Sweden. *Air & Waste Manage Assoc* 2006 ; 56 : 1669-78.
- [27] Molnar P, Gustafson P, Johannesson S, Boman J, Barregard L, Sällsten G. Domestic wood burning and PM_{2.5} trace elements: Personal exposures, indoor and outdoor levels *Atmos Environ* 2005 ; 39 : 2643-53.
- [28] Wang Q, Shao M, Liu Y *et al.* Impact of biomass burning on urban air quality estimated by organic tracers: Guangzhou and Beijing as cases. *levels Atmos Environ* 2007 ; 41 : 8380-90.
- [29] Robinson AL, Subramanian R, Donahue NM, Bernardo-Bricker A, Rogge WF. Source apportionment of molecular markers and organic aerosol-1. Polycyclic aromatic hydrocarbons and methodology for data visualization. *Environ Sci and Technol* 2006 ; 40 : 7803-10.
- [30] Robinson AL, Subramanian R, Donahue NM, Bernardo-Bricker A, Rogge WF. Source Apportionment of Molecular Markers and Organic Aerosol. 2. Biomass Smoke. *Environ Sci and Technol* 2006 ; 40 : 7811-9.
- [31] Étude exploratoire sur la présence des traceurs spécifiques de la source « combustion du bois » dans les grandes agglomérations françaises. 2007 ; *Rapport INERIS DRC-07-82361-14586A*.
- [32] Schauer JJ, Rogge WF, Hildemann LM, Mazurek MA, Cass GR, Simoneit BRT. Source apportionment of airborne particulate matter using organic compounds as tracers. *Atmos Environ* 1996 ; 30 : 3837-55.
- [33] Christensen WF, Gunst RF. Estimating pollution source contributions from temporally correlated air quality observations. *Statistics-simulation and computation* 2004 ; 33 (4) : 1039-60.
- [34] Paatero P, Tapper U. Positive matrix factorization: a non-negative factor model with optimal utilization of error estimate of data values. *Environmetrics* 1994 ; 5 : 111-26.
- [35] Henry RC. History and fundamentals of multivariate air quality receptor models. *Chemometrics and Intelligent Laboratory Systems* 1997 ; 37 : 37-42.
- [36] Henry RC. Multivariate receptor modeling by N-dimensional edge detection. *Chemometrics and Intelligent Laboratory Systems* 2003 ; 65 : 179-89.
- [37] Song Y, Xie S, Zhang Y, Zeng L, Salmon LG, Zheng M. Source apportionment of PM_{2.5} in Beijing using principal component analysis/absolute principal component scores and UNMIX. *Science of The Total Environment* 2006 ; 372 : 278-86.
- [38] Thurston GD, Ito K, Mar T *et al.* Workgroup Report: Workshop on Source Apportionment of Particulate Matter Health Effects – Intercomparison of Results and Implications. *Environmental Health Perspectives* 2005 ; 113 (12) : 1768-74.
- [39] Viana M, Kuhlbusch TAJ, Querol X *et al.* Source apportionment of particulate matter in Europe: A review of methods and results. *Aerosol Science* 2008 ; in press.
- [40] Hopke PK, Ito K, Mar T *et al.* PM source apportionment and health effects: 1. Intercomparison of source apportionment results. *Journal of Exposure Science and Environmental Epidemiology* 2006 ; 16 : 275-86.
- [41] Antilla P, Makkonen U, Hellen H *et al.* Impact of the open fires in spring and summer of 2006 on the chemical composition of background air in south-eastern Finland. *Atmos Environ* 2008 ; in press.

- [42] www.menv.gouv.qc.ca (rubrique Air/Qualité de l'air/Chauffage au bois) (2004). Campagne d'échantillonnage sur le chauffage résidentiel au bois. *Rapport d'étude* : 1999 à 2002.
- [43] Programme PRIMEQUAL 2/PREDIT. Pollution des Vallées Alpines. *Rapport final*. Jaffrezou JL, Chapuis D, Jacob V *et al.* 2 décembre 2005.
- [44] Caricchia AM, Chiavarini S, Pezza M. Polycyclic aromatic hydrocarbons in the urban atmospheric particulate matter in the city of Naples (Italy). *Atmos Environ* 1999 ; 33 : 3731-8.
- [45] Cecinato A, Marino F, Di Filippo P, Lepore L, Possanzini M. Distribution of n-alkanes, polynuclear aromatic hydrocarbons between the fine and coarse fractions of inhalable atmospheric particles. *Journal of Chromatography A* 1999 ; 826 : 55-264.
- [46] Dimashky M, Lee HL, Harrison RM, Harrad S. Temporal trends, temperature dependence, and relative reactivity of atmospheric polycyclic aromatic hydrocarbons. *Environ Sci and Technol* 2001 ; 35 : 2264-7.
- [47] Besombes JL, Maitre A, Patissier O *et al.* Particulate PAHs observed in the surrounding of a municipal incinerator. *Atmos Environ* 2001 ; 35 : 6093-104.
- [48] Pistikopoulos P, Masclet P, Mouvier G. A receptor model adapted to reactive species Polycyclic Aromatic Hydrocarbons ; evaluation of source contributions in a open urban site -I. Particle compounds. *Atmos Environ* 1990 ; 24A : 1189-97.
- [49] Gelencser A, May B, Simpson D *et al.* Source apportionment of PM_{2.5} organic aerosol over Europe: primary/secondary, natural/anthropogenic, fossil/biogenic origin. *J Geophys Res* 2007 ; 112 (D23) : doi:1029/2006JD008094.
- [50] Étude « combustion du bois et qualité de l'air ». *Rapport Atmo Rhône-Alpes*, octobre 2007 (www.atmo-rhonealpes.org).
- [51] Caractérisation des zones non couvertes par le programme pilote HAP : campagne hivernale en Isère. *Rapport INERIS/LCSQA*, novembre 2005 (www.lcsqa.org).