

Origine des particules fines (PM_{2.5}) en Ile-de-France

Sources of fine aerosols (PM_{2.5}) in the region of Paris

Véronique GHERSI⁽¹⁾, Amandine ROSSO⁽¹⁾, Sophie MOUKHTAR⁽¹⁾, Karine LÉGER⁽¹⁾
Jean SCIARE⁽²⁾, Michaël BRESSI⁽²⁾, José NICOLAS⁽²⁾, Anaïs FERON⁽²⁾, Nicolas BONNAIRE⁽²⁾

Résumé

Dans une région marquée par des dépassements chroniques des valeurs réglementaires à proximité du trafic routier et certaines années en fond au centre de l'agglomération, l'identification des sources de particules fines est indispensable à la mise en place de politiques visant à diminuer leurs concentrations en Ile-de-France. Airparif a mis en œuvre, en collaboration avec le LSCE (Laboratoire des Sciences du Climat et de l'Environnement), une vaste étude de caractérisation chimique des particules afin d'améliorer nos connaissances sur l'origine géographique et la contribution des différentes sources d'émission aux niveaux de particules mesurés en Ile-de-France. Menée grâce au soutien financier de l'État, de la Région Ile-de-France, de la Ville de Paris, du CNRS et du CEA, les résultats doivent aider à l'identification de mesures appropriées pour faire baisser les teneurs en particules dans l'environnement. Elle a été pilotée par Airparif et menée en partenariat avec le LSCE. Airparif et le LSCE ont souhaité que cette étude puisse être expertisée tout au long de sa mise en œuvre par un comité scientifique composé d'experts français et européens de Berlin, Londres et Barcelone, ainsi que de représentants institutionnels français. La campagne de mesure, d'une durée d'un an, avec des prélèvements journaliers, s'est déroulée du 11 septembre 2009 au 10 septembre 2010 sur six sites répartis en Ile-de-France [1]. Elle est essentiellement ciblée sur les particules fines PM_{2.5}, compte tenu de leur impact néfaste sur la santé mais également parce qu'elles représentent en moyenne 70 % de la masse totale des particules PM₁₀.

L'étude s'appuie sur une méthodologie développée à Berlin [2]. Elle repose sur le couplage de mesures de concentrations de particules sur six stations réparties à travers l'Ile-de-France avec analyse de leur composition chimique, de données météorologiques et de données d'inventaire d'émissions (régionales et européennes). Les analyses chimiques, réalisées ici par le LSCE, portent sur la masse totale des aérosols, carbone organique, carbone élémentaire, ions, métaux et traceurs organiques dont le lévoglucosan, traceur de la combustion de biomasse. Les résultats portent d'une part sur l'origine géographique et d'autre part sur les sources de particules à proximité du trafic ou dans le fond urbain.

Cette étude permet donc pour la première fois en Ile-de-France de quantifier et de définir la part de la production locale de particules par rapport aux apports résultant de la pollution transfrontière. À proximité de la circulation, cette étude montre que les particules fines PM_{2.5} proviennent en majorité d'une production francilienne (60 %) avec une part importante (40 %) et stable (sur l'année) du trafic routier. Dans l'agglomération parisienne, et en situation éloignée du trafic routier, les particules proviennent à près de 70 % de pollutions transfrontières. En revanche, dans les 30 % produits localement, le chauffage au bois représente une source importante de PM_{2.5}, quasi équivalente au trafic. Cette contribution est particulièrement significative puisque selon le Ceren⁽³⁾, le bois ne représente que 5 % des combustibles utilisés pour le chauffage résidentiel et qu'il produit plus de 80 % des émissions de particules fines par ce secteur.

Cette étude montre qu'**améliorer la qualité de l'air sur l'ensemble de l'agglomération parisienne et respecter les réglementations ne peuvent être obtenus qu'au prix d'actions complémentaires**, à différentes échelles et sur différentes sources :

- À proximité directe du trafic routier, de manière chronique et pas uniquement pendant les pics de pollution. La stabilité de la contribution du trafic au cours de l'année, associée à la récurrence un jour sur deux des dépassements de la valeur limite (en proximité du trafic), plaide pour des mesures de réduction chroniques et à large échelle plus que pour des mesures ponctuelles en cas d'épisode de pollution. Des mesures de réductions permanentes présenteraient de plus l'avantage de faire baisser le nombre et l'intensité des épisodes de pollution.
- Dans l'agglomération en général par des actions sur le trafic et le chauffage résidentiel, en particulier par des mesures sur le chauffage au bois et sur le diesel.
- À l'échelle de la France et de l'Europe pour limiter la part des particules provenant de l'import.

Mots-clés

Aérosols, composition chimique, PM_{2.5}, contribution des sources.

(1) Airparif, Surveillance de la Qualité de l'Air en Ile-de-France – 7 rue Crillon, 75004 Paris – Adresse e-mail : veronique.gherzi@airparif.asso.fr

(2) Laboratoire des Sciences du Climat et de l'Environnement (LSCE), CNRS-CEA – CEA Orme des Merisiers – 91191 Gif-sur-Yvette, France – Adresse e-mail : jean.sciare@lsce.ipsl.fr

(3) Ceren : Centre d'Études et de Recherches Économiques sur l'Énergie.

Abstract

It is now well accepted that particles, especially fine particles (PM_{2.5}), have important adverse health effects. Moreover, the levels measured in the Ile-de-France region have been relatively stable in recent years. These levels lead to chronic exceedances and litigations with the European commission for non-compliance with the PM₁₀ directive. However, the definition and the implementation of effective measures to reduce Ile-de-France particle levels require a good knowledge on the origins and sources of these particles.

In this context, Airparif and the LSCE have conducted a characterization study of the Ile-de-France fine aerosols. The study is based on the Lenschow methodology developed in Berlin [2] and exploits the chemical composition results measured at a traffic site (ring road Porte d'Auteuil), at one urban site (Paris) and at three background rural sites, located in northwest, northeast and south of the Ile-de-France.

Performed in the Ile-de-France region, this study confirmed the Lenschow method relevancy and allowed the build up of a large PM_{2.5} daily database. This database provides a very detailed chemical composition of the fine particles over a year on six sites in Ile-de-France. It also provides data on the chemical composition of PM₁₀ for the same period at the urban site and the traffic site.

The first result coming out from this study concerns the particle level distribution according to the geographical particle origin, measured near traffic sites and urban areas, and associated sources.

On an annual average, the geographical origin of particle concentrations measured at the traffic site (ring road Porte d'Auteuil) can be summarized as follow:

- Approximately 60% of the PM_{2.5} annual concentration is from the Ile-de-France region itself: nearly 40% is due to the direct emissions of the Paris ring road traffic and 20% originates from the global Paris area pollution (urban background). Local actions can be proposed to decrease these contributions of the PM_{2.5} concentrations.

- 40% of PM_{2.5} levels measured is imported (*i.e.* advected on the region of Paris). National and European actions should be considered here to reduce this contribution.

- On an annual average, at the traffic site (near the ring road Porte d'Auteuil), about 40% of the PM₁₀ concentrations is from the local traffic generated by the axis close to the station.

The study also established the major sources contributing to PM_{2.5} particle levels:

- Road traffic emissions, whether of local/regional origin or imported over the region (contributing over 50% on the Auteuil traffic site of which 90% are from the Paris region traffic).

- The residential heating and especially wood burning. Residential wood burning is responsible for nearly 30% of PM_{2.5} concentration observed in winter at the urban background, while it represents only 5% of the energy consumption of the residential sector. Results on levoglucosan (wood smoke organic marker) measurements confirm the importance of the contribution of this combustible.

- Agriculture, industry and road traffic are the main contributors to secondary inorganic precursors. These compounds are composed by 80% imported, 15% produced from the urban area and 5% from the local traffic. However, chemical reactions resulting in the emission of secondary particles are complex and the link between lower gaseous precursor's emissions and its impact on particle levels is not straightforward.

Keywords

Aerosols, chemical composition, PM_{2.5}, source apportionment.

Introduction

Les particules ont un effet néfaste reconnu sur la santé et c'est pourquoi elles sont réglementées. Le programme européen CAFE (*Clean Air For Europe*) estime que les PM_{2.5} présentes dans l'atmosphère, sur la base des émissions de l'année 2000, entraînent en Europe une perte annuelle de 3,7 millions d'années de vie et environ 348 000 décès prématurés [3]. Les principaux effets mis en évidence sont des troubles cardio-respiratoires pouvant survenir à court ou à long terme. À ce jour, il n'a pas été mis en évidence de seuil en dessous duquel les particules seraient inoffensives. En revanche, les concentrations accrues de particules augmentent les risques d'effets délétères. Or, en Ile-de-France, la plupart des valeurs réglementaires sont dépassées tous les ans. Plusieurs

millions de Franciliens sont concernés et, comme d'autres États membres, la France est en situation de contentieux avec l'Europe pour non-respect de la directive pour les particules PM₁₀.

Dans ce contexte, la définition et la mise en place de plans d'actions nécessitent l'identification de mesures appropriées pour faire baisser les teneurs en particules dans l'environnement et donc une bonne connaissance de la responsabilité des différentes sources de particules. Une des difficultés réside dans le fait qu'il n'existe pas de relation directement proportionnelle entre les émissions de particules et leurs concentrations dans l'air qui dépendent de nombreux facteurs, notamment météorologiques et chimiques.

Une autre grande difficulté pour appréhender les sources des particules provient de la diversité même

de ces sources. Les particules sont des polluants complexes qui peuvent être directement émis dans l'atmosphère (particules primaires), ou provenir de la transformation dans l'atmosphère de polluants gazeux (particules secondaires). Elles peuvent de plus être transportées sur de longues distances et être remises en suspension une fois déposées au sol. De plus, les particules se composent de nombreuses substances et ne constituent pas une espèce chimique unique et homogène.

Ainsi, la composition chimique des particules apporte, à elle seule, des informations précieuses concernant leurs sources. En zone urbaine, les espèces carbonées présentes dans les particules sont majoritairement issues de la combustion incomplète (trafic, chauffage...) tandis que les composés inorganiques peuvent être d'origine naturelle (poussières terrigènes, sels de mer), ou anthropique (formés par des processus physiques comme l'abrasion des routes, des pneus, des freins...), ou d'origine secondaire issus de la transformation photochimique de composés gazeux (acide nitrique, dioxyde de soufre, et ammoniac) principalement émis par les industries, le trafic et l'agriculture (épandage d'engrais).

Les espèces ioniques

Parmi les espèces ioniques mesurées dans les particules, une distinction peut être faite entre les sels marins (Na^+ , Cl^- , Mg^{2+} , ss-SO_4^{2-} , ss-K^+ , ss-Ca^{2+}) et les autres sels. Certaines espèces sont d'origine primaire (tel que K^+ , qui peut être un traceur de combustion de la biomasse) ou secondaire (ss-SO_4^{2-} , NH_4^+ , ou NO_3^- , qui se forment à partir des gaz présents dans l'atmosphère : oxydes d'azote, dioxyde de soufre et ammoniac).

Les espèces carbonées

Le carbone est présent principalement sous deux formes : le carbone élémentaire (EC) et le carbone organique (OC). La somme du carbone élémentaire et du carbone organique constitue le carbone total (CT).

- Le carbone élémentaire EC ou *black carbon*, BC (suivant la méthode de mesure utilisée) correspond au carbone graphitique amorphe et absorbant. Il est primaire et d'origine anthropique. Il est principalement issu de toutes les combustions incomplètes, qu'elles soient de combustibles fossiles (charbon, gazole,

essence, kérosène, gaz naturel...) ou renouvelables (bois, biomasse), ainsi que des débris de matériaux carbonés relargués par les activités humaines comme les débris de pneus. C'est un bon traceur des activités anthropiques, en particulier du trafic routier.

- Le cœur de l'aérosol, constitué de carbone élémentaire, est généralement entouré d'une pellicule composée d'un mélange complexe de composés organiques. On parle alors de carbone organique (OC). Dans les particules atmosphériques, le carbone organique se trouve sous la forme de matière organique particulaire (OM). Ce terme (OM) désigne l'ensemble constitué par le carbone et les autres atomes constituant cette matière (oxygène, hydrogène, azote, soufre...). La teneur en OM est estimée en multipliant la teneur en carbone organique par un coefficient, généralement compris entre 1,6 et 2,0 selon le degré d'oxydation de l'aérosol organique suite à son vieillissement dans l'atmosphère. La matière organique a des origines plus diverses que le carbone élémentaire. Elle peut être d'origine anthropique, essentiellement formée lors des combustions incomplètes directement à l'émission, soit par conversion des gaz présents dans les fumées. Elle peut également être constituée de particules biogéniques primaires ou secondaires.

Les poussières minérales

Les poussières minérales sont essentiellement d'origine terrigène (érosion des sols et remise en suspension).

Le Tableau I résume ces éléments.

À l'image d'autres capitales européennes telles que Londres et Berlin, où d'importantes études de caractérisation chimique des sources de particules ont été menées (et sur lesquelles ont d'ores et déjà été basés des plans d'actions locaux), l'amélioration des connaissances des particules dans l'agglomération parisienne est la principale motivation de cette étude.

Cette étude doit aider à l'identification de mesures appropriées pour faire baisser les teneurs en particules en Ile-de-France à travers un double objectif :

- déterminer la proportion de particules émise localement par le trafic, de celle produite par l'agglomération parisienne et celle importée d'autres régions en France ou d'Europe ;

Tableau I.
Origine primaire et secondaire des différentes espèces chimiques constituant les particules.
Primary and secondary origins of the main chemical components of PM.

| | Ions de sels de mer | Autres ions | Carbone élémentaire (EC) | Carbone organique (OM) | Poussières minérales |
|--------------------------|---------------------|-------------|--------------------------|------------------------|----------------------|
| Primaires | X | X | X | X | X |
| Organiques secondaires | | | | X | |
| Inorganiques secondaires | | X | | | |

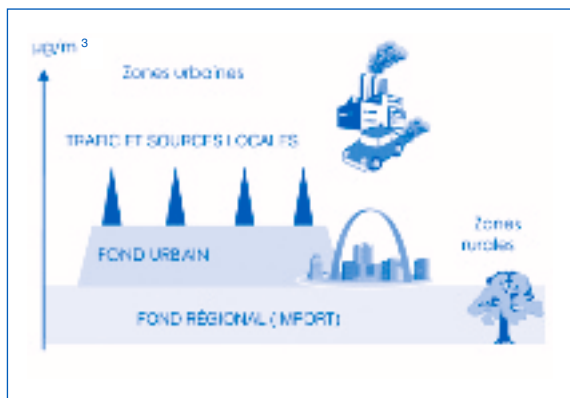


Figure 1.

Schéma du profil vertical des concentrations de $PM_{2,5}$ dans l'air ambiant selon la méthode de Lenschow.

Schematic vertical profile of the ambient $PM_{2,5}$ concentration according to the Lenschow approach.

- estimer la contribution des différentes sources d'émissions (chauffage, industrie, trafic, agriculture...) sur les niveaux de particules mesurés le long d'une route à fort trafic, dans l'agglomération parisienne en général, ou à l'échelle de la région.

Airparif a ainsi mis en œuvre, en collaboration avec le Laboratoire des Sciences du Climat et de l'Environnement (LSCE), une étude de caractérisation des particules visant à estimer la contribution des différentes sources de particules aux niveaux mesurés en Ile-de-France et leur origine géographique, de manière à fournir aux autorités locales une meilleure connaissance des sources sur lesquelles on peut agir pour diminuer les niveaux de particules. Ce projet est réalisé avec le soutien financier de l'État (DRIEE⁽⁴⁾ et ADEME⁽⁵⁾), de la Région Ile-de-France, de la Mairie de Paris, du CNRS et du CEA

Méthodologie

Le volet méthodologique de ce projet a été décrit en détail dans [1], seuls les principaux éléments sont résumés ici.

L'étude menée par Airparif et le LSCE vise en premier lieu à déterminer les différentes contributions géographiques des aérosols fins mesurés sur la région (fond régional, urbain, trafic). Cet objectif est particulièrement important puisqu'il constitue la base même des demandes de report de délais pour le respect des valeurs limites. Pour ce faire, l'étude est basée sur la **méthodologie de Lenschow** [2], développée sur la ville de Berlin, qui repose sur l'hypothèse que les concentrations atmosphériques de particules résultent de l'addition de plusieurs contributions : fond régional/fond urbain/trafic local.

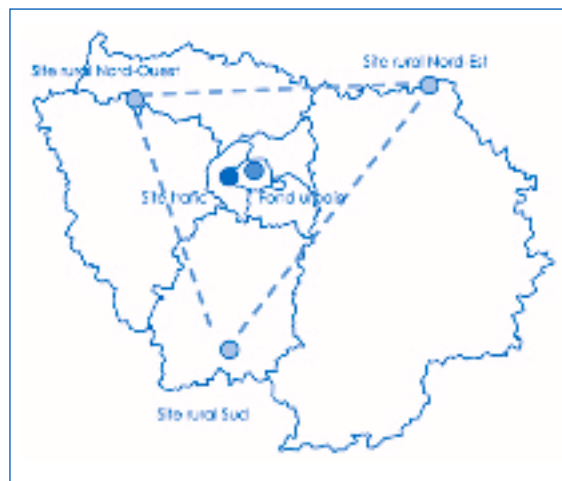


Figure 2.

Emplacement des cinq sites de mesure pendant la campagne.
Spatial distribution of monitoring sites in Ile-de-France.

Cinq sites de mesure ont été instrumentés pour répondre à cet objectif. Les sites ont été choisis afin de permettre d'évaluer chacun des compartiments indépendamment des autres (trafic, urbain et régional), et ce pour tous les types de situations météorologiques.

Le site trafic a été implanté sur la station du Boulevard périphérique – Porte d'Auteuil. Cet emplacement a permis d'évaluer l'impact de cet axe de circulation majeur en Ile-de-France, sur lequel circulent chaque jour plus de 220 000 véhicules, et qui constitue donc une source de pollution atmosphérique importante liée au trafic routier. Le site de fond urbain du cœur de l'agglomération a été implanté dans le 4^e arrondissement de Paris. Les sites ruraux ont permis d'évaluer, quelle que soit la provenance des vents, l'import en provenance de l'extérieur de la région. Trois sites de mesure ont été retenus pour répondre à ce cahier des charges : Crouy-sur-Ourcq (77), Bois-Herpin (91) et Frémainville (95).

La **Figure 2** ci-dessus représente l'emplacement des cinq sites de prélèvements retenus pour réaliser l'étude.

Seule la connaissance de la composition chimique des particules permet de remonter à leur origine géographique et à leurs sources. **Des prélèvements sur filtres ont été réalisés quotidiennement pendant un an ; les filtres ont ensuite été analysés en laboratoire pour définir la composition chimique des particules collectées.**

La méthode d'additivité des niveaux (**Figure 1**) permet de déterminer les origines géographiques des particules tandis qu'un couplage avec l'inventaire des émissions Airparif permet de remonter aux sources des particules.

(4) DRIEE : Direction Régionale et Interdépartementale de l'Environnement et de l'Énergie.

(5) ADEME : Agence de l'Environnement et de la Maîtrise de l'Énergie.

Prélèvements et analyses chimiques des particules

Dans le cadre de cette étude, plus de trente espèces chimiques ont été mesurées chaque jour sur chaque site, soit 5 096 prélèvements mis en place, 5 682 filtres analysés et 87 600 analyses chimiques réalisées.

Prélèvements

Des prélèvements journaliers sur filtres ont été réalisés pendant une année complète, de septembre 2010 à septembre 2011, avec des préleveurs Leckel (débit d'air = 2,3 m³/h). Pour permettre une caractérisation complète de la composition chimique des particules PM_{2,5}, il était nécessaire de réaliser deux prélèvements en parallèle, le premier, sur filtres quartz, destiné aux analyses de carbone, le second, sur filtres Téflon, pour les pesées et les analyses d'ions, de traceurs organiques et de métaux.

Les résultats présentés ici portent sur la fraction PM_{2,5}. Des mesures complémentaires de PM₁₀ ont été réalisées sur le site trafic et le site urbain. Elles sont motivées par le fait que les particules PM₁₀ font actuellement l'objet de dépassements chroniques des valeurs réglementaires en proximité au trafic routier et que de nombreuses études épidémiologiques soulignent l'impact sanitaire des particules grossières (comprises entre 2.5 et 10 µm). Pour les PM₁₀, seuls les prélèvements sur filtre Téflon ont été réalisés. Les résultats des espèces carbonées ont été déduits des analyses PM_{2,5}.

Analyse chimique des aérosols

Le premier objectif de cette étude était d'apporter une information sur les principaux composés chimiques présents dans les aérosols à travers des exercices de « fermeture chimique » (*i.e.* fermeture du bilan de masse) comme rapporté dans [4] et [5]. Cette fermeture chimique consiste à approcher la masse (PM) totale des aérosols évaluée à partir de pesée gravimétrique en effectuant la somme de l'ensemble de ses composants chimiques. Sous une forme simplifiée, la fermeture chimique peut s'écrire sous la forme d'une équation :

$$[PM_{2,5}] = [AIS] + [OM] + [EC] + [\text{sels de mer}] + [\text{poussières crustales}] \quad (1)$$

Où :

[PM_{2,5}] est la concentration massique (en µg/m³) des aérosols fins déterminée par pesée gravimétrique.

[AIS] est la concentration massique (en µg/m³) des Aérosols Inorganiques Secondaires. Ces AIS sont formés de sulfate d'ammonium ((NH₄)₂SO₄) et de nitrate d'ammonium ((NH₄)NO₃).

[OM] est la concentration massique (en µg/m³) de la Matière Organique particulaire calculée comme $[OM] = f \times [OC]$. [OC] est la concentration massique (exprimée en µgC/m³) de carbone organique.

[EC] est la concentration massique (en µgC/m³) de carbone élémentaire.

[sels de mer] est la concentration massique (en µg/m³) de sels de mer déterminée par la formule suivante : $[\text{sels de mer}] = [Na^+] + [Cl^-] + [Mg^{2+}] + [ss-SO_4^{2-}] + [ss-K^+] + [ss-Ca^{2+}]$.

[poussières crustales] est la concentration massique (en µg/m³) de poussières crustales déterminée par la formule suivante : $[\text{poussières crustales}] = \frac{2,20 \times [Al] + 2,49 \times [Si] + 1,63 \times [Ca] + 2,42 \times [Fe] + 1,94 \times [Ti]}{1}$ comme proposé dans [6].

L'ensemble des techniques d'analyse chimique des composants des particules est décrit en détail dans [1] et [5].

Méthodologie de déconvolution de la source « chauffage au bois »

Un des enjeux majeurs de cette étude concerne l'évaluation du poids des émissions du chauffage au bois sur les concentrations hivernales de PM_{2,5} et PM₁₀. Les fractions EC et OC issues du chauffage au bois sont estimées à partir de la mesure d'un traceur spécifique (lévoglucosan) et de l'inventaire des émissions développé à Airparif.

Résultats

Les concentrations annuelles en PM_{2,5} obtenues sur notre étude (sept. 2009 - sept. 2010) sont typiques des différentes typologies de sites représentées et sont cohérentes avec les mesures réalisées sur le réseau de surveillance d'Airparif ou avec les données de la littérature [7] et [8]. En particulier, les niveaux moyens en PM_{2,5} sont de 27 µg/m³ sur le site trafic, 15 µg/m³ sur le site urbain de Paris, et 11 µg/m³ sur le site rural. Ces concentrations sont cohérentes avec les mesures décrites par [6] sur différents sites européens aux typologies variées, avec des concentrations en PM_{2,5} comprises entre 20 et 40 µg/m³ sur les sites trafic, entre 15 et 40 µg/m³ sur les sites urbains et entre 5 et 20 µg/m³ sur les sites ruraux. Les niveaux annuels de PM_{2,5} sur le site trafic d'Auteuil sont plus d'1,5 fois supérieurs à ceux mesurés sur le site urbain. La différence entre les niveaux moyens ruraux et urbains est faible (environ 5 µg/m³).

Les concentrations annuelles en PM₁₀ à proximité du trafic routier et sur le site urbain de Paris sont respectivement de 39 µg/m³ et de 22 µg/m³. Les concentrations à proximité du trafic sont en moyenne près de deux fois supérieures à celles du site urbain. Ces concentrations sont également cohérentes avec les concentrations observées par [6].

Résultats de composition chimique des particules fines PM_{2,5}

La Figure 3 présente la composition chimique moyenne des PM_{2,5} mesurées du 11 septembre 2009 au 10 septembre 2010 sur les sites trafic, urbain et

ruraux. Pour la typologie « Rural », les résultats sont issus de la moyenne des valeurs journalières du site rural le plus représentatif de l'import sélectionné en fonction du secteur de vent pour ne pas être influencé par les émissions de l'agglomération parisienne.

En ce qui concerne la composition chimique des $PM_{2.5}$, quel que soit le site de mesure considéré (trafic, urbain, ou rural), la fraction fine ($PM_{2.5}$) est essentiellement composée d'espèces carbonées (EC et OM) et d'espèces inorganiques secondaires (notées AIS) qui sont principalement émises respectivement par des procédés de combustion et produites par réactions photochimiques dans l'atmosphère.

Sur les cinq sites d'étude, les composés carbonés représentent en moyenne plus de 40 % de la masse totale de $PM_{2.5}$ (40 % sur le site rural, autour de 46 % sur le site urbain et plus de 65 % sur le site trafic). Ils représentent en moyenne $17 \mu g/m^3$ sur le site trafic, $7 \mu g/m^3$ sur le site urbain et $5 \mu g/m^3$ sur le site rural. L'augmentation sensible des concentrations de carbone élémentaire (EC) entre le site rural et le site urbain s'explique par la présence en zone urbaine de sources de combustion (trafic, chauffage).

Les rapports OM/EC sont respectivement de 8,4 et 1,5 sur les sites ruraux, urbains, trafic. Ils sont cohérents avec les données de la littérature et reflètent notamment la présence de sources urbaines comme le trafic qui ont des rapports OM/EC qui sont

très faibles. Les valeurs élevées en fond régional reflètent la présence de composés organiques très oxydés, issus notamment de processus de formation secondaire.

Les composés inorganiques secondaires (AIS) constituent en moyenne au minimum 25 % de la masse totale des $PM_{2.5}$ (25 % sur le site trafic, autour de 40 % sur le site urbain et plus de 45 % sur le site rural). Si les contributions relatives sont très différentes d'une typologie de site à l'autre, en particulier entre le site trafic et le site rural, les concentrations en composés inorganiques secondaires sont très homogènes à l'échelle de notre région. Elles évoluent peu entre le site rural (autour de $5 \mu g/m^3$ en moyenne), les sites urbains (autour de $6 \mu g/m^3$ en moyenne) et le site trafic (environ $6.5 \mu g/m^3$ en moyenne). Ce résultat est cohérent avec les données de la littérature identifiant ces composés comme principalement issus de transport longue distance.

La Figure 4 présente les contributions en $PM_{2.5}$ en « été » (du 1^{er} avril au 30 septembre) et en « hiver » (du 1^{er} octobre au 31 mars) des trois secteurs considérés. La différence de concentrations entre l'été et l'hiver est faible pour les trois contributions ($2 \mu g/m^3$). En été, la contribution du trafic local est légèrement plus forte qu'en hiver. À l'inverse, les contributions du fond (à la fois urbaine et import) sont légèrement plus faibles en été qu'en hiver.

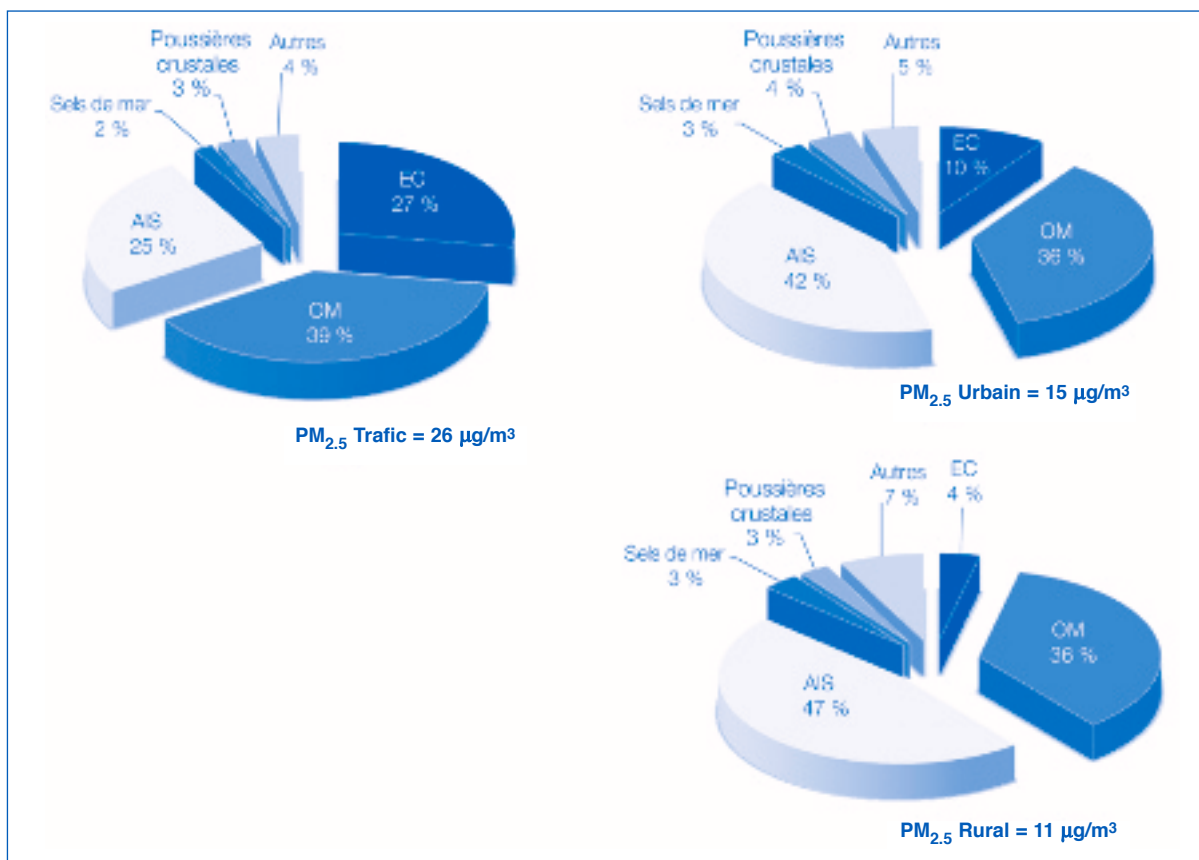


Figure 3.
Composition chimique moyenne annuelle des $PM_{2.5}$ échantillonnées sur les différentes typologies de sites.
Annual average chemical composition of $PM_{2.5}$ sampled on the traffic, urban and rural sites.

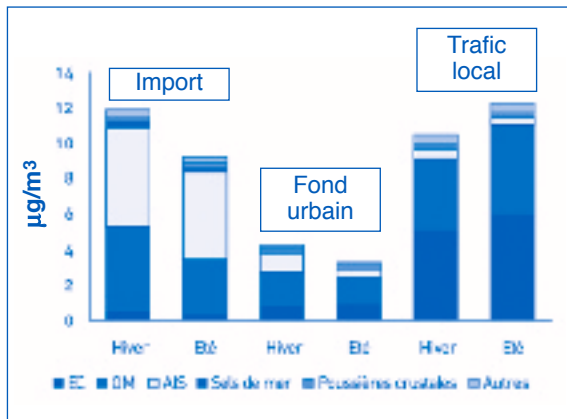


Figure 4.

Composition chimique moyenne annuelle des contributions (import, fond urbain, trafic local) à la concentration en PM_{2.5} mesurée sur le site trafic du boulevard périphérique Porte d'Auteuil.

Average chemical composition of the different contributions (import, urban background, traffic) to PM_{2.5} at the traffic site Boulevard périphérique Porte d'Auteuil.

La baisse des contributions du fond (import et urbain) observée en été par rapport à l'hiver est principalement due à une diminution des concentrations en composés carbonés, en particulier la matière organique (OM). Les concentrations hivernales élevées de matière organique s'expliquent notamment par un effet combiné de la dynamique atmosphérique (faibles couches de mélange) et une plus grande proportion de matière organique liée au chauffage au bois. Par ailleurs, la contribution urbaine en composés inorganiques secondaires (NO₃⁻, SO₄²⁻ and NH₄⁺) décroît en été, ce qui est cohérent avec la nature semi-volatile du nitrate d'ammonium dont les concentrations atmosphériques sont gouvernées par des équilibres thermodynamiques favorisant la condensation en phase particulaire durant l'hiver.

Résultats de composition chimique des particules PM₁₀

L'analyse comparée de la composition chimique des PM₁₀ et de celle des PM_{2.5} sur les sites trafic d'Auteuil et urbain de Paris permet, par différence, de caractériser chimiquement la fraction grossière des particules mesurées sur ces deux sites. Les PM₁₀ n'ayant pas été prélevées sur les sites ruraux, il n'est pas possible de distinguer la contribution du fond urbain de celle de l'import.

Sur le site urbain de Paris, les composés carbonés (EC et OM) constituent presque 40 % de la masse totale de PM₁₀ (Figure 5) ce qui correspond à environ 9 µg/m³. Les composés inorganiques secondaires (AIS) représentent 30 % de la masse totale des PM₁₀, soit 6 µg/m³. Les PM₁₀ et les PM_{2.5} sur le site urbain de Paris contiennent pratiquement la même quantité d'AIS, ce qui signifie que ces composés sont presque exclusivement présents dans la fraction fine des particules. Comme attendu, la plus grande différence entre les compositions chimiques des PM_{2.5} et PM₁₀ porte sur les sels de mer et les poussières minérales, tous les deux présents majoritairement dans la fraction grossière des particules. Les concentrations annuelles en sels de mer et en poussières minérales dans les PM₁₀ sur le site urbain ont été estimées, respectivement, à environ 1.5 µg/m³ et 3.5 µg/m³.

Des observations similaires peuvent être faites pour le site trafic : les composés carbonés des PM₁₀ sont essentiellement présents dans la partie fine de l'aérosol (PM_{2.5}), mais de la matière organique est également présente dans la fraction grossière. Ces résultats font néanmoins l'objet d'hypothèses fortes. Rappelons en effet que pour les PM₁₀, il n'y a pas eu de prélèvements sur filtre quartz. Les composés inorganiques secondaires sont majoritairement présents dans la fraction fine des PM₁₀. Les poussières minérales, qui peuvent largement être imputées, sur le site

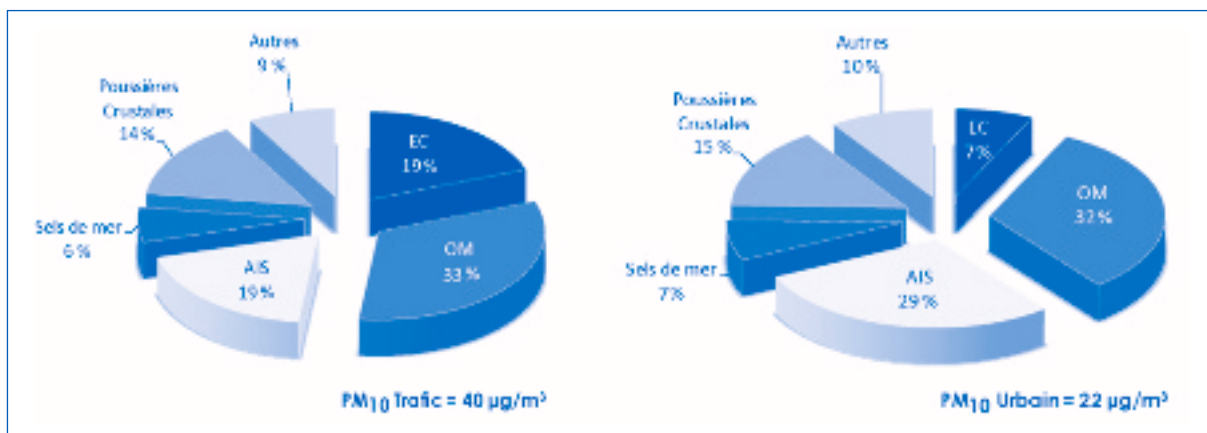


Figure 5.

Composition chimique moyenne annuelle des PM₁₀ échantillonnées sur les différentes typologies de sites.
Annual average chemical composition of PM₁₀ sampled on the traffic and the urban sites.

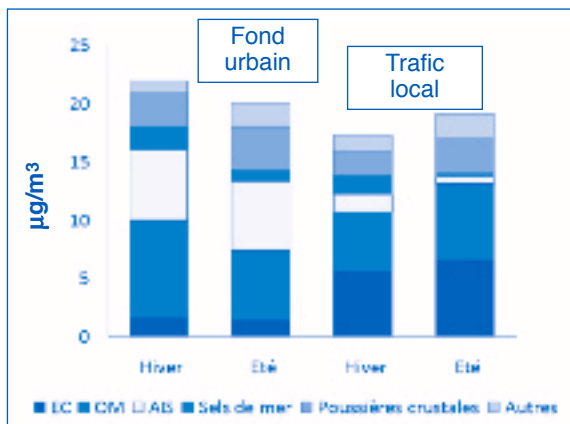


Figure 6.

Composition chimique moyenne annuelle des contributions du fond et du trafic local aux concentrations de PM_{10} mesurées sur le site trafic du boulevard périphérique Porte d'Auteuil.

Average chemical composition of the different contributions (background and local traffic) to PM_{10} at the traffic site Boulevard périphérique Porte d'Auteuil.

trafic, aux émissions hors échappement (remise en suspension...), représentent 14 % de la masse totale de PM_{10} sur ce site soit $6 \mu\text{g}/\text{m}^3$.

Comme pour les $PM_{2.5}$, la différence des PM_{10} entre l'hiver et l'été est très faible (Figure 6). Comme pour les $PM_{2.5}$, la contribution du trafic local augmente légèrement en été. La fraction grossière varie peu, car les sels de mer sont quasiment inexistants en été (pas de salage de route), mais la proportion de poussières minérales augmente (plus de remise en suspension). En hiver, une légère augmentation des sels de mer est visible sur le site trafic et est imputable au salage des routes.

Évolution temporelle des origines géographiques des particules

La Figure 7 présente l'évolution journalière des différentes contributions géographiques (import, urbain, trafic) sur les niveaux de $PM_{2.5}$ sur le site trafic (boulevard périphérique). Les principales variations de la concentration journalière en $PM_{2.5}$ sont liées à la variation de l'import qui représente en moyenne $10 \mu\text{g}/\text{m}^3$ sur l'année de mesure. La contribution du trafic local aux $PM_{2.5}$ est assez constante au cours de l'année et représente en moyenne $11 \mu\text{g}/\text{m}^3$. La contribution urbaine en $PM_{2.5}$ varie également peu dans le temps. Elle est en moyenne de $4 \mu\text{g}/\text{m}^3$.

La Figure 8 représente l'évolution journalière des contributions trafic et du fond atmosphérique (fond + import) à la concentration de PM_{10} mesurée sur le site trafic du boulevard périphérique. La contribution du fond atmosphérique présente une forte variabilité : elle peut être très élevée (parfois supérieure à $50 \mu\text{g}/\text{m}^3$) ou très faible (autour de $5 \mu\text{g}/\text{m}^3$). Les contributions de ce fond atmosphérique ne sont jamais inférieures à $5 \mu\text{g}/\text{m}^3$ pendant la campagne. Le niveau de fond atmosphérique est responsable à lui seul de 21 dépassements (au dessus de $50 \mu\text{g}/\text{m}^3$) pendant la campagne, mais représente aussi 20 % de l'année la moitié des concentrations responsables du dépassement du seuil de $50 \mu\text{g}/\text{m}^3$.

La contribution du trafic local présente une variabilité légèrement plus faible. Elle peut être quasi nulle, mais n'excède jamais $50 \mu\text{g}/\text{m}^3$ et dépasse rarement $25 \mu\text{g}/\text{m}^3$ (4 % du temps). Excepté lors de l'épisode du 26 et 27 janvier 2010 pendant lequel la contribution du trafic local aux niveaux de PM_{10} a atteint $49 \mu\text{g}/\text{m}^3$, la contribution trafic ne connaît pas de pics très intenses pouvant déclencher à eux seuls des dépassements. C'est néanmoins cette contribution permanente du trafic local s'ajoutant à celle du fond qui explique le passage de 21 jours de dépassement en fond à 155 à proximité du trafic.

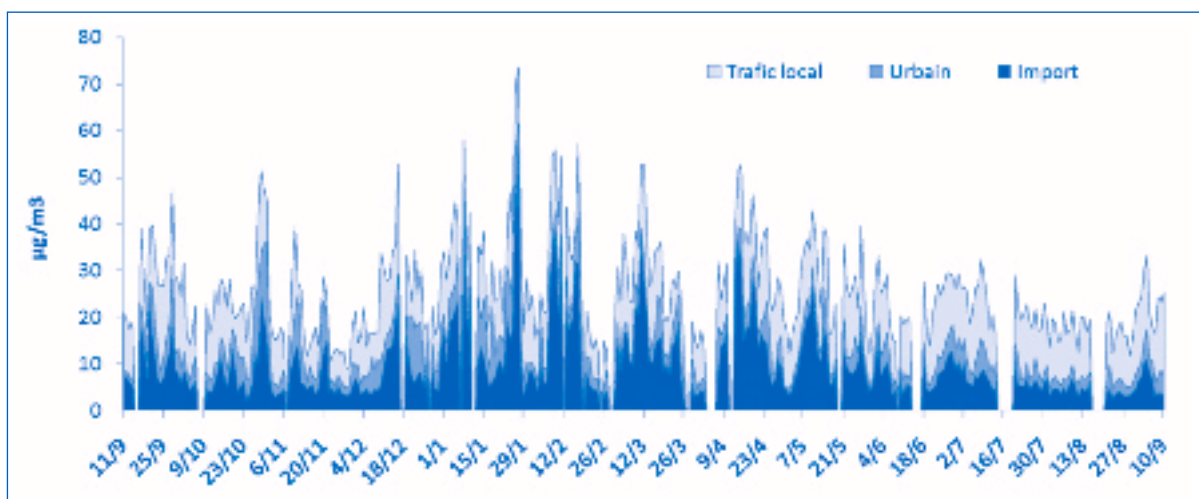


Figure 7.

Évolution journalière des différentes contributions géographiques aux concentrations de $PM_{2.5}$ mesurées sur le site trafic (boulevard périphérique Porte d'Auteuil) du 11/09/2009 au 10/09/2010.

Daily evolution of $PM_{2.5}$ geographical contribution at the traffic site, from 2009.09.11 to 2010.09.10.

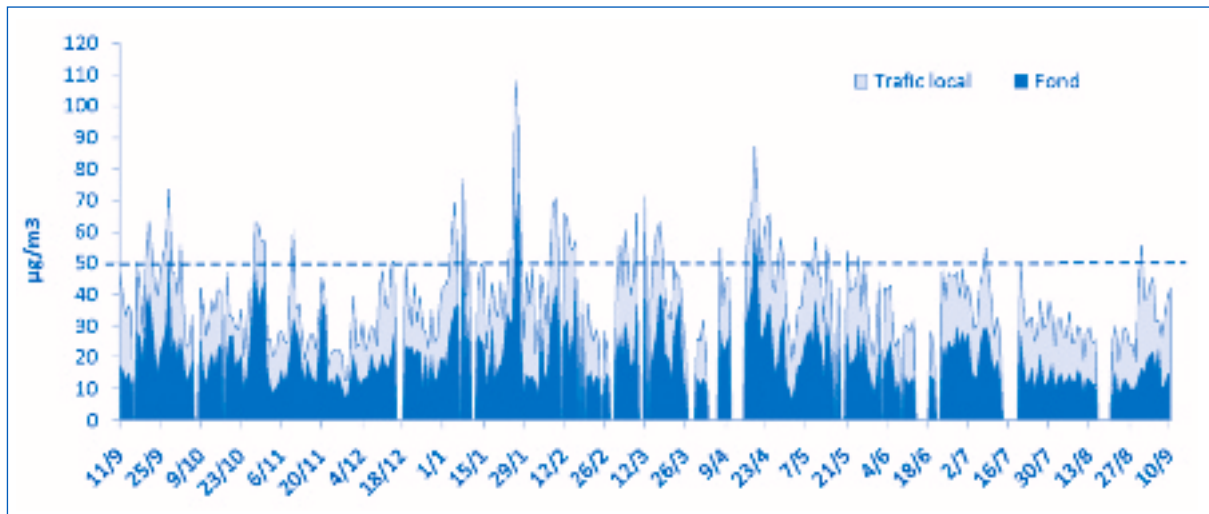


Figure 8.

Évolution journalière des contributions géographiques aux concentrations de PM_{10} mesurées sur le site trafic boulevard périphérique Porte d'Auteuil du 11/09/2009 au 10/09/2010. La ligne pointillée représente le seuil journalier à ne pas dépasser ($50 \mu\text{g}/\text{m}^3$) plus de 35 jours par an.

Daily evolution of PM_{10} geographical contribution on the traffic site, from 2009.09.11 to 2010.09.10. The dotted line represents the PM_{10} limit value ($50 \mu\text{g}/\text{m}^3$) not to overpass more than 35 days a year.

Origine et sources des $PM_{2.5}$ sur le site trafic

En moyenne annuelle, l'origine géographique des concentrations de particules $PM_{2.5}$ mesurées sur le site trafic du boulevard périphérique Porte d'Auteuil est la suivante (Figure 9) :

- Environ 60 % de la concentration annuelle des $PM_{2.5}$ mesurées sur le site du boulevard périphérique Porte d'Auteuil est francilienne : près de 40 % est attribuable à l'impact direct du trafic à ce niveau du boulevard périphérique et près de 20 %

provient de la pollution générale de l'agglomération parisienne (le fond urbain). C'est sur ces deux parts que des actions locales peuvent être proposées pour réduire les concentrations de $PM_{2.5}$ en site de proximité au trafic.

- 40 % des niveaux de $PM_{2.5}$ mesurés sur le site trafic du boulevard périphérique Porte d'Auteuil provient de l'import, c'est-à-dire de particules transportées sur l'agglomération parisienne. Seules des actions nationales et européennes peuvent être envisagées pour réduire cette part.

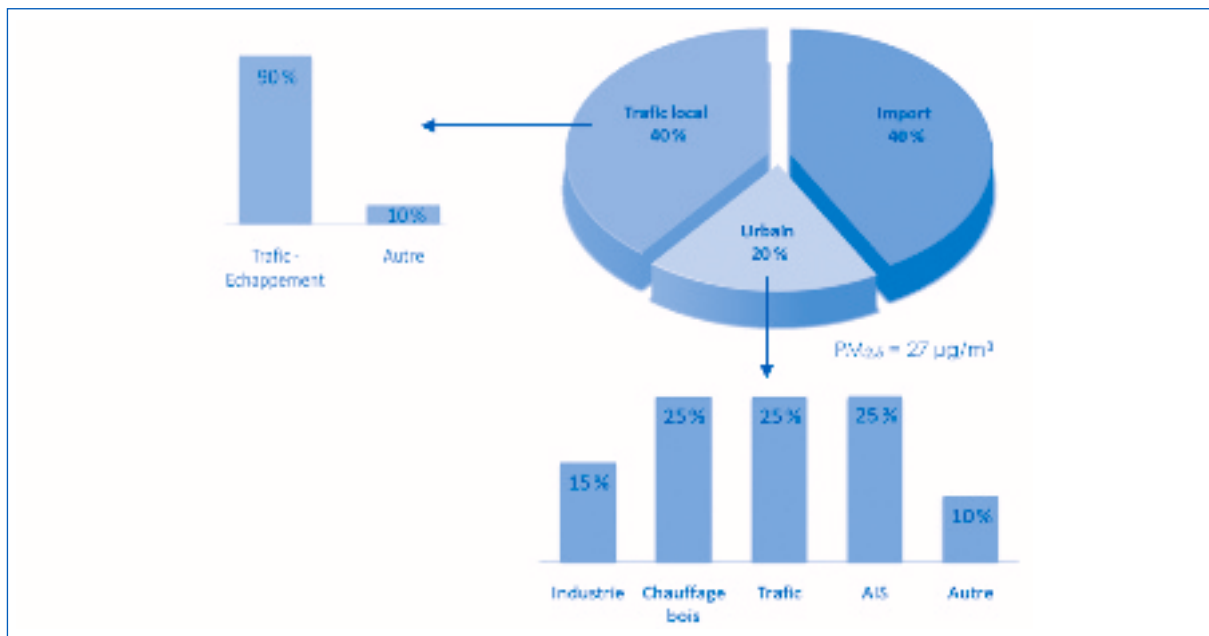


Figure 9.

Sources et origines des particules fines $PM_{2.5}$ mesurées sur le site trafic du périphérique (du 11/09/09 au 10/09/10).

Geographical origin and sources of $PM_{2.5}$ measured on the traffic site from 09.09.11 to 10.09.10.

Ces résultats sont dépendants du site trafic étudié et peuvent varier ostensiblement avec la fréquentation et la typologie de l'axe routier. Deux semaines de campagne sur le site trafic du boulevard Haussmann ont montré que 50 % de la concentration de $PM_{2.5}$ mesurée sur ce site est d'origine francilienne, avec une responsabilité directe de l'axe routier de près de 30 % et une responsabilité du fond urbain de l'ordre de 20 %. Ces résultats montrent que les sources géographiques de $PM_{2.5}$ et leur importance relative sont relativement indépendantes du site trafic étudié.

Sur la base de ces résultats expérimentaux et des inventaires d'émission disponible sur l'Île de France, le trafic routier, et en particulier l'échappement, est la source majeure de $PM_{2.5}$. Il représente presque 50 % de la contribution d'origine francilienne. Quel que soit le site considéré, **les véhicules diesel sont les principaux émetteurs de $PM_{2.5}$. Les véhicules diesel (les véhicules particuliers mais aussi les véhicules utilitaires et les poids lourds) sont en effet responsables d'environ 90 % des $PM_{2.5}$ émises par le trafic routier francilien [9].**

Les particules fines issues du fond urbain sont principalement produites par trois sources principales que sont le trafic, le chauffage au bois et les composés gazeux inorganiques à l'origine des AIS. Ainsi, le chauffage au bois et le trafic ont des contributions au fond urbain de $PM_{2.5}$ quasi identique. Ce résultat montre ainsi que le chauffage au bois est une source très significative de $PM_{2.5}$ produites dans l'agglomération parisienne. Alors que le bois ne représente que 5 % des consommations d'énergie du secteur résidentiel, il est responsable de 84 % des émissions de $PM_{2.5}$ de ce secteur. En comparaison, le gaz naturel atteint presque 80 % de la consommation en énergie finale et émet moins de 3 % des $PM_{2.5}$ du chauffage résidentiel. Par conséquent, en hiver, on estime que le chauffage au bois est à l'origine de près de 30 % des $PM_{2.5}$ produites par le fond urbain [9].

Les composés inorganiques secondaires représentent également une part importante des $PM_{2.5}$ produites dans l'agglomération parisienne. Les précurseurs gazeux sont principalement émis par l'agriculture, le trafic et l'industrie. Néanmoins, l'impact de ces sources sur la part inorganique secondaire des $PM_{2.5}$ ne peut être évalué quantitativement dans cette étude car les processus de formation de ces composés sont non linéaires. Une étude complémentaire, (programme FRANCIPOL financé par PRIMEQUAL), va permettre d'estimer la responsabilité de ces différentes sources à la formation des particules secondaires.

Conclusion

Compte tenu des différentes origines géographiques des particules et de la diversité de leurs sources quantifiées dans cette étude, **améliorer la qualité de l'air sur l'ensemble de l'agglomération parisienne**

et respecter les réglementations ne peuvent être obtenus qu'au prix d'actions importantes et complémentaires :

- À différentes **échelles géographiques** : avec des actions locales spécifiques sur le trafic pour diminuer localement sa contribution aux niveaux de pollution en PM, et ainsi diminuer l'exposition à cette source en particulier pour les riverains qui sont nombreux le long des grands axes en Ile-de-France. Des actions complémentaires à l'échelle de l'agglomération parisienne (comme le Plan de Protection de l'Atmosphère ou les Zones d'Actions Prioritaires pour l'Air) visent à agir sur les particules fines produites localement. Et des mesures nationales et européennes (telles que les normes d'émission, les directives ou les normes Euro...) doivent permettre d'abaisser la part des particules importées en Ile-de-France tout en améliorant également la part de particules produites localement.
- **par rapport aux activités ciblées** : la part du trafic diesel sur les contributions en PM en site trafic est relativement importante, tous types de véhicules confondus, et pas uniquement celle des véhicules particuliers. Mais d'autres sources de PM, comme le chauffage au bois, ont été mises en évidence pour leur contribution non négligeable en hiver. Sa prise en compte est d'autant plus importante que l'utilisation de ce mode de chauffage est relativement minoritaire en Ile-de-France, contrairement à son impact. En outre, sa part pourrait s'accroître avec l'effet de mesures prises en faveur de la lutte contre le changement climatique ne prenant pas en compte la pollution atmosphérique.
- **en termes de polluants visés** : cette étude met en avant la contribution des particules fines $PM_{2.5}$ aux niveaux de particules PM_{10} et donc l'intérêt de cibler des mesures de réduction des émissions dans cette catégorie de particules, elles aussi réglementées, et qui permettrait de faire baisser aussi le niveau des PM_{10} .

L'analyse de la composition chimique de particules le long du trafic a de plus mis en évidence que des actions sur le trafic permettraient probablement d'apporter un bénéfice sanitaire complémentaire en diminuant la teneur de certains composés. Ce serait le cas du carbone élémentaire, émis à 80 % par le trafic et qui serait en partie à l'origine de la toxicité des $PM_{2.5}$.

En revanche, on ne peut agir directement sur les particules secondaires, provenant de réactions chimiques dans l'atmosphère à partir de précurseurs émis principalement par le trafic, l'agriculture et l'industrie. Or leur part dans les niveaux de particules mesurés est significative.

Vis-à-vis de la fréquence de mise en place des actions de réduction, la stabilité de la contribution du trafic au cours de l'année, associée à la récurrence un jour sur deux des dépassements de la valeur limite, plaide pour **des mesures de réduction chroniques et à large échelle** plus que pour des mesures ponctuelles en cas d'épisode de pollution. Des mesures de réductions permanentes présenteraient de plus l'avantage de faire baisser le nombre et l'intensité des épisodes de pollution. En cas de pics de pollution,

notamment en absence de vent, des actions ponctuelles sur plusieurs sources peuvent permettre de diminuer l'ampleur de l'épisode en agissant sur la contribution de l'agglomération parisienne et du trafic. Ces mesures ponctuelles, quelques jours par an, présentent donc un intérêt pour informer les personnes sensibles mais elles ne suffisent pas à améliorer la qualité de l'air respiré au quotidien.

La très importante base de données de la composition chimique des particules construite sur cette étude permettra d'améliorer les outils de modélisation et de prévision des particules et pourra être utilisée par des équipes de recherche pour mieux comprendre le comportement des particules dans l'atmosphère et leur effet sanitaire. Les phénomènes de remise en suspension et d'abrasion (qui sont une source importante de particules en site trafic sur laquelle une action pourrait potentiellement être envisagée) ainsi que la formation d'aérosols secondaires, restent difficiles à évaluer et à prédire. Ils nécessitent des études complémentaires.

Remerciements

Ce projet a été réalisé avec le soutien financier de l'État, de la Région Ile-de-France et de la Mairie de

Paris. Ce projet a été cofinancé, pour la partie chimique analytique, par le CNRS, le CEA et l'UVSQ ; et par l'ADEME et le CEA pour le cofinancement de la thèse de M. Bressi sur ce projet. J. Sciare tient également à remercier J.-E. Petit, L. Ghiglia, et Dominique Baumier pour leur contribution au travail d'analyse chimique. ECPL (Heraklion, Grèce) et plus particulièrement N. Mihalopoulos et C. Theodosi sont remerciés pour les analyses de métaux réalisées sur ce projet et pour leur aide dans l'interprétation scientifique des résultats de chimie des aérosols. Le comité scientifique composé de M. Lutz, du sénat de Berlin (Allemagne), de G. Fuller, du King's College de Londres (Angleterre), de X. Querol, de l'institut d'évaluation environnementale et de recherche sur l'eau à Barcelone (Espagne), de C. Seigneur du Centre d'enseignement et de Recherche en Environnement Atmosphérique de l'École des Ponts (France), de M. Beekmann du Laboratoire Inter-Universitaire des Systèmes Atmosphériques (France), d'O. Favez de l'INERIS (France) et de G. Aimoz de l'ADEME (France) est également remercié pour ses conseils et le suivi de ce projet.

Références

- [1] Ghersi V, Rosso A, Moukhtar S *et al.* A comprehensive source apportionment study of fine aerosols (PM_{2.5}) in the region of Paris, France, *Pollution Atmosphérique*, 63-72, 2010.
- [2] Lenschow P, Abraham HJ, Kutzner K *et al.* Some ideas about the sources of PM₁₀, *Atmospheric Environment* 2001 ; 35 (1) : S23-S33.
- [3] APHEKOM – Improving knowledge and communication for decision making on air pollution and health in Europe, 2011
- [4] Sciare J, Oikonomou K, Cachier H, *et al.* Aerosol mass closure and reconstruction of the light scattering coefficient over the Eastern Mediterranean Sea during the MINOS campaign. *Atmospheric Chemistry and Physics* 2005 ; 5 : 2253–65.
- [5] Bressi M, Sciare J, Ghersi V *et al.* A one-year comprehensive chemical characterization of fine aerosols (PM_{2.5}) at urban, suburban and rural background sites in the region of Paris (France). À paraître.
- [6] Turpin BJ, Lim HJ. Species contribution to PM_{2.5} mass concentrations: revisiting common assumptions for estimating organic mass. *Aerosol Science and Technology* 2001 ; 35 : 602-10.
- [7] Putaud JP, Raes F, Van Dingenen R *et al.* A European aerosol phenomenology -2: chemical characteristics of particulate matter at kerbside, urban, rural and background sites in Europe. *Atmos. Environ.* 2004 ; 38 (16) : 2579-95.
- [8] Airparif (2011). La qualité de l'air en Ile-de-France en 2010.
- [9] Airparif (2010). Inventaire régional des émissions en Ile-de-France. Année de référence 2007.

