FORMES : Fraction organique des aérosols – Méthodologie d'estimation des sources

FORMES : ORGANIC FRACTION OF AEROSOL : METHODOLOGY FOR SOURCE APPORTIONMENT

Programme Primequal
Résumés

Laboratoire de Glaciologie et Géophysique de l'Environnement
LGGE - UMR 5183
54 Rue Molière 38 402 Saint Martin d'Hères Cedex

Jean-Luc Jaffrezo
LGGE/CNRS
jaffrezo@lgge.obs.ujf-grenoble.fr

Date : 01/03/2010

N° de contrat : 0001135
Date du contrat : 24/12/2007

RESUMES

RESUME

Le projet de démonstration FORMES (Fraction ORganique de l'aérosol urbain : Méthodologies d'Estimation des Sources) avait pour objectifs d'évaluer et de contraindre les principales méthodes de quantification des sources des particules en milieu récepteur et d'en optimiser les procédures. Un effort sans précédent en France de caractérisation physico-chimique de l'aérosol a été entrepris dans deux environnements très contrastés (Marseille en été, et Grenoble en hiver). Plus de 150 espèces chimiques particulaires, principalement organiques, ont ainsi été quantifiées sur un pas de temps de 12h. Cette spéciation chimique de l'aérosol a été complétée par des approches plus globale, comme les mesures d'OC (Organic Carbon), d'EC (Elemental Carbon), de ^{14}C, d'HULIS (Humic Like Substances) et de la fonctionnalité des matériaux organiques. A ce dispositif off line ont été associés des instruments de très haute technologie tel que principalement un AMS (Aerosol Mass Spectrometer), un VHDTMA (Volatility and Hygroscopicity Tandem Differential Mobility Analyser) et un SMPS (Scanning Mobilty Particles Sizer) offrant une caractérisation en temps réel de l'aérosol.

Les approches de quantification des sources les plus robustes ont été appliquées. La première est basée sur la spéciation moléculaire et l'utilisation de marqueurs organiques et métalliques. L'impact des sources primaires est quantifié à l'aide du modèle CMB (« Chemical Mass Balance ») à partir de profils de sources connus. La seconde approche consiste à déconvoluer le signal obtenu par l'AMS à l'aide d'une approche PMF (Positive Matrix Factorization). Une troisième approche, plus amont en termes de développement, basée sur les propriétés optiques de l'aérosol a été mise en place au cours de la campagne de Grenoble. On retiendra, parmi les principaux résultats :

- Un bon accord entre les méthodes de quantification des sources, bien que basées sur des concepts sensiblement différents ; souvent opposées dans la littérature ces approches ont montré leur complémentarité ;
- L'impact prépondérant des processus photochimique en été, à Marseille, ainsi qu'un impact significatif des émissions industrielles, particulièrement en considérant le nombre de particules et non la masse de l'aérosol ;
- L'impact prépondérant des combustions de biomasse en hiver, à Grenoble ;
- En termes méthodologiques pour le CMB,
    - une réduction du nombre de marqueurs organiques et métalliques à un jeu d'une quinzaine de composés, pouvant être analysés sur un même échantillon ;
    - la définition de profils de sources adaptés aux agglomérations françaises, ce jeu devant être affiner en fonction des spécificités locales ;
- L'apport de la méthode optique dans des situations hivernales simples, pour évaluer la contribution de la combustion de biomasse à la masse des matériaux organiques ;
- La nécessité de coupler les approches AMS/PMF et CMB pour tenter de mieux appréhender la fraction secondaire organique, et particulièrement distinguer l'aérosol organique secondaire (AOS) du vieillissement de la fraction primaire ;
- L'intérêt des ces approches en site récepteur pour la modélisation déterministe.

MOTS CLES

AEROSOL, PM2.5, FRACTION ORGANIQUE, SOURCES, TRACEURS, AMS, PMF, CMB, VHT-DMA, AETHALOMETRE, MARSEILLE, GRENOBLE

ABSTRACT

The objectives of the program FORMES (Organic Fraction of urban Aerosol : methods for source apportionment) were to assess several source apportionment methods in urban environments and to define the requirements for these methods. A very large effort was put into 2 field campaigns for the physico-chemical characterization of PM, one in Marseilles during summer, and another in Grenoble during winter. The concentrations of more than 120 chemical species in PM2.5 were measured in each campaign with a time resolution of 12hr for periods of 15 days. These also included measurements of EC, OC, ^{14}C, HULIS, and functional groups of organic matter. These off line measurements were completed by on line investigations conducted with AMS, VHT-DMA, aethalometer, and SMPS.

Several methods were tested : CMB (« Chemical Mass Balance ») using concentrations of chemical tracers ; deconvolution of the AMS signal with a PMF (Positive Matrix Factorization) approach ; deconvolution of the aethalometer signal. **Among the main results, one should note :**

- A rather good agreement between the different methods, despite their very different bases,
- The evidence of the large impact of photochemical production in summer in Marseilles, together with the impact of industrial sources (particularly when particle number is concerned),
- The very dominant impact of biomass burning sources in winter in Grenoble,
- The application of the CMB method is possible with a limited set of tracers (about 15), that can be measured on the same sample ; however, the extension of the method will require the development of a dedicated set of source profiles,
- The optical method using an aethalometer seems effective, providing further validation, in simple winter situations for the apportionment of biomass combustion,
- The efficient synergy between the CMB and AMS-PMF method for the apportionment of the secondary organic fraction, including the distinction between "actual AOS" and aging of a primary fraction,
- A real interest in the association of such studies in receptor sites with aerosol modelling.

KEY WORDS

AÉROSOL, PM2.5, ORGANIC AEROSOL, SOURCES, TRACERS, AMS, PMF, CMB, VHT-DMA, AETHALOMETER, MARSEILLE, GRENOBLE