



## Etat des lieux de la qualité de l'air et impact du brulage du bois sur la commune de Lanslebourg Mont-Cenis



Photo : François Claquin



L'Air de l'Ain et des Pays de Savoie

Savoie Technolac - BP 339 - 73377 LE BOURGET DU LAC Cedex

Tél. 04.79.69.05.43 - Fax. 04.79.62.64.59 -

e-mail: [air-aps@atmo-rhonealpes.org](mailto:air-aps@atmo-rhonealpes.org)



2007 - 2013

Rhône-Alpes Région



Fonds Européen de développement régional



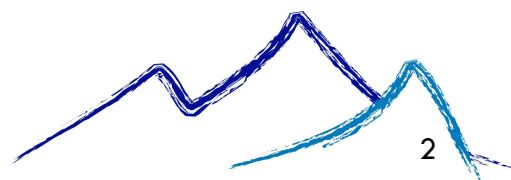
Mairie  
Lanslebourg  
Mont Cenis





# Sommaire

Sommaire	2
I – Le contexte	3
II – L'étude	3
A – le site de mesures	3
B – Polluants mesurés : méthodologie et généralité	4
C – période et durée d'échantillonnage	6
III – Résultats et analyses des composés réglementés	6
A- La réglementation	6
B – Météorologie	7
C – L'inventaire des émissions	8
D – le dioxyde de soufre (SO <sub>2</sub> )	9
E – le dioxyde d'azote (NO <sub>2</sub> )	10
F – l'ozone (O <sub>3</sub> )	12
G – les poussières en suspension (PM <sub>10</sub> et PM <sub>2.5</sub> )	13
H – le Benzo(a)pyrène	15
I – Analyse des conditions d'accumulations des PM <sub>10</sub> et du B(a)P	16
IV – Résultats et analyses des composés atmosphériques	19
A- Bilan massique et chimie des PM	19
1. Composition chimique moyenne des PM <sub>10</sub>	19
2. Traceurs et indicateurs de combustions présents dans l'aérosol	19
B- Estimations de la contribution des sources d'émissions aux PM	22
1. Sources d'émission en PM : approche mono-traceur	22
2. Sources d'émission en PM : approche multi-traceurs (MM-CMB)	23
V Conclusions	24
VI Annexe 1 : Rapport sur l'analyse de composés particuliers atmosphériques : Etude Air-APS à Lanslebourg (LCME-LGGE)	25







## B – Polluants mesurés : méthodologie et généralité

Afin de disposer de tous les éléments permettant de caractériser l'impact sanitaire de la qualité de l'air, les polluants suivant ont été mesurés :

### - Dioxyde d'azote

Le NO<sub>2</sub> provient surtout des véhicules (environ 75%) et des installations de combustion : il est issu de la combustion incomplète entre le diazote et l'oxygène de l'air. Le pot catalytique permet une diminution des émissions de chaque véhicule.

Le NO<sub>2</sub> pénètrent dans les plus fines ramifications des voies respiratoires. Il peut, dès 200 µg/m<sup>3</sup>, entraîner une altération de la fonction respiratoire et une hyperréactivité bronchique chez l'asthmatique et chez les enfants, augmenter la sensibilité des bronches aux infections microbiennes ainsi que diminuer les défenses immunitaires. Il peut provoquer des irritations.

- Méthode de prélèvement : Prélèvement et analyse automatique
- Méthode d'analyse : Chimiluminescence Norme EN14211 de Mars 2005

### - Dioxyde de soufre

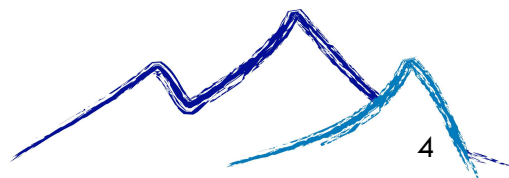
Il provient essentiellement de la combustion de combustibles fossiles contenant du soufre : fioul, charbon car le soufre est une impureté majeure des combustibles. Le SO<sub>2</sub> provient de l'industrie, des transports et des chauffages. La teneur en SO<sub>2</sub> subit des variations saisonnières. Les émissions sont plus nombreuses en hiver en raison du chauffage. Le SO<sub>2</sub> est un gaz irritant. Les émissions du transport routier représentent moins de 5% des émissions nationales mais elles vont évidemment se concentrer à proximité des grands axes de circulation. Le mélange acido-particulaire peut, selon les concentrations des différents polluants, déclencher des effets bronchospastiques chez l'asthmatique, augmenter les symptômes respiratoires aigus chez l'adulte (toux, gêne respiratoire), altérer la fonction respiratoire chez l'enfant (baisse de la capacité respiratoire, excès de toux ou de crise d'asthme).

- Méthode de prélèvement : : Prélèvement et analyse automatique
- Méthode d'analyse : Fluorescence UV - Norme EN14212 de Juillet 2005

### - Poussières en suspension inférieures à 10 µm et à 2.5 µm

Les poussières en suspension proviennent des activités industrielles, des chauffages domestiques, de l'activité agricole et du trafic automobile (particules diesel, usure des pneus et des pièces mécaniques). Les particules les plus grosses sont retenues dans les voies aériennes supérieures. Les plus fines, à des concentrations relativement basses, peuvent, surtout chez l'enfant, irriter les voies respiratoires ou altérer la fonction respiratoire. Certaines particules ont des propriétés mutagènes, tératogènes et cancérogènes : c'est le cas de certains hydrocarbures aromatiques polycycliques. Il n'existe pas de seuil en deçà duquel les particules n'ont pas d'effet sur la santé.

- Méthode de prélèvement : Prélèvement et analyse automatique
- Méthode d'analyse : Pesée des particules par micro-balance à variation de fréquence – Norme EN12341 modifiée par le LCSQA







### - L'ozone

En complément des polluants primaires, les concentrations de l'ozone (O<sub>3</sub>) ont été mesurées. Ce gaz est formé à partir de polluants primaires (oxydes d'azote et composés organiques volatils), qui sont principalement émis par les véhicules. Sous l'action de vents faibles, la masse d'air polluée se déplace à l'extérieur de la ville. Dans le même temps, le soleil transforme les polluants primaires, et par recombinaisons, apparaît l'ozone. Au centre des villes, l'ozone disparaît car il a la particularité d'être détruit en présence de polluants primaires. C'est donc un polluant dit "secondaire" puisqu'il n'est pas directement émis par une source (à contrario des polluants dits primaires). Outre la périphérie des grandes agglomérations, l'ozone se retrouve aussi dans de plus forte proportion lorsque l'altitude s'élève. C'est un oxydant puissant qui peut provoquer des irritations oculaires, des migraines, des toux, et une altération pulmonaire, surtout chez les enfants et les asthmatiques.

- Méthode de prélèvement : Prélèvement et analyse automatique
- Méthode d'analyse : absorption UV - Norme NF X 43-024

En complément, un prélèvement des aérosols a été mis en œuvre. Il s'agit d'un préleveur haut débit - Digital DA80, permettant d'échantillonner un filtre par jour conformément aux exigences de la norme PR EN 15549. Ces prélèvements permettront l'analyse des composés suivants :

### - Hydrocarbures Aromatiques Polycycliques (13 HAP)

Les HAP sont émis en quantités importantes lors de la combustion mal maîtrisée du bois, conditions que l'on rencontre souvent dans le cadre du chauffage individuel des logements. L'étude des quantités totales de HAP ne suffit pas en elle-même à retracer la source émettrice. En revanche, le détail par molécule ou groupe de molécules peut fournir une première indication sur la source d'émissions.

Le Benzo(a)Pyrène (BaP) est l'un des HAP, une attention particulière sera portée à ce composé puisqu'il est le seul HAP réglementé. Il est formé lors de combustions incomplètes de matière organiques puis rejeté dans l'atmosphère où il est présent majoritairement dans la phase particulaire. Ces procédés comprennent notamment la combustion du bois, de certaines industries métallurgiques, du charbon ou des ordures ménagères mais aussi le fonctionnement des moteurs à essence ou des moteurs diesels. Dans une plus faible quantité, le BaP provient de l'usure des pneus et des pièces mécaniques. Le BaP est classé dans le groupe 1 par le CIRC : substance cancérigène pour l'homme.

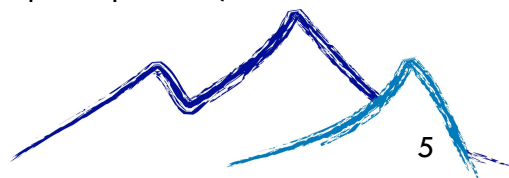
- Méthode de prélèvement : Prélèvement haut débit via un Digital DA80 sur filtre en fibre de Quartz (diamètre 150 mm)
- Méthode d'analyse : HPLC Fluo – Norme PR EN 15549

### - Lévo-glucosan

Le lévo-glucosan est un sucre produit lors de la combustion de la cellulose, il est un traceur univoque de la combustion de biomasse.

### - Le carbone organique (OC) et le carbone élémentaire (EC)

Le rapport OC/EC est considéré comme traceur car chimiquement les particules émises lors de la combustion, de biomasse se caractérisent par une fraction organique importante, avec des taux





d'émission de carbone organique (OC) très supérieurs à ceux des combustibles fossiles

### C – période et durée d'échantillonnage

Afin de réaliser une évaluation qui soit réglementairement valable, celle-ci doit être effectuée sur une durée couvrant 14 % du temps d'une année, au cours de périodes également réparties sur l'année. Afin de répondre à cette exigence, les mesures ont été réalisées en 4 périodes d'au moins 15 jours réparties par saison suivant le plan d'échantillonnage décrit dans le Tableau 1.

	<b>hiver</b>	<b>printemps</b>	<b>été</b>	<b>automne</b>
<b>Période de mesures</b>	Du 07/01/10 au 01/02/10	Du 07/04/10 au 26/04/10	Du 16/07/10 au 16/08/10	Du 30/11/10 au 16/12/10

Tableau 1 - Plan d'échantillonnage de l'étude.

## III – Résultats et analyses des composés réglementés

### A- La réglementation

La réglementation fixe plusieurs types de valeurs pour juger de l'impact potentiel des polluants sur la santé humaine :

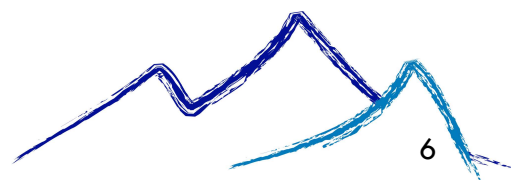
- les valeurs limites sont les valeurs de concentration que l'on ne peut dépasser que pendant une durée limitée : en cas de dépassement des mesures permanentes pour réduire les émissions doivent être prises par les états membres de l'Union Européenne.

- les valeurs cibles sont des niveaux fixés dans le but de prévenir les effets nocifs sur la santé humaine et/ou l'environnement dans son ensemble, à atteindre dans la mesure du possible sur une période donnée. La directive indique également que des plans relatifs à la qualité de l'air devraient être établis pour les zones et agglomérations dans lesquelles les concentrations de polluants dans l'air ambiant dépassent les valeurs cibles ou valeurs limites de qualité de l'air applicables.

Pour déterminer les mesures à mettre en œuvre dans une zone, la réglementation fixe, pour certains polluants, deux types de seuil : le seuil d'évaluation maximal (SEMax) et le seuil d'évaluation minimal (SEMin). Au dessus du seuil d'évaluation maximal, des mesures doivent être réalisées régulièrement afin d'évaluer le respect des seuils prescrits pour la protection de la santé humaine.

Entre le seuil d'évaluation maximal et le seuil d'évaluation minimal, une combinaison de mesures et de techniques de modélisation peut être employée pour évaluer la qualité de l'air ambiant.

En dessous du seuil d'évaluation minimal, seules les techniques de modélisation ou d'estimation objective peuvent être employées pour évaluer la qualité de l'air.





## B – Météorologie

### - Bilan météorologique 2010 simplifié sur les Alpes

#### Hiver

Aussi froid que son prédécesseur et avec une température moyenne sur la France de 1,2°C sous la normale, l'hiver 2009-2010 se positionne parmi les hivers froids, mais non exceptionnels, de ces dernières années. La pluviométrie de l'hiver est restée limitée. L'ensoleillement a été déficitaire.

#### Printemps

Moyennée sur la France, la température du printemps demeure proche de la normale, avec une anomalie positive de 0,2°C. La douceur d'avril a contrasté avec la fraîcheur observée en mars et surtout en mai. L'ensoleillement a été conforme à la moyenne.

#### Eté

Les températures moyennées sur la saison ont été supérieures à la normale avec une anomalie de +0,9°C, ce qui classe cet été au 10ème rang des plus chauds depuis 1950. L'ensoleillement a été conforme à la moyenne sur la plus grande partie du pays.

#### Automne

Malgré quelques périodes douces notamment au début d'octobre et de novembre, la température moyenne sur l'ensemble de l'automne est proche de la normale. Les précipitations ont été inférieures aux normales. L'ensoleillement a été conforme à la moyenne.

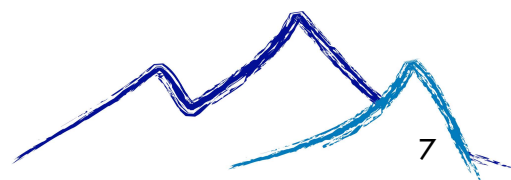
Le bilan météorologique ne montre pas d'anomalies ou de phénomènes exceptionnels qui auraient pu modifier de manière sensible les résultats des mesures de qualité de l'air. Les résultats sur l'année 2010 sont donc représentatifs de la tendance générale.

### - Eléments locaux

La Lombarde : ce vent de sud-est à nord-est le long de la frontière italienne (Figure 2) souffle des Alpes Maritimes à la Haute-Maurienne. La violence de ses rafales est une de ses caractéristiques les plus remarquables. De direction nord-est, il s'associe à la bise et est alors froid et sec. Lorsqu'il est de sud-est, ce vent est alors tiède et sec. Sa sécheresse est due à l'effet de Föhn qu'il subit sur le versant occidental des Alpes, alors que les précipitations sont souvent fortes sur les versants italiens.

Trois situations météorologiques favorisent la Lombarde :

- un anticyclone s'étend sur la France et l'Europe centrale, on a alors une Lombarde très localisée, froide, modérée, associée à un ciel clair ou peu nuageux : c'est un vent de beau temps ;
- une zone de hautes pressions sépare un minimum dépressionnaire principal au nord-ouest de l'Europe d'un minimum secondaire sur la mer Méditerranée : on a encore une lombarde localisée, mais tiède, associée à un ciel couvert avec parfois de la neige ;
- un anticyclone sur le sud-est de l'Europe et une dépression au nord-ouest engendre une Lombarde généralisée sur toute la frontière italienne.



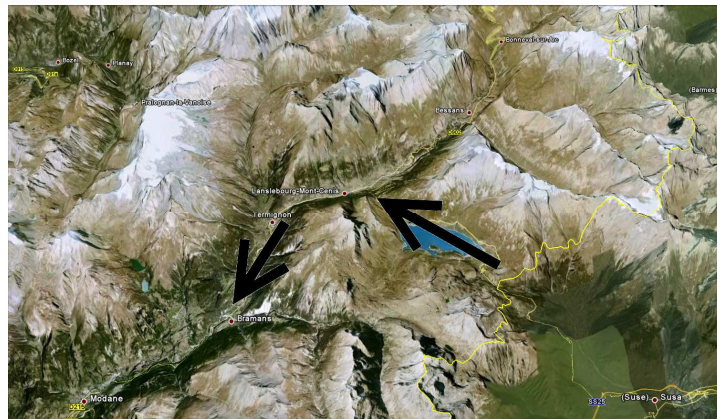


Figure 2 - Lombarde soufflant au-dessus du Mont-Cenis

### C – L'inventaire des émissions

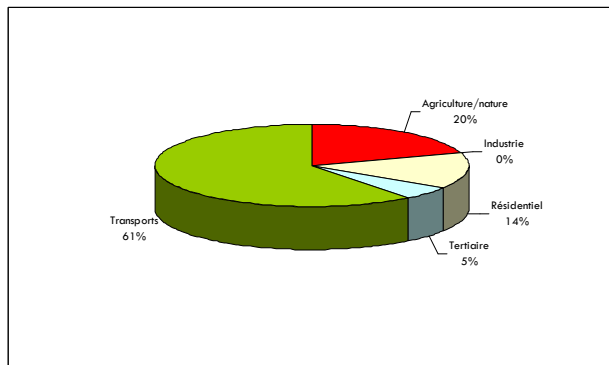


Figure 3 - Répartition des émissions de NOx sur Lanslebourg (14.3t).

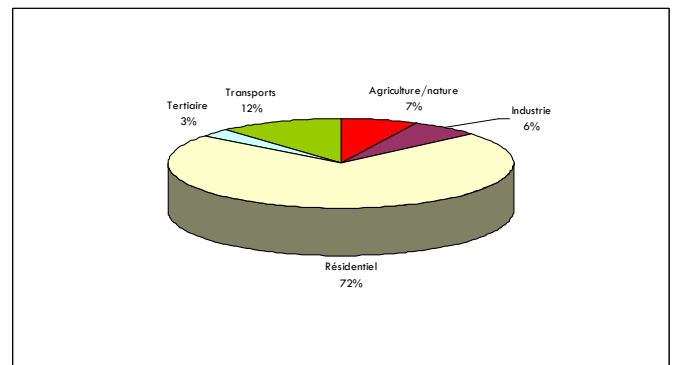


Figure 4 - Répartition des émissions de PM10 sur Lanslebourg (8.3t).

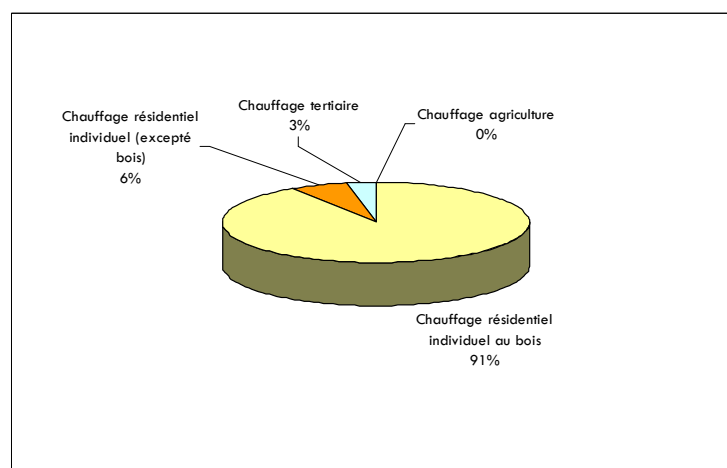
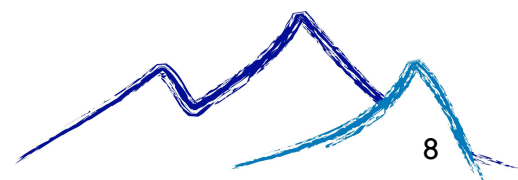
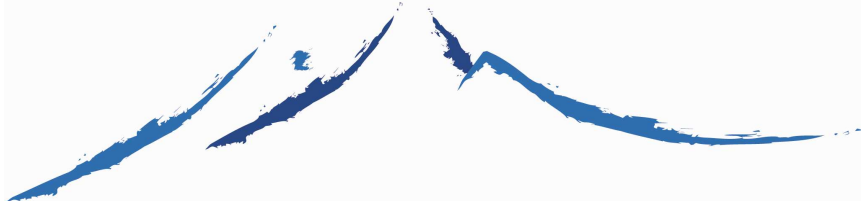


Figure 5 - Répartition des émissions de PM10 du chauffage (6.13t)

L'inventaire des émissions réalisé sur la commune (année de référence 2008) montre que les émissions de NOx sont majoritairement issues du trafic (Figure 3) ce qui est







également le cas à l'échelle de la Savoie (67%). Les émissions de PM10 proviennent majoritairement du secteur résidentiel (72%) et plus particulièrement du chauffage au bois qui représente 67% des émissions de PM10 de la commune (Figure 4, Figure 5). A l'échelle de la Savoie, la part des émissions de PM10 du secteur résidentiel est moins élevée (45%) en lien avec un secteur industriel très faible à Lanslebourg. On retrouve par contre en Savoie la même prédominance dans la part des émissions du résidentiel individuel au bois dans le total du chauffage (92%).

#### D – le dioxyde de soufre (SO<sub>2</sub>)

Depuis la désulfuration des carburants, les concentrations en dioxyde de soufre dans l'atmosphère ont sensiblement diminué. Les sources sont désormais très majoritairement issues des industries ou du chauffage urbain, ce polluant n'est plus prospecté lors des études que s'il y a une source connue pouvant impacter sur la qualité de l'air de la zone. En 2004, la mesure en continu du dioxyde de soufre a été arrêtée sur la grande majorité de nos stations fixes suite à plusieurs années de données très faibles).

Les mesures tout de même effectuées à Lanslebourg n'échappent pas à ce constat et montrent des concentrations très inférieures à la réglementation (Figure 6 et Tableau 2)

En dessous de 80 µg.m<sup>-3</sup> l'indice AMTO du SO<sub>2</sub> reste très bon avec une valeur de 1 ou 2 sur une échelle de 10. L'indice de 1 (40 µg.m<sup>-3</sup>) n'a été dépassé qu'une seule fois. Ceci confirme les faibles concentrations dans l'air ambiant sur ce secteur. La valeur limite et l'objectif de qualité sont donc respectés pour ce polluant.

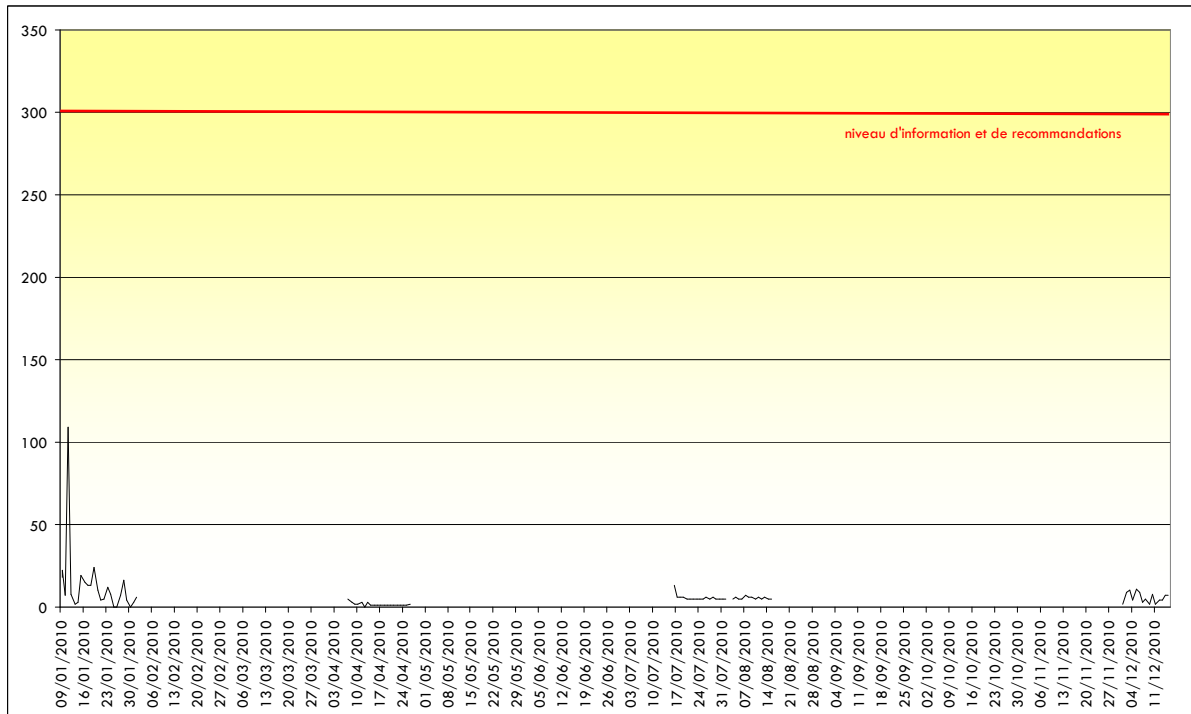
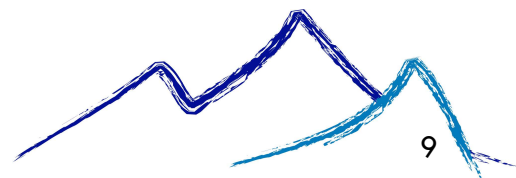


Figure 6 – Concentrations maximales journalières de SO<sub>2</sub> à Lanslebourg (µg/m<sup>3</sup>)





Norme	Pas de temps	Valeur en $\mu\text{g}/\text{m}^3$	Respect de la norme
<b>Dioxyde de soufre</b>	Valeur limite	Moyenne horaire	350 à ne pas dépasser plus de 24 fois par année civile Et 125 à ne pas dépasser plus de 3 fois par année civile
	Objectif de qualité	Moyenne annuelle	50 <b>OUI</b> (3 $\mu\text{g}\cdot\text{m}^{-3}$ )

Tableau 2 - Synthèse du respect de la réglementation du  $\text{SO}_2$  concernant la santé humaine dans l'air ambiant à Lanslebourg en 2010.

### E – le dioxyde d'azote ( $\text{NO}_2$ )

Les mesures réalisées sur le site du cinéma sont représentatives de ce que respire la majorité de la population. Les concentrations sont du même ordre de grandeur au printemps et en été (Figure 7). Les valeurs mesurées en hiver et en automne sont par contre les plus importantes, comme attendu (masse d'air plus souvent stagnante et photochimie ralentie). Les concentrations maximales pour ce site présentent un risque faible de dépassement du niveau d'information et de recommandations. En hiver, les concentrations de  $\text{NO}_2$  sont plus fortes que celles observées dans le centre des agglomérations des Pays de Savoie, en lien avec l'accumulation des polluants issus du trafic dans le contexte de vallée. En moyenne annuelle, les niveaux en  $\text{NO}_2$  sont du même ordre de grandeurs que ceux mesurés à Albertville ou Saint-Jean-de-Maurienne (Figure 8).

La synthèse du respect de la réglementation de ce polluant est présentée dans le Tableau 3.

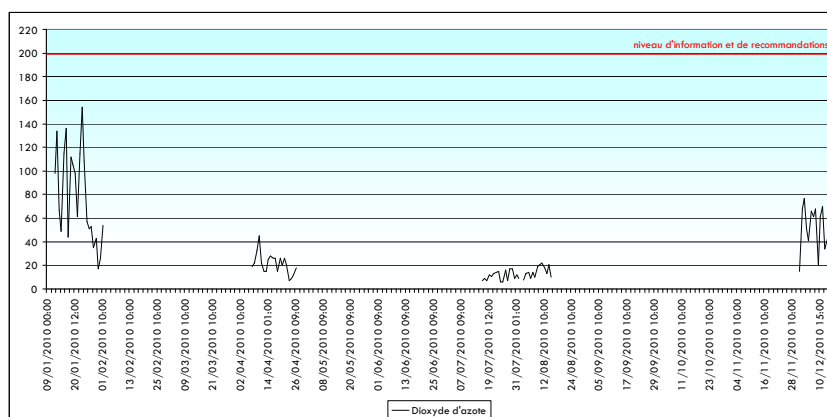
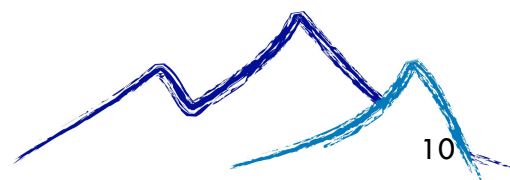


Figure 7 - Concentrations maximales journalières de  $\text{NO}_2$  à Lanslebourg ( $\mu\text{g}/\text{m}^3$ ).



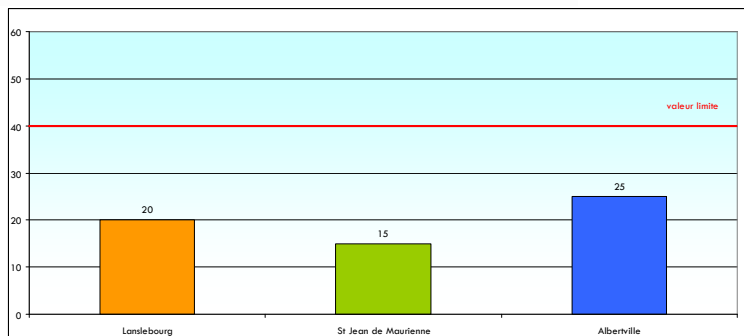


Figure 8 - Concentrations de NO<sub>2</sub> en moyenne annuelle à Lanslebourg, St-Jean-de-Maurienne et Albertville (µg/m<sup>3</sup>)

	Norme	Pas de temps	Valeur en µg/m <sup>3</sup>	Respect de la norme
<b>Dioxyde d'azote</b>	Objectif qualité	Moyenne annuelle	40	<b>OUI</b> (20 µg.m <sup>-3</sup> )
	Valeur limite en 2010	Moyenne horaire	200 (18 dépassements autorisés)	<b>OUI</b> (0 dépassement)
	Niveau d'information et recommandations	Moyenne horaire	200	<b>OUI</b> (max à 154 µg.m <sup>-3</sup> )

Tableau 3 - Synthèse du respect de la réglementation du NO<sub>2</sub> concernant la santé humaine dans l'air ambiant en 2010.

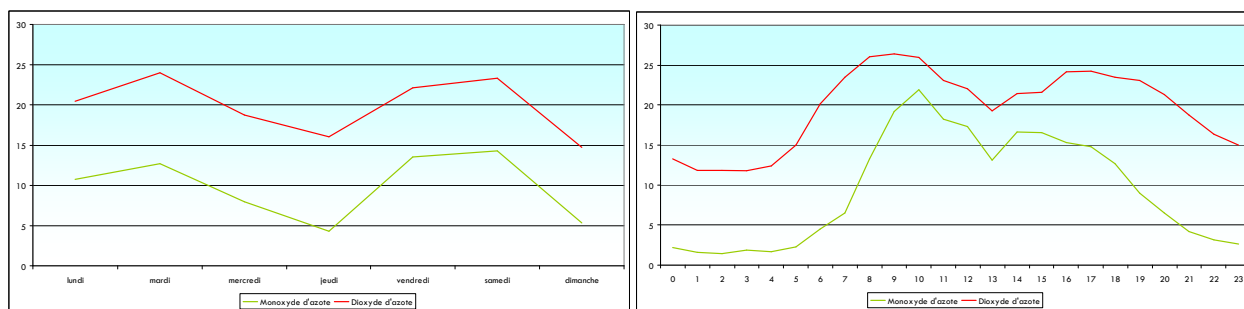
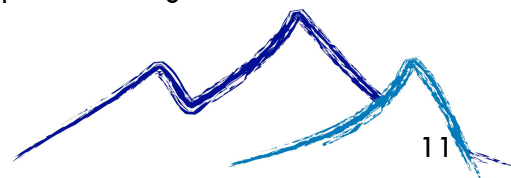


Figure 9 - Profil journalier (à gauche) et horaire (à droite) des concentrations en NO<sub>2</sub> (µg/m<sup>3</sup>)

Les profils journaliers et horaires des concentrations à Lanslebourg (Figure 9) montrent des profils caractéristiques du trafic routier sur le site de mesures avec des maxima aux heures où le trafic est le plus important et des concentrations plus basses le dimanche. Cette figure montre que le trafic routier est la source essentielle de dioxyde d'azote car le rapport NO/NO<sub>2</sub> est relativement constant aux heures où les concentrations sont les plus fortes (de 8h à 18h). La dispersion de ce polluant est relativement bien assurée puisque les concentrations redescendent pratiquement à zéro la nuit sur ces profils.

Il est à noter que le samedi 16 janvier (durant les mesures) a eu lieu le départ de « La Grande Odysée », course de chiens de traîneaux, qui a amené un trafic inhabituel sur la zone d'étude. Cette journée montre des concentrations importantes en dioxyde d'azote, comme c'est le cas les samedis en période hivernale. A noter que ces concentrations les plus élevées respectent la réglementation.





## F – l'ozone (O<sub>3</sub>)

Les concentrations d'ozone mesurées montrent, comme attendu, des valeurs plus importantes en été qu'en hiver à cause de l'activité photochimique beaucoup plus importante avec la chaleur et le rayonnement solaire (Figure 10). Les concentrations maximales journalières sont du même ordre de grandeur que sur les sites d'Albertville et de Saint-Jean-de-Maurienne à l'exception du printemps où la Lombardie été particulièrement présente entrainant un brassage et un refroidissement important de la masse d'air. Les concentrations relevées à l'Aiguille du midi ne sont pas représentatives de Lanslebourg (pourtant en altitude) mais encore sous l'influence des émissions anthropiques.

Aucun dépassement du niveau d'information et de recommandations des personnes sensibles à l'ozone n'a été constaté lors des campagnes des mesures (Tableau 4) mais les concentrations étant du même ordre de grandeur qu'à St-Jean-de-Maurienne ou à Albertville il existe un risque de dépassement de ce seuil.

Pour l'ozone, ni la valeur cible, ni l'objectif à long terme ne sont respectés ce qui est le cas sur la majorité du territoire Rhône-Alpin.

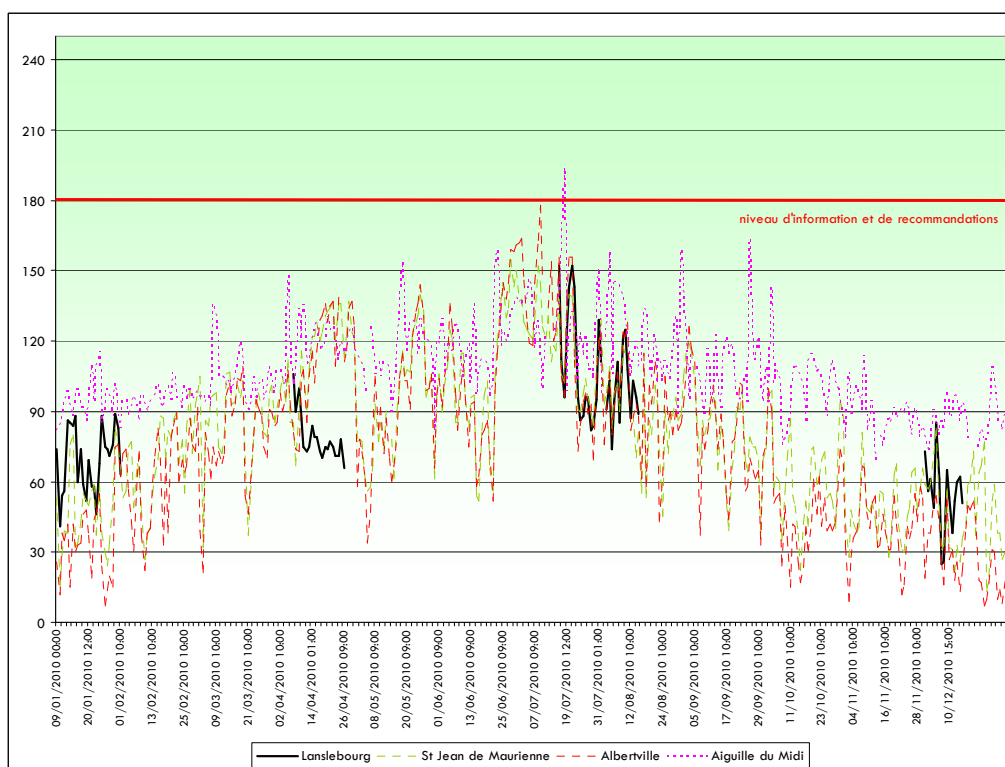
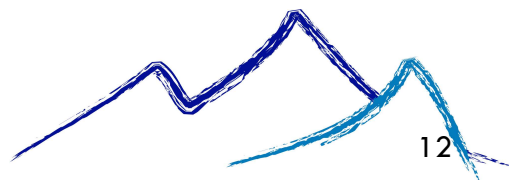


Figure 10 - Concentrations maximales journalières d'O<sub>3</sub> à Lanslebourg, St-Jean-de-Maurienne, Albertville et à l'aiguille du midi (µg/m<sup>3</sup>)





Norme	Pas de temps	Valeur en $\mu\text{g}/\text{m}^3$	Respect de la norme
<b>Ozone</b>			<b>NON</b>
Valeur cible	Max journalier de la moyenne sur 8 heures	120 $\mu\text{g}/\text{m}^3$ , à ne pas dépasser plus de 25 fois par année civile	
Objectif à long terme	Maximum journalier de la moyenne sur 8 heures pendant une année civile	120 $\mu\text{g}/\text{m}^3$	<b>NON</b>
Niveau d'information et recommandations	1 heure	180 $\mu\text{g}/\text{m}^3$	<b>OUI</b> (152 $\mu\text{g}/\text{m}^3$ )

Tableau 4 - Synthèse du respect de la réglementation de l'O<sub>3</sub> concernant la santé humaine dans l'air ambiant en 2010.

### G – les poussières en suspension (PM10 et PM2.5)

Comme attendu, les concentrations relevées à Lanslebourg montrent des niveaux de particules plus élevées en hiver et en automne que le reste de l'année (Figure 11) en lien avec les émissions supplémentaires liées au chauffage en période froide. En moyenne annuelle, la concentration à Lanslebourg est plus élevée qu'à Albertville et Saint-Jean-de Maurienne. Elle est équivalente à celle mesurée à Passy (Figure 12). La moyenne annuelle respecte la valeur limite et l'objectif de qualité. La valeur limite sur une station d'étude ne pouvant se faire par le nombre de dépassements du 50  $\mu\text{g}/\text{m}^3$  (qui subit l'influence de la couverture des données), c'est le calcul du percentile 90.4 qui doit être inférieur à 50  $\mu\text{g}/\text{m}^3$  doit être réalisé (Dir 2008/50/CE Annexe 1). Ce calcul sur Lanslebourg montre un dépassement de la valeur limite avec une valeur de 54  $\mu\text{g}/\text{m}^3$ .

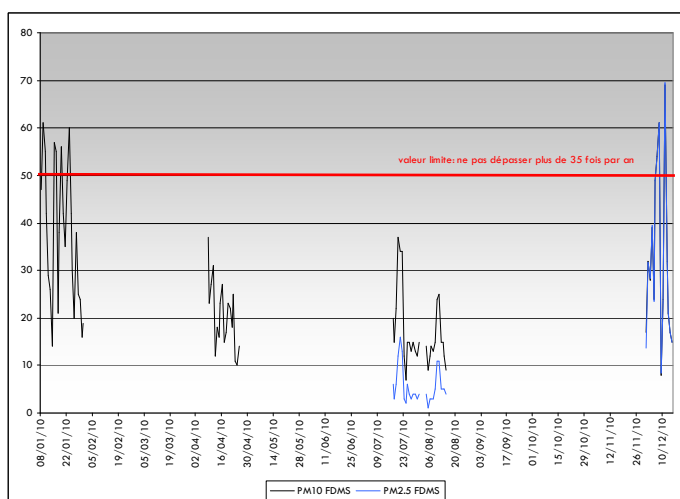
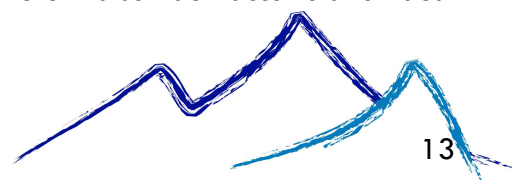


Figure 11 - Concentrations journalières de PM10 et PM2.5 à Lanslebourg ( $\mu\text{g}/\text{m}^3$ ).

Les concentrations en PM10 sont caractéristiques d'une situation de vallée avec des valeurs fortes en période froide qui sont supérieures à celles observées en zone urbaine en raison de l'accumulation des polluants lors des inversions thermiques.





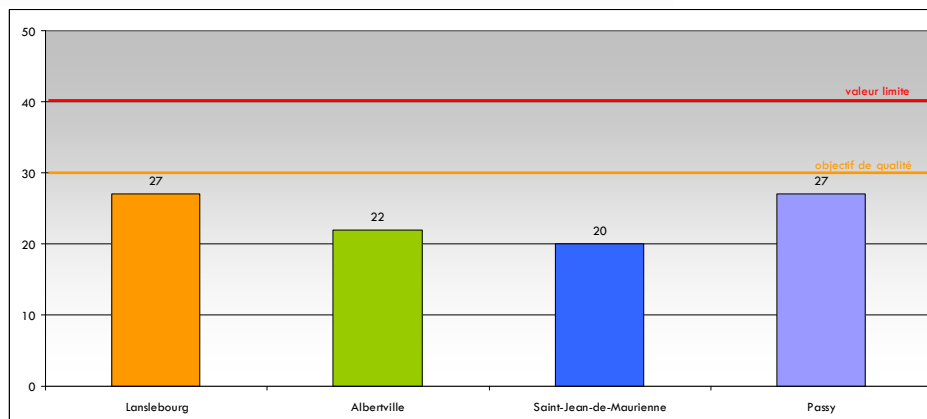


Figure 12 - Concentrations de PM10 en moyenne annuelle à Lanslebourg, Albertville, Saint-Jean-de-Maurienne et Passy (µg/m³).

La synthèse des normes en vigueur est reprise dans le Tableau 5.

Norme	Pas de temps	Valeur en µg/m³	Respect de la norme	
<b>PM 10</b>	Objectif de qualité	Moyenne annuelle	30	<b>OUI</b> (27 µg.m <sup>-3</sup> )
	Valeur limite	Moyenne journalière	50 (percentile 90.4 des moyennes journalières)	<b>NON</b> (54 µg.m <sup>-3</sup> )
		Moyenne annuelle	40	<b>OUI</b> (27 µg.m <sup>-3</sup> )
	Niveau d'information et recommandations	Moyenne journalière	50	<b>NON</b> (69 µg.m <sup>-3</sup> )

Tableau 5 - Synthèse du respect de la réglementation des PM10 concernant la santé humaine dans l'air ambiant en 2010.

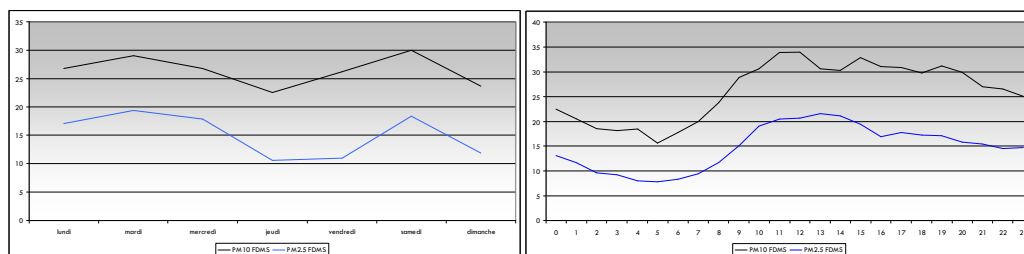
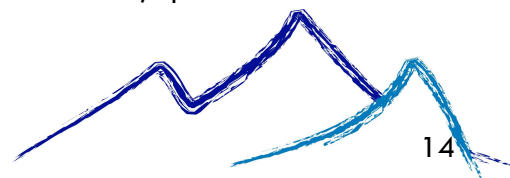


Figure 13 - Profil journalier (à gauche) et horaire (à droite) des concentrations en PM10 (µg/m3)

Les profils journaliers et horaires des concentrations (Figure 13) ne montrent pas clairement la signature du trafic avec des maxima aux heures de pointe. Les concentrations sont loin d'être négligeable la nuit et le week-end (écart faible entre les maxima et les minima) ce qui montre que d'autres sources participent aux concentrations de PM10 et notamment le chauffage.

Le jour du départ de « La Grande Odyssée » (course de chiens de traîneaux) qui a amené un trafic inhabituel sur la zone d'étude, les concentrations ne sont pas très





différentes d'une autre journée hivernale, preuve qu'en hiver la source majoritaire des particules n'est pas le trafic.

## H – le Benzo(a)pyrène

La Figure 14 et le Tableau 6 récapitulent les résultats des mesures de benzo(a)pyrène effectuées lors de chaque campagne et la réglementation associée.

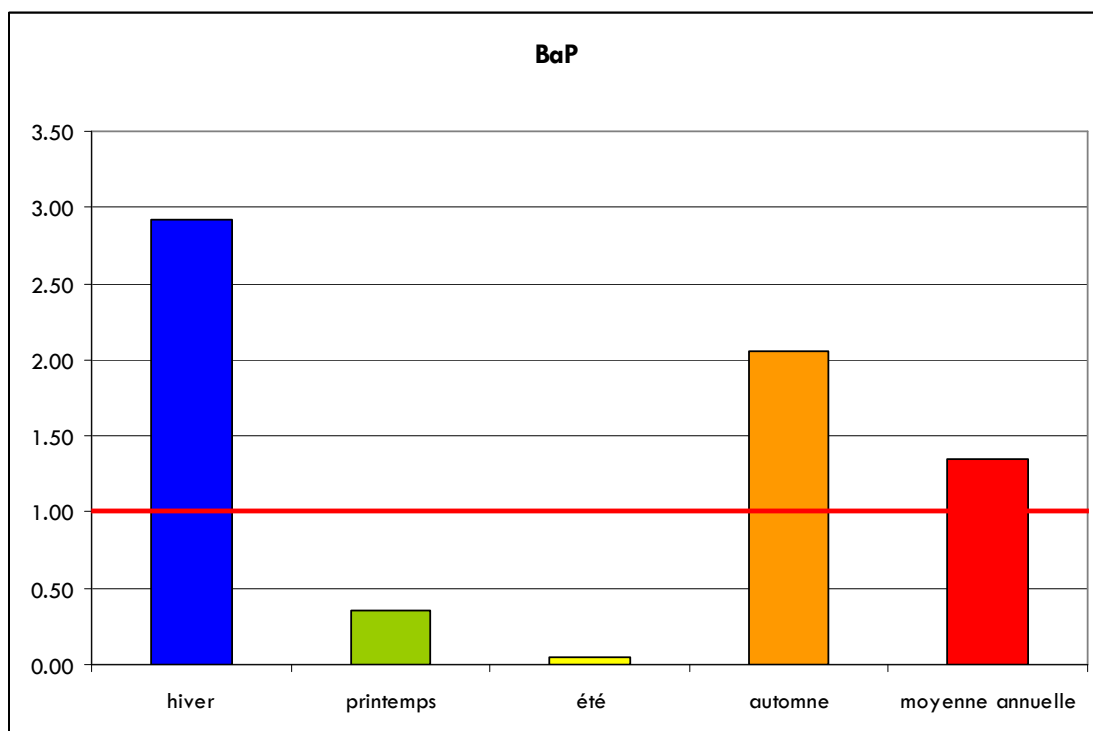
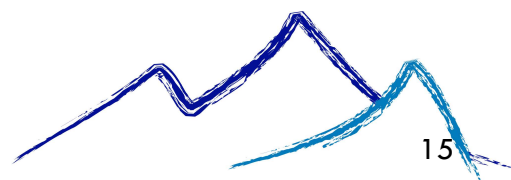


Figure 14 - Concentrations en B(a)P relevées lors des campagnes de mesures (ng/m<sup>3</sup>).

<b>B(a)P en ng/m<sup>3</sup></b>	
Valeur cible 2012	1
Seuil d'évaluation minimal	0.4
Seuil d'évaluation maximal	0.6

Tableau 6 - Réglementation en vigueur pour le B(a)P.



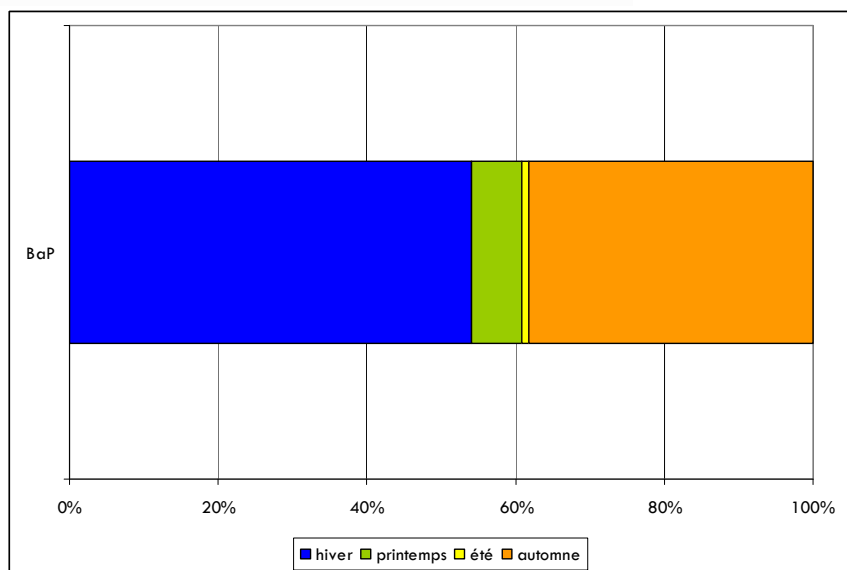


Figure 15 - Contribution de chaque saison à la moyenne des 4 campagnes pour le BaP.

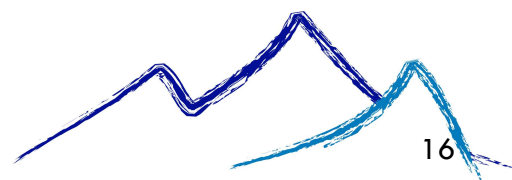
Les concentrations relevées pendant les 4 campagnes de prélèvements réparties sur l'année 2010 permettent d'estimer la moyenne annuelle à 1.35 ng/m<sup>3</sup>, la valeur cible est par conséquent dépassée. Des variations saisonnières ont été observées : les concentrations sont beaucoup plus faibles en période estivale que pendant la période hivernale (Figure 15). Ce phénomène s'explique par l'augmentation des émissions du chauffage domestique (notamment au bois) qui est une source très importante de BaP. Il existe aussi en hiver une diminution du processus de dégradation photochimique des HAP et souvent une plus mauvaise dispersion atmosphérique.

### I – Analyse des conditions d'accumulations des PM10 et du B(a)P

L'analyse des concentrations de PM10 et de BaP comparée aux variables météorologiques ne permet pas de tirer une loi statistique fiable pour l'explication des concentrations. Ceci est lié à une météorologie très complexe sur le secteur où il faudrait un nombre conséquent de capteurs en amont et en aval de Lanslebourg pour caractériser correctement la masse d'air et sa stabilité. Les pratiques de chauffage au bois sont également non linéaires en fonction des foyers et donc difficilement intégrables comme variables explicatives.

Le

Tableau 7 et le Tableau 8 reprennent les conditions météorologiques et les concentrations associées. A partir de ces tableaux il est possible de conclure que la lombarde est un élément efficace pour la dispersion des polluants, au même titre que la pluie. Il est également possible de conclure que les fortes concentrations en BaP sont liées à des températures minimales très froides et/ou des conditions de dispersion difficiles (anticyclone et absence de vent). Les accumulations de PM10 sont moins liées aux températures froides qu'aux situations de dispersion difficiles (périodes anticycloniques avec masse d'air stagnante).

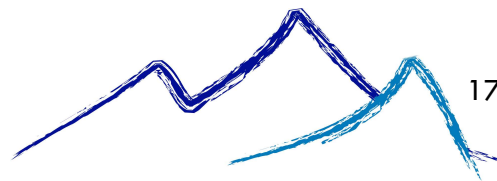




Météo 73	8 Janvier -3° -6°	9 Janvier -3° -6°	10 Janvier -2° -7°	11 Janvier -1° -12°	12 Janvier 1° -7°	13 Janvier 2° -4°	14 Janvier 7° 2°	15 Janvier 5° -4°
PM10 <sup>(1)</sup>	47	61	55	42	29	26	14	57
BaP <sup>(2)</sup>	0.16	4.36	4.91	8.47	3.81	0.09		
Vent <sup>(3)</sup>	L	-	-	N matin	L	L	L	-
Météo 73	16 Janvier 8° -2°	17 Janvier 5° 3°	18 Janvier 7° -1°	19 Janvier 7° -1°	20 Janvier 5° -1°	21 Janvier 5° -5°	22 Janvier 5° -7°	23 Janvier 7° -1°
PM10 <sup>(1)</sup>	55	21	38	56	42	35	49	60
BaP <sup>(2)</sup>	11.39	0.21	8.7					
Vent <sup>(3)</sup>	-	N	N	-	-	-	-	-
Météo 73	24 Janvier 6° -1°	25 Janvier 3° -1°	26 Janvier -1° -3°	27 Janvier -1° -6°	28 Janvier 4° -9°	29 Janvier 3° -7°	30 Janvier -1° -4°	31 Janvier -2° -8°
PM10 <sup>(1)</sup>	42	30	20	38	25	24	16	19
BaP <sup>(2)</sup>				0.03	0.15	0.19	0.15	0.41
Vent <sup>(3)</sup>		L	L	N	N	N	N	NW

(1) : moyenne journalière en  $\mu\text{g}/\text{m}^3$  (2) : moyenne journalière en  $\text{ng}/\text{m}^3$  (3) : direction du vent dominant au Mont-Cenis, L pour Lombarde

Tableau 7 - Campagne hivernale : conditions météorologiques moyennes du département, concentrations de PM10 et de BaP et vent dominant à Lanslebourg.

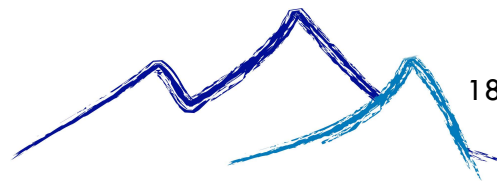




Météo 73	1 Décembre 1° / -3°	2 Décembre -1° / -5°	3 Décembre -1° / -7°	4 Décembre 4° / -4°	5 Décembre 7° / -1°	6 Décembre 9° / 6°	7 Décembre 9° / 8°	8 Décembre 7° / 7°
PM10 <sup>(1)</sup>	17	32	28	39	24	49	54	61
BaP <sup>(2)</sup>	0.6	4.7	2.64	0.16	1.45	2.53	2.97	4.27
Vent <sup>(3)</sup>	L	-	-	N	L	L	L	-
Météo 73	9 Décembre 1° / -3°	10 Décembre 3° / -5°	11 Décembre 5° / -2°	12 Décembre 5° / 1°	13 Décembre 2° / -6°	14 Décembre -3° / -5°	15 Décembre -3° / -7°	
PM10 <sup>(1)</sup>	8	24	69	32	21	17	15	
BaP <sup>(2)</sup>	0.25	1.76	5.41	0.04	0.81	1.28		
Vent <sup>(3)</sup>	N	-	-	N	N	-	N	

(1) : moyenne journalière en  $\mu\text{g}/\text{m}^3$  (2) : moyenne journalière en  $\text{ng}/\text{m}^3$  (3) : direction du vent dominant au Mont-Cenis, L pour Lombarde

Tableau 8 - Campagne automnale : conditions météorologiques moyennes du département, concentrations de PM10 et de BaP et vent dominant à Lanslebourg.







## IV – Résultats et analyses des composés atmosphériques

L'ensemble des résultats présentés dans cette partie sont issus du rapport « Analyse de composés particuliers atmosphériques : Etude Air-APS à Lanslebourg » réalisé par le LCME et le LGGE qui est joint en annexe.

### A- Bilan massique et chimie des PM

#### 1. Composition chimique moyenne des PM<sub>10</sub>

Une caractérisation globale de l'aérosol est réalisée en étudiant les parts respectives de chacune des espèces quantifiées à la concentration massique en PM<sub>10</sub>. Les compositions chimiques reportées (Figure 16) représentent des moyennes sur chaque campagne de prélèvements (14 échantillons). La composition chimique des PM est différente selon les saisons. La matière organique particulaire (MOP) représente 23 à 56% des PM (en été et hiver respectivement). La proportion de carbone élémentaire varie entre 3 et 9%. Les espèces ioniques majeures représentent 5 à 27% des PM (à l'automne et au printemps respectivement). La fraction « other » correspond à la masse des PM non identifiée par les analyses chimiques.

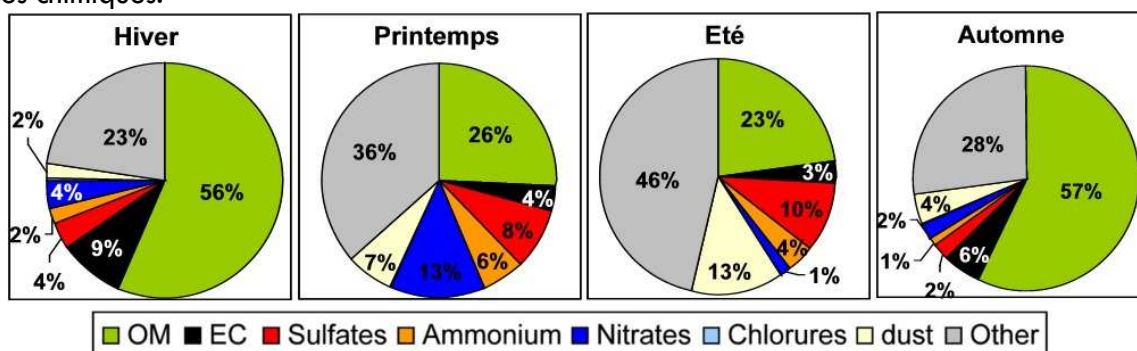
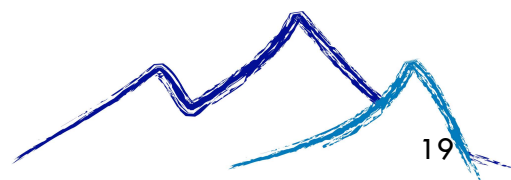


Figure 16 - Compositions relatives moyennes (en %) des PM<sub>10</sub> à Lanslebourg

#### 2. Traceurs et indicateurs de combustions présents dans l'aérosol

##### -Le carbone élémentaire

Les ratios entre le carbone élémentaire et le carbone organique (EC/OC) contenus dans les PM sont différents selon les sources d'émissions. En particulier, la combustion du bois émet en grande proportion de l'OC alors que les émissions véhiculaires émettent majoritairement de l'EC. Ainsi, le ratio EC/OC est de 0,04 pour les émissions de combustion du bois et 1,89 pour les émissions véhiculaires. A Lanslebourg, le ratio EC/OC est constant au cours de l'année : il est en moyenne de 0,20 (Figure 17). Ce résultat montre l'influence de plusieurs sources d'émissions de carbone organique et de carbone élémentaire.



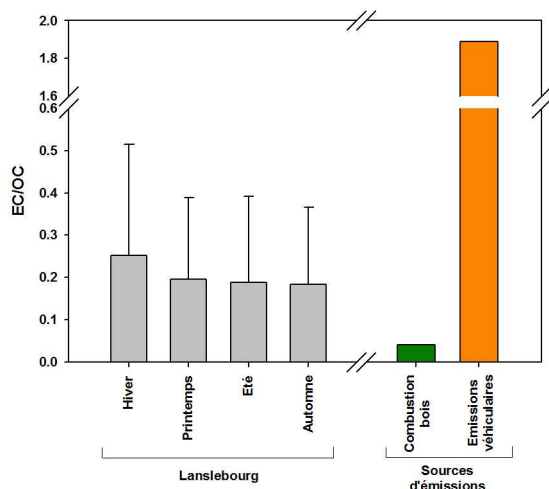


Figure 17 - Ratios EC/OC mesurés pour les émissions de combustion de bois, les émissions véhiculaires et à Lanslebourg

**- Les traceurs de la combustion de biomasse**

Le lévoglucosan est communément utilisé dans une première approche qualitative en étudiant sa proportion par rapport au carbone organique contenu dans les PM. Cette approche est réalisée au travers du rapport OC/Lévo (carbone organique/lévoglucosan). Dans la littérature, ce ratio est de 7,35 pour la combustion de bois dur en foyer fermé de type poêle et de 27,49 pour la combustion de feuilles. Les valeurs de ce rapport sont donc dépendantes de la nature de bois brûlé. Néanmoins, le rapport OC/Lévo permet d'avoir une première approche sur la contribution de la combustion de biomasse. Les ratios mesurés à Lanslebourg en hiver et à l'automne sont semblables à ceux mesurés sur deux autres sites de vallées alpines (Figure 18). Avec des valeurs comprises entre 5.9 et 9.7 sur les différents sites proches des valeurs caractérisant combustion de bois en foyer fermé, ces ratios paraissent indiquer une contribution importante de la combustion de biomasse à l'aérosol organique en hiver. L'augmentation de ces valeurs en automne et au printemps illustre une diminution de cette contribution en lien avec des niveaux en lévoglucosan plus faibles. En été les valeurs sont beaucoup plus élevées lorsque la source de combustion du bois est peu présente.

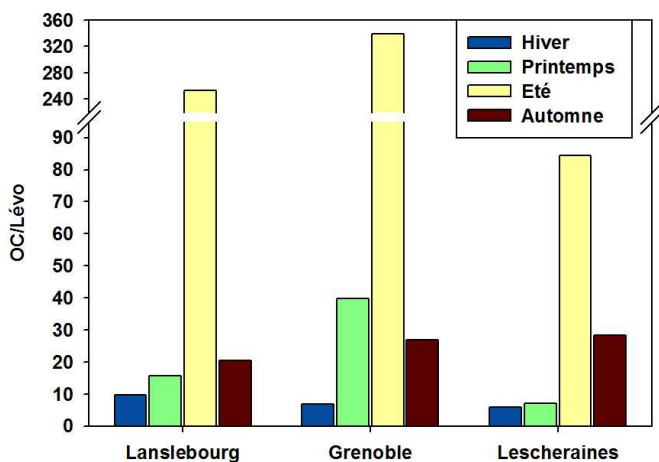
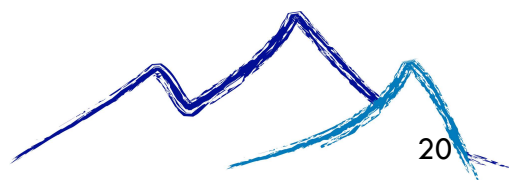


Figure 18- Ratios OC/Lévo à Lanslebourg, Grenoble et Lescheraines





La combustion de biomasse émet du lévoglucosan mais également ses deux isomères : le mannosan et le galactosan. Les ratios lévoglucosan/mannosan, lévoglucosan/OC et mannosan/OC constituent des outils permettant d'estimer les parts des combustions de bois dur et de bois tendre sur un site récepteur. La proportion de bois tendre brûlé est importante sur le site de Lanslebourg à toutes les saisons en comparaison avec les autres sites de vallées alpines (Figure 19). Cette particularité peut être induite par la pratique de l'affouage réalisé sur la commune de Lanslebourg entraînant une utilisation importante de bois tendre pour le chauffage (Cf enquête de l'ASDER pour cette étude). Cette pratique semble influencer fortement la signature chimique des émissions de combustion de biomasse.

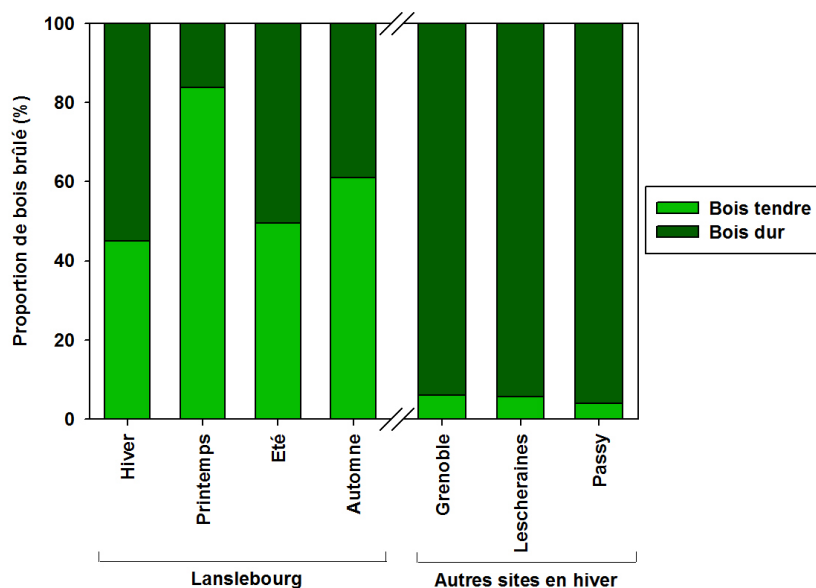


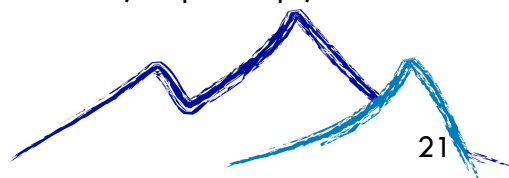
Figure 19- Proportions (en %) de bois tendre et de bois dur brûlés à Lanslebourg, Grenoble, Lescheraines et Passy.

### - Les HAP

Les Hydrocarbures Aromatiques Polycycliques sont émis par tous types de combustions. Ils proviennent donc à la fois de la combustion de biomasse, des émissions véhiculaires et des autres combustibles fossiles. Pour autant, les profils en HAP (concentrations relatives en HAP par rapport à la somme totale en HAP) peuvent présenter des différences selon la source d'émission. L'étude des profils HAP peut donc apporter des informations sur les sources d'émissions de ces composés. La somme moyenne en HAP à Lanslebourg est également maximale en hiver : 49,4 ng.m<sup>-3</sup> et minimale en été : 0,8 ng.m<sup>-3</sup> (Tableau 9). Pour comparaison, en hiver à Grenoble, la concentration moyenne en BaP est de 1,0 ng.m<sup>-3</sup> et la somme en HAP est de 13,4 ng.m<sup>-3</sup>.

ng.m <sup>-3</sup>	BaP	Somme HAP
<b>Hiver</b>	2.5	49.4
<b>Printemps</b>	0.4	6.7
<b>Été</b>	0.1	0.8
<b>Automne</b>	2.1	35.0

Tableau 9 - Concentrations moyennes en BaP et de la somme des HAP en hiver, au printemps, en été et à l'automne à Lanslebourg.





Les profils de HAP particuliers obtenus à Lanslebourg sont différents selon les saisons. Les HAP majoritaires sont des HAP à poids moléculaires moyen du BaA au BkF, ce qui est plutôt caractéristique de combustions de biomasse. Le Retene est un HAP caractéristique des émissions de combustion de bois tendre. Il est présent en proportion importante dans les profils observés à Lanslebourg en hiver, montrant l'influence de cette source sur la signature chimique en HAP.

## B- Estimations de la contribution des sources d'émissions aux PM

### 1. Sources d'émission en PM : approche mono-traceur

L'approche mono-traceurs est une méthode de quantification de l'influence de certaines sources d'émission en PM basée sur l'utilisation de traceurs ou de rapports spécifiques à la source considérée. Loin d'être exhaustive, elle permet toutefois d'évaluer la part des principales sources d'émission (transport, combustion de biomasse) dont les facteurs d'émission des traceurs et des paramètres principaux des aérosols (OC, EC, ions majeurs...) sont largement documentés. Elle ne permet pas de prendre en compte des processus d'émissions moins caractérisés.

La contribution de la combustion de biomasse au carbone organique varie entre 4% et 76% suivant la saison (Figure 20). La contribution des émissions véhiculaires est stable au cours de l'année et représente en moyenne 11% de l'OC. La fraction des autres sources correspond à la fraction non attribuée à la combustion de biomasse et aux émissions véhiculaires. Elle est maximale en été, représentant 85% de l'OC et minimale en hiver, représentant 11% de l'OC. Cette contribution dépend de la proportion d'OC attribuée à la combustion de biomasse, il est donc normal qu'elle soit maximale lorsque la contribution de la combustion de biomasse est faible. Les autres sources d'émissions de matière organique particulaire peuvent être en été notamment les émissions naturelles des végétaux et le processus secondaire de formation de la MO.

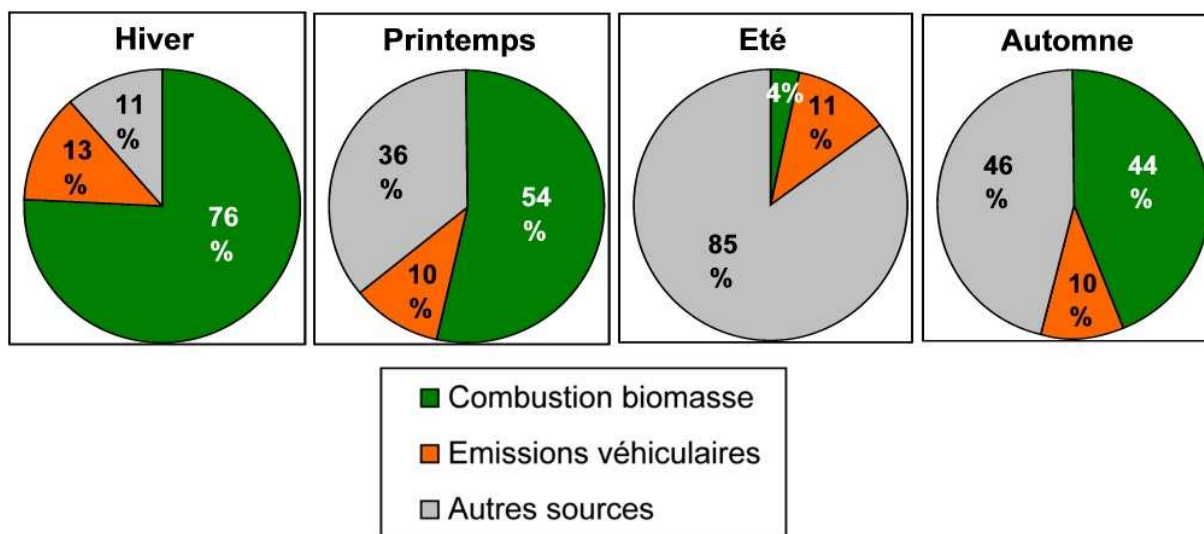
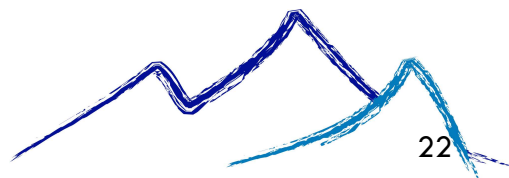


Figure 20 - Contributions moyennes de la combustion de biomasse, des émissions véhiculaires et des autres sources au carbone organique (%) calculées avec l'approche mono-traceur à Lanslebourg lors des quatre campagnes réalisées en 2010.



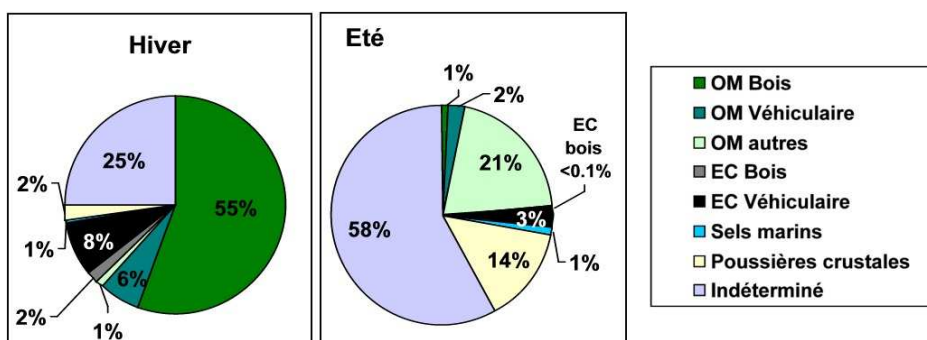


Figure 21 - Contributions moyennes des principales sources primaires aux PM (%) calculées avec les approches mono-traceur à Lanslebourg en hiver et été 2010.

L'approche mono-traceur permet d'estimer les contributions de la combustion de biomasse et des émissions véhiculaires à l'OC et à l'OM. Elle permet également d'estimer les contributions des sels marins et des poussières crustales aux PM. En combinant les différentes approches mono-traceur, un bilan de masse des contributions des principales sources primaires aux PM peut être réalisé. Les bilans obtenus pour les deux saisons extrêmes sont présentés sur la Figure 21. En hiver, la combustion du bois et les émissions véhiculaires sont les sources majoritaires des PM alors qu'en été, les autres sources organiques (qui peuvent être les émissions naturelles des végétaux par exemple) et les poussières crustales sont les sources principales de PM identifiées.

## 2. Sources d'émission en PM : approche multi-traceurs (MM-CMB)

L'approche quantitative multi-traceurs MM-CMB nécessite de sélectionner des profils chimiques caractéristiques des principales sources d'émissions présentes sur le site étudié. Le choix des profils est également orienté par les données du cadastre d'émissions réalisé en 2007 par l'Air de l'Ain et des Pays de Savoie à l'aide des données INSEE qui permettent de connaître en nombre de foyers les modes de chauffage principaux utilisés dans la commune. A Lanslebourg, la répartition des modes de chauffage en résidence principale selon le type d'énergie est la suivante : 43% de fioul, 28% de bois et 29% d'électrique.

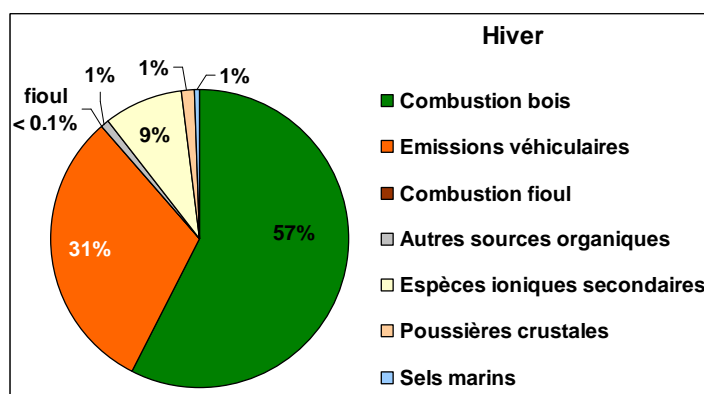
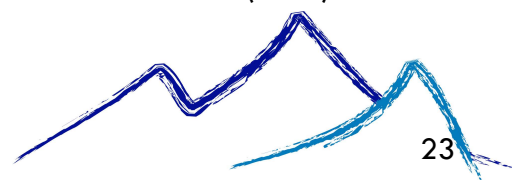


Figure 22 - Contributions moyenne des principales sources primaires aux PM10 (en %).







En hiver, la contribution de la combustion de biomasse aux PM est en moyenne de 57% à Lanslebourg (Figure 22). Pour comparaison, les estimations des contributions de la combustion de biomasse aux PM en hiver sur d'autres sites de vallées alpines en utilisant la même méthode sont de 56% à Chamonix, 65% à Lescheraines, 58% à Passy et 42% à Grenoble.

La contribution des émissions véhiculaires est en moyenne de 31%. Cette contribution est largement supérieure à celles observées sur d'autres sites de vallées alpines : 26% à Chamonix, 6% à Lescheraines, 10% à Passy et 10% à Grenoble.

La méthodologie n'attribue pas de part à la combustion du fioul aux PM. Les contributions aux PM des autres sources de carbone organique ainsi que des poussières crustales et des sels marins sont très faibles : environ 1% chacune. Les émissions secondaires d'espèces ioniques provenant de l'oxydation de SO<sub>2</sub> ou des NO<sub>x</sub> représentent 9% des PM mesurées en hiver à Lanslebourg.

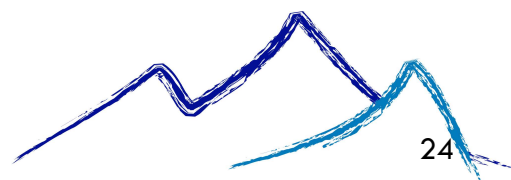
## V Conclusions

Un état initial de la qualité de l'air a été réalisé sur la commune de Lanslebourg afin à la fois d'évaluer les concentrations d'un lieu de vie représentatif de ce que respire la majorité de la population et de caractériser la part du chauffage bois sur la qualité de l'air.

Au niveau réglementaire, l'ozone, ne respecte ni la valeur cible, ni l'objectif à long terme, ce qui est le cas sur la majorité du territoire Rhône-Alpin.

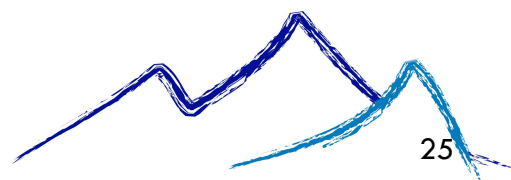
Pour les poussières en suspension, la valeur limite n'est pas respectée en lien avec un chauffage bois important et une mauvaise dispersion de la masse d'air. La valeur cible 2012 pour le Benzo(a)Pyrène est également dépassée.

Les signatures chimiques en HAP à Lanslebourg sont marquées par l'influence de la combustion du bois, en particulier de bois tendre. La combustion du bois contribue en hiver à 76% du carbone organique contenu dans les PM<sub>10</sub> et 57% des PM<sub>10</sub>. La contribution des émissions véhiculaires au carbone organique est stable au cours de l'année représentant en moyenne 11% de l'OC. Cette source contribue à 31% des PM<sub>10</sub>.





## VI Annexe 1 : Rapport sur l'analyse de composés particulaires atmosphériques : Etude Air-APS à Lanslebourg (LCME-LGGE)



# Analyse de composés particuliers atmosphériques : Etude Air-APS à Lanslebourg



*D'après Google Maps*

Christine Piot (LCME-LGGE)

**Jean-Luc Besombes (LCME)**  
**Jean-Luc Jaffrezo (LGGE)**  
**Julie Cozic (LGGE)**

**Rapport de fin d'étude**  
**Avril 2011**

## **Avant propos**

Le Laboratoire de Chimie Moléculaire et Environnement (LCME, Université de Savoie) et le Laboratoire de Glaciologie et Géophysique de l'Environnement (LGGE, CNRS – Université Joseph Fourier) collaborent depuis plusieurs années sur une thématique de recherche axée sur l'étude de la composition chimique des particules atmosphériques afin de mieux appréhender leurs sources, leurs processus d'évolution et leurs impacts. Ces dernières années, ces travaux ont conduit à proposer des outils qualitatifs et quantitatifs d'estimation de l'influence des sources sur les niveaux de particules en atmosphère ambiante.

A la demande d'Air-APS, nous avons entrepris une étude appliquant ces méthodologies à la connaissance des sources de l'aérosol atmosphérique en Haute-Maurienne. Ce travail constituait un cas d'étude particulier nous permettant d'enrichir et de faire progresser les approches qualitatives et quantitatives que nous développons dans nos laboratoires. Les résultats présentés dans ce rapport s'inscrivent donc dans un travail de recherche mené actuellement dans le cadre de la thèse de Christine PIOT financée par une Allocation Doctorale de Recherche de la région Rhône-Alpes (soutenance prévue en juillet 2011).

## Introduction

La quantité d'aérosols présents dans l'atmosphère mais également leur composition chimique influencent directement la qualité de l'air. Plusieurs sources d'émissions de particules sont responsables des niveaux d'exposition en PM : combustion de biomasse, émissions véhiculaires, industrie, combustion de gaz naturel, apports crustaux, débris végétaux, émissions culinaires.... A ces sources primaires d'émission doivent également s'ajouter les processus secondaires de formation des aérosols encore mal connus et en partie dus aux interactions gaz-particules. La caractérisation de ces différentes sources ainsi que leur contribution aux PM observées permettent d'estimer l'impact réel des différentes sources d'émissions sur la qualité de l'air.

Le programme POVA (Pollution en Vallées Alpines), réalisé entre l'été 2000 et l'hiver 2001 (après la fermeture du tunnel du Mont-Blanc en 1999) dans les vallées de Chamonix et de la Maurienne, a permis de dresser un premier bilan sur les sources d'émissions de PM (plus particulièrement l'impact du trafic véhiculaire) et les mécanismes responsables de la pollution atmosphérique particulaire observée dans le contexte spécifique de fond de vallées alpines. Les résultats obtenus lors de ce programme montrent qu'un tiers de la masse des particules observées dans les deux vallées alpines étudiées est dû au trafic routier et que la combustion de biomasse contribue également fortement aux taux de PM observés, particulièrement en hiver. Les conditions météorologiques et géomorphologiques influencent fortement la dispersion des polluants dans ces vallées alpines : les phénomènes d'inversions thermiques observés, plus particulièrement en hiver lors d'épisodes anticycloniques froids, conduisent à la formation de couches stables empêchant les mouvements verticaux et par conséquent favorisent l'accumulation des polluants.

Suite à ce programme, et devant la mise en place d'une réglementation européenne de plus en plus drastique à l'horizon 2012, l'influence des différentes sources primaires et secondaires de particules doit être quantifiée plus précisément dans ces vallées alpines, notamment en hiver lorsque les taux de PM observés dépassent les valeurs autorisées. Ainsi, une étude de caractérisation chimique des particules et de quantification de l'influence des principales sources d'émissions de PM plus particulièrement de la combustion de biomasse a été réalisée aux quatre saisons de l'année 2010 à Lanslebourg, petite commune de 600 habitants environ située à 1420 mètres d'altitude en Haute-Maurienne en Savoie (figure 1).

Le site de prélèvement choisi pour cette étude se situe au centre du village sur le parking du cinéma (localisation sur la figure 1).



*Figure 1 : localisation géographique du site de prélèvement.*

# Matériel et méthodes

## 1) Prélèvements

Les particules atmosphériques ont été collectées par l'Air de l'Ain et des Pays de Savoie à l'aide d'échantillonneurs gravimétriques haut-volume, équipés d'un séparateur PM<sub>10</sub> (permettant de prélever les particules ayant un diamètre aérodynamique inférieur ou égal à 10 µm) et assurant des collectes de la phase particulaire sur des filtres en quartz de 150 mm de diamètre et de la phase gazeuse pour la campagne hivernale sur mousse de polyuréthane (PUF). Ces préleveurs permettent des prélèvements autonomes et continus. Le pas de temps d'échantillonnage était de 24 heures avec des débits de l'ordre de 30 m<sup>3</sup>.h<sup>-1</sup>. Les campagnes de prélèvements se sont déroulées en janvier (hiver), avril (printemps), juillet (été) et décembre (automne) 2010. Chaque campagne représente 14 jours de prélèvements. La phase gazeuse a été prélevée uniquement durant sept jours de la campagne hivernale. Un prélèvement témoin (« blanc de terrain ») a également été réalisé pour chaque campagne afin d'évaluer la qualité et la propreté des prélèvements.

Des mesures de polluants dits classiques ont également été effectuées sur l'ensemble de la campagne de mesures : dioxyde de soufre (SO<sub>2</sub>), monoxyde d'azote (NO), dioxyde d'azote (NO<sub>2</sub>), ozone (O<sub>3</sub>), PM<sub>10</sub> (avec correction de la part volatile par module FDMS), ainsi que des mesures des principaux paramètres météorologiques.

## 2) Analyses

Afin de caractériser la composition chimique des aérosols, diverses analyses ont été réalisées. Ces analyses concernent la quantification de la matière carbonée, des principales espèces ioniques, ainsi que la spéciation à l'échelle moléculaire de la matière organique particulaire (MOP).

Les analyses d'ions ont été réalisées par chromatographie ionique (Jaffrezo et al., 1998) après extraction solide/liquide (filtre/eau) sous agitation vortex. L'analyse des anions permet la quantification du chlorure, du nitrate, du sulfate et de l'oxalate. L'analyse des cations permet la quantification du sodium, de l'ammonium, du potassium, du magnésium et du calcium. Ces ions sont les ions majeurs présents dans les particules atmosphériques et peuvent être des indicateurs du type de sources de pollution.

La matière organique constitue une fraction importante de l'aérosol atmosphérique. Sa détermination globale se fait par la mesure simultanée de l'OC (carbone organique) et de l'EC (carbone élémentaire) à l'aide d'une méthode thermo-optique (Aymoz et al., 2007), en utilisant le protocole de référence (EUSAAR2) qui sera implémenté prochainement au niveau Européen. En complément de la mesure globale de l'OC, la spéciation de la MOP permet d'identifier un très large champ de composés organiques où toutes les familles chimiques sont représentées. Certains composés constitutifs de cette MOP sont des indicateurs ou traceurs de sources d'émission.

Ainsi, le lévoglucosan, traceur largement reconnu de la combustion de biomasse (composé émis uniquement par cette source ; Simoneit et al., 1999), ainsi que ses deux isomères (mannosan et galactosan) ont été analysés par GC-MS après extraction solide/liquide (filtre/solvants organiques) à l'aide d'un Accelerated Solvent Extractor à 100°C et 100 bar. Par la même méthode analytique ont été analysés :

- le cholestérol, indicateur des émissions culinaires,
- les alcanes, indicateurs des émissions biogéniques,
- les hopanes (dont le 17α(H)-21β(H)-hopane), traceurs des émissions véhiculaires.

Par ailleurs, des analyses de 13 HAP (Hydrocarbures Aromatiques Polycycliques) parmi les 16 classés prioritaires par l'US-EPA et composés indicateurs des combustions ont également été effectuées par HPLC-fluorescence : Fluoranthène (Fla), Pyrène (Pyr), Benzo(a)anthracène (BaA), Chrysène (Chr), Retène (Ret), Benzo(e)pyrène (BeP), Benzo(b)fluoranthène (BbF), Benzo(k)fluoranthène (BkF),



Benzo(a)pyrene (BaP), Benzo(ghi)perylene (BghiP), Dibenzo(Ah)anthracene (DBahA), Indeno(1,2,3-cd)pyrene (IP), Coronene (Cor).

### 3) Traitements des données

L'aérosol est composé d'une fraction organique et d'une fraction inorganique. La fraction organique peut être quantifiée globalement par la mesure du carbone organique (OC) et du carbone élémentaire (EC). A l'échelle moléculaire, l'OC est composé de différentes grandes familles chimiques tels que les acides, alcanes, HAP (Hydrocarbures Aromatiques Polycycliques), méthoxyphénols, sucres (dont le lévoglucosan)... Dans la fraction inorganique de l'aérosol, nous identifions les ions majeurs (sulfates, ammonium et nitrates) et d'autres espèces ioniques tels que le calcium permettant de calculer la part de poussières crustales appelée « dust » ou le sodium permettant de calculer la part de sels marins « sea-salt ». La fraction inorganique est composée également d'espèces chimiques non identifiées dans cette étude, telles que les métaux.

Les contributions de différentes sources primaires d'émissions à la concentration soit de carbone organique, soit de la matière organique, soit enfin des PM<sub>10</sub> peuvent être estimées par une approche mono-traceur à partir des concentrations en espèces traceurs de sources et de données de la littérature caractérisant ces sources d'émissions, ou encore également à l'aide d'une approche statistique multitraceurs : Molecular Markers – Chemical Mass Balance (MM-CMB) nécessitant une spéciation chimique fine des PM et la disponibilité dans la littérature de profils chimiques des principales sources d'émissions contribuant aux PM mesurées sur le site ambiant.

La comparaison des mesures chimiques avec les mesures de masse (réalisées avec un appareillage TEOM FDMS pour cette étude) doit prendre en compte :

- les incertitudes de mesures des espèces chimiques,
- les incertitudes sur les facteurs de conversion utilisés et sur les estimations statistiques de contributions,
- la part des espèces non mesurées via les analyses chimiques, par exemple, la grande part de la fraction minérale issue d'émissions liées aux activités humaines (travaux, remise en suspension des poussières du sol par le trafic, ...), les espèces métalliques issues de nombreux types d'activités (industrielles par exemple),
- les incertitudes sur les mesures de masse par TEOM, qui prennent en compte des espèces plus ou moins hydratées.

#### a) L'approche mono-traceur

A partir des concentrations en carbone organique et en lévoglucosan, et en utilisant les données à l'émission de la littérature (Fine et al., 2004), la contribution de la combustion de biomasse au carbone organique de l'aérosol est estimée à partir de la relation suivante :

$$Contribution = \frac{[lévoglucosan] \times 7,35}{[OC]} \quad (1)$$

avec [lévoglucosan] : concentration atmosphérique en lévoglucosan (en ng.m<sup>-3</sup>)  
[OC] : concentration atmosphérique en carbone organique (en ng.m<sup>-3</sup>)

Cette contribution est exprimée en pourcentage. Le facteur 7,35 est un facteur issu de mesures d'OC et de lévoglucosan effectuées à l'émission pour des bois durs par Fine et al. (2004). Ce facteur est couramment utilisé pour les études européennes.

A partir des concentrations en carbone élémentaire et en lévoglucosan, et en utilisant les données à l'émission de la littérature (El Haddad et al., 2009 ; Fine et al., 2004), la contribution des émissions véhiculaires aux concentrations de carbone organique de l'aérosol peut être estimée à partir de la formule :



$$Contribution = \frac{[EC]_{véhiculaire} / 1,65}{[OC]} \quad (2)$$

avec  $[EC]_{véhiculaire} = [EC] - [EC]_{combustion\ bois}$   
 $[EC]$  : concentration en carbone élémentaire (en  $ng.m^{-3}$ )  
 $[EC]_{combustion\ bois} = [lévoglucosan] / 2,72$   
 $[lévoglucosan]$  : concentration en lévoglucosan (en  $ng.m^{-3}$ )  
 $[OC]$  : concentration en carbone organique (en  $ng.m^{-3}$ )

Le facteur 1,65 est le ratio entre l'EC et l'OC pour des mesures à la source des émissions véhiculaires (El Haddad et al., 2009) et le facteur 2,72 est issu de mesures d'EC et de lévoglucosan à l'émission pour des bois durs (Fine et al., 2004). La contribution des émissions véhiculaires obtenue par cette approche mono-traceur est basée sur l'hypothèse que l'EC mesuré provient très majoritairement de la combustion du bois et des émissions véhiculaires. Cette hypothèse est raisonnable sur des zones résidentielles en hiver en l'absence de toute autre source identifiée émettrice d'EC.

La concentration en matière organique (OM) est déterminée en appliquant un facteur correctif prenant en compte les atomes autres que le carbone formant la matière organique (en particulier l'oxygène). Ce facteur correctif est classiquement de 2,2 pour la combustion de bois et de 1,2 pour les émissions véhiculaires (Turpin and Lim, 2001). Pour la matière carbonée ne provenant pas exclusivement d'une de ces deux sources spécifiques, tel que c'est généralement le cas pour une atmosphère de fond urbain ou rural, un facteur médian de 1,4 est utilisé en périodes printanière et estivale. En périodes automnale et hivernale, lorsque les émissions dues à la combustion du bois sont plus importantes, le facteur utilisé est alors de 1,7.

Finalement, les contributions des apports crustaux non marins (« dust nss») et des sels marins (« sea salt ») sur la masse de  $PM_{10}$  sont estimées en calculant le rapport entre les teneurs en dust nss et en sea salt (obtenues à partir des concentrations en calcium et sodium auxquelles des facteurs sont appliqués ; Putaud et al., 2004) et la masse totale de  $PM_{10}$ . Les teneurs en dust nss et en sea salt sont calculées ainsi :

$$[dust\ nss] = \frac{[Ca^{2+}] - [Na^+]}{26} \times 5,6 \quad (3)$$

$$[sea\ salt] = [Na^+] \times 2,54$$

### b) L'approche multi-traceurs : MM-CMB

La méthodologie MM-CMB permet de déterminer statistiquement et quantitativement les contributions des sources primaires de PM sur un site récepteur. Cette méthode, développée par l'US-EPA (United States Environmental Protection Agency), repose sur une approche statistique résolvant de manière itérative des équations de bilan de matière. L'approche consiste à décrire la concentration des constituants d'un échantillon ambiant donné comme une combinaison linéaire des compositions chimiques relatives des sources.

Ainsi, la concentration d'une espèce chimique  $i$  analysée sur le site récepteur  $k$  peut être exprimée par la formule suivante :

$$C_{ik} = \sum_{j=1}^m f_{ijk} \cdot a_{ij} \cdot s_{jk} \quad (4)$$

avec  $s_{jk}$  : concentration observée sur le site  $k$  et originaire de la source  $j$  ( $s_{jk}/OC$  représente alors la contribution relative de la source  $j$  à l'OC mesurée sur le site  $k$ ),  
 $a_{ij}$  : concentration relative du composé  $i$  dans les émissions de la source  $j$ ,  
 $f_{ijk}$  : coefficient de fractionnement qui caractérise les modifications de  $a_{ij}$  au cours du transport

de la source  $j$  vers le site  $k$  (le coefficient de fractionnement prend en compte l'appauvrissement du constituant  $i$  engendré par des processus tels les transformations chimiques ou l'équilibre gaz/particules. Il peut également être utilisé pour expliciter l'enrichissement en constituant  $i$  dû à des processus de formation ou de condensation. En pratique les  $f_{ijk}$  ne sont pas connus. Le système d'équations (1) doit alors être résolu à l'aide de composés très faiblement réactifs et purement en phase particulaire pour lesquels  $f_{ijk}$  est égal à 1).

La validité statistique de cette résolution repose entre autres sur les hypothèses suivantes :

- les profils à l'émission des sources sont connus et constants dans le temps,
- les espèces chimiques utilisées sont inertes chimiquement,
- toutes les sources significatives sont incluses.

# Résultats

## 1) Qualité des prélèvements

La qualité des prélèvements et leur propreté peuvent être estimées par l'analyse de blancs de prélèvements (filtres ayant subi le même protocole d'échantillonnage que des filtres réels, mais sans aucun volume d'air prélevé). Les concentrations analysées peuvent ainsi être corrigées par des données quantifiant la contamination lors de l'échantillonnage, du stockage et du transfert des filtres en soustrayant la masse de composés mesurée sur le filtre blanc à la masse mesurée dans l'échantillon. Lors des campagnes de prélèvements réalisées à Lanslebourg, les blancs représentent 1,6 à 10,4% du carbone organique mesuré, 3,3 à 4,8% des concentrations moyennes en espèces ioniques, 0,3 à 6,3% pour celles des HAP essentiellement les plus légers (aucune contamination observée sur les lourds), 1,9 à 27,9% des alcanes (C20 à C31), au plus 1,3% des concentrations en traceurs de la combustion de biomasse et sont nuls pour les autres espèces organiques analysées (tableau 1).

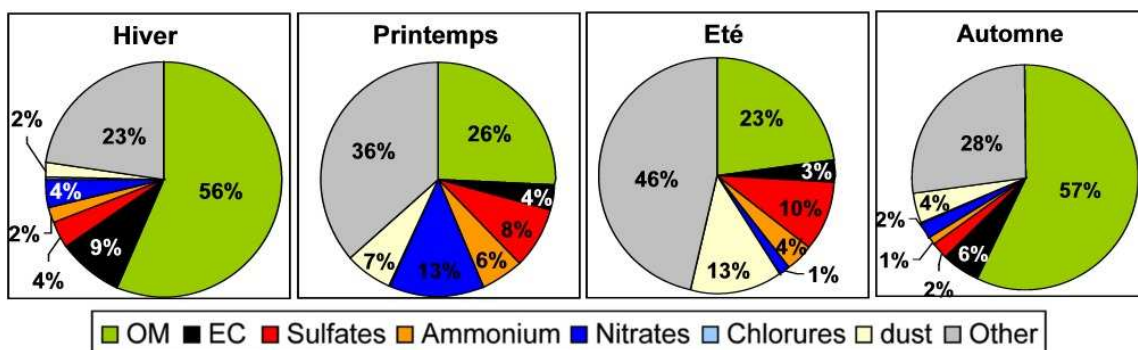
%	OC	Ions	HAP	Alcanes	Traceurs BB
Hiver	2.8	4.4	0.3	27.9	0.0
Printemps	3.1	4.8	1.6	9.6	0.1
Été	10.4	3.9	6.3	8.7	1.3
Automne	1.6	3.3	4.1	1.9	0.6

**Tableau 1 : Ratios moyens entre les masses de composés mesurées sur les filtres blancs et celles mesurées sur les échantillons (en %).**

## 2) Bilan massique et chimie des PM

### a) Composition chimique moyenne des PM<sub>10</sub>

Une caractérisation globale de l'aérosol est réalisée en étudiant les parts respectives de chacune des espèces quantifiées à la concentration massique en PM<sub>10</sub>. Les compositions chimiques reportées (figure 2) représentent des moyennes sur chaque campagne de prélèvements (14 échantillons). La composition chimique des PM est différente selon les saisons. La matière organique particulaire (MOP) représente 23 à 56% des PM (en été et hiver respectivement). La proportion de carbone élémentaire varie entre 3 et 9%. Les espèces ioniques majeures représentent 5 à 27% des PM (à l'automne et au printemps respectivement). La fraction « other » correspond à la masse des PM non identifiée par les analyses chimiques. Cette fraction est maximale en été représentant 46% des PM et minimale en hiver représentant 23% des PM.



**Figure 2 : Compositions relatives moyennes (en %) des PM<sub>10</sub> à Lanslebourg en hiver, au printemps, en été et à l'automne.**

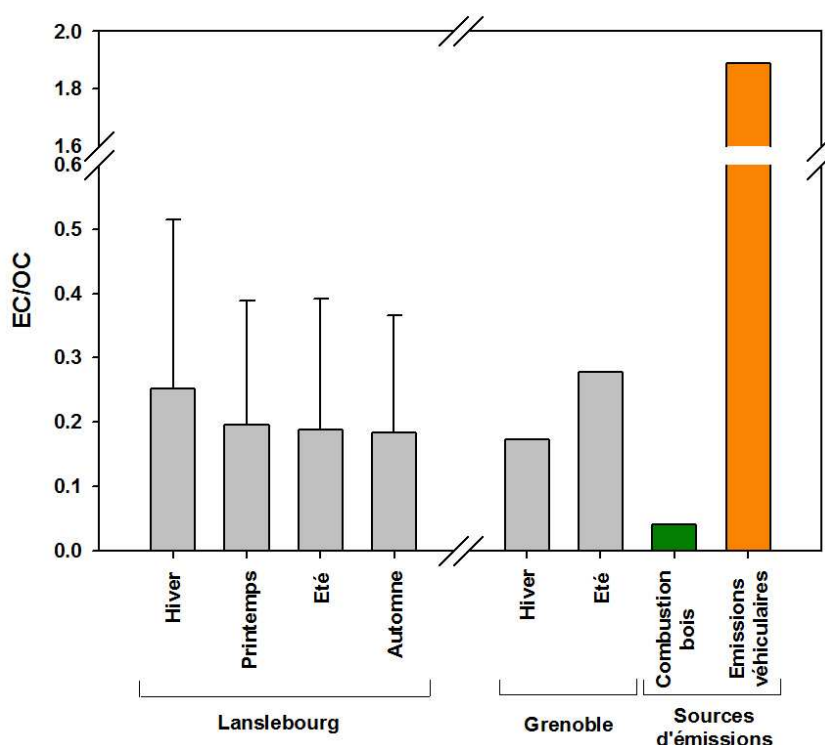
En hiver, les PM sont composées en grande partie de MOP et de carbone élémentaire. Les sources majoritaires en hiver sont donc des sources émettrices de MOP telles que les combustions.

En été, la MOP représente une plus faible proportion de la masse des PM caractérisant l'influence d'autres sources que les combustions mais 46% de la masse des PM reste non identifié par les analyses chimiques. Cette part non-identifiée peut contenir par exemple des métaux ou espèces ioniques non quantifiées au cours de cette étude.

## b) Traceurs et indicateurs de combustions présents dans l'aérosol

### - Le carbone élémentaire

Les ratios entre le carbone élémentaire et le carbone organique (EC/OC) contenus dans les PM sont différents selon les sources d'émissions. En particulier, la combustion du bois émet en grande proportion de l'OC alors que les émissions véhiculaires émettent majoritairement de l'EC. Ainsi, le ratio EC/OC est de 0,04 pour les émissions de combustion du bois (Fine et al., 2004) et 1,89 pour les émissions véhiculaires (El Haddad et al., 2009). A Lanslebourg, le ratio EC/OC est constant au cours de l'année : il est en moyenne de 0,20 (figure 3). Ce résultat montre l'influence de plusieurs sources d'émissions de carbone organique et de carbone élémentaire.



**Figure 3 : Ratios EC/OC mesurés pour les émissions de combustion de bois, les émissions véhiculaires, à Grenoble en hiver et été et à Lanslebourg en hiver, au printemps, en été et à l'automne.**

### - Les traceurs de la combustion de biomasse

Le lévoglucosan est communément utilisé dans une première approche qualitative en étudiant sa proportion par rapport au carbone organique contenu dans les PM. Cette approche est réalisée au travers du rapport OC/Lévo (carbone organique/lévoglucosan). Dans la littérature, ce ratio est de 7,35 pour la combustion de bois dur en foyer fermé de type poêle (Fine et al., 2002) et de 27,49 pour la combustion de feuilles (Schmidl et al., 2008b). Les valeurs de ce rapport sont donc dépendantes de la nature de bois brûlé. Néanmoins, le rapport OC/Lévo permet d'avoir une première approche sur la contribution de la combustion de biomasse. Les ratios mesurés à Lanslebourg en hiver et à l'automne sont semblables à ceux mesurés sur deux autres sites de vallées alpines (figure 4). Avec des valeurs comprises entre 5.9 et 9.7 sur les différents sites proches des valeurs caractérisant combustion de bois en foyer fermé, ces ratios paraissent indiquer une contribution importante de la combustion de

biomasse à l'aérosol organique en hiver. L'augmentation de ces valeurs en automne et au printemps illustre une diminution de cette contribution en lien avec des niveaux en lévoglucosan plus faibles. En été les valeurs sont beaucoup plus élevées lorsque la source de combustion du bois est peu présente.

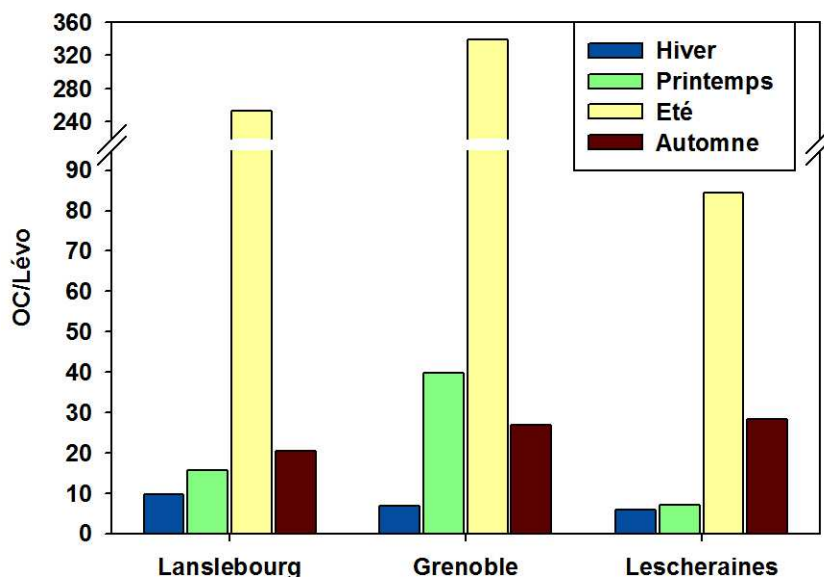


Figure 4 : Ratios OC/Lévo à Lanslebourg, Grenoble et Lescheraines en hiver, au printemps, en été et à l'automne.

La combustion de biomasse émet du lévoglucosan mais également ses deux isomères : le mannosan et le galactosan. Les ratios lévoglucosan/mannosan, lévoglucosan/OC et mannosan/OC constituent des outils permettant d'estimer les parts des combustion de bois dur et de bois tendre sur un site récepteur (méthode de Schmidl et al., 2008a adaptée). La proportion de bois tendre brûlé est importante sur le site de Lanslebourg à toutes les saisons en comparaison avec les autres sites de vallées alpines (figure 5). Cette particularité peut être induite par la pratique de l'affouage réalisé sur la commune de Lanslebourg entraînant une utilisation importante de bois tendre pour le chauffage (Cf enquête de l'ASDER mai 2010). Cette pratique semble influencer fortement la signature chimique des émissions de combustion de biomasse.

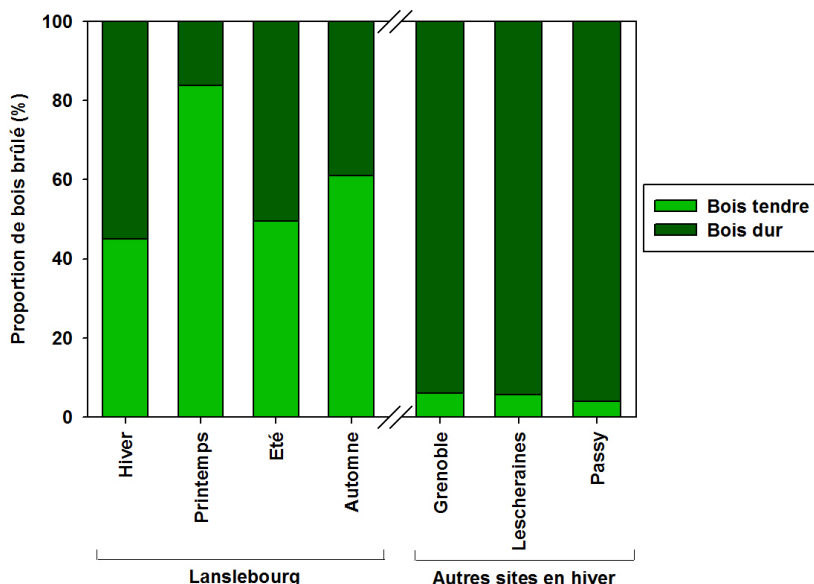


Figure 5 : Proportions (en %) de bois tendre et de bois dur brûlés à Lanslebourg en hiver, au printemps, en été et à l'automne et à Grenoble, Lescheraines et Passy en hiver.

- Les HAP

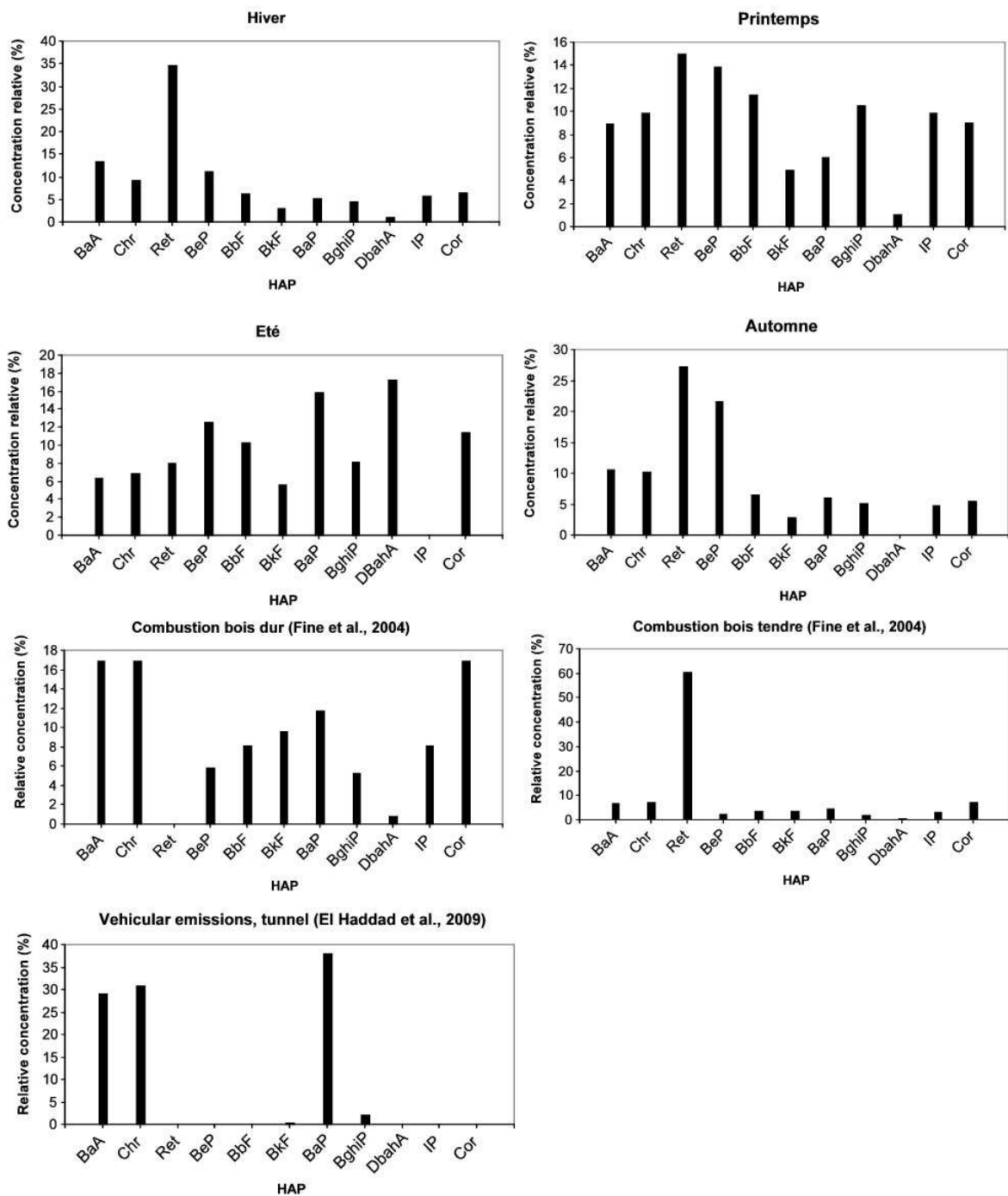
Les Hydrocarbures Aromatiques Polycycliques sont émis par tous types de combustions. Ils proviennent donc à la fois de la combustion de biomasse, des émissions véhiculaires et des autres combustibles fossiles. Pour autant, les profils en HAP (concentrations relatives en HAP par rapport à la somme totale en HAP) peuvent présenter des différences selon la source d'émission. L'étude des profils HAP peut donc apporter des informations sur les sources d'émissions de ces composés.

Actuellement en France, un seul HAP fait l'objet d'une réglementation en atmosphère ambiante : le Benzo(a)Pyrene (BaP). Une valeur cible est fixée en moyenne annuelle à  $1 \text{ ng.m}^{-3}$ . La concentration moyenne en BaP mesurée pour chaque saison étudiée à Lanslebourg varie entre  $0,1 \text{ ng.m}^{-3}$  en été et  $2,5 \text{ ng.m}^{-3}$  en hiver. La somme moyenne en HAP à Lanslebourg est également maximale en hiver :  $49,4 \text{ ng.m}^{-3}$  et minimale en été :  $0,8 \text{ ng.m}^{-3}$  (tableau 2). Pour comparaison, en hiver à Grenoble, la concentration moyenne en BaP est de  $1,0 \text{ ng.m}^{-3}$  et la somme en HAP est de  $13,4 \text{ ng.m}^{-3}$ . Les concentrations en BaP et HAP totaux observées en hiver à Lanslebourg sont donc supérieures à celles de Grenoble.

<b>ng.m<sup>-3</sup></b>	<b>BaP</b>	<b>Somme HAP</b>
<b>Hiver</b>	2.5	49.4
<b>Printemps</b>	0.4	6.7
<b>Été</b>	0.1	0.8
<b>Automne</b>	2.1	35.0

**Tableau 2 : Concentrations moyennes en BaP et de la somme des HAP en hiver, au printemps, en été et à l'automne à Lanslebourg.**

Les profils de HAP particuliers obtenus à Lanslebourg sont différents selon les saisons (figure 6). Les HAP majoritaires sont des HAP à poids moléculaires moyen du BaA au BkF, ce qui est plutôt caractéristique de combustions de biomasse (les profils de combustion de bois dur et de bois tendre ainsi que celui des émissions véhiculaires sont donnés en comparaison sur la figure 6). Le Retene est un HAP caractéristique des émissions de combustion de bois tendre (figure 6). Il est présent en proportion importante dans les profils observés à Lanslebourg en hiver, montrant l'influence de cette source sur la signature chimique en HAP.



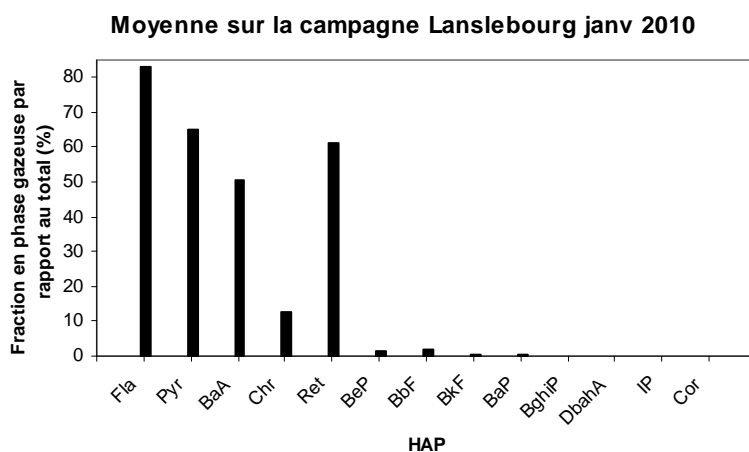
**Figure 6 : Signature chimique en HAP particulaires à Lanslebourg en hiver, au printemps, en été et à l'automne ainsi que pour les émissions de combustion de bois dur et tendre et les émissions véhiculaires en tunnel.**

Les composés de la famille des HAP présentent des propriétés physico-chimiques relativement variables notamment en terme de volatilité. Ainsi certains de ces composés sont présents soit essentiellement en phase gazeuse, soit en phase particulaire, soit se partagent entre les deux phases. Cette partition peut être différente entre les mesures réalisées en atmosphère ambiante et celles réalisées lors des processus d'émission du fait des conditions de températures marquées entre ces deux situations.

Lors de la campagne de prélèvements à Lanslebourg en janvier 2010, des prélèvements de la phase gazeuse ont également été réalisés afin d'étudier la répartition des HAP entre la phase gazeuse et la phase particulaire. Les HAP fortement présents en phase gazeuse sont les plus légers : le Fluoranthène (Fla) et le Pyrene (Pyr), présents en moyenne à ~74% dans la phase gazeuse (figure 7).



Le Retene est également présent à plus de 61% en phase gazeuse (figure 7) confirmant l'importance de la combustion de bois tendre sur le profil chimique en HAP.



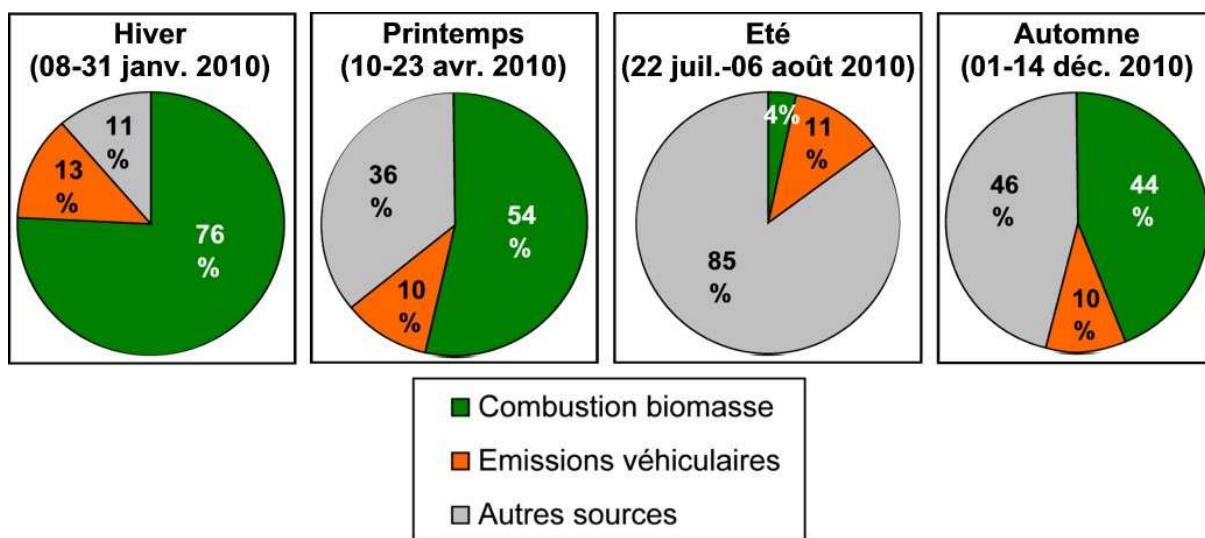
*Figure 7 : Répartition moyenne des HAP entre la phase gazeuse et la phase particulaire à Lanslebourg en janvier 2010 (7 échantillons).*

### 3) Estimations de la contribution des sources d'émissions aux PM

#### a) Sources d'émission en PM : approche mono-traceur

L'approche mono-traceurs est une méthode de quantification de l'influence de certaines sources d'émission en PM basée sur l'utilisation de traceurs ou de rapports spécifiques à la source considérée. Loin d'être exhaustive, elle permet toutefois d'évaluer la part des principales sources d'émission (transport, combustion de biomasse) dont les facteurs d'émission des traceurs et des paramètres principaux des aérosols (OC, EC, ions majeurs....) sont largement documentés. Elle ne permet pas de prendre en compte des processus d'émissions moins caractérisés.

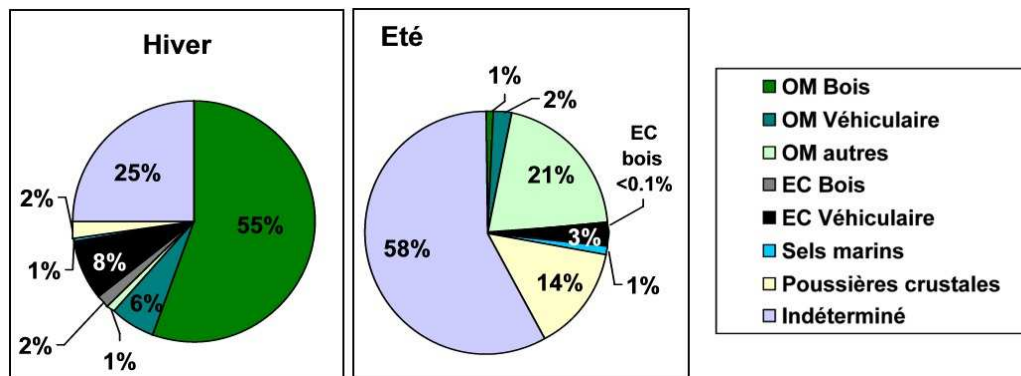
En utilisant les relations présentées dans la section 3a de la partie Matériel et méthodes, les contributions de la combustion de biomasse et des émissions véhiculaires au carbone organique contenu dans les PM<sub>10</sub> peuvent être calculées en s'appuyant sur le lévoglucosan traceur univoque de cette source et le carbone élémentaire. Les contributions moyennes de ces deux sources pour chaque campagne de prélèvements sont présentées sur la figure 8. La contribution de la combustion de biomasse au carbone organique varie entre 4% et 76%, contributions mesurées en été et en hiver respectivement (figure 8). La contribution des émissions véhiculaires est stable au cours de l'année et représente en moyenne 11% de l'OC. La fraction des autres sources correspond à la fraction non attribuée à la combustion de biomasse et aux émissions véhiculaires. Elle est maximale en été, représentant 85% de l'OC et minimale en hiver, représentant 11% de l'OC. Cette contribution dépend de la proportion d'OC attribuée à la combustion de biomasse, il est donc normal qu'elle soit maximale lorsque la contribution de la combustion de biomasse est faible. Les autres sources d'émissions de matière organique particulaire peuvent être en été notamment les émissions naturelles des végétaux et le processus secondaire de formation de la MO. A Lanslebourg, la contribution de la combustion de biomasse à l'OC est importante toute l'année hormis en été (figure 8).



**Figure 8 : Contributions moyennes de la combustion de biomasse, des émissions véhiculaires et des autres sources au carbone organique (%) calculées avec l'approche mono-traceur à Lanslebourg lors des quatre campagnes réalisées en 2010.**

L'approche mono-traceur permet d'estimer les contributions de la combustion de biomasse et des émissions véhiculaires à l'OC et à l'OM. Elle permet également d'estimer les contributions des sels marins et des poussières crustales aux PM (cf. section 3a de la partie Matériel et méthodes). En combinant les différentes approches mono-traceur, un bilan de masse des contributions des principales sources primaires aux PM peut être réalisé. Les bilans obtenus pour les deux saisons extrêmes sont présentés sur la figure 9. En hiver, la combustion du bois et les émissions véhiculaires sont les sources majoritaires des PM alors qu'en été, les autres sources organiques (qui peuvent être les émissions naturelles des végétaux par exemple) et les poussières crustales sont les sources principales de PM identifiées. Cependant en été, plus de la moitié de la masse des PM ne peut être attribuée à une source

particulière à partir de cette approche. La masse correspondante est en partie due aux espèces ioniques majeures (nitrates, sulfates, ammonium) représentant 15% des PM (cf. figure 2) provenant d'émissions primaires ou secondaires et être composée d'autres espèces inorganiques non mesurées dans cette étude comme par exemple des métaux ou autres composés terrigènes. Notamment, cette approche utilisée pour l'évaluation de la contribution des sources crustales ne prenant en compte uniquement le calcium peut sous-estimée cette source comme cela a été montré dans le programme national ADEME-Particul'Air.



**Figure 9 : Contributions moyennes des principales sources primaires aux PM (%) calculées avec les approches mono-traceur à Lanslebourg en hiver et été 2010.**

#### **b) Sources d'émission en PM : approche multi-traceurs (MM-CMB)**

L'approche quantitative multi-traceurs MM-CMB nécessite de sélectionner des profils chimiques caractéristiques des principales sources d'émissions présentes sur le site étudié. Ces profils chimiques sont soit issus de la littérature soit réalisés dans le cadre de nos propres travaux.

La composition chimique des PM a permis de déterminer une influence des combustions de bois dur et de bois tendre à l'OC (cf. paragraphe 2.b). Des profils d'émissions de ces deux sources seront donc utilisés dans l'approche MM-CMB.

Le choix des profils est également orienté par les données du cadastre d'émissions réalisé en 2007 (données Air-APS extraites des enquêtes INSEE) qui permet de connaître en nombre de foyers les modes de chauffage principaux utilisés dans la commune. A Lanslebourg, la répartition des modes de chauffage en résidence principale selon le type d'énergie est la suivante : 43% de fioul, 28% de bois et 29% d'électrique.

Un profil chimique des composés organiques émis par les chaudières au fioul domestique n'existant pas dans la littérature, il a donc été réalisé dans le cadre de cette étude et utilisé dans la méthodologie MM-CMB.

Ainsi, ces éléments ont conduit au choix de différents profils chimiques d'émissions de sources primaires issus de la littérature ou obtenus à partir de nos travaux précédents pour l'utilisation de la méthode d'estimation de contributions des sources MM-CMB. Les profils sont :

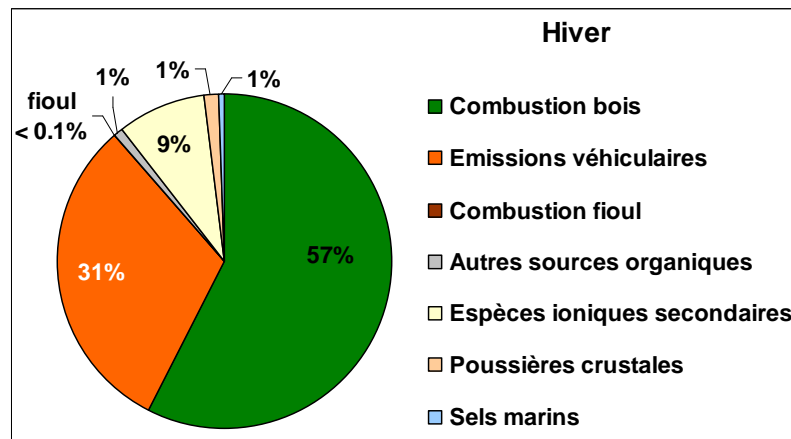
- la combustion de bois dur issu des travaux de Fine et al. (2002),
- la combustion de bois tendre issu des travaux de Fine et al. (2004),
- les émissions véhiculaires directes de camions diesel des travaux de Schauer et al., (1999),
- la combustion de fioul domestique (Piot, 2011),
- les émissions de feux de déchets verts (étude ASCOPARG),
- les émissions de détritux végétaux issu des travaux de Rogge et al. (1993).

La méthode MM-CMB nécessite également le choix de traceurs de sources. Les traceurs utilisés pour l'estimation des contributions de sources à Passy en hiver sont :

- le carbone élémentaire

- trois hopanes (traceurs des émissions véhiculaires)
- cinq *n*-alcanes (du C27 au C31) et deux alcanes ramifiés (pristane et phytane),
- cinq HAP : le BbF, le BkF, le BeP, le B(ghi)P et l'IP,
- le lévoglucosan.

L'approche MM-CMB est basée sur la reconstitution de la composante organique de l'aérosol en définissant la part des principales sources d'émissions. L'utilisation des données d'espèces inorganiques disponibles dans les profils chimiques des sources permet ensuite d'atteindre la reconstitution de la concentration massique en PM, en considérant de plus d'autres sources non émettrices de matière carbonée (émissions crustales, émissions marines, parts secondaires du sulfate, nitrate et ammonium). Cette approche a été appliquée aux résultats obtenus sur la campagne hivernale et les contributions moyennes des sources obtenues sont présentées sur la figure 10.



**Figure 10 : Contributions moyenne des principales sources primaires aux PM<sub>10</sub> (en %) sur l'ensemble de la campagne réalisée à Lanslebourg en janvier 2010.**

*En hiver, la contribution de la combustion de biomasse aux PM est en moyenne de 57% à Lanslebourg. Pour comparaison, les estimations des contributions de la combustion de biomasse aux PM en hiver sur d'autres sites de vallées alpines en utilisant la même méthode sont de 56% à Chamonix, 65% à Lescheraines, 58% à Passy et 42% à Grenoble.*

*La contribution des émissions véhiculaires est en moyenne de 31%. Cette contribution est largement supérieure à celles observées sur d'autres sites de vallées alpines : 26% à Chamonix, 6% à Lescheraines, 10% à Passy et 10% à Grenoble.*

*La méthodologie n'attribue pas de part à la combustion du fioul aux PM. Les contributions aux PM des autres sources de carbone organique ainsi que des poussières crustales et des sels marins sont très faibles : environ 1% chacune. Les émissions secondaires d'espèces ioniques provenant de l'oxydation de SO<sub>2</sub> ou des NO<sub>x</sub> représentent 9% des PM mesurées en hiver à Lanslebourg.*

*En été, l'approche MM-CMB n'a pu être appliquée : les concentrations en PM sont basses entraînant des concentrations en traceurs inférieures aux limites de détection en particulier les traceurs des émissions véhiculaires. La quantification de ces composés n'est donc pas réalisable et les sources d'émissions de PM ne peuvent pas être estimées sans ces composés.*

## Conclusion

L'étude réalisée à Lanslebourg en 2010 a permis la détermination de la composition chimique des PM aux quatre saisons de l'année. La composition chimique globale des PM est différente selon les saisons. En hiver, les PM sont composées d'une part importante de MOP représentant 56% des PM, d'une faible proportion d'espèces ioniques et les analyses réalisées permettent une détermination importante de la composition chimique des PM (77%). En été, la MOP représente seulement 23% des PM et la fraction ionique est plus importante qu'en hiver représentant 16% des PM mais 46% de la masse de PM reste indéterminée par les analyses chimiques.

La MOP contenue dans les PM est composée en hiver d'une fraction importante de lévoglucosan, traceur de la combustion de biomasse. Le rapport entre le carbone élémentaire et le carbone organique contenus dans les PM est stable tout au long de l'année. De plus, lors des analyses de la composition chimique de la MOP, les concentrations en HAP ont été déterminées : les concentrations en BaP et en HAP totaux sont élevées à Lanslebourg tout au long de l'année, particulièrement en hiver où la concentration en BaP est 2,5 fois supérieure à celle mesurée à Grenoble et la concentration totale en HAP est 3,7 fois supérieure à celle de Grenoble. De plus, les signatures chimiques en HAP à Lanslebourg semblent marquées par l'influence de la combustion du bois, en particulier de bois tendre.

La combustion du bois contribue en hiver à 76% du carbone organique contenu dans les PM et 57% des PM. En été, la contribution à l'OC est plus faible : 4%. Les analyses chimiques des traceurs de la combustion du bois ont permis d'estimer que la signature chimique de la combustion du bois était fortement marquée par la combustion de bois tendre sur le site de Lanslebourg et quelque soit la saison.

La contribution des émissions véhiculaires au carbone organique est stable au cours de l'année représentant en moyenne 11% de l'OC. Cette source contribue à 31% des PM.

En résumé, en hiver les sources principales de PM sont la combustion de biomasse et les émissions véhiculaires. Les autres sources primaires contribuent faiblement aux émissions de PM. Les sources secondaires d'espèces ioniques représentent seulement 9% des PM.

En été, la combustion du bois contribue plus faiblement à l'OC. D'autres sources primaires de PM sont observées, en particulier les émissions de poussières crustales représentant 14% des PM. De plus, en cette saison les conditions météorologiques favorisent la formation d'espèces ioniques secondaires par oxydation photochimique du SO<sub>2</sub> et des NO<sub>x</sub> qui peuvent contribuer significativement aux PM.

## Références bibliographiques

- Aymoz G. et al., 2007. Seasonal variation of PM10 main constituents in two valleys of the French Alps. I: EC/OC fractions. *Atmospheric Chemistry and Physics* 7, 661–675.
- El Haddad I. et al., 2009. Comprehensive primary particulate organic characterization of vehicular exhaust emissions in France. *Atmospheric Environment* 43, 6190–6198.
- Fine P.M. et al., 2002. Chemical characterization of fine particle emissions from the fireplace combustion of woods grown in the Southern United States. *Environmental Science and Technology* 36, 1442–1451.
- Fine P.M. et al., 2004. Chemical characterization of fine particle emissions from the fireplace combustion of wood types grown in the Midwestern and Western United States. *Environmental Engineering Science* 21(3), 387–409.
- Fraser M.P. et al., 2003. Separation of fine particulate matter emitted from gasoline and diesel vehicles using chemical mass balancing techniques. *Environmental Science and Technology* 37, 3904–3909.
- Jaffrezo J.-L. et al., 1998. Carboxylic acids measurements with ionic chromatography. *Atmospheric environment* 32, 2705–2708.
- Piot C., 2011. Polluants atmosphériques particulaires en Rhône-Alpes : caractérisation et sources d'émissions. Thèse de Grenoble Universités, soutenance prévue en juillet 2011.
- Putaud J.-P. et al., 2004. Size-segregated aerosol mass closure and chemical composition in Monte Cimone (I) during MINATROC. *Atmospheric Chemistry and Physics* 4, 889–902.
- Robinson A.L. et al., 2006. Source apportionment of molecular markers and organic aerosol – 1. Polycyclic aromatic hydrocarbons and methodology for data visualization. *Environmental Science and Technology* 40, 7803–7810.
- Rogge W.F. et al., 1993. Sources of fine organic aerosol. 5. Natural gas home appliances. *Environmental Science and Technology* 27, 2736–2744.
- Rogge W.F. et al., 1993. Sources of fine organic aerosol. 2. Noncatalyst and catalyst-equipped automobiles and heavy-duty diesel trucks. *Environmental Science and Technology* 27, 636–651.
- Schmidl C. et al., 2008a. Chemical characterisation of fine particle emissions from wood stove combustion of common woods growing in mid-European Alpine regions. *Atmospheric Environment* 42, 126–141.
- Schmidl C. et al., 2008b. Chemical characterisation of particle emissions from burning leaves. *Atmospheric Environment* 42, 9070–9079.
- Simoneit B.R.T. et al., 1999. Levoglucosan, a tracer for cellulose in biomass burning and atmospheric particles. *Atmospheric environment* 33, 173–182.
- Turpin B.J. and H.J. Lim., 2001. Species contributions to PM2.5 mass concentrations : revisiting common assumptions for estimating organic mass. *Aerosol Science and Technology* 35 (1), 602–610.
- Weitkamp E.A. et al., 2005. Fine particle emission profile for a large coke production facility based on highly time-resolved fence line measurements. *Atmospheric environment* 39, 6719–6733.



**L'Air de l'Ain et des Pays de Savoie**

Savoie Technolac - BP 339  
73377 LE BOURGET DU LAC Cedex

Tél. 04.79.69.05.43. - Fax. 04.79.62.64.59.  
e-mail: [air-aps@atmo-rhonealpes.org](mailto:air-aps@atmo-rhonealpes.org)

Membre de



**Rhône-Alpes** Région

