

Particul'Air : étude inter-régionale de la pollution particulaire en zone rurale

Particul'Air: interregional study of particulate pollution in rural environments

C. PIOT^(1,2), J.L. BESOMBES⁽¹⁾, J.L. JAFFREZO⁽²⁾, J. COZIC⁽²⁾, C. LEGRAND⁽³⁾, D. CHAPUIS⁽⁴⁾, M. CORRON⁽⁵⁾, X. VILLETARD⁽⁶⁾, S. PELLIER⁽⁷⁾, P. COLIN⁽⁸⁾, R. FEUILLADE⁽⁹⁾, A. GAZEAU⁽¹⁰⁾ et A. HULIN⁽¹⁰⁾

Mots-clés

Zone rurale, étude de grande ampleur, composition chimique des aérosols, quantification des sources.

Keywords

Rural environments, large scale study, aerosols chemical composition, source apportionment.

Introduction

La France est le premier pays consommateur de bois-énergie en Europe, essentiellement grâce au chauffage domestique qui représente une consommation annuelle de 7,3 millions de TEP. La filière bois est aujourd'hui la principale source de biomasse consommée. Concernant la qualité de l'air, la combustion de biomasse à des fins de chauffage représente, à l'échelle nationale et selon les évaluations actuelles, 21 % des émissions totales de particules PM₁₀, 34 % des PM_{2,5} et 66 % des Hydrocarbures Aromatiques Polycycliques (HAP) (source CITEPA, inventaire national 2009). Or la loi-programme issue du Grenelle prévoit un volet « air » permettant de s'assurer du respect des objectifs liés à la qualité de l'air ambiant. De plus, il est important de noter que les problèmes de qualité de l'air sont souvent liés à la proximité géographique des sources d'émissions.

Afin d'atteindre de façon cohérente les objectifs de qualité de l'air et développement du bois-énergie, il apparaît donc nécessaire de pouvoir quantifier localement les contributions des différentes sources, dont la combustion de biomasse, sur les niveaux de particu-

les et de HAP réellement observés. La quantification de l'influence des sources d'émissions de particules et de HAP sur la qualité de l'air peut être abordée par une description de la composition des particules et par la recherche de traceurs de sources ou de signatures chimiques caractéristiques. Elle s'appuie donc également sur la confrontation de la caractérisation chimique des particules obtenue en atmosphère ambiante avec celles obtenues à l'émission des principales sources que ce soit *via* des données de la littérature ou *via* la réalisation d'études spécifiques.

Les études récentes réalisées en Europe identifient généralement quatre sources majeures pour les PM₁₀ et PM_{2,5} : les transports routiers, la remise en suspension des particules du sol, les différentes sources de combustion, et les processus de formation des aérosols secondaires. À ces sources principales peuvent s'ajouter d'autres processus d'émission selon les typologies des sites de mesure (embruns marins, émissions agricoles...). Ces différentes contributions peuvent alors varier fortement selon les sites étudiés.

Depuis quelques années, un certain nombre de programmes de recherche a été mené en France pour considérer la chimie des PM avec la volonté d'en

(1) Université de Savoie, LCME, campus scientifique, 73376 Le Bourget-du-Lac cedex, France.

(2) UJF-Grenoble 1/CNRS, LGGE UMR 5183, 54 rue Molière, 38402 Saint-Martin-d'Hères, France.

(3) Air C.O.M, Immeuble Pentacle, avenue de Tsukuba, 14209 Hérouville-St-Clair cedex, France.

(4) Air-APS, Savoie Technolac – BP 339, 73377 Le Bourget-du-Lac cedex, France.

(5) Air Breizh, 3 rue du Bosphore, 35200 Rennes, France.

(6) ATMO Franche-Comté, 15 rue Mégevand, 25000 Besançon, France.

(7) ATMO Auvergne, 25 rue des Ribes, 63170 Aubière, France.

(8) LIG'AIR, 3 rue du Carbone, 45100 Orléans, France.

(9) LIMAIR, 4 rue Atlantis – Parc Ester Technopole, BP 6845, 87068 Limoges cedex, France.

(10) ATMO Poitou-Charentes, 12 rue Fresnel, ZI de Périgny/La Rochelle, 17184 Périgny Cedex, France.

déduire les origines. La majorité de ces programmes a pris place dans des zones urbaines (ESCOMPTE – Marseille, MEGAPOLI – Paris, FORMES – Grenoble et Marseille...). Certains ont été conduits dans des zones plus spécifiques (sites d'altitude *via* le programme d'observatoires PAES, vallées alpines (POVA)...). Bien que quelques-uns de ces programmes aient comporté des mesures sur sites ruraux, notre connaissance à la fois des caractéristiques des PM dans ce type de milieu et de l'impact sur les teneurs atmosphériques des sources d'émission, et particulièrement des sources diffuses de combustion de biomasse, reste encore très faible. La littérature [par exemple Puxbaum *et al.*, 2007 ; Putaud *et al.*, 2004 et 2010] donne cependant des indications intéressantes. Ainsi, il apparaît qu'en zones rurales, les particules sont issues de plusieurs sources diffuses appartenant à l'ensemble des sources déjà mentionnées. Une spécificité de ce type de milieu est aussi que la part des particules liées à une combustion est fortement représentée en période hivernale par le chauffage des logements et en particulier par la combustion du bois.

Le programme Particul'Air a ainsi été proposé afin d'améliorer la connaissance des niveaux de concentrations et des sources de particules et de HAP dans ces zones rurales, encore très peu investiguées en France. Les objectifs plus spécifiques étaient :

- d'une part, de caractériser la pollution particulaire (niveaux, composition chimique, évolution annuelle, particularités régionales...);
- d'autre part, d'étudier l'influence dans ce type de milieux des différentes sources de particules ; un intérêt particulier est porté à ce titre à l'étude des traceurs du chauffage au bois, source potentiellement importante de particules et de HAP.

Méthodologie

La méthodologie proposée présente l'intérêt de coordonner, pour la première fois, des travaux d'observation et de caractérisation de la pollution particulaire en milieu rural dans huit régions en utilisant des protocoles et des calendriers identiques. Cette coordination, assurée par l'ADEME, a été permise par le travail commun sur l'ensemble des étapes du projet de huit Associations Agréées pour la Surveillance de la Qualité de l'Air (AASQA) : Airbreizh, Airaps, Aircom, Atmo Auvergne, Atmo Franche-Comté, Atmo Poitou-Charentes, Lig'Air, Limair ; et de deux laboratoires de recherche : laboratoire de Chimie Moléculaire et Environnement (université de Savoie) et laboratoire de Glaciologie et Géophysique de l'Environnement (université Joseph Fourier-Grenoble, CNRS).

Cette large collaboration inter-AASQA a permis de prendre en compte un nombre important de sites de mesure, assurant à travers le nombre des campagnes et la diversité des sites la représentativité de l'étude. Les sites de mesures ont été choisis selon des critères communs sur neuf communes rurales allant de l'Ouest à l'Est de la France (Figure 1). Ils ont fait l'objet de mesures horaires de particules (PM₁₀ et PM_{2,5}) et de dix campagnes de sept prélèvements journaliers des PM₁₀ sur filtres menées simultanément sur les neuf sites de mars 2009 à février 2010. La diversité des analyses réalisées permet une large caractérisation chimique des particules : de la fraction globale des PM₁₀ à des spéciations fines des fractions métalliques et organiques. Des travaux complémentaires de caractérisation des sites de prélèvement ont également été menés, avec notamment les réalisations de l'inventaire d'émissions à l'échelle communale et

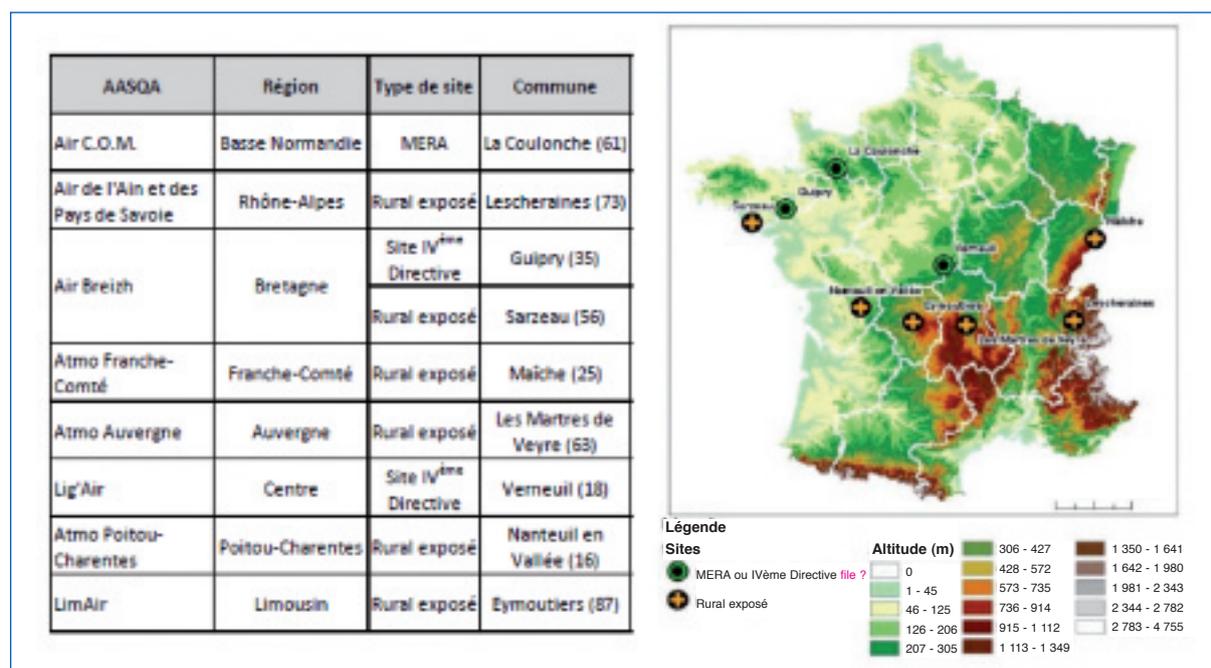


Figure 1.

Présentation et localisation des sites de prélèvements avec fond relief (bd alti, ign).
Presentation and location of sampling sites (bd alti, ign).

d'une enquête sur les pratiques de chauffage résidentiel sur chacune des communes de l'étude.

La base de données ainsi acquise présente une ampleur extrêmement importante, portant sur l'analyse de plus de 900 filtres ; elle est à ce jour l'une des bases européennes de ce type les plus conséquentes.

Inventaires des émissions locales

À partir des résultats de l'enquête et de statistiques locales, un inventaire d'émissions de particules, spécifique à l'étude, a été élaboré sur les neuf communes concernées. L'inventaire d'émission a montré l'importance sur ces communes des émissions du secteur agricole pour les particules les plus grosses (>10 µm), et celui du secteur résidentiel rejetant en moyenne sur l'ensemble des sites 55 % des PM_{2,5} principalement en raison de la combustion biomasse pour le chauffage. Sur ces territoires, le secteur des transports routiers ne représente quant à lui qu'une faible proportion des émissions (10 % en moyenne). Enfin, l'industrie, partiellement identifiée sur les communes,

peut contribuer sur certains sites aux émissions de particules de manière non négligeable.

D'autre part, les enquêtes menées au niveau local ont permis de mieux préciser l'usage du bois de chauffage dans le secteur résidentiel qui peut représenter jusqu'à 50 % des foyers sondés pour le chauffage principal, jusqu'à 24 % pour le chauffage d'appoint et jusqu'à 14 % pour le chauffage d'agrément. Ceci a conduit à une réévaluation à la hausse des quantités de bois consommées mal évaluées par les méthodes classiques généralement mises en œuvre. Enfin, l'étude a montré qu'une très faible proportion d'appareils performants était utilisée (seulement 11 % d'appareils labellisés Flamme Verte) sur ces communes.

Composition chimique et polluants réglementés

Les caractérisations chimiques des PM₁₀ montrent que la matière organique est en moyenne quasi systématiquement la composante majeure (figure 2)

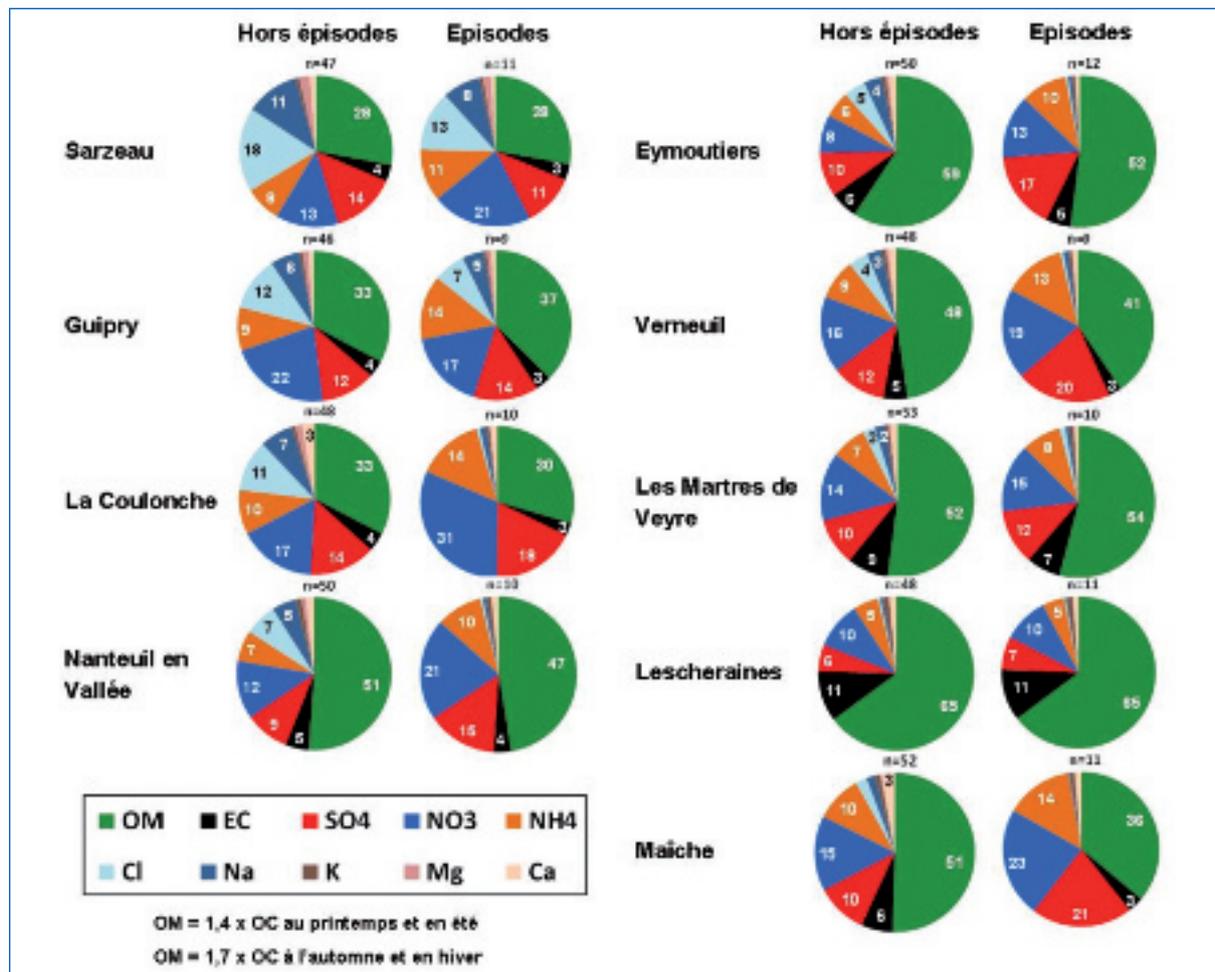


Figure 2.

Composition chimique globale moyenne de la masse de PM₁₀ identifiée (en %) en périodes d'épisodes de pollution particulaire et hors épisodes.

Comparison of global chemical composition of PM₁₀ for the identified mass (%) for PM₁₀ episodes and out of episodes.

et sa part augmente assez nettement en hiver, surtout sur les sites « influencés ». Par contre, une très large augmentation de la part des ions nitrate, ammonium, et sulfate est observée systématiquement pendant les épisodes de fortes concentrations en PM_{10} . Seul le site de Lescheraines se distingue, avec une très nette augmentation de la fraction de matière organique lors de tels épisodes.

De plus, de forts couplages entre composition chimique et paramètres météorologiques ont été mis en évidence, avec un large impact de la température sur les concentrations en ions nitrate, ammonium (et sulfate dans une moindre mesure) ou sur les concentrations en lévoglucosan, un traceur de l'impact de la combustion de biomasse.

Le nombre et la répartition géographique des sites permettent de faire apparaître également des phénomènes de grande échelle. Ainsi sont observés des épisodes très corrélés entre les sites pour les nitrates, sulfate et ammonium, l'augmentation des concentrations de EC et OC d'ouest en est ou *a contrario*, la diminution spectaculaire des concentrations des espèces marines selon un transect ouest-est.

Bien que la comparaison stricte à la réglementation européenne ne soit pas possible compte tenu d'une représentativité temporelle des mesures non conforme à ce qu'imposent les directives européennes, les mesures des polluants réglementés (PM_{10} , $PM_{2.5}$, Benzo(a)Pyrène et métaux lourds) indiquent que les concentrations ne sont généralement pas problématiques au regard des normes. Le site de Lescheraines, localisé en fond de vallée en région Rhône-Alpes, fait toutefois exception à ce constat, tant pour les particules que pour le Benzo(a)pyrène (BaP). Sur ce site, l'étude des profils verticaux de température issus de Arome (Application de la Recherche à l'Opérationnelle à Mésoéchelle, modèle prévisionniste de Météo-France sur une maille de 2,5 km) met bien en évidence l'influence possible des inversions de température dans le cas d'épisodes de fortes concentrations en particules et BaP. Les résultats montrent que :

- la mesure des particules et du BaP indique qu'il n'y a pas de problématique de pollution d'ampleur nationale en zone rurale liée à l'utilisation du bois comme source d'énergie, puisque pratiquement tous les sites respectent les valeurs réglementaires définies, à l'exception de Lescheraines (Rhône-Alpes) ;
- il est en revanche improbable que ce dernier site respecte la valeur cible pour le BaP, tant les niveaux de concentrations peuvent être élevés. La caractérisation chimique des particules sur Lescheraines indique en l'état que la combustion du bois est la principale source des émissions mais n'a pas permis de définir la part de responsabilité entre le secteur industriel et domestique (notamment le chauffage au bois et le brûlage de déchets par l'artisanat et les populations locales).

Ce cas de Lescheraines met en exergue la nécessité de mieux connaître la situation des « petits émet-

teurs » industriels, nombreux et disséminés sur le territoire, vis-à-vis du contexte réglementaire des émissions ou en vue d'une action des pouvoirs publics plus ciblée. À ce titre, la représentativité de ce site par rapport aux sites de fond de vallée est une question qui reste ouverte.

Quantification des sources

Des outils ont été mis en œuvre pour tenter de déterminer les contributions des sources primaires à la constitution des PM_{10} à travers des approches de type « CARA » puis CMB (*Chemical Mass Balance*) (figure 3). Ils ont permis de montrer que la part des sels marins représente de 1 à 16 % de la masse des PM_{10} , avec une forte décroissance d'ouest en est. Les estimations de la part crustale sont différentes selon la méthodologie employée. Elle est en moyenne de 4 % de la masse des PM_{10} avec la méthode basée sur les concentrations en calcium soluble et de 15 % avec celle basée sur les métaux. Pour tous les sites, l'influence de la combustion de biomasse est très supérieure à celle des sources véhiculaires dans l'apport de matière organique. En revanche, la source véhiculaire est très dominante pour la contribution en EC. De plus, les approches qualitatives de type ratio-ratio semblent montrer que ces deux types de sources expliquent pour une grande part les concentrations en HAP sur ces sites ruraux.

L'approche CMB mise en œuvre à partir des méthodologies développées dans le programme FORMES [El Haddad *et al.*, 2011 ; Favez *et al.*, 2010] a permis d'élargir et d'affiner le panel des sources étudiées. Cette approche a pu être appliquée sur les campagnes hivernales pour lesquelles une caractérisation chimique fine de la matière organique a été conduite. Les contributions de ces sources sont variables suivant les campagnes et les sites (figure 3), mais de manière générale les sources primaires anthropiques telles que la combustion de biomasse et les émissions véhiculaires peuvent contribuer assez fortement aux niveaux moyens des concentrations en PM_{10} . La part secondaire de l'aérosol apparaît également particulièrement importante sur la majorité des sites étudiés, même en période hivernale, et peut représenter jusqu'à plus de 50 % de la masse des PM.

Finalement, une partie du travail a consisté à étudier plus en détails une quinzaine d'épisodes spécifiques (Rapport final du programme ADEME-Particul'Air, 2011), choisis généralement sur la base des valeurs de PM_{10} . Beaucoup de ces épisodes se révèlent être associés à des origines marines ou encore caractérisés par de fortes concentrations en espèces ioniques secondaires (nitrate, sulfate, ammonium). D'autres sont liés à des augmentations de la part de matière organique, dont la plupart présente des caractéristiques typiques liées à des processus de vieillissement. Cependant, l'étude de la

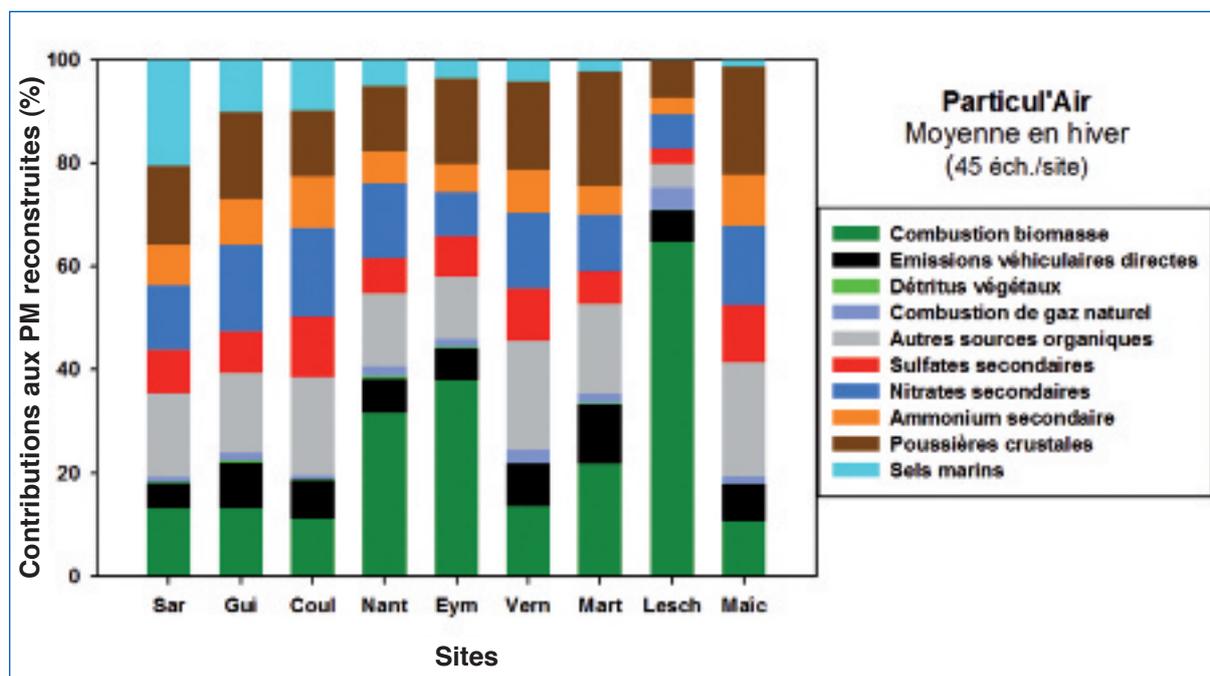


Figure 3.
Contributions moyennes des sources aux PM_{10} reconstituées par CMB par sites (en %).
Average contributions of sources to PM_{10} estimated by CMB for each site (%).

matière organique a permis de mettre en évidence l'influence de phénomènes locaux sur l'avènement de certains de ces épisodes.

Perspectives

Les résultats obtenus ont vocation *in fine* à guider au mieux les pouvoirs publics en ce qui concerne les types de zones rurales pour lesquelles des actions sur les émissions de particules et HAP sont nécessaires et, dans ce cas, sur les sources à l'origine des niveaux de polluants observés.

L'implication forte des différents partenaires a permis d'atteindre les objectifs du programme Particul'Air et ceci dans le calendrier initialement fixé. La richesse des résultats obtenus contribue très fortement à une meilleure connaissance à la fois des niveaux et de la composition chimique des PM_{10} et des sources de particules en zones rurales. Elle a de plus permis de mettre en lumière les voies de développement nécessaires pour améliorer encore notre

expertise dans ces domaines. Dans un contexte d'importantes évolutions réglementaires et scientifiques, ce programme a bénéficié de la forte complémentarité entre, d'une part, les acteurs opérationnels et locaux que constituent les AASQA et, d'autre part, les laboratoires de recherche engagés dans cette thématique.

Parmi les développements nécessaires, on note en particulier le besoin de mieux comprendre l'origine de la fraction secondaire des particules, non prise en compte dans les inventaires d'émission de particules primaires. Ce besoin est renforcé pour la matière organique, afin d'identifier des leviers d'actions pertinents et efficaces.

De nombreuses autres pistes sont proposées pour une valorisation plus complète de ce travail. Ces pistes incluent des actions en relation avec les inventaires d'émissions, la valorisation de cette base de données en liaison avec des travaux de modélisation déterministe, et à la valorisation scientifique de ce travail, qui semble indispensable dans le contexte européen.

Références

- El Haddad I, Marchand N, Wortham H *et al.* Primary sources of $PM_{2.5}$ organic aerosol in an industrial Mediterranean city, Marseille. *Atmos. Chem. and Phys.* 2011 ; 11 : 2039-58.
- Favez O, El Haddad I, Christine P *et al.* Inter-comparison of source apportionment models for the estimation of wood burning aerosols during wintertime in an Alpine city (Grenoble, France). *Atmos. Chem. and Phys.* 2010 ; 10 : 5295-5314.

- Putaud JP, Van Dingenen R, Dell'Acqua A *et al.* Size-segregated aerosol mass closure and chemical composition in Monte Cimone (I) during MINATROC. *Atmos. Chem. and Phys.* 2004 ; 4 : 889-902.
- Putaud JP, Van Dingenen R, Alastuey A *et al.* A European aerosol phenomenology – 3: Physical and chemical characteristics of particulate matter from 60 rural, urban, and kerbside sites across Europe. *Atmos. Environ.* 2010 ; 44 : 1308-20.
- Puxbaum H, Caseiro A, Sánchez-Ochoa A *et al.* Levoglucosan levels at background sites in Europe for assessing the impact of biomass combustion on the European aerosol background. *J. Geophys. Res.* 2007 ; 112 : D23S05.

Remerciements

Cette étude a été financée en partie par l'ADEME. Les auteurs remercient chaleureusement l'ensemble des personnels des AASQA et des laboratoires ayant participé à cette étude.

