



HAL
open science

DEconvolution de la contribution de la COMbustion de la BIOmasse aux particules dans la vallée de l'Arve. Projet DECOMBIO

J.-L. Jaffrezo, J.-L. Besombes, Nicolas Marchand, G. Mocnik, G. Brulfert, F.
Chevrier, A. Bertrand, I. Jezek, J. Allard

► To cite this version:

J.-L. Jaffrezo, J.-L. Besombes, Nicolas Marchand, G. Mocnik, G. Brulfert, et al.. DEconvolution de la contribution de la COMbustion de la BIOmasse aux particules dans la vallée de l'Arve. Projet DECOMBIO. [Rapport de recherche] IGE, ADEME. 2018. hal-02014894

HAL Id: hal-02014894

<https://univ-smb.hal.science/hal-02014894v1>

Submitted on 11 Feb 2019

HAL is a multi-disciplinary open access archive for the deposit and dissemination of scientific research documents, whether they are published or not. The documents may come from teaching and research institutions in France or abroad, or from public or private research centers.

L'archive ouverte pluridisciplinaire **HAL**, est destinée au dépôt et à la diffusion de documents scientifiques de niveau recherche, publiés ou non, émanant des établissements d'enseignement et de recherche français ou étrangers, des laboratoires publics ou privés.



Sept.
2018

DECONVOLUTION DE LA CONTRIBUTION DE LA COMBUSTION DE LA BIOMASSE AUX PARTICULES DANS LA VALLEE DE L'ARVE

Projet DECOMBIO

RAPPORT

ADEME



Agence de l'Environnement
et de la Maîtrise de l'Energie

En partenariat avec :

 **PRIMEQUAL**
Programme de recherche interorganisme
pour une meilleure qualité de l'air

REMERCIEMENTS

Les rédacteurs de ce rapport souhaitent particulièrement remercier :

Nathalie POISSON (ADEME / Primequal)
Azadeh MARZIN (ADEME)
Patrice CODEVILLE (Mines de Douai / Primequal)

Nous souhaitons aussi remercier Jean-Paul Laurent et Catherine Coulaud (IGE) qui ont été essentiels pour la mise en place efficace et rapide des stations de mesures météorologiques sur les pentes de la Vallée de l'Arve, ainsi que pour les relevés. T Lebel (IGE) a très fortement contribué à obtenir l'accord de la Compagnie du Mont Blanc pour la pose de ces capteurs sur les pylônes du téléphérique du Brévent. Qu'il en soit remercié ici, ainsi bien sûr que la CMB et son personnel.

Enfin, nous souhaitons remercier l'ensemble des personnels des laboratoires partenaires et d'Atmo-AuRA qui ont contribué à ce travail.

CITATION DE CE RAPPORT

Jaffrezo JL, Besombes JL, Marchand N, Mocnik G, Brulfert G, Chevrier F, Bertrand A, Jezek I., and Allard J. 2018. DEconvolution de la contribution de la COMbustion de la BIOmasse aux particules dans la vallée de l'Arve – projet DECOMBIO. 160 pages.

Cet ouvrage est disponible en ligne www.ademe.fr/mediatheque

Toute représentation ou reproduction intégrale ou partielle faite sans le consentement de l'auteur ou de ses ayants droit ou ayants cause est illicite selon le Code de la propriété intellectuelle (art. L 122-4) et constitue une contrefaçon réprimée par le Code pénal. Seules sont autorisées (art. 122-5) les copies ou reproductions strictement réservées à l'usage privé de copiste et non destinées à une utilisation collective, ainsi que les analyses et courtes citations justifiées par le caractère critique, pédagogique ou d'information de l'œuvre à laquelle elles sont incorporées, sous réserve, toutefois, du respect des dispositions des articles L 122-10 à L 122-12 du même Code, relatives à la reproduction par reprographie.

Ce document est diffusé par l'ADEME
20, avenue du Grésillé
BP 90406 | 49004 Angers Cedex 01

Numéro de contrat : 1362C0028

Étude réalisée par IGE pour ce projet cofinancé par l'ADEME

Projet de recherche coordonné par : Jean-Luc JAFFREZO

Appel à projet de recherche : PRIMEQUAL

Coordination technique - ADEME : Azadeh MARZIN / Nathalie POISSON

Direction/Service : DVTD / SEQA



SOMMAIRE

RÉSUMÉ	5
ABSTRACT	6
1. Rappel des objectifs du programme	7
2. Méthodologie générale et mise en œuvre	7
2.1. Campagnes et moyens mis en place	9
2.1.1. Sites de mesure.....	9
2.1.2. Mesures en continu par aethalomètres	10
2.1.3. Campagnes annuelles et hivernales de mesures off-line de la chimie des PM.....	10
2.1.4. Mesures météorologiques	11
2.1.5. Campagne intensive de mesures on-line (février 2014)	12
2.2. Mise en œuvre	12
2.3. Collaboration avec le SM3A sur les données du Fond Air Bois	14
3. Résultats des mesures de terrain	14
3.1. Détermination en continu de la contribution de la source combustion de la biomasse aux PM_{10} à partir des mesures Aethalomètre	14
3.1.1. Traitements spécifiques des mesures AE33 dans le contexte de la vallée de l'Arve	15
3.1.2. Confrontation des données issues du modèle Aethalomètre avec les données chimiques	15
3.1.3. Variations des concentrations mesurées par AE33	17
3.2. Estimation des sources de PM_{10} par approche statistique PMF optimisée	19
3.2.1. Modèle PMF optimisé.....	20
3.2.2. Contribution des sources.....	22
3.2.3. Validation des résultats obtenus par le modèle PMF optimisé	24
3.3. Campagne intensive de Février 2014	27
3.4. Quantification de la contribution de la source de la combustion de la biomasse aux PM_{10} au cours des 4 hivers	30
3.4.1. Estimation des incertitudes.....	30
3.4.2. Evolution des concentrations PM_{10wb}	32
4. Influence de la météorologie locale sur les concentrations hivernales	35
4.1. Mise en évidence de l'impact des inversions de température	35
4.2. Classification des conditions météorologiques selon leur influence sur les concentrations des particules	38
4.2.1. Démarche développée, classification, et validité.....	38
4.2.2. Comparaison des concentrations hivernales pour la classe « Dispersion »	42
4.2.3. Comparaison pour les 4 classes à Passy	46
5. Evolution comparée des concentrations mesurées avec l'avancée des remplacements des appareils	49
5.1. Méthodologie	49
5.2. Quantification de la réduction des émissions de PM_{10} liées au renouvellement des appareils du Fond Air Bois	53
5.3. Comparaison des évolutions de concentrations de PM_{10wb} et des réductions d'émissions	55

6. Conclusion générale	61
Travaux concernant DECOMBIO et références.....	63
<i>Thèses et articles scientifiques</i>	<i>63</i>
<i>Communications dans des meetings et congrès</i>	<i>63</i>
<i>Stages et rapports de M1 et M2 incluant des données DECOMBIO</i>	<i>65</i>
Références bibliographiques	66
Glossaire	72
ANNEXE.....	75
<i>Annexe 1 : Environnement proche des sites de mesure</i>	<i>75</i>
<i>Annexe 2 : Caractérisation des mesures de température réalisées le long des pentes</i>	<i>77</i>
<i>Annexe 3 : Analyses chimiques des filtres de PM10</i>	<i>83</i>
<i>Annexe 4 : Comparaison des concentrations mesurées dans la vallée de l'Arve avec celles d'autres sites en France.....</i>	<i>85</i>
<i>Annexe 5 : Utilisation des mesures de ¹⁴C dans les analyses PMF.....</i>	<i>98</i>
<i>Annexe 6 : Identification et caractéristiques des facteurs obtenus par analyses PMF.....</i>	<i>99</i>
<i>Annexe 7 : Impact de la nature de la variable totale PM₁₀ utilisée dans l'étude PMF sur le facteur « combustion de la biomasse »</i>	<i>101</i>
<i>Annexe 8 : Evolutions des concentrations mesurées par les AE33.....</i>	<i>104</i>
<i>Annexe 9 : Evolution de la fraction PM_{10wb}/PM₁₀ avec l'application d'un facteur rectificatif sur les concentrations d'eBC à partir des mesures filtres</i>	<i>107</i>
<i>Annexe 10 : Evolution des contributions des principaux marqueurs de la combustion de la biomasse à la matière organique au cours des 4 hivers.....</i>	<i>111</i>
<i>Annexe 11 : Méthodologie développée pour classifier les conditions météorologiques selon leurs influences sur les concentrations</i>	<i>113</i>
<i>Annexe 12 : Caractéristiques météorologiques des 4 classes définies</i>	<i>126</i>
<i>Annexe 13 : Evolutions des concentrations de traceur de la combustion de la biomasse et des PM_{10wb} selon les 4 classes de conditions atmosphériques, pour les 3 sites.....</i>	<i>129</i>
<i>Annexe 14 : Analyse des consommations de bois déclarées dans la vallée de l'Arve</i>	<i>133</i>
<i>Annexe 15 : Variabilité des facteurs d'émissions de PM₁₀ des appareils de chauffage au bois résidentiels</i>	<i>139</i>
<i>Annexe 16 : Méthode d'imputation des données manquantes des dossiers du Fond Air Bois</i>	<i>143</i>
<i>Annexe 17 : Années DECOMBIO et « climat normal ».....</i>	<i>145</i>
<i>Annexe 18 : Evolutions des émissions de PM₁₀ issues des appareils de chauffage au bois autour des stations de l'hiver 12-13 à 16-17</i>	<i>146</i>
<i>Annexe 19 : Investigation de l'influence de l'aire de représentativité des stations sur les estimations d'émissions de PM_{10wb}</i>	<i>150</i>
<i>Annexe 20 : Caractérisation chimique des aérosols dans la vallée de l'Arve- Thèse de Chevrier F. (2016).....</i>	<i>155</i>

RÉSUMÉ

DECOMBIO a accompagné l'évaluation des impacts sur la qualité de l'air de l'opération pilote « Prime Air Bois » de la Vallée de l'Arve, à partir de mesures chimiques et météorologiques de terrain.

La Prime air bois, lancée en avril 2013 dans la vallée de l'Arve, vise à inciter financièrement les résidents du territoire à renouveler leurs appareils de chauffage au bois non-performants afin de réduire les émissions locales provenant de cette source. Entre le début de l'opération et le 1er novembre 2016, 1932 appareils ont été renouvelés sur 11 000 dispositifs non-performants estimés sur le territoire.

La méthodologie de DECOMBIO reposait sur la détermination – via des mesures – des concentrations ambiantes de PM10 issues de la source de combustion de la biomasse et la comparaison de ces évolutions hivernales avec celles des émissions estimées des appareils de chauffage au bois, en prenant en compte leur renouvellement. L'influence de la météorologie sur les concentrations, notamment le phénomène météorologique local des inversions de basses couches, a été prise en compte.

Pour cela, 3 stations de la qualité de l'air de type « urbaine de fond » situées le long de la vallée ont été équipées d'appareillage permettant la mesure des particules de suie en continu. Des mesures sur filtres avec des analyses très poussées de la composition chimique des PM10 ont également été effectuées 1 jour sur 3 durant 1 an, puis durant les 3 périodes hivernales suivantes. Des capteurs de température ont été installés le long des pentes à l'aplomb des stations permettant de caractériser l'état de stabilité des basses couches atmosphériques. L'accès à certaines informations des dossiers de renouvellement des appareils « Fond Air Bois » a permis d'estimer la réduction des émissions de PM10 liée au renouvellement des appareils au cours des hivers.

Nos résultats confirment que la source de combustion de la biomasse est dominante pour les concentrations de PM10 en hiver, contribuant en moyenne entre 60 et 70% de leur masse selon le site de mesure lors du 1er hiver du programme. Ce pourcentage augmente légèrement lors des épisodes de dépassement des normes ($50 \mu\text{g}\cdot\text{m}^{-3}$), pour Passy et Chamonix. Nos résultats montrent très clairement l'impact fondamental de la météorologie locale sur les concentrations, le gradient thermique dans les premières centaines de mètres au-dessus des fonds de vallée étant déterminant pour les concentrations atmosphériques des PM10. Du fait de l'impact prépondérant des inversions thermiques, les concentrations des particules issues de la combustion de la biomasse ($\text{PM}_{10_{\text{wb}}}$) ont ensuite été comparées selon des classes de jours présentant des conditions atmosphériques similaires sur les 4 hivers du programme.

Une diminution continue d'année en année des concentrations moyennes des traceurs moléculaires et également des concentrations de $\text{PM}_{10_{\text{wb}}}$ (de l'ordre de 14 à 18% par hiver en moyenne) a été observée sur les 3 sites pour des jours présentant des conditions atmosphériques favorables à la dispersion des particules. Une diminution progressive des concentrations de $\text{PM}_{10_{\text{wb}}}$ (-12% par hiver) entre les différents hivers du programme est également observée sur le site de Passy pour d'autres types de conditions atmosphériques. A partir de certains éléments techniques des dossiers de renouvellement des appareils non performants, la réduction des émissions de PM10 liées à ces appareils renouvelés a été évaluée entre 12 et 38 tonnes de PM10 par an à climat normal, soit de 4 à 12% des émissions totales liées au chauffage au bois résidentiel sur l'ensemble de la zone PPA, estimées précédemment par Atmo-AuRA. L'évolution des émissions de PM10 totales issues de tous les appareils de chauffage au bois confondus (appareils du Fond Air Bois et autres) estimées autour des sites de mesures présente, comme les concentrations de $\text{PM}_{10_{\text{wb}}}$, une diminution progressive au cours des hivers, plutôt concordante avec les mesures pour Marnaz et Passy. Ces estimations des émissions pour des zones à l'échelle du kilomètre restent cependant associées à de grandes incertitudes.

ABSTRACT

The source of domestic biomass combustion has been highlighted as a strong source of PM10 in winter in the Arve Valley. Frequent overruns of European regulatory values are observed during these periods. This led to the establishment of the "Fond Air Bois" operation starting in April 2013, to financially encourage the residents of the territory to renew their non-efficient wood-burning appliances in order to reduce local biomass burning emissions. Between the start of the operation and November 1, 2016, 1.932 wood-burning appliances were renewed on 11,000 non-performing devices estimated on the territory.

At the same time, the DECOMBIO program was set up to help in the evaluation of the heating renovation policy on air quality, with 4-year chemical and weather measurements. The methodology was based on the determination, via measurements, of ambient concentrations of PM10 from biomass burning source, and the comparison of their evolutions during winters with estimated emissions including renewal of wood burning appliances. The influence of meteorology on concentrations, including the local weather phenomenon of low-level inversions, was to be taken into account.

For this, 3 urban air quality stations located along the valley were equipped with aethalometers for continuous measurement of Black Carbon from biomass combustion. Measurements on filters with very detailed analyzes of the chemical composition of PM10 were also carried out every third day during 1 year and during the 3 following winter periods. Temperature sensors were installed along the slopes above the stations to characterize the stability of the atmospheric lower layers. Access to information from wood burning appliances renewal records has helped to estimate the reduction in PM10 emissions associated with devices renewal during winters.

The biomass combustion source was found to contribute on average between 60 and 70% of PM10 concentrations depending on the measurement site during the first winter of the program. Due to the predominant impact of thermal inversions on concentrations, concentrations of particles from biomass combustion (PM10wb) were compared on days with similar atmospheric conditions over the four winters of the program. A relatively homogeneous decrease for tracer concentrations and also for PM10wb concentrations, of the order of 10 to 18% per winter on average, was observed at the 3 sites for days with favorable atmospheric conditions. A gradual decrease of PM10wb concentrations (-12%/ winter) between the different program winters was also observed at the Passy site for other types of atmospheric conditions. The reduction of PM10 emissions related to the renewed wood-burning appliances was evaluated between 12 and 38 tons of PM10 per year, with a normal climate, i.e. 4 to 12% of the total emissions related to residential wood-heating in the entire area of the "Plan de Protection de l'Atmosphère", as estimated by Atmo-AuRA. The evolution of total PM10 emissions from all wood burning appliances combined (Fond Air Bois and other devices) estimated around the measurement sites, like the PM10wb concentrations, shows a gradual decrease over the course of the winters, both being proportionate for Marnaz and Passy, less in Chamonix. These estimates of the emissions on a km scale, however, remain extremely uncertain.

1. Rappel des objectifs du programme

La vallée de l'Arve, comme de nombreuses vallées alpines, est régulièrement soumise à des phénomènes de pollution atmosphérique qui se traduisent en hiver par des dépassements fréquents des normes européennes pour les PM₁₀ (50 µg.m⁻³ en moyenne journalière à ne pas dépasser plus de 35 jours par an). Sa topographie encaissée, les conditions météorologiques particulières et la concentration des activités humaines en fond de vallée favorisent l'accumulation des polluants, en particulier l'hiver. Dans ce contexte, les impacts de ces fortes concentrations sont d'une part sanitaires et d'autre part concernent un versant économique, car c'est en partie cette situation qui conduit la Région Auvergne-Rhône-Alpes à être parmi les régions qui placent la France en contentieux avec l'Europe pour non-respect des réglementations sur la qualité de l'air ambiant. Les conséquences sociétales sont aussi importantes, comme en témoignent les nombreuses manifestations et la mobilisation citoyenne depuis plusieurs années dans la Vallée.

La source de combustion de la biomasse a été mise en évidence comme une des sources d'émissions fortement contributrices aux concentrations de PM₁₀ mesurées en période hivernale. Ceci a donc conduit à la mise en place d'un programme visant à réduire les émissions des PM₁₀ liées à l'utilisation de la biomasse comme source d'énergie, qui s'inscrit dans le cadre des actions du Plan de Protection de l'Atmosphère (PPA) de l'Arve. Une opération de très large envergure a été établie via l'action du Fonds Air Bois (FAB) visant à inciter au renouvellement des dispositifs de chauffage au bois les moins performants sur l'ensemble de la zone du PPA. Entre avril 2013, début de l'opération et novembre 2016 (dernière date prise en compte dans le cadre de ce rapport), 1 932 appareils non-performants ont été renouvelés sur un effectif estimé à 11 000 dispositifs non-performants. L'objectif du Fond Air Bois est d'atteindre à terme 3 200 remplacements.¹

A l'heure actuelle, l'évaluation de l'opération Fond Air Bois par les modèles de Chimie-Transport, outils privilégiés pour les études d'impact sur les concentrations atmosphériques, est difficile. D'une part, les estimations des émissions liées au chauffage au bois résidentiel font partie des estimations les plus incertaines (Guide PCIT, 2012). Et d'autre part, les inversions thermiques des basses couches de l'atmosphère, phénomènes très caractéristiques de la météorologie locale, sont très mal représentées par ces modèles (Paci et al, 2016).

Le programme DECOMBIO a été mis en place afin d'aider à l'évaluation des impacts de cette politique de rénovation des dispositifs de chauffage au bois non performants sur la qualité de l'air, à partir de mesures de terrain. Les objectifs du projet sont donc :

- la mise en place d'un dispositif de surveillance d'un traceur de la combustion (le Black Carbon : eBC) par des mesures continues par aethalomètre sur toute la durée du projet et en différents points représentatifs du territoire de la vallée de l'Arve,
- la validation des méthodologies de mesures et d'attribution des contributions des sources de polluants issus de combustions de biomasse à partir de ces mesures en continu, par des mesures off-line (sur filtres) réalisées lors de campagnes complémentaires, associées à des méthodologies de détermination des sources de type modèle source-récepteur,
- la mise en relation d'éventuels changements des concentrations observées avec les avancées des remplacements de dispositifs de chauffage au bois, à partir des données obtenues au cours des 4 années de campagnes de terrain du projet. Ceci doit apporter une aide dans l'évaluation de l'action publique, tout en prenant en compte le facteur de confusion de premier ordre que représente la météorologie, induit par les inversions de température hivernales.

2. Méthodologie générale et mise en œuvre

La stratégie générale du programme DECOMBIO repose sur la comparaison entre l'évolution de la part de la combustion de chauffage dans les **concentrations mesurées** des PM₁₀ et les gains **d'émissions estimés** au fur et à mesure du renouvellement des appareils non-performants par le Fond Air Bois, pour chaque période hivernale. Pour cela, 3 sites ont été instrumentés avec (i) un dispositif permettant de quantifier la part de la combustion de la biomasse en continu et (ii) un réseau de capteurs

¹ Au 1^{er} septembre 2017, 2 517 appareils non-performants ont été renouvelés sur le territoire de la vallée de l'Arve.

météorologiques permettant de suivre l'état de stabilité des basses couches atmosphériques. La figure 1 ci-dessous présente la méthodologie générale du projet et les différentes étapes suivies pour atteindre les objectifs.

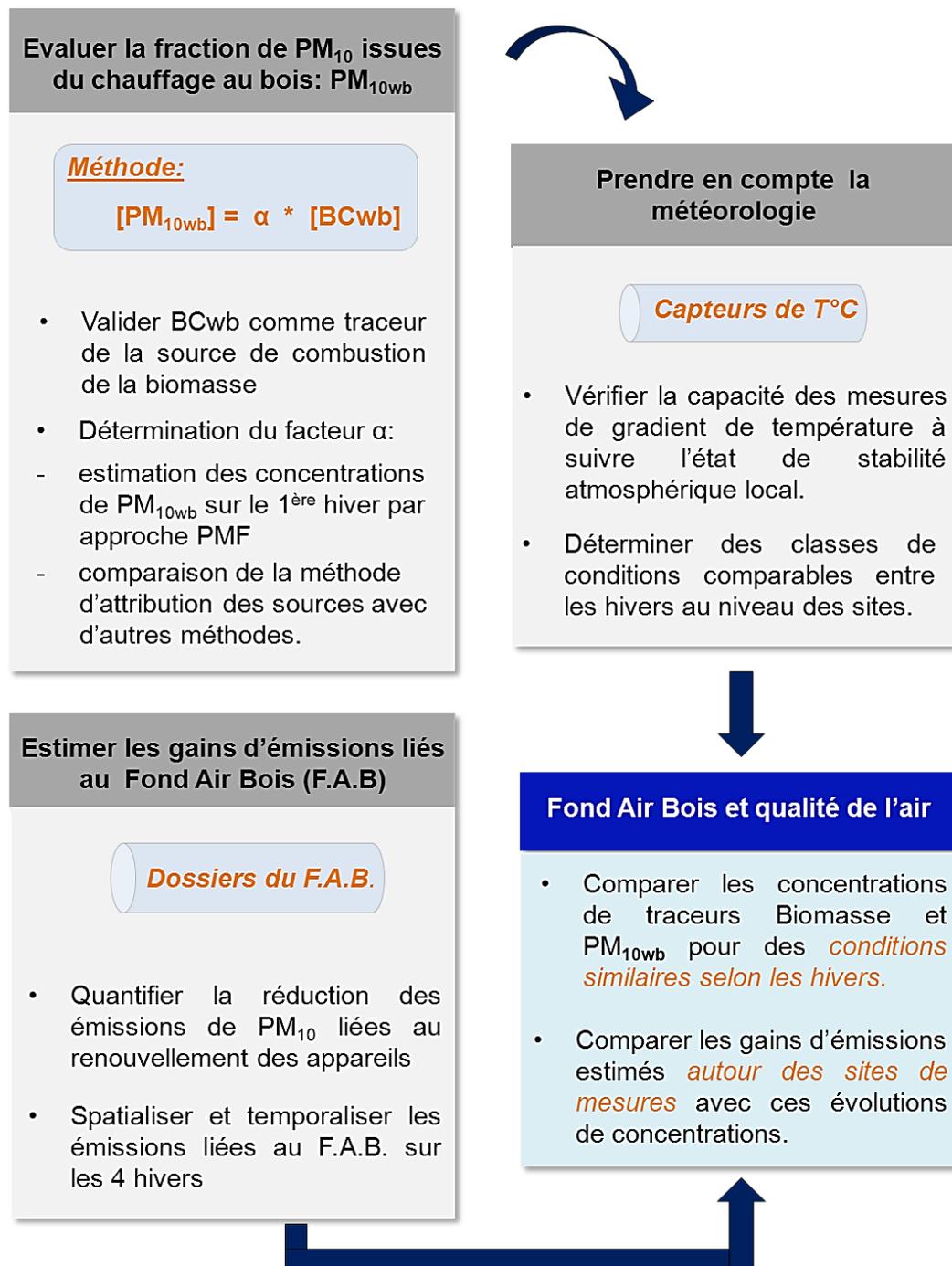


Figure 1 : Schéma de la démarche et des étapes effectuées afin de répondre aux objectifs du programme.

Ainsi, les objectifs du programme DECOMBIO ont permis de s'intéresser à plusieurs points de blocage scientifique. Le premier concerne la validation d'une méthode d'attribution de sources en continu (modèle Aethalomètre) dans un territoire particulièrement complexe avec de nombreuses sources de combustion. Ces travaux sont présentés dans le **chapitre 3**. Deuxièmement, si on connaît (d'une façon générique) l'influence de la météorologie sur les concentrations de polluants, la prise en compte de l'influence de la hauteur de la couche limite (ainsi que d'autres variables météorologiques) sur les concentrations des PM observées au sol n'a jamais été réalisée à notre connaissance. Ces travaux sont décrits dans le **chapitre 4**. Enfin, lors de la comparaison d'évolutions de concentrations mesurées au niveau de sites de mesures avec des gains d'émissions liés au chauffage au bois, il est nécessaire d'appréhender quantitativement les incertitudes de ces émissions estimées à une échelle spatiale aussi

fine, ce qui est rarement possible du fait d'un manque de données suffisamment précises concernant le parc local des appareillages et les conditions d'utilisation. C'est l'objet du **chapitre 5**.

La suite de ce **chapitre 2** présente succinctement les conditions expérimentales de l'étude.

2.1. Campagnes et moyens mis en place

2.1.1. Sites de mesure

La vallée de l'Arve est un milieu particulièrement sensible à la pollution atmosphérique du fait de sa topographie mais également des conditions météorologiques particulières. En effet, le relief très prononcé induit une concentration en fond de vallée de toutes les activités humaines (habitat, industrie, transport) et des émissions qui en résultent. De plus, elle est segmentée par les verrous de Cluses et de Servoz perturbant le brassage de l'air et créant ainsi des situations différentes entre la basse et la haute vallée (Figure 2).

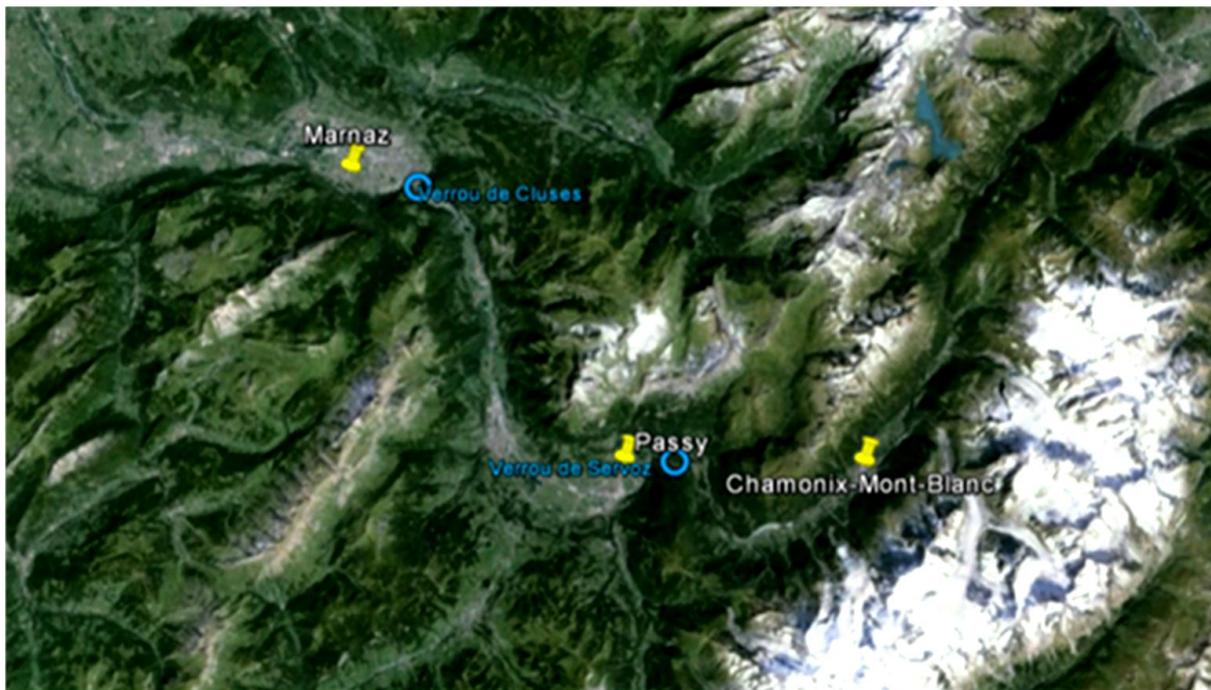


Figure 2 : Localisation des différents sites de mesure

Dans ce contexte, trois sites de typologie urbaine ont été instrumentés. Ces sites permettent d'échantillonner la vallée tant au niveau de sa géographie que de sa typologie d'exposition aux émissions, et peuvent aussi permettre de tenter de comprendre les échanges entre les différents compartiments de la vallée. Ces sites de mesures sont brièvement décrits ci-dessous, avec une présentation plus large en annexe 1.

- Marnaz : site d'étude mis en place pour les programmes Part'Aera (2014) et DECOMBIO. Localisé dans la basse vallée de l'Arve, avec des influences des sources plus diffuses mais plus marquées par les apports extérieurs que les deux autres sites. Ce site est situé dans un quartier résidentiel peu dense.
- Passy : station fixe située au pied de l'étranglement de Servoz vers la haute vallée de l'Arve. Ce site est impacté par un ensemble de sources d'émissions locales dues à la présence de zones industrielles, de zones habitées, et d'infrastructures routières. La composante industrielle est caractérisée par la présence d'une activité liée à la transformation de matériaux carbonés et d'un incinérateur,
- Chamonix : station fixe située au centre-ville dans une zone fermée et densément peuplée. Ce site est a priori fortement impacté par la combustion de biomasse et le trafic.

Ces trois stations, mises en place et maintenues par Atmo Auvergne Rhône-Alpes (ATMO-AuRA), assurent un suivi quotidien de la qualité de l'air par la mesure d'un certain nombre de polluants réglementés (Tableau 1).

Site	Type de station	Altitude	Nombre d'habitants (en 2011)	Polluants mesurés
Marnaz	urbaine	505 m	5 129	PM ₁₀
Passy	urbaine	583 m	11 506	PM ₁₀ , NO, NO ₂ , O ₃
Chamonix	urbaine	1035 m	8 927	PM ₁₀ , NO, NO ₂ , O ₃

Tableau 1 : Tableau de synthèse des caractéristiques des sites de mesure

2.1.2. Mesures en continu par aethalomètres

Additionnellement aux mesures de la qualité de l'air réglementaires réalisées par ATMO-AuRA, des aethalomètres AE33 ont été installés pour la mesure de eBC (« équivalent BC »), et ont été équipés au cours de la campagne avec des sondes de mesure du CO₂. Le Black Carbon, composé inerte issu des combustions est un indicateur privilégié des émissions primaires de combustion et ne provient d'aucune autre source d'émission. L'aethalomètre AE33 mesure l'atténuation de la lumière à 7 longueurs d'onde (de 350 à 950 nm) provoquée par les particules de BC collectées sur filtre. Cela permet de déduire différentes contributions à l'eBC via l'utilisation d'exposants d'absorption d'Angström α décrivant la dépendance spectrale de l'absorbance selon la source de l'eBC: contenant plus de noyaux aromatiques, le eBC émis par les combustions à basses températures (typiquement, la combustion de biomasse) absorbe beaucoup plus dans l'UV que le eBC émis par les combustions à hautes températures (typiquement, les émissions de combustion de fuel fossiles). Ces propriétés optiques permettent de quantifier les fractions de eBC issues d'une part de la combustion de fuels fossiles (BC_{ff}) et d'autre part de la combustion de la biomasse (BC_{wb}) (Favez et al., 2009; Favez et al., 2010; Sandradewi et al., 2008a; Sandradewi et al., 2008b). Cette méthode d'attribution des sources est appelée « modèle Aethalomètre ».

Cette méthode, bien qu'utilisée dans de nombreux sites urbains et ruraux, ne constitue pas encore une méthode conventionnelle et harmonisée. De plus, elle a peu été utilisée dans des terrains complexes tels que des vallées relativement encaissées. Une validation des mesures de BC_{wb} comme traceur de la source de combustion de la biomasse a donc été nécessaire et elle est effectuée par comparaison avec des mesures chimiques réalisées par prélèvements sur filtres.



Figure 3 : Aethalomètre AE33 (Magee Scientific)

Les aethalomètres AE33 ont été installés sur les 3 sites le 15/10/2013. Ce modèle d'appareil (très récent à l'époque de l'installation) présente la particularité de compenser les phénomènes d'ombrages liés à la surcharge en carbone suie sur les filtres en temps réel via la technologie dual-spot (Drinovec et al, 2015). Ces phénomènes conduisent, s'ils ne sont pas pris en compte, à une surestimation des concentrations d'eBC. La fréquence des mesures a été programmée à la minute, mais les données quart-horaires sont envoyées en direct sur le réseau d'ATMO-AuRA pour centralisation.

2.1.3. Campagnes annuelles et hivernales de mesures off-line de la chimie des PM

La caractérisation fine de la chimie des PM₁₀ sur une longue série temporelle est nécessaire afin de pouvoir permettre l'attribution et la quantification des sources de PM par analyse via un modèle source-récepteur de type PMF. Ces mesures ont été réalisées par prélèvement sur filtre quartz sur des pas de temps de 24h à l'aide de DA-80-PM10 également installés dans les 3 stations. Lors de la 1^{ère} année du programme (02/11/13 au 31/10/2014), les prélèvements ont été réalisés un jour sur trois à Marnaz et Chamonix et deux jours sur trois à Passy (seul les filtres 1 jour sur 3 sont analysés complètement). Environ 160 espèces chimiques (8 à 9 types d'analyses chimiques différentes) sont mesurées de façon standardisée sur chacun des filtres (cf figure 4 et annexe 3).

Cette campagne annuelle a été poursuivie avec des campagnes hivernales (01/11 au 31/03) sur Passy et Marnaz durant les 3 autres hivers du programme DECOMBIO et sur Chamonix pour le 4^{ème} hiver du programme, avec des analyses réalisées exclusivement pour les traceurs de combustion de biomasse. Ces campagnes de prélèvements permettent de suivre l'évolution éventuelle du changement du profil chimique de combustion de la biomasse avec le renouvellement des appareils de chauffage au bois et le changement de la technologie du parc. Ces analyses des traceurs de la source de combustion de la biomasse permettent ainsi d'évaluer la validité de la méthode d'attribution de la source à partir des mesures de eBC au cours des 4 hivers.

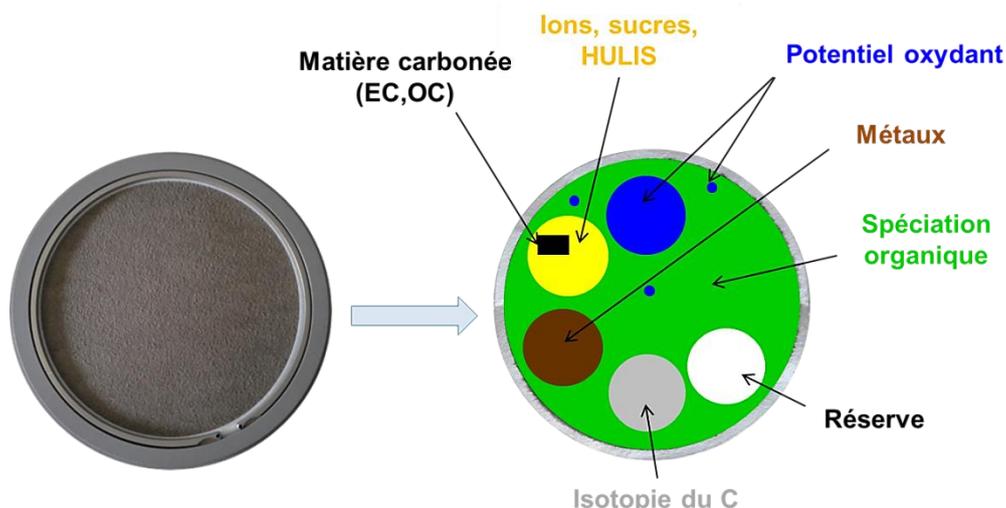


Figure 4 : Filtre impacté installé dans un porte-filtre et parts de la surface réservée à chaque analyse

Par ailleurs, dans le cadre d'études hors du programme DECOMBIO, d'autres mesures ont été réalisées sur les filtres collectés. D'une part, une collaboration avec le CEREGE (E. Bard) a permis la réalisation de mesures d'isotopie ^{14}C sur certains filtres de la campagne annuelle des sites de Passy et Chamonix. Ces mesures, non prévues dans le programme initial, se sont révélées très pertinentes pour les objectifs DECOMBIO.

D'autre part, une fraction des filtres DECOMBIO est utilisée afin de mesurer le Potentiel Oxydant des particules atmosphériques (nouvelle mesure prometteuse de l'exposition aux PM), et d'étudier ses relations avec la chimie des particules et les parts respectives des sources d'émission. Ce travail a été réalisé dans le cadre de la thèse d'A Calas (IGE), mais aussi en collaboration avec le groupe de F Kelly (King's College de Londres) (Calas et al., 2018 ; Weber et al., 2018).

2.1.4. Mesures météorologiques

Il est bien connu que l'état de la stabilité atmosphérique des basses couches joue un rôle prépondérant sur les concentrations atmosphériques. Afin de pouvoir l'évaluer en continu, un dispositif de capteurs de température (Tinytag TGP-4500, système peu onéreux mais non agréé par Météo France) a été placé le long des versants au niveau des 3 sites de mesures. Une dizaine de capteurs ont été placés sur chaque transect, chacun à environ 2-3 m du sol et séparés entre eux de 100 m de dénivelé environ (cf annexe 2). La fréquence des mesures est de 15 min, et les données sont récupérées tous les 6 mois environ, par visite sur site. Ce type de mesures de la stabilité atmosphérique a précédemment été utilisé dans la vallée de la rivière Colombia (Etats-Unis, Whiteman et al, 2001) ainsi qu'à Grenoble (Largeron et al, 2016) et Lanslebourg (Besombes, 2017).



Figure 5 : Abri Stevenson contenant un capteur Tinytag.

Un Lidar vent (WLS8 de Leosphere) appartenant à ATMO-AuRA est installé sur le site de mesure de Passy depuis novembre 2013 afin d'acquérir des indications sur les profils verticaux de vent à la station. Ces mesures ont cependant été assez discontinues sur la période du programme DECOMBIO, avec de nombreux dysfonctionnements de l'appareillage. ATMO-AuRA a également installé un appareillage de prises de vue photographique au-dessus de Passy pour regarder les évolutions des nuages de pollution. Ces informations n'ont pas été utilisées par manque de temps, mais un site web permet d'accéder aux données Lidar et aux prises de vue (<http://transalpair.eu/lidar/>).

Par ailleurs, la campagne Passy-2015 (Paci et al, 2016) coordonnée par le LEGI et Météo-France (sur financement ADEME au LEFE-CHAT) a permis de déployer de nombreux autres instruments pour l'étude de la couche limite (radiosondes, radiomètres micro-onde, Lidar, ...). Au-delà de l'exploitation qui en est faite dans le cadre de ce programme spécifique, les données acquises ont pu être comparées, pour le bénéfice de DECOMBIO, aux données des capteurs placés sur les pentes (à Passy) permettant de vérifier la capacité du dispositif à suivre l'état de stabilité des basses couches atmosphériques. Les premiers résultats commencent à être publiés (Sabatier et al., 2018).

2.1.5. Campagne intensive de mesures on-line (février 2014)

Une campagne intensive, menée principalement par le Laboratoire Chimie Environnement (LCE) de l'Université Aix-Marseille s'est déroulée du 14 au 28 février 2014 sur le site de Passy. Cette campagne a mobilisé la plateforme instrumentale MASSALYA (lce.univ-amu.fr/massalya.html) permettant l'analyse à haute résolution temporelle des phases particulaire et gazeuse de la pollution de l'air. Les instruments qui ont été déployés sont :

- un HR – ToF – AMS (High Resolution – Time of Flight – Aerosol Mass Spectrometer) qui permet la mesure en continu de l'aérosol submicronique. L'instrument est ainsi capable de quantifier en temps réel les composantes chimiques majeures de l'aérosol que sont la fraction d'organiques, de nitrates, de sulfates, de chlorure, et d'ammonium. En outre il est également possible d'accéder à la distribution en taille des particules. Sa grande capacité d'échantillonnage permet in fine un traitement statistique poussé des données,
- un MAAP (Multi Angle Absorption Photometer, PM₁) pour l'analyse du Black Carbon,
- un OPC (Optical Particle Counter) et un SMPS (Scanning Mobility Particle Sizer) pour la distribution en taille et la concentration des particules (10 nm-10 µm),
- un PTR – ToF - MS (Proton Transfer Reaction – Time of Flight – Mass Spectrometry) dans le but de caractériser la phase gazeuse organique. Cet instrument permet l'analyse en temps réel d'une grande gamme de Composés Organiques Volatiles (COV), reconnus comme précurseurs d'ozone mais aussi d'AOS (Aérosols Organiques Secondaires).

L'objectif de cette campagne était d'essayer de comprendre les processus à fine échelle temporelle, et en particulier les évolutions des émissions de combustion de biomasse, entre émissions primaires et éventuelles formations secondaires depuis la phase gazeuse.

2.2. Mise en œuvre

La figure 5 suivante synthétise les périodes de mesures chimiques et météorologiques acquises en supplément des composés mesurés en routine par Atmo-AuRA sur les différents sites durant les 4 années du programme. La banque de donnée chimique finale se compose des concentrations journalières de PM₁₀, NO_x, O₃, CO₂, BC_{total}, BC_{ff}, BC_{wb} ainsi que de celles des composés mesurés sur filtres.

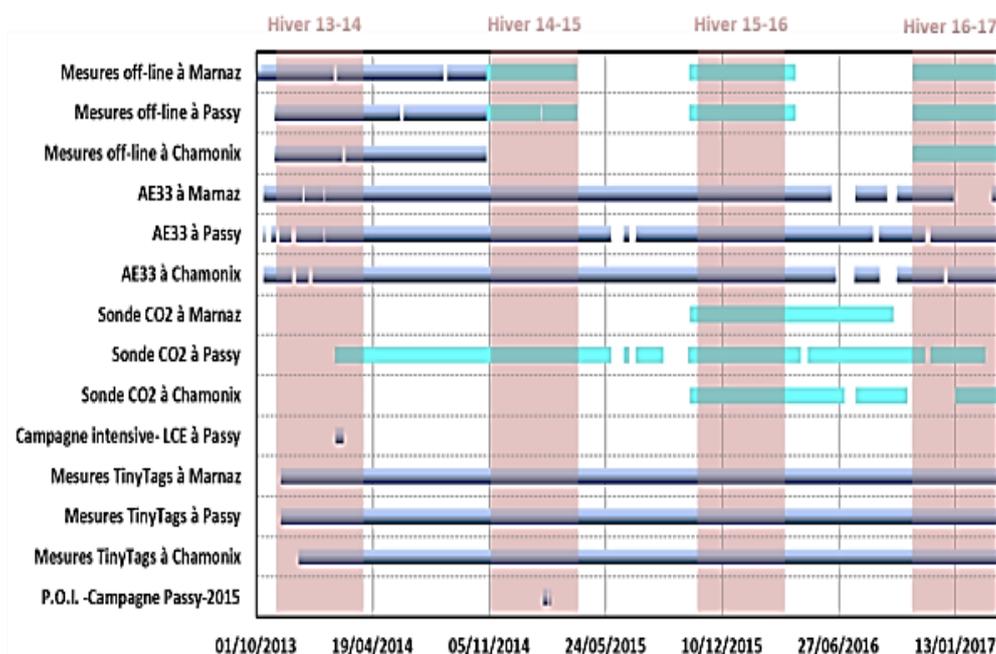


Figure 5 : Synthèse des mesures réalisées sur les 4 hivers du programme. En bleu ciel sont représentées des mesures supplémentaires au programme initial.

Les Aethalomètres AE33 ont été installés à Passy et Marnaz le 14.10.2013, et à Chamonix un jour plus tard. Pour assurer la qualité des données et le minimum d'interruption des mesures, les opérateurs ont suivi les procédures d'entretien recommandées par le fabricant. Cela comprenait des inspections régulières des données collectées à distance pour détecter des erreurs ou des avertissements



potentiels (réalisé à la fois au LCME et à Aerosol d.o.o), une visite régulière des stations pour une inspection visuelle des filtres, des entrées, des cartouches de filtres, et de l'état de la bande filtrante; des vérifications régulières de débit et des tests de fuite, des tests d'air propre et de stabilité, et finalement une vérification de la performance des capteurs optiques avec des filtres de test de densité neutre. Pour les trois sites, les données ont été collectées pendant au moins 93% du temps, comme le montre le tableau 2.

	Début	Fin	Efficacité (%)
Passy	14.10.2013	26.03.2017	97%
Marnaz	14.10.2013	26.03.2017	93%
Chamonix	15.10.2013	26.03.2017	98%

Tableau 2 : Efficacité de collecte pour les AE33 sur les 4 ans du programme

Les nombres d'échantillons et de blancs de terrain collectés sur chaque site pour les mesures sur filtre depuis le début du programme sont présentés dans le tableau 3. Les analyses de la matière carbonée, des ions, des sucres et des polyols ont été effectuées sur l'ensemble des filtres prélevés. Les analyses de la spéciation organique et des métaux en traces ont été réalisées sur un nombre plus restreint d'échantillons (cf figure 6). Des blancs de terrains ont été effectués tout au long des campagnes de prélèvement afin de prendre en compte les contaminations possibles lors du stockage des filtres. Le nombre de blancs analysés permet d'évaluer la qualité et la propreté des prélèvements. Les moyennes mensuelles des masses obtenues sur ces blancs pour les différents composés analysés ont été retranchées aux masses des mêmes composés présents sur les échantillons.

Au final, le programme analytique réalisé a d'une part été complet par rapport à la proposition initiale, avec en particulier une première année (permettant l'analyse PMF) quasi complète, et d'autre part il a été beaucoup plus ambitieux que ce qui avait été annoncé initialement à la fois pour les hivers complémentaires et pour les analyses réalisées sur les filtres collectés.

Site	Nombre de filtres prélevés	Nombre d'échantillons utilisés pour spéciation organique, métaux, éléments traces	Nombre de blancs	% blancs / nbre d'éch.
Marnaz	315	135	53	16,8 %
Passy	568	121	73	12,9 %
Chamonix	172	120	28	16,3 %

Tableau 3 : Bilan comptable des mesures sur filtres

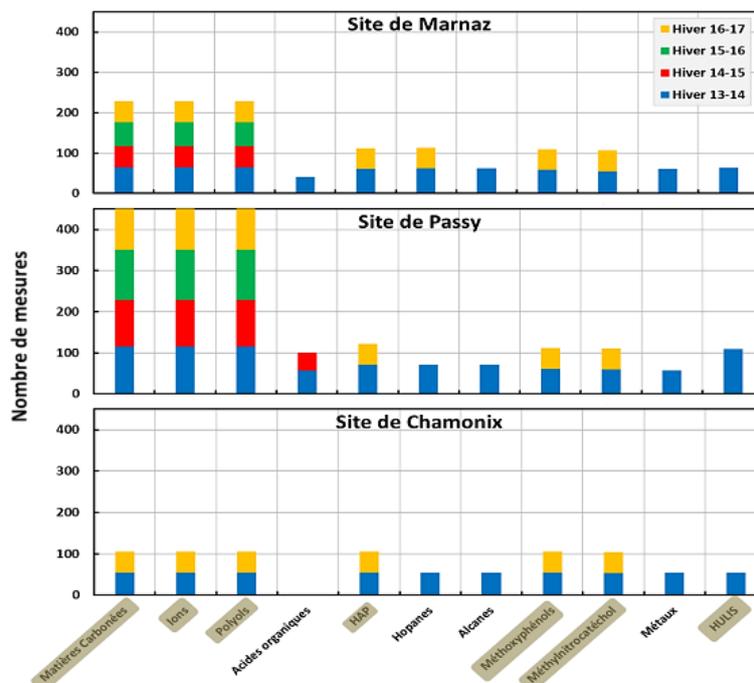


Figure 6 : Nombre de mesures off-line réalisées par famille de composé en fonction des sites et des différents hivers (les périodes hivernales considérées vont du 15 Octobre au 15 Avril). Les familles contenant des composés traceurs ou potentiels indicateurs de la source combustion de la biomasse sont surlignées en gris.

2.3. Collaboration avec le SM3A sur les données du Fond Air Bois

Le Syndicat Mixte d'Aménagement de l'Arve et ses Abords (SM3A) est en charge de la gestion et de l'animation du Fond Air Bois. Pour pouvoir bénéficier de l'aide incitative du Fonds lors du renouvellement d'un appareil de chauffage au bois non-performant, les habitants sont amenés à compléter un dossier de demande d'aide. Les informations récoltées concernant les caractéristiques des appareils anciens et renouvelés, leur usage ainsi que les caractéristiques sur l'isolation du logement permettent d'estimer les émissions en adaptant les méthodes d'estimation des inventaires d'émission. D'autres renseignements comme les coordonnées GPS, les consommations déclarées, la période de mise en place du nouvel appareil complètent de façon précise les estimations d'émissions.

Une collaboration avec le SM3A dans le cadre d'une convention nous a permis d'accéder à ces dossiers et donc aux informations qu'ils contiennent. Les 1 932 dossiers du Fond Air Bois (au 1^{er} Nov 2016) constituent une base de donnée du parc d'appareils non-performants des résidences principales de la zone du PPA beaucoup plus précise à l'échelle locale que les informations utilisées sur le territoire dans les inventaires d'émissions liées au chauffage au bois (et issues d'échelles géographiques bien plus larges). Ce sont donc ces informations qui ont été utilisées pour estimer les évolutions des émissions liées au chauffage au bois dans la vallée sur la durée du projet.

3. Résultats des mesures de terrain

Cette section présente les résultats principaux obtenus lors des 4 années de mesures sur le terrain et s'appuie en très grande partie sur les travaux de thèse de Florie Chevrier (2016) et de Julie Allard (2018).

- La première partie aborde les mesures des aéthalomètres obtenues sur les 4 années du programme aux 3 sites ainsi que leur confrontation aux mesures chimiques issues des filtres afin de valider l'attribution des sources d'eBC.
- Dans la seconde partie, sont présentés la méthodologie et les résultats de l'analyse PMF pour la détermination des contributions des sources des PM₁₀ sur les 3 sites pour la première année du programme. La discussion sur les concentrations et leurs évolutions obtenues avec les mesures sur filtres est proposée dans la thèse (publiée) de F Chevrier (2016) et n'est pas reprise en détail ici. Les éléments principaux sont cependant rappelés. Les concentrations moyennes de très nombreuses espèces chimiques mesurées dans l'Arve sont aussi comparées avec les résultats obtenus sur de nombreux autres sites en France, rassemblés dans le cadre du programme SOURCES financé par l'ADEME. Cette vision nationale, qui n'était pas disponible pour les travaux de F Chevrier (2016), est proposée et commentée en annexe 4.
- Une troisième partie aborde les résultats de la campagne intensive de Février 2014 et ce qu'ils nous apprennent sur les processus rapides concernant en particulier la source « combustion de biomasse » et sa fraction secondaire.
- La quatrième partie présente la quantification de la fraction PM_{10wb} en combinant les mesures d'attribution de la source combustion de la biomasse de l'eBC, BC_{wb} avec les résultats de PMF.

3.1. Détermination en continu de la contribution de la source combustion de la biomasse aux PM₁₀ à partir des mesures Aethalomètre

A partir de l'utilisation d'exposants d'absorption d'Angström α , le modèle Aethalomètre permet de déconvoluer les mesures d'eBC entre la source de combustion de la biomasse, BC_{wb} et la source de combustion de fuel fossiles, BC_{ff} (typiquement reliés aux émissions du trafic routier). Ce principe est à la base du fonctionnement des aéthalomètres AE33, pour suivre les évolutions des concentrations de BC_{wb} sur l'ensemble de la période de mesure. Parmi les espèces mesurées sur les prélèvements sur filtre, l'EC correspond comme l'eBC à une mesure du carbone-suie, basée cependant sur des propriétés physiques différentes. Le lévoglucosan est, quant-à-lui, le traceur moléculaire univoque de la combustion de la biomasse (Amato et al, 2015 ; Cesari et al, 2016). La comparaison des mesures eBC et EC ainsi que BC_{wb} et lévoglucosan permet de vérifier la cohérence des mesures de eBC et BC_{wb} sur les 4 hivers et ainsi de valider l'attribution de la source de combustion de la biomasse à l'eBC.

3.1.1. Traitements spécifiques des mesures AE33 dans le contexte de la vallée de l'Arve

Le modèle aéthalomètre utilise un exposant d'Angstrom prédéfini pour discriminer les contributions des sources. Les gammes d'exposants d'Angstrom liés à BC_{ff} (α_f) et à BC_{wb} (α_{wb}) ont été mesurées et rapportées dans de nombreuses études (Fuller et al., 2014; Sandradewi et al., 2008b, 2008c ; Favez et al.,). Différentes combinaisons de α_f et α_{wb} ont été testées pour les séries de mesures obtenues pour les trois sites étudiés dans DECOMBIO. Pour trouver la paire de valeurs la plus adaptée, les concentrations quotidiennes de BC_{wb} résultantes ont été comparées aux mesures quotidiennes de lévoglucosan (similaire à Fuller et al., 2014). Les indicateurs de la paire la plus appropriée d'exposants d'Angstrom étaient **(i)** le coefficient R^2 **(ii)** l'ordonnée à l'origine de la régression linéaire entre les concentrations quotidiennes de BC_{wb} et de lévoglucosan et **(iii)** les contraintes sur la part de BC_{wb} dans le BC total (comprise entre 0% et 100%). Les résultats ont montré qu'il y avait un intervalle de combinaisons α_f et α_{wb} appropriées. Pour chaque site étudié, les meilleurs intervalles respectifs sont listés dans le tableau 4.

Passy	$1,0 \leq \alpha_f < 1,1$	$2,0 \leq \alpha_{wb} \leq 2,2$
Chamonix	$0,9 \leq \alpha_f < 1,0$	$2,0 \leq \alpha_{wb} \leq 2,2$
Marnaz	$1,0 \leq \alpha_f < 1,1$	$2,0 \leq \alpha_{wb} \leq 2,2$

Table 4 : Intervalles de valeurs α_f et α_{wb} appropriées pour chaque site.

L'analyse finale des données présentées a été faite avec $\alpha_f = 1$ et $\alpha_{wb} = 2$. Cette combinaison classique a été choisie parce qu'elle convenait aux trois sites et qu'elle est la plus utilisée pour le traitement des données (entre autre par les opérateurs des stations de surveillance de Qualité de l'Air), ce qui permettra des comparaisons directes avec les autres sites en France.

En considérant $\alpha_f = 1$ et $\alpha_{wb} = 2$ et leur écart de 10% ($0,9 < \alpha_f < 1,1$ et $1,8 < \alpha_{wb} < 2,2$), l'incertitude sur le BC_{wb} moyen est de moins de 25% (Bizjak, 2015). On retiendra aussi que les données de base n'ont pas subi de filtrations spécifiques, ont été reprocessées selon les procédures préconisées dans le manuel AE33 et dans Drovinec et al. (2015), avec un calcul de moyennes sur 15 min.

3.1.2. Confrontation des données issues du modèle Aethalomètre avec les données chimiques

L'évolution des concentrations eBC et EC sur les 4 hivers est représentée sur la figure 7. Il est à noter que quelques mesures de concentrations d'EC très élevées, essentiellement sur Passy, ont atteint les limites de l'analyseur EC/OC (Sunset Lab) et ne sont pas considérées dans la suite. Les coefficients de Pearson (r) obtenus entre les mesures d'eBC et EC sont élevés, variant entre 0,85 et 0,94 selon le site, en prenant en compte tous les hivers. Les évolutions temporelles des mesures de BC_{wb} et de lévoglucosan concordent également de manière très satisfaisante, avec des coefficients de Pearson entre 0,86 et 0,88. Cependant, des variations sont visibles entre les mesures entre les hivers.

La Figure 8 représente les ratios eBC/EC et BC_{wb} /Lévoglucosan entre les hivers sur les 3 sites. 95% des ratios d'eBC/EC obtenus sur les 4 hivers et les 3 sites sont situés entre 1,0 et 2,0. Un facteur moyen de 2 est rapporté entre les mesures d'eBC et EC dans plusieurs études de comparaison (Watson et al, 2005 ; Park et al, 2006). Les variations inter-hivernales des ratios eBC/EC restent donc relativement faibles avec une variation maximale de 36% observée entre les ratios de l'hiver 13-14 et 15-16 sur Passy. A l'exception de l'hiver 16-17 à Marnaz, les variations des ratios BC_{wb} /lévoglucosan sont analogues à celles des ratios eBC/EC entre les hivers.

Il est difficile d'émettre des hypothèses pour expliquer les variations inter-hivernales des ratios eBC/EC et BC_{wb} /lévoglucosan. Elles restent cependant dans les gammes de variations du coefficient d'absorption massique (MAC) de $\pm 30\%$ qui permet de convertir l'atténuation mesurée par l'AE33 en concentration d'eBC (Zanatta et al, 2016). De nombreux paramètres peuvent influencer sur les propriétés optiques de l'aérosol, comme la composition chimique et l'état de mélange des particules, ainsi que les conditions météorologiques (Subramanian et al, 2009 ; Zanatta et al., 2016 ; Hervo et al., 2013) et pourraient expliquer en partie les variations inter-hivernales des ratios.

Ainsi les corrélations élevées entre les mesures d'eBC et EC ainsi que de BC_{wb} et de lévoglucosan permettent de montrer que les estimations de BC_{wb} dans le cadre d'un terrain complexe présentant de multiples sources de combustion ne subissent pas d'artéfact majeur. Ces mesures d'eBC peuvent donc être utilisées dans ce contexte de vallées alpines pour une détermination rapide de la contribution de la combustion de la biomasse à la masse d'eBC.

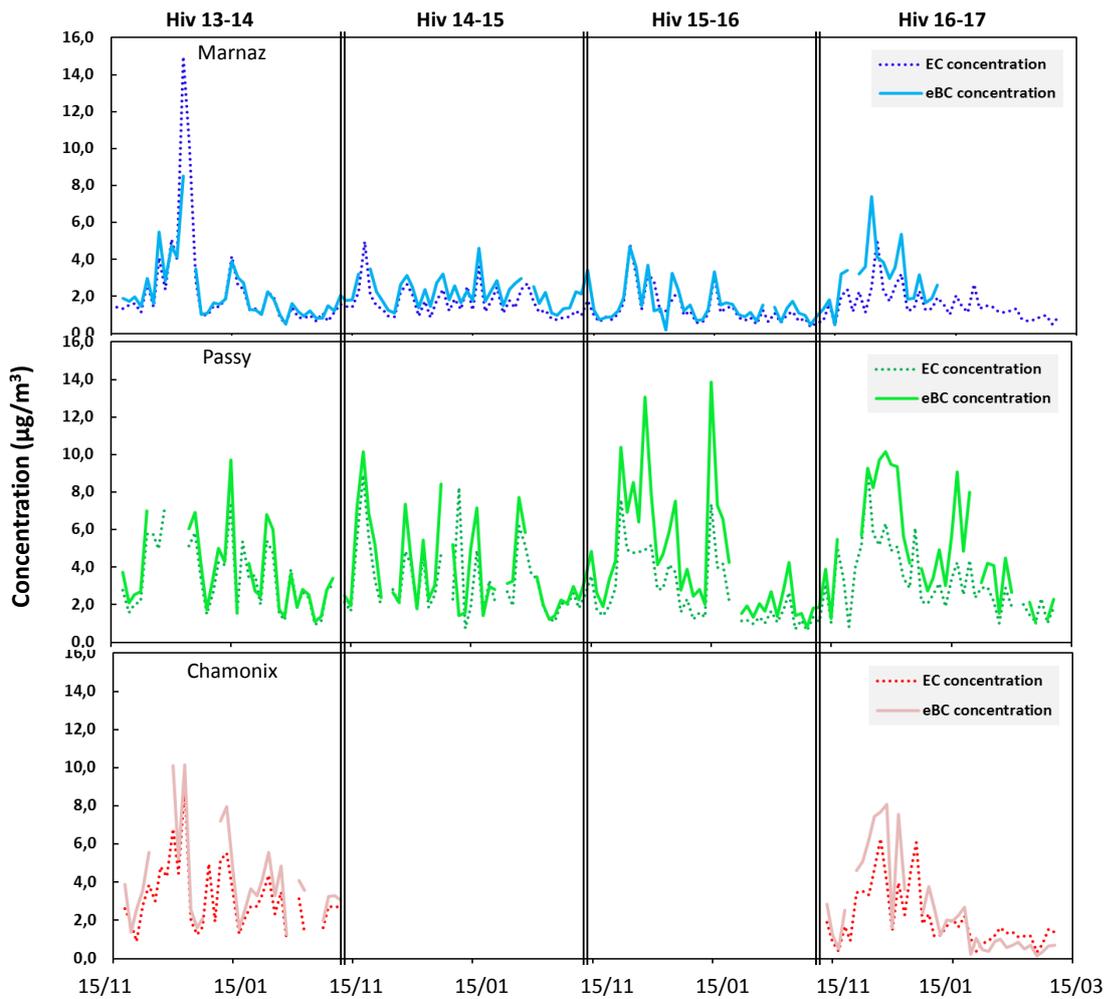


Figure 7 : Evolution des concentrations eBC et EC à Marnaz, Passy et Chamonix au cours des hivers 2013-2014 à 2016-2017 (15/11 au 15/03).

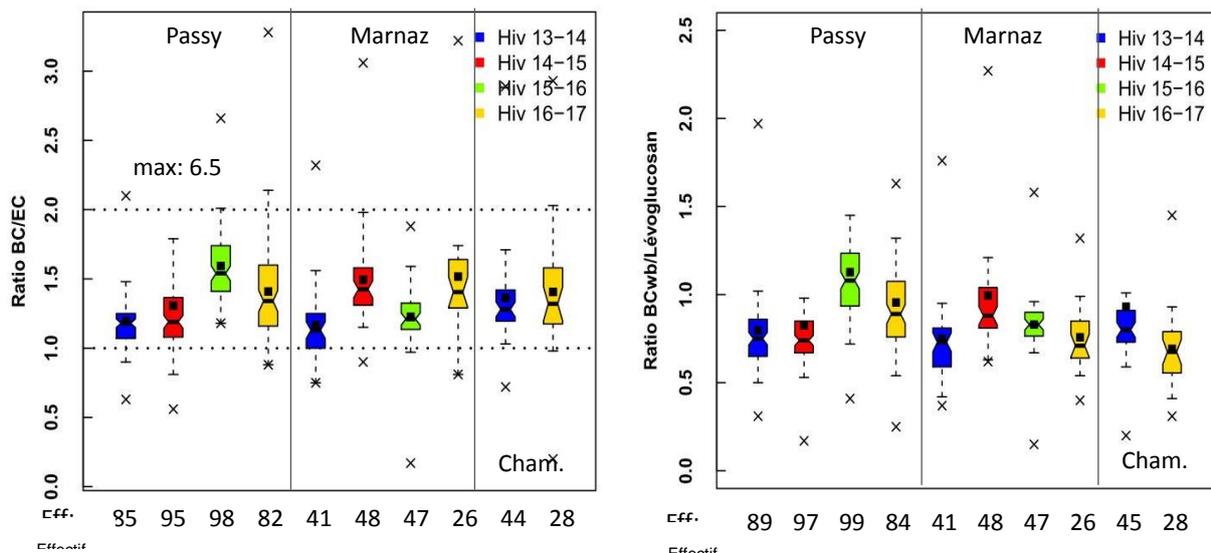


Figure 8 : Evolutions inter-hivernales (1/11 au 31/03) des ratios eBC/EC et BC_{wb}/lévoglucosan pour les 3 sites. Représentation de type Boxplot avec valeur moyenne (carré noir), médiane (barre horizontale), valeurs min et max (croix). 50% des valeurs se situe dans l'amplitude délimitée par la boîte et 95% des valeurs dans l'amplitude des barres verticales.

3.1.3. Variations des concentrations mesurées par AE33

Sur les 4 ans du programme, les efficacités de collecte des mesures d'AE33 sont > 90-95% pour tous les sites, ce qui donne une excellente représentativité aux mesures. La figure 10 présente les évolutions des concentrations horaires de eBC et de BC_{wb} sur les 3 sites et la totalité du programme. Cette figure permet de mettre en évidence plusieurs aspects des évolutions des concentrations, dont plusieurs sont retrouvées sur un grand nombre de sites, en particulier Alpains (cf programme ADEME Lanslebourg, par exemple):

- on note des évolutions saisonnières très marquées pour les évolutions d'eBC, avec des maxima en période hivernale,
- la fraction BC_{wb} n'apparaît quasiment qu'en période hivernale, ou elle peut représenter une fraction dominante de eBC,
- les évolutions à court terme (quelques heures à quelques jours) sont très marquées, avec des maxima 2 à 3 fois plus élevés que les moyennes des périodes pendant lesquels ils se produisent,
- les concentrations hivernales (à la fois de eBC et de BC_{wb}) sont les plus élevées à Passy et les plus faibles à Marnaz,
- il semble qu'il y ait des évolutions des concentrations moyennes d'un hiver à l'autre.

Dans la suite de ce travail, nous nous intéresserons essentiellement au BC_{wb} (et aux périodes hivernales), compte tenu des objectifs de DECOMBIO. La figure 9 présente les moyennes des concentrations journalières de BC_{wb} au cours des 4 hivers pour les 3 sites, ainsi que la fraction de eBC qu'elles représentent. Cette figure donne aussi le nombre de jours utilisés pour calculer les moyennes hivernales, montrant la très bonne représentativité des résultats.

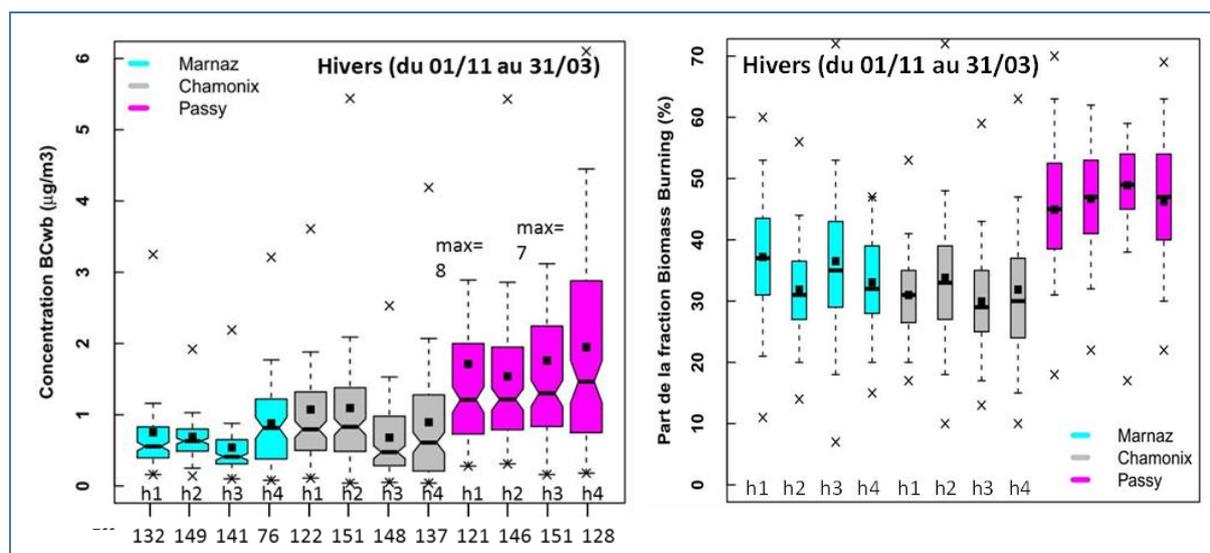


Figure 9 : Concentrations de BC_{wb} ainsi que les fractions de la source Biomass Burning dans les concentrations de eBC au cours des différents hivers et étés du programme (h1= hiver 13-14 ; h2= hiver 14-15 ; h3= hiver 15-16 ; h4= hiver 16-17). Représentation de type Boxplot avec valeur moyenne (carré noir), médiane (barre horizontale), valeurs min et max (croix). 50% des valeurs se situe dans l'amplitude délimitée par la boîte et 95% des valeurs dans l'amplitude des barres verticales.

Cette figure confirme que les concentrations moyennes hivernales de BC_{wb} sont bien plus élevées à Passy, et plus faibles à Marnaz, avec les concentrations moyennes à Chamonix assez proches de celles de Marnaz. Elle montre aussi que ces concentrations moyennes sont variables d'un hiver à l'autre, avec par exemple des moyennes plus faibles à Chamonix et Marnaz sur l'hiver 3. Rappelons que ces évolutions des valeurs de concentrations sont liées d'une part à celles des émissions mais aussi à celles des conditions climatiques changeantes entre hivers (cf chapitre 4). Ainsi, on ne peut pas se baser sur la seule évolution de ces moyennes pour évaluer l'effectivité du Fond Air Bois.

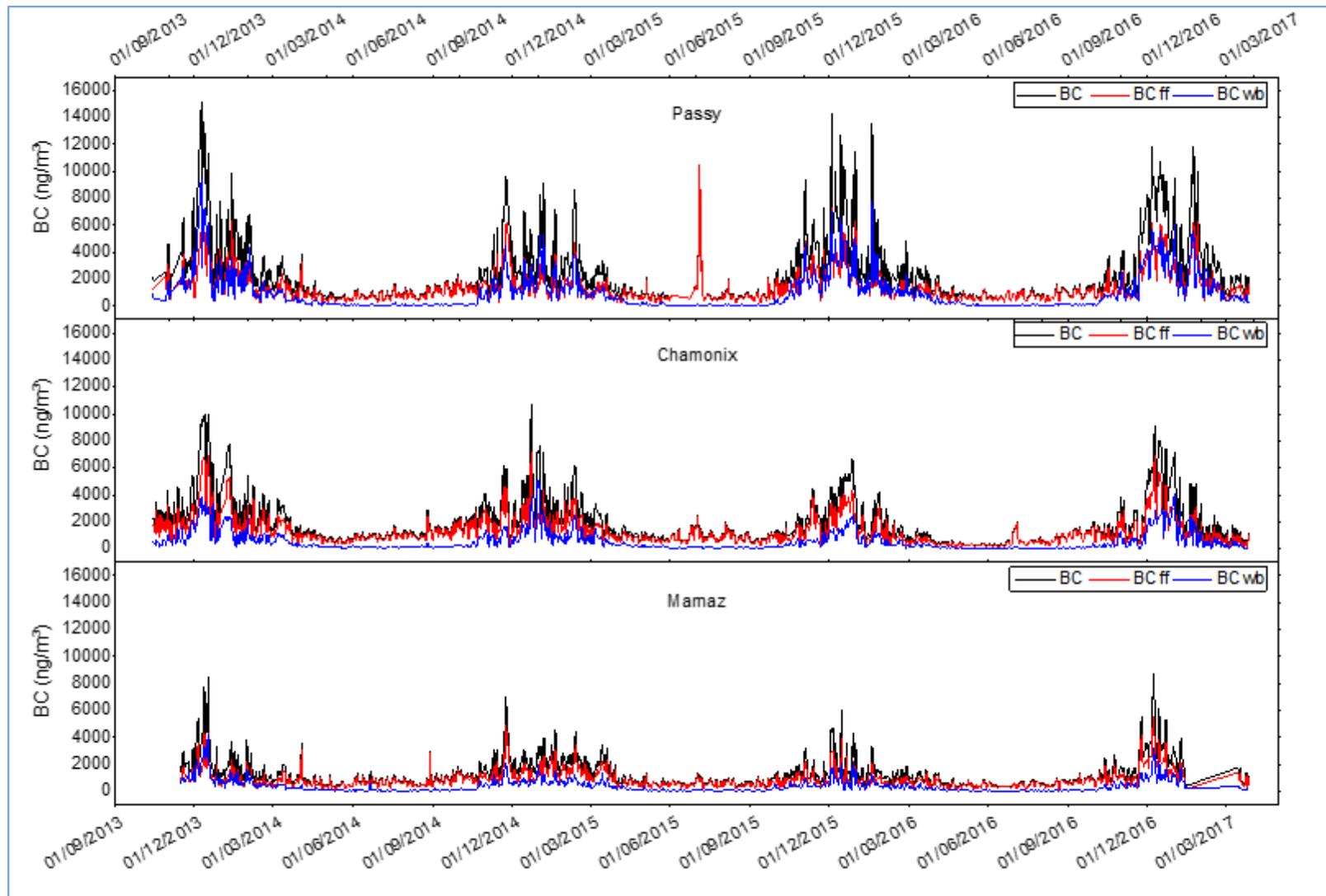


Figure 10 : Séries temporelles des concentrations journalières de eBC, BC_{ff} et BC_{wb} mesurées sur les 3 sites DECOMBIO sur les 4 hivers du programme

L'amplitude des distributions (à 95% de valeurs) est très large à Passy, montrant la grande variabilité des concentrations journalières ; cette amplitude est aussi bien plus grande pour Chamonix que pour Marnaz, malgré des valeurs moyennes proches. Ce dernier point souligne que des différences existent dans les conditions météorologiques et / ou des émissions, entre les deux sites.

Une seconde partie de cette figure 9 présente les évolutions des moyennes de fractions de BC_{wb} dans eBC entre les différentes périodes hivernales. Elle souligne la nettement plus grande proportion observée à Passy, avec aussi une moyenne générale supérieure à Marnaz par rapport à Chamonix. Là encore, on voit des évolutions d'un hiver à l'autre, avec une certaine tendance à la diminution des concentrations, même si elle n'est ni systématique ni continue dans le temps. Cette fois, ces évolutions des ratios sont sans doute un peu plus représentatives d'évolutions liées aux sources qu'à la météorologie.

L'annexe 8 présente d'autres résultats mis en avant avec ces mesures, en particulier les caractéristiques des évolutions moyennes journalières et hebdomadaires.

Au final, on montre donc que les mesures de BC_{wb} issues du modèle Aethalomètre permettent de quantifier l'apport de la source de combustion de la biomasse aux concentrations d'eBC. Cependant, afin de pouvoir valider une méthode permettant de quantifier les PM_{10} issues de la source de combustion de la biomasse (PM_{10wb}) à partir de ces mesures de BC_{wb} , une étude robuste d'attribution des sources aux PM_{10} est nécessaire. Elle a été réalisée en optimisant un modèle PMF au contexte des vallées alpines, et est présentée dans la section 3.2 ci-dessous. Cependant, l'utilisation d'un coefficient constant sur les 4 hivers à partir des mesures de BC_{wb} dans un contexte de renouvellement d'appareils de chauffage au bois est possiblement sujette à différentes incertitudes. Les mesures réalisées sur filtres au cours des 4 hivers nous permettent d'en investiguer certaines, et ces travaux sont présentés en annexe 10.

3.2. Estimation des sources de PM_{10} par approche statistique PMF optimisée

À partir de la caractérisation chimique fine des aérosols atmosphériques effectuée lors de la campagne annuelle en première année, il est possible de quantifier la part prise par chacune de leurs sources grâce à l'utilisation de modèles source-récepteur. Le modèle PMF 5.0 (Positive Matrix Factorisation) de l'US-EPA (Paatero and Tapper, 1993) a été choisi car il ne nécessite que très peu de connaissances préalables des profils des sources d'émission. Il permet de déterminer le nombre de sources influençant les concentrations en PM_{10} sur les sites d'étude, leur composition chimique et leur contribution à la masse des PM.

Ce modèle réalise une analyse factorielle des données d'une longue série temporelle de composés chimiques spécifiques des PM, en permettant la résolution de l'équation :

$$x_{ij} = \sum_{k=1}^p g_{ik} \cdot f_{kj} + e_{ij}$$

avec x_{ij} : concentration de l'espèce j le jour i

g_{ik} : contribution du facteur k le jour i

f_{kj} : fraction du facteur k provenant de l'espèce j

e_{ij} : fraction de l'espèce j le jour i non expliquée par le modèle (résidu).

Cette expression s'exprime également sous la forme matricielle: $X = G \cdot F + E$. Les variables d'entrée du modèle PMF comprennent les concentrations des espèces chimiques et leurs incertitudes. Le modèle effectue une déconvolution en différents facteurs, en associant dans chacun des facteurs des fractions de chacune des espèces chimiques reconstruites dont les concentrations évoluent temporellement de la même manière sur l'ensemble de la série. L'identification des facteurs en terme de sources se fait ensuite par l'utilisateur grâce aux composés traceurs caractérisant le facteur et à leur répartition dans celui-ci. Ainsi, c'est la reconnaissance géochimique (composition du facteur, identification des traceurs, adéquation avec les cycles saisonniers ou les épisodes spécifiques, ...) qui permet d'attribuer une source à chaque facteur (cf Annexe 6). Le modèle PMF estime également les contributions de ces sources aux PM pour chacun des jours compris dans la base de données initiale.

La stabilité et la précision des résultats sont évaluées selon différents critères (entre autres la reconstruction des espèces chimiques et les performances statistiques du modèle) en suivant les recommandations du rapport du Joint Research Community (Belis et al., 2014) :

- $Q_{\text{true}} / Q_{\text{robust}} < 1,5$ (Q étant le rapport du résidu sur l'incertitude : $Q = \sum_{i=1}^n \sum_{j=1}^m \left[\frac{e_{ij}}{u_{ij}} \right]^2$ où u_{ij} est l'incertitude pour la concentration de l'espèce j le jour i) avec Q_{true} : valeur calculée en incluant tous les points et Q_{robust} : valeur calculée excluant les points non modélisés c'est-à-dire ceux avec un résidu trop élevé (>4),
- bonne reconstruction des concentrations mesurées (coefficients de corrélation reconstruits / mesurés),
- contribution positive des sources identifiées et réalité physique de ces sources,
- itérations successives du modèle (bootstrap) > 75 %, c'est-à-dire que la majorité des tests doit correspondre aux mêmes résultats (facteurs, contributions,...) et le nombre de facteurs non attribués doit être minimum.

3.2.1. Modèle PMF optimisé

L'ensemble de ce travail constitue une partie de la thèse de F Chevrier (Chevrier, 2016), auquel le lecteur pourra se référer pour plus de détails.

En raison de la topographie montagneuse de la vallée de l'Arve, on observe de fortes colinéarités des évolutions de concentrations dont une partie est liée à la dynamique atmosphérique, qui se superpose aux variations de concentrations dues aux sources d'émissions. Ainsi, afin de contourner ce problème, le modèle PMF classique a été optimisé en rajoutant étape par étapes des éléments pouvant améliorer les résultats obtenus avec la méthode classique :

1. Des composés d'intérêt géochimique spécifique à ces sites ont d'abord été ajoutés (traceur de la source des industries du carbone, traceurs supplémentaires de la source de combustion de la biomasse et de combustions de fuels fossiles),
2. Des contraintes sur les facteurs du profil « Combustion de la biomasse » ont été imposées avec la fonction ME-2 de la PMF 5.0. (permettant de définir un profil chimique plus pertinent),
3. Enfin, les mesures provenant déjà d'une première déconvolution des sources par le modèle Aethalomètre (BC_{ff} et BC_{wb}) ou obtenues par analyse du ^{14}C (Bonvalot et al, 2016) (cf Annexe 5) ont été rajoutés en imposant également des contraintes sur leurs concentrations dans les facteurs « combustion de la biomasse » et « émissions véhiculaires ».

Le tableau 5 synthétise les conditions finales mises en œuvre, après de multiples essais avec et sans contraintes, pour la réalisation de ces analyses PMF avancées. Les variables OC_{wb}^* et OC_{autres}^* correspondent aux concentrations d' OC_{wb} et OC_{autres} auxquelles sont retranchées des concentrations des espèces organiques utilisées dans le modèle PMF (le tout exprimé en eqC). On retiendra que beaucoup des paramètres ou méthodologies développées ici sont proposés pour la première fois dans la littérature. Les paragraphes suivants détaillent plus précisément certains de ces aspects novateurs. On notera aussi que la variable totale choisie est les PM_{10} reconstruites chimiquement, un choix discuté en annexe 7.

Variables d'entrées PMF classique	<ul style="list-style-type: none"> • Espèces carbonées • Espèces ioniques • Métaux et éléments traces • Espèces organiques : Σpolyols, lévoglucosan, MSA 	<i>Incertitudes définies selon la méthode Gianini et al (2012) :</i> 10% pour OC 15% pour EC, MSA, polyols, lévoglucosan 20% pour les PM_{10}
Eléments d'intérêt géochimique ajoutés	<ul style="list-style-type: none"> • HAP soufrés : traceurs de l'industrie du carbone (Golly et al, 2015) • Hopanes : traceurs de la combustion des huiles de moteur. • Méthoxyphénols : traceurs de la combustion de la biomasse <i>Incertitudes : méthode Gianini</i>	
Ajout de données de déconvolution de l'aérosol carboné	<ul style="list-style-type: none"> • Données issues du modèle Aethalomètre : BC_{wb} et BC_{ff} (EC éliminé) • Données calculées à partir des mesures de carbone fossile et moderne provenant des analyses de radiocarbone : OC_{wb}^* et OC_{autres}^* 	

Contraintes sur le profil Combustion de la biomasse	<ul style="list-style-type: none"> Traceurs de la combustion de la biomasse augmentés au maximum : Lévo-glucosan, K⁺, méthoxyphénols, BC_{wb}, OC_{wb}* Traceurs non liés à la combustion de la biomasse fixés à 0 : HAP soufrés, hopanes, OC_{autres}*
Contrainte sur le profil Emissions véhiculaires	<ul style="list-style-type: none"> Traceur des émissions véhiculaires augmentés au maximum : BC_{ff}

Tableau 5 : Récapitulatif des variables d'entrées et contraintes imposées dans la méthode PMF optimisée par rapport à la méthode PMF classique.

Modèle PMF optimisé	Marnaz	Chamonix	Passy
Nombre de facteurs	9	8	9
Q_{true}/Q_{robust}	1,03	1,08	1,01
Bootstrap min	98 %	96 %	95 %
Facteur le moins bien reconstruit	procédés industriels véhiculaires	/ véhiculaires	sels de mer et poussières crustales
Facteurs non attribués lors des itérations	0 %	0 %	0 %

Tableau 6 : Récapitulatif des performances statistiques obtenues par le modèle PMF optimisé.

Le tableau 6 présente les performances du modèle pour les solutions choisies comme solutions optimales. Par rapport au modèle PMF classique, le modèle optimisé est plus robuste, permet une meilleure identification des facteurs et limite les phénomènes de mélange. Huit ou neuf facteurs influençant les concentrations en PM₁₀ ont été identifiés selon le site (représentation détaillée en Annexe 6). Les facteurs identifiés présentent les caractéristiques suivantes :

- Facteurs Sulfate-rich et Nitrate-rich : noms génériques données par les utilisateurs PMF, ces facteurs présentent un pourcentage élevé de sulfate et nitrate, respectivement associés à l'ammonium. Ces sources ne sont pas clairement identifiées et peuvent rassembler un certain nombre de sources primaires (agriculture, industries, émissions véhiculaires,...) et de processus secondaires. Les facteurs Sulfate-rich et Nitrate-rich sont retrouvés dans la plupart des études européennes d'attribution des sources de particules.
- Combustion de la biomasse : facteur caractérisé par une forte proportion d'OC, de lévoglucosan, de potassium et de rubidium (Godoy et al., 2005; Puxbaum et al., 2007). Les méthoxyphénols, BC_{wb} et OC_{wb}* sont aussi majoritairement dans ce profil. La section 3.3. montre que ce facteur comprend très certainement à la fois les émissions primaires et les espèces secondaires (formées par vieillissement des espèces gazeuses émises par cette source).
- Emissions véhiculaires : facteur caractérisé par la présence d'un certain nombre de métaux émis par les carburants, les huiles, et les débris de freins ou de plaquettes : Ba, Cu, Fe, Zr, Zn, Ni, V (Adachi and Tainosho, 2004; Almeida et al., 2006; Viana et al., 2008; Wang et al., 2003), avec un ratio EC/OC > 1. Les hopanes (Subramanian et al, 2006) et le BC_{ff} sortent également dans ce profil. Ce facteur inclut a priori les émissions particulaires à l'échappement et les émissions issues de l'usure des freins. Il ne comprend cependant pas les émissions secondaires issues de cette source (formation de particules secondaires par les espèces gazeuses à l'échappement).
- Poussières crustales : caractérisé par la prédominance d'éléments constituant la croûte terrestre : Mg²⁺, Ca²⁺, Co, Fe, Mn, Sr et Ti (Putaud et al., 2004). Ces émissions proviennent des émissions de poussières des sols sous l'action des vents, des déplacements véhiculaires, des chantiers de construction, des activités minières, des activités agricoles, etc.
- Biogénique secondaire : caractérisé par le MSA, composé provenant de l'oxydation du DMS émis par les algues marines et possiblement par les sols. Il ne comprend pas les aérosols biogéniques secondaires issus de l'oxydation des COV biogéniques de la végétation.
- Biogénique primaire : caractérisé par la prédominance des polyols, marqueurs de l'activité biogénique fongique des sols et de la végétation (Bauer et al., 2008). Ce facteur inclus également

une large fraction OC_{autres}^* . Ce facteur ne comprend pas les émissions directes telles que celle des débris de plante (cellulose) ou les pollens

- Sels de mer/sel de route : caractérisé par la présence des ions Cl^- , Na^+ et Mg^{2+} , traceurs des sels de mer (Belis et al., 2013; Pio et al., 1996), mais qui peuvent (en particulier dans les zones froides hivernales) être liée à l'épandage de sel sur les routes
- Procédés industriels : caractérisé par la présence de métaux tels que Cd, Cu, Pb, Zn caractéristiques de sources industrielles (Alleman et al., 2010) mais également d'incinérateurs (Font et al., 2015). Ce facteur, avec ces caractéristiques chimiques, n'est présent que sur les sites de Passy et Marnaz. Les HAP soufrés (BNT) caractérisé par Golly et al (2015) sortent aussi majoritairement dans ce facteur.

Les 3 sites DECOMBIO présentent quasiment l'ensemble de ces facteurs en commun, avec cependant une différence remarquable : le facteur « Procédés industriels » n'est pas présent sur le site de Chamonix. Sur le site de Marnaz, la présence dans ce facteur de certains métaux caractéristiques des émissions véhiculaires indirectes indique plutôt un mélange de sources. On atteint ici une des limites de la méthodologie PMF, pour des facteurs de concentrations faibles, mal définis avec sans doute des profils chimiques changeant au cours du temps, et dans des conditions où la météorologie joue un rôle important sur la modulation des concentrations. La comparaison détaillée des profils chimiques de chacun des facteurs sur les différents sites sort très largement du cadre de ce travail, mais pourrait être faite ultérieurement, entre autres avec des outils développés dans le cadre FAIRMODE (<https://ec.europa.eu/jrc/en/scientific-tool/fairmode-delta-tool>). Elle serait intéressante pour considérer leur stabilité pour des sites très proches, bien que de caractéristiques légèrement différentes.

Dans le cadre de DECOMBIO, on s'intéresse aux profils des émissions de la combustion de la biomasse obtenus sur les 3 sites (figure 11 ci-dessous). On note que ces profils sont très similaires en ce qui concerne les proportions des espèces majeures (OC, BC_{if} , ..) et des traceurs et indicateurs (lévoglucosan, K^+ , Rb , ..), mais que des différences peuvent apparaître pour les espèces contribuant de façon mineure, en particulier les métaux en trace.

3.2.2. Contribution des sources

Les contributions des sources de PM_{10} identifiées présentent une importante saisonnalité comme l'illustre la figure 12 suivante représentant les concentrations moyennes des différentes sources aux PM_{10} pour les périodes « hivernale » (2/11/13 au 31/03/14) et « estivale » (02/04/14 au 31/10/15). On notera tout d'abord la très grande différence, pour les 3 sites, entre les périodes estivales et hivernales, les concentrations moyennes des PM_{10} reconstituées chimiquement (annexe 7) en été étant 3 à 5 fois plus faibles que les concentrations moyennes hivernales, et de l'ordre de $10\mu g.m^{-3}$.

Les sources estivales sont plus liées aux apports traditionnellement vus comme issus du transport des masses d'air à longue distance (sulfate-rich et nitrate-rich) et aux sources biogéniques. Les profils hivernaux montrent quant à eux une prédominance des sources primaires anthropiques d'émissions des PM_{10} incluant principalement les émissions de la combustion de biomasse, du trafic routier, et du « facteur industriel », mais aussi un facteur nitrate-rich classiquement bien présent en hiver compte tenu des températures froides facilitant la condensation du nitrate d'ammonium. Les contributions moyennes hivernales de la source combustion de la biomasse aux PM_{10} sur les jours de mesure sont de 62, 71 et 73% sur les sites de Chamonix, Marnaz et Passy, respectivement. Les concentrations issues de la combustion de la biomasse peuvent atteindre $77,8\mu g.m^{-3}$ à Passy en hiver.

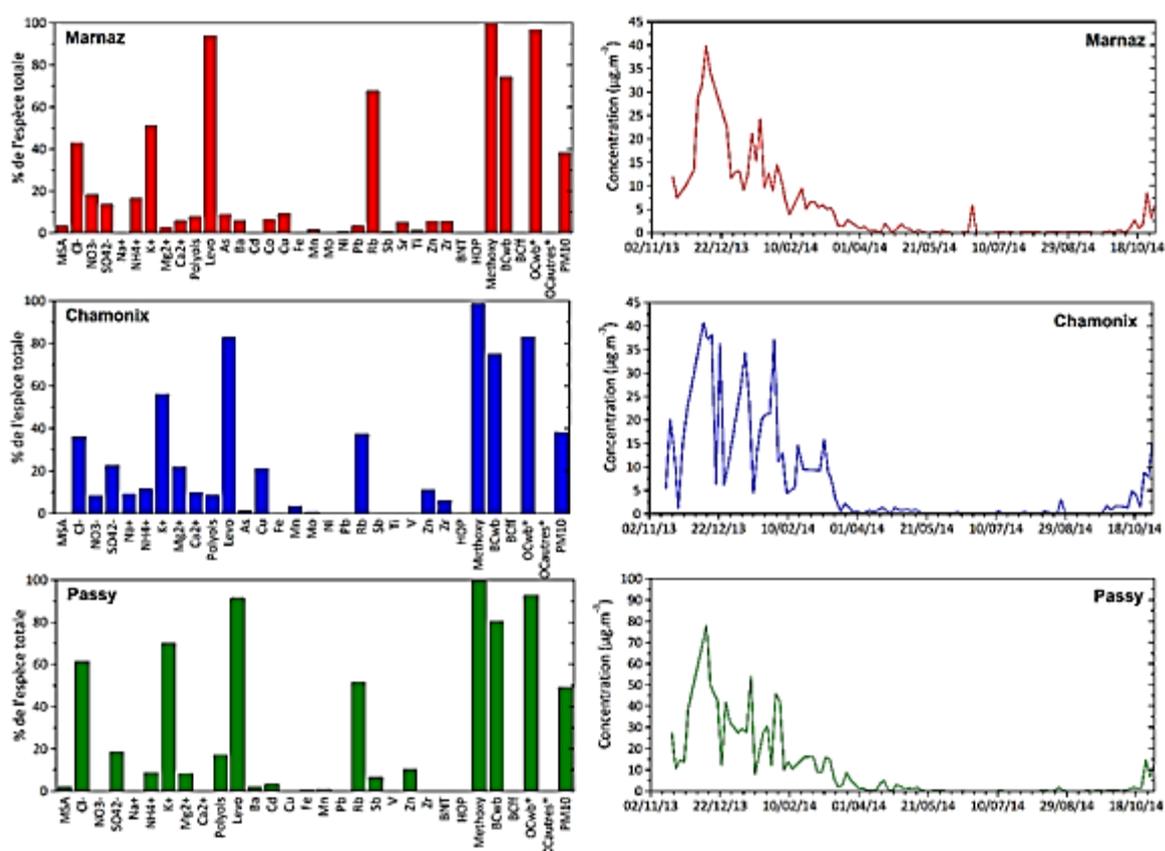


Figure 11 : Profil et évolution temporelle du facteur "combustion de biomasse" par le modèle PMF optimisé pour chacun des trois sites du programme DECOMBIO (année 2013-2014).

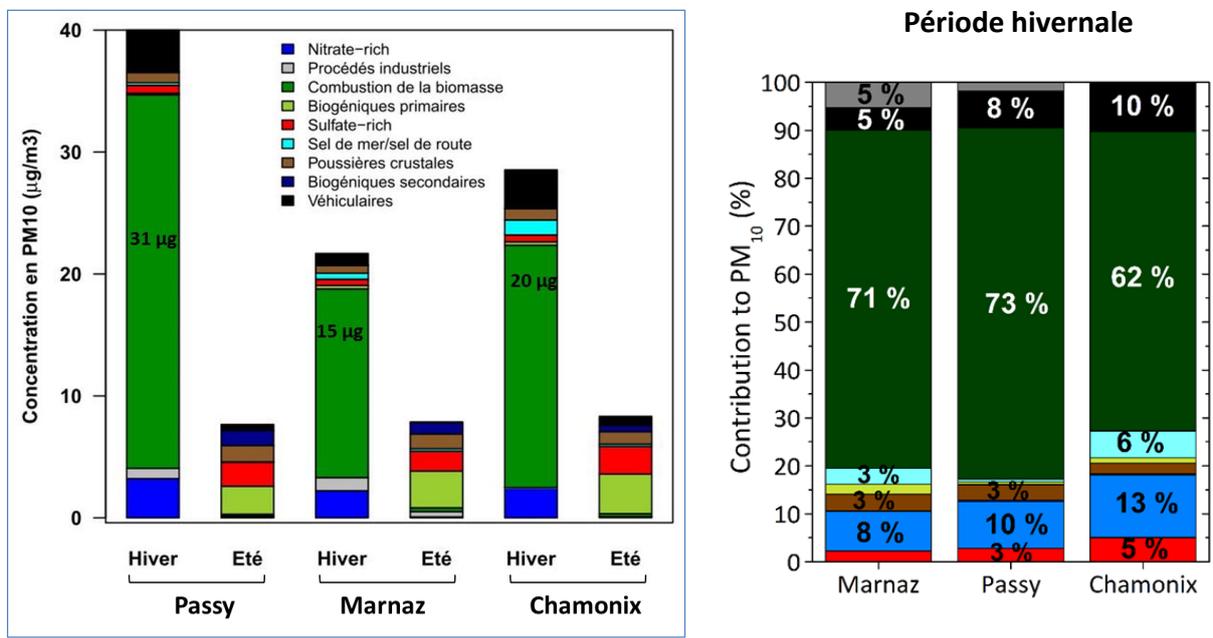


Figure 12 : Concentrations saisonnières moyennes des sources aux PM₁₀ sur les trois sites du programme DECOMBIO et contributions moyennes en % aux PM₁₀ sur la période hivernale.

Lors des épisodes de pollution régulièrement rencontrés en hiver dans la vallée de l'Arve, il est important de connaître les sources à l'origine des dépassements des normes européennes fixées à $50 \mu\text{g}\cdot\text{m}^{-3}$ en moyenne journalière à ne pas dépasser plus de 35 jours dans l'année. Pour les échantillons utilisés (collectés 1 jour sur 3), 2 jours à Marnaz, 2 jours à Chamonix et 9 jours à Passy ont des concentrations dépassant $50 \mu\text{g}\cdot\text{m}^{-3}$, lors de cette période hivernale de nos mesures. La figure 13 compare les contributions moyennes des sources dans et hors épisode pour les 3 sites.

Pour les jours d'épisode, les sites de Chamonix et Passy présentent une nette augmentation de la contribution des émissions de la combustion de la biomasse (de + 6 %), associée aussi à une augmentation de contribution des émissions véhiculaires et les poussières crustales à Chamonix. Au contraire, à Marnaz la contribution de la source « combustion de la biomasse diminue » (de - 6 %) et c'est en particulier la source « nitrate rich » qui voit sa contribution fortement augmenter. L'hypothèse proposée pour ces évolutions contrastées tient à la plus grande influence des facteurs extérieurs à la Vallée à Marnaz, avec des épisodes de dépassement principalement vus en fin d'hiver (fin Mars 2014) en parallèle aux grands épisodes nationaux induits par des fortes concentrations de nitrate d'ammonium. On retiendra aussi que ces observations sont cependant basées sur un nombre d'épisodes peu élevé.

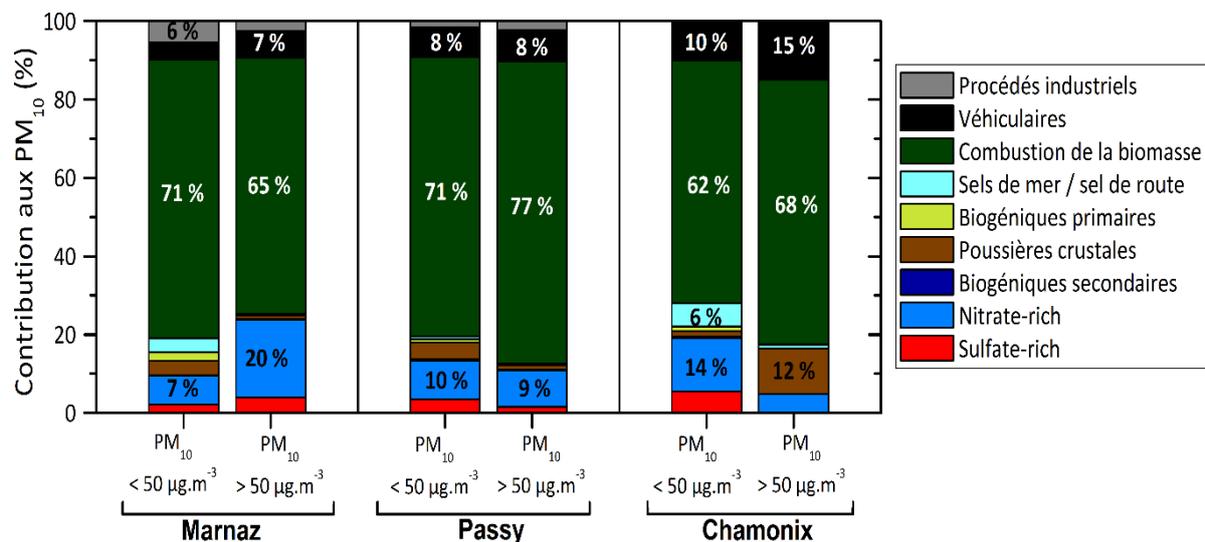


Figure 13 : Contributions des sources estimées par le modèle PMF optimisé en moyenne hivernale (hiver 2013/2014) hors épisodes de pollution (PM₁₀ < 50 µg.m⁻³) et lors d'épisodes de pollution.

3.2.3. Validation des résultats obtenus par le modèle PMF optimisé

Afin de conforter les résultats d'attribution des sources de PM₁₀ obtenus avec le modèle PMF optimisé, plusieurs confrontations ont été effectuées avec les données disponibles. Premièrement, les pourcentages de contribution aux PM₁₀ ont été rapprochés des résultats des analyses de ¹⁴C (27 analyses entre le 01/12/13 et le 01/03/14 pour le site de Passy et 12 analyses pour le site de Chamonix). Dans un deuxième temps, le profil chimique du facteur combustion de la biomasse a été comparé aux profils obtenus dans la littérature. Les concentrations des traceurs spécifiques de la source combustion de la biomasse, le lévoglucosan et BC_{wb} ont ensuite été confrontées aux concentrations modélisées par le modèle PMF optimisé.

Bonvalot et al. (2016) ont montré, grâce à l'étude du ¹⁴C, qu'en période hivernale, 89 % du carbone total à Passy et 84 % à Chamonix étaient en moyenne de la matière carbonée moderne. Le calcul des contributions au carbone total (TC) des différentes sources de PM₁₀ identifiées par le modèle PMF (approche étendue avec contraintes et avec données Aethalomètre et ¹⁴C) permet de mettre en évidence l'excellente concordance entre les résultats PMF et ces résultats de l'analyse du ¹⁴C (figure 14). Ainsi, on confirme parfaitement qu'en hiver, les concentrations de matière carbonée sont très majoritairement d'origine moderne et issues essentiellement des émissions de la combustion du bois, alors qu'une beaucoup plus faible proportion (10 – 20 %) est associée à du carbone issu de combustibles fossiles et provient des autres types d'émission de particules atmosphériques, dont les sources véhiculaires.



Figure 14 : Contributions relatives au carbone total (EC+OC) en moyennes hivernales des sources de PM₁₀ identifiées par le modèle PMF optimisé, comparées aux contributions des parts de carbone fossile et non-fossile obtenues par l'analyse du radiocarbone

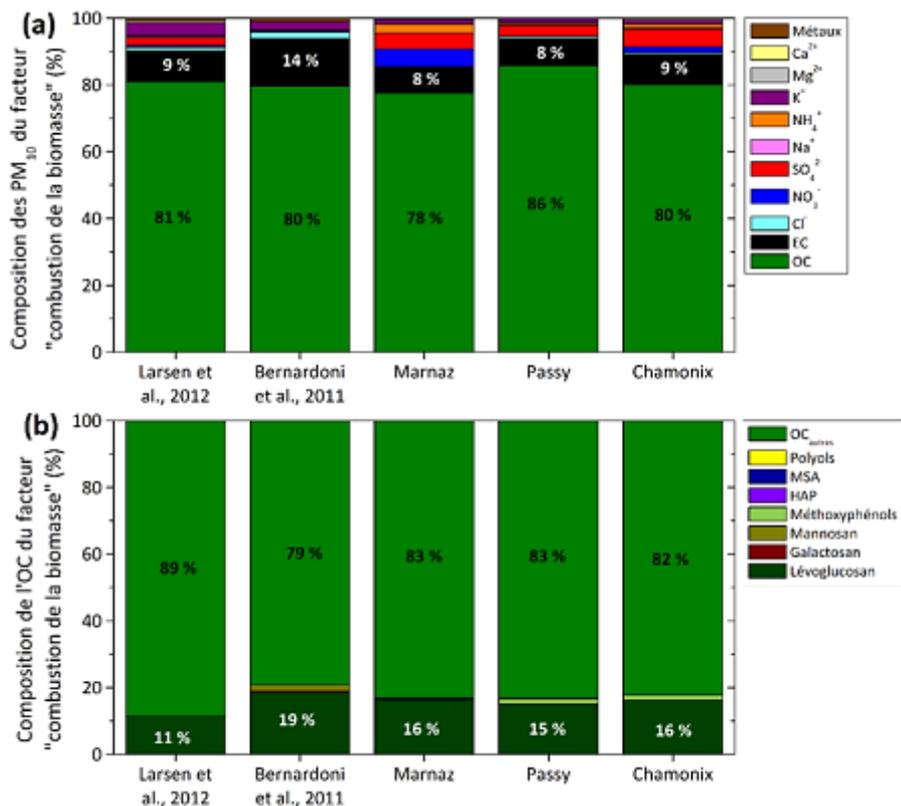
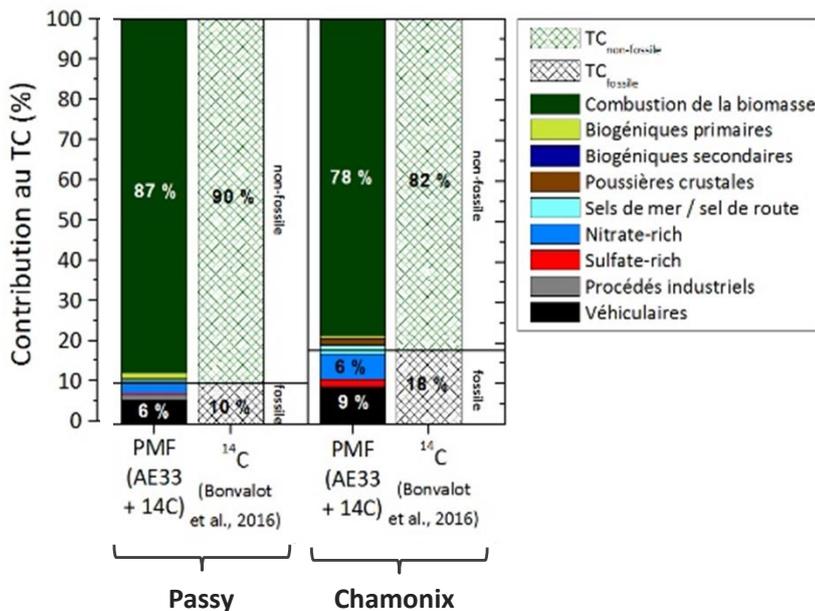


Figure 15 : Composition (a) des PM₁₀ et (b) de l'OC du facteur « combustion de la biomasse » obtenues dans cette étude et issue de la base de données SPECIEUROPE (Bernardoni et al., 2011; Larsen et al., 2012)

Récemment, a été mise en ligne une base de données de profils atmosphériques de sources d'émission de particules en Europe (SPECIEUROPE) développée dans le cadre du Forum pour la modélisation de la qualité de l'air en Europe (FAIRMODE). Cette base de données contient les compositions chimiques des particules émises par différents types de sources, issues soit de mesures à l'émission, soit d'études de quantification des sources. Il est ainsi possible de comparer les profils chimiques obtenus dans le cadre de DECOMBIO, et notamment le profil des émissions de la combustion de la biomasse, avec ceux recensés dans SPECIEUROPE (<http://source-apportionment.jrc.ec.europa.eu/specieurope/index.aspx>). Deux profils de la base de données européenne ont été choisis car ils incluent des éléments métalliques, ioniques et organiques en plus de

l'OC et l'EC (Bernardoni et al., 2011 ; Larsen et al., 2012). Le profil obtenu par Bernardoni et al. (2011) est basé sur une étude PMF de PM₁₀ collectées en été et en hiver à Milan, en site de fond urbain. Le profil de Larsen et al. (2012) est une moyenne de quatre profils sources reconstitués avec leurs données de PM et utilisés pour l'application du CMB dans la vallée de la Valteline, en Italie.

La comparaison des différents profils chimiques (figure 15) permet de mettre en évidence qu'environ 90 % de la masse des PM₁₀ du facteur « combustion de la biomasse » est composée de matière carbonée (essentiellement OC), sur les trois sites de la vallée de l'Arve mais également dans les profils de la littérature. De plus, cette figure montre la bonne cohérence qui existe pour les contributions à l'OC des différents marqueurs organiques présents dans ces profils de la combustion du bois issu du modèle PMF. Les composés autres que carbonés, représentant environ 10 % de la masse des PM₁₀, et présentent plus de variabilité entre les trois sites de cette étude et les autres études. Le potassium présente notamment une contribution plus faible dans la vallée de l'Arve par rapport aux études européennes. Le nitrate est également variable et plus important au niveau des sites de l'Arve, particulièrement à Marnaz.

Le lévoglucosan (dont les concentrations ont été mesurées sur les filtres de prélèvement) et le BC_{wb} (dont les concentrations ont été calculées par le modèle Aethalomètre) sont des traceurs exclusifs de la combustion de la biomasse. La Figure 16 ci-dessous représente une comparaison des concentrations en lévoglucosan et en BC_{wb} obtenues d'une part par analyse chimique et Aethalomètre (notées chimie ou AE33) et d'autre part estimées par le modèle PMF dans le facteur « combustion de la biomasse » (notées PMF/wb).

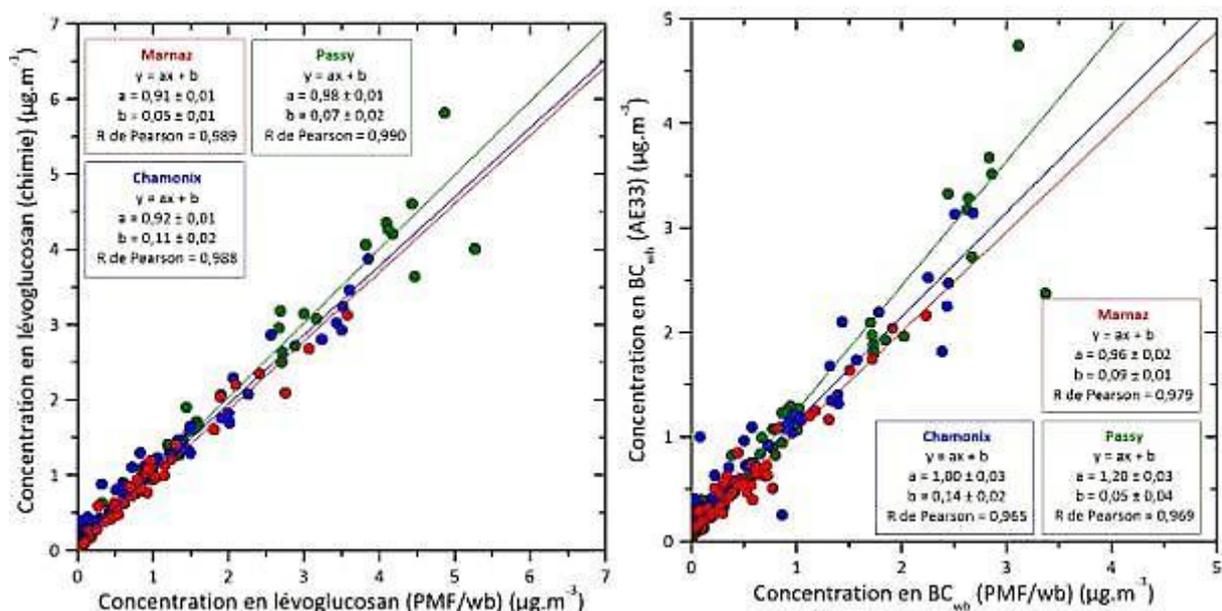


Figure 16 : Comparaison des concentrations (a) en lévoglucosan et (b) de BC_{wb} estimées d'une part dans le facteur « combustion de la biomasse » du modèle PMF et d'autre part déterminées par l'analyse chimique des PM₁₀ ou par mesures Aethalomètre, pour les trois sites d'étude.

Pour le lévoglucosan, on retrouve une très bonne estimation du modèle PMF pour ce traceur : les trois sites présentent non seulement des coefficients de corrélation très bons (R de Pearson de 0,99) mais également des pentes de droite très proches de 1 (0,91 pour Marnaz, 0,92 pour Chamonix et 0,98 pour Passy) et des interceptes à l'origine très faibles. Néanmoins, plus de différences existent pour BC_{wb}. Si de bonnes corrélations existent pour les sites de Marnaz et Chamonix avec des pentes de droite très proches de 1 et des interceptes faibles, la situation est différente à Passy où les concentrations en BC_{wb} estimées par le modèle PMF dans le facteur « combustion de la biomasse » semblent sous-estimées par rapport aux mesures. La dispersion due à quelques points élevés pourrait être à l'origine de ces écarts, et nécessiterait peut-être plus d'investigations.

Ainsi, malgré cette dernière différence, le modèle PMF optimisé avec l'ajout de composés spécifiques et de contraintes sur le profil combustion de la biomasse permet de contourner très correctement le problème de colinéarité des concentrations mesurées sur les 3 sites de la vallée de l'Arve. Les sources d'émissions aux PM₁₀ sont très variables selon les saisons. En hiver, la source combustion de la biomasse contribue entre 60 et 70% de la masse des PM₁₀ selon le site, avec un pourcentage pouvant augmenter lors des épisodes de pollution. Les résultats obtenus par PMF concordent avec ceux obtenus

par analyse du ^{14}C , ainsi que les profils de la source de combustion de la biomasse avec ceux de la base de données SPECIEUROPE. Les concentrations de lévoglucosan et BC_{wb} sont bien reconstruites par le modèle PMF optimisé. Ces éléments valident la quantification de la part de combustion de la biomasse dans les PM_{10} .

3.3. Campagne intensive de Février 2014

Dans le cadre du projet DECOMBIO, une campagne des mesures intensives a été réalisée du 14/02/2014 au 25/02/2014, sur le site de Passy. Elle avait pour principal objectif l'étude de l'évolution des propriétés physico-chimiques des particules et de leurs sources, à haute résolution temporelle (10 min). Comprendre ces évolutions doit permettre de mieux évaluer les dynamiques des processus impliqués dans les changements de qualité de l'air, notamment à l'échelle de la journée.

Au cours de la campagne, la concentration massique de l'aérosol est clairement dominée par le mode d'accumulation (100nm - 1 μm), mais la concentration en nombre est dominée par le mode ultrafin (< 100nm) (figure 17a). Pendant les périodes de fortes concentrations (principalement le matin) où les concentrations en nombre atteignent 30 - 35 000 particules. cm^{-3} (et en masse de l'ordre de 40-60 $\mu\text{g}.\text{m}^{-3}$, figure 17b), le diamètre modal décroît aux alentours de 30 nm témoignant de l'injection d'aérosol de combustion au sein de la couche de mélange de hauteur réduite. Malgré des valeurs de crêtes élevées, les valeurs moyennes journalières de concentration de l'aérosol submicronique étaient de 14 $\mu\text{g}.\text{m}^{-3}$ sur cette période.

La concentration massique des PM_1 est très majoritairement dominée par la fraction carbonée (Organic Aerosol (OA) + BC)) représentant en moyenne près de 87% de la masse des particules submicroniques (Figure 17b). Cette fraction carbonée est elle-même essentiellement constituée de matériaux organiques (OA, 77%). La très faible contribution des sulfates (6%) témoigne du très faible impact des apports externes à la vallée (ou formés par de l'oxydation de SO_2 émis dans la vallée). Enfin, comme pour le nombre de particules, on observe une très forte variabilité journalière des concentrations en masse, avec des maxima le matin et le soir (figure 14a, pour l'OA). Si un effet de source (pic de trafic, mise en fonctionnement des cheminées) impacte les concentrations observées, cette variabilité journalière est principalement gouvernée par la dynamique atmosphérique et principalement la hauteur de couche de mélange (cf. section 4).

La quantification des sources de l'OA a été menée par une approche PMF (Section 3.1) au moyen d'un solveur ME-2 (Multilinear Engine 2, SourceFinder (SoFi)). Dans le cas des mesures AMS (Aerosol Mass Spectrometer), utilisées ici pour l'analyse de la fraction non réfractaire de l'aérosol submicronique, l'empreinte chimique de l'aérosol est matérialisée par un spectre de masse. Les résultats de la modélisation par ME-2 révèlent trois facteurs différents sur la période concernée (Figure 17c) :

- **Facteur HOA** (Hydrocarbon Organic Aerosol), relatif à un aérosol riche en groupement CH, caractéristique d'un aérosol émis par la combustion de fuel fossile ; classiquement, ce facteur est principalement lié au trafic routier. En effet, plusieurs études (Petit et al, 2014 ; DeWitt et al, 2015 ; Bozzetti et al, 2017) ont mis en évidence la corrélation du facteur HOA avec le monoxyde de carbone (CO), les NO_x , et BC.

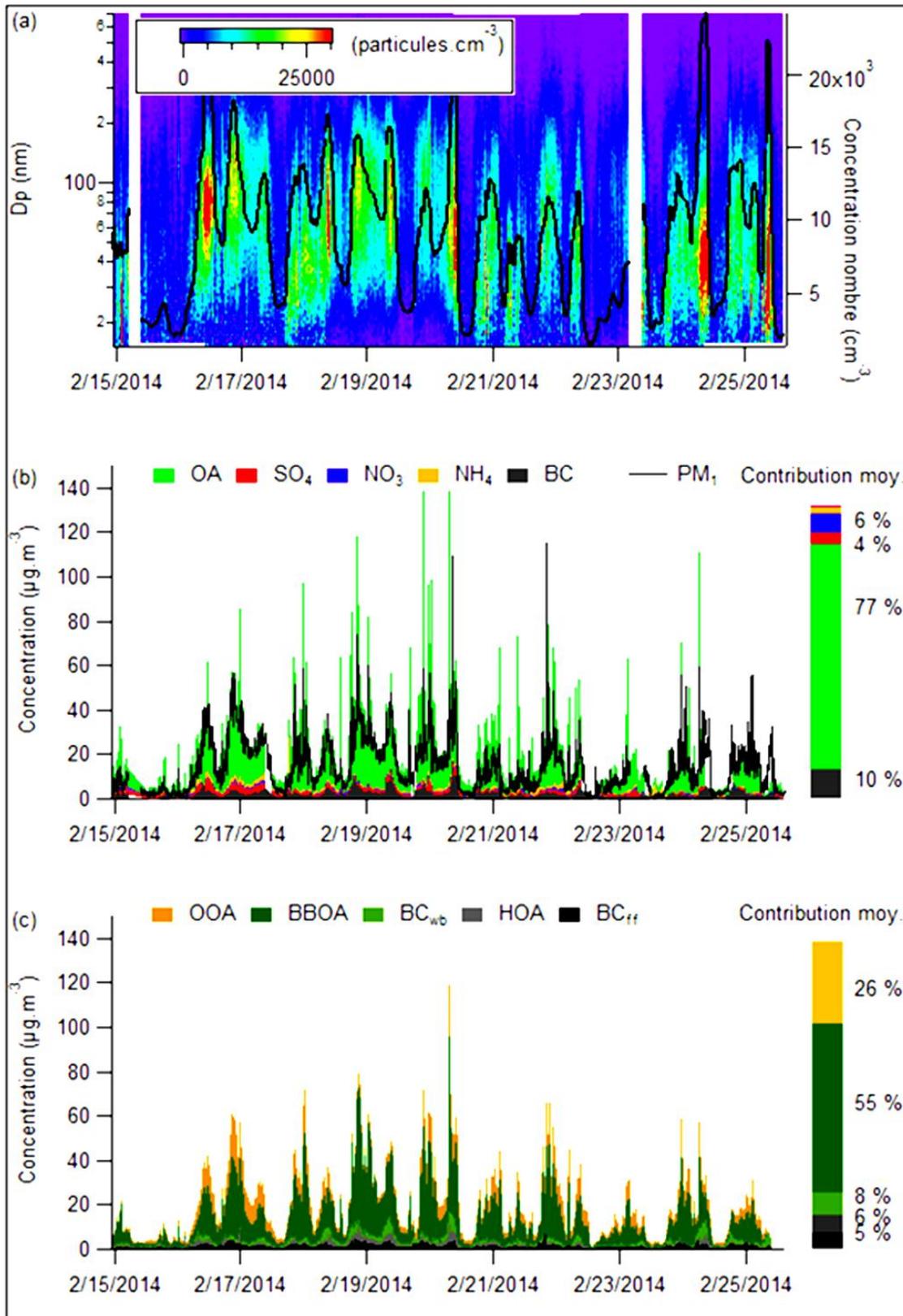
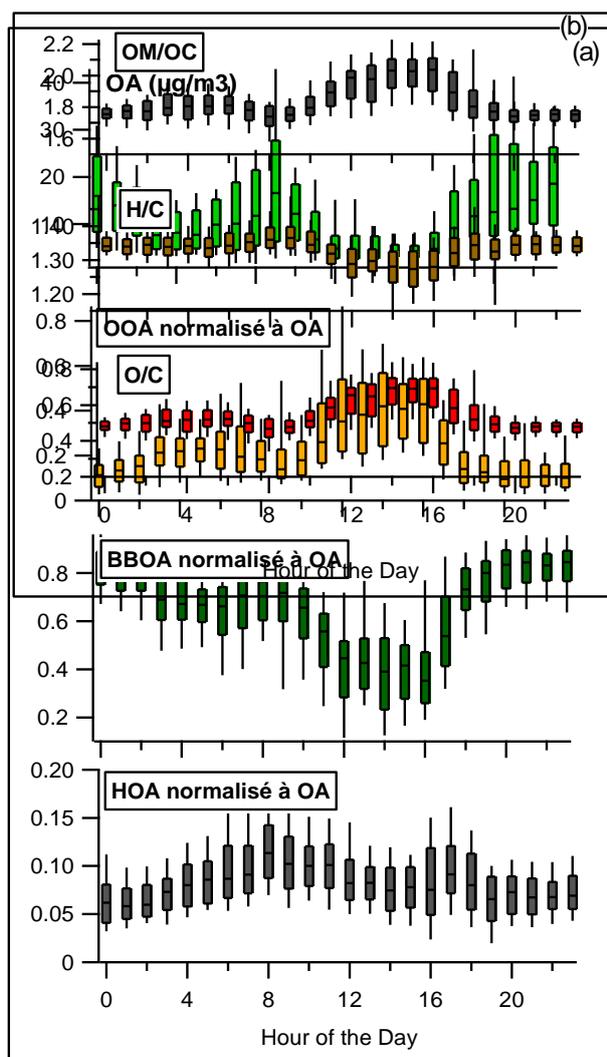


Figure 17 : Synthèse des résultats obtenus au cours de la campagne intensive de mesure (Passy, Février 2014) pour la fraction submicronique de l'aérosol. (a) distribution granulométrique et nombre total (cm^{-3}), (b) composition chimique des PM_{10} (HR-ToF-AMS+ Aethalomètre), (c) Principales sources de la fraction carbonée (OA+BC)

- **Facteur BBOA** (Biomass Burning Organic Aerosol), lié à un aérosol issu de combustion de biomasse. Il est notamment caractérisé par son fragment à la masse 60, fragment spécifique des composés issus de la dégradation thermique incomplète de la cellulose. Ce facteur est très généralement trouvé corrélé aux concentrations de traceurs de combustion de la biomasse comme le lévoglucosan et le potassium (Lanz et al., 2007).
- **Facteur OOA** (Oxygenated Organic Aerosol). Le facteur OOA, caractérisé par une forte abondance de l'ion m/z 44 (CO_2^+), est associé à la fraction secondaire de l'aérosol organique (SOA), c'est-à-dire issue de l'oxydation en phase gazeuse de composés organiques volatils ou semi-volatils. L'évolution temporelle de ce facteur est généralement directement corrélée à l'activité photochimique ou bien encore à des espèces secondaires comme le sulfate (Zhang et al., 2005 ; Zhang et al., 2007).

Cette analyse ME2, associée au traitement des données AE33 (décrite section 3.1), met clairement en évidence le caractère prépondérant de la combustion de biomasse. Elle est directement responsable, en moyenne sur la campagne de mesure, de 63% de la fraction carbonée des PM_{10} (55% BBOA + 8% BC_{wb} , Figure 17c) et également de 63% de la fraction organique. La contribution de cette source à l'OA peut représenter jusqu'à 70-80% au moment où les concentrations sont les plus importantes (Figure 18a). La source liée aux combustions de fuel fossiles (principalement le trafic véhiculaire), ne représente, en moyenne, que 7% de l'OA et 11% de la fraction carbonée (6% HOA+5% BB_{ff} , figure 17c). Aux moments où sont observés les pics de trafics, la contribution des combustions de fuel fossiles atteint au maximum 10 à 12% de l'OA (figure 18a).



Finalement, la fraction secondaire est estimée en moyenne à 30% de la fraction organique (soit 26% de la fraction carbonée). Elle présente une évolution journalière caractéristique de son origine photochimique avec une contribution relative qui augmente significativement au cours de la journée pour atteindre jusqu'à 40% de l'OA en milieu d'après-midi, quand les concentrations sont les plus faibles (figure 18a). L'évolution vers un aérosol organique plus oxydé au cours de l'après-midi est également clairement vérifiée si l'on s'intéresse à l'évolution journalière des ratios O/C, H/C et OM/OC (figure 18b).

Figure 18 : Evolution journalière a) de la concentration de la fraction organique (OA, $\mu\text{g}\cdot\text{m}^{-3}$) et de la contribution relative des facteurs BBOA (combustion de biomasse), HOA (combustion de fuel fossile) et OOA (fraction secondaire) b) des ratio OM/OC, O/C et H/C de l'OA

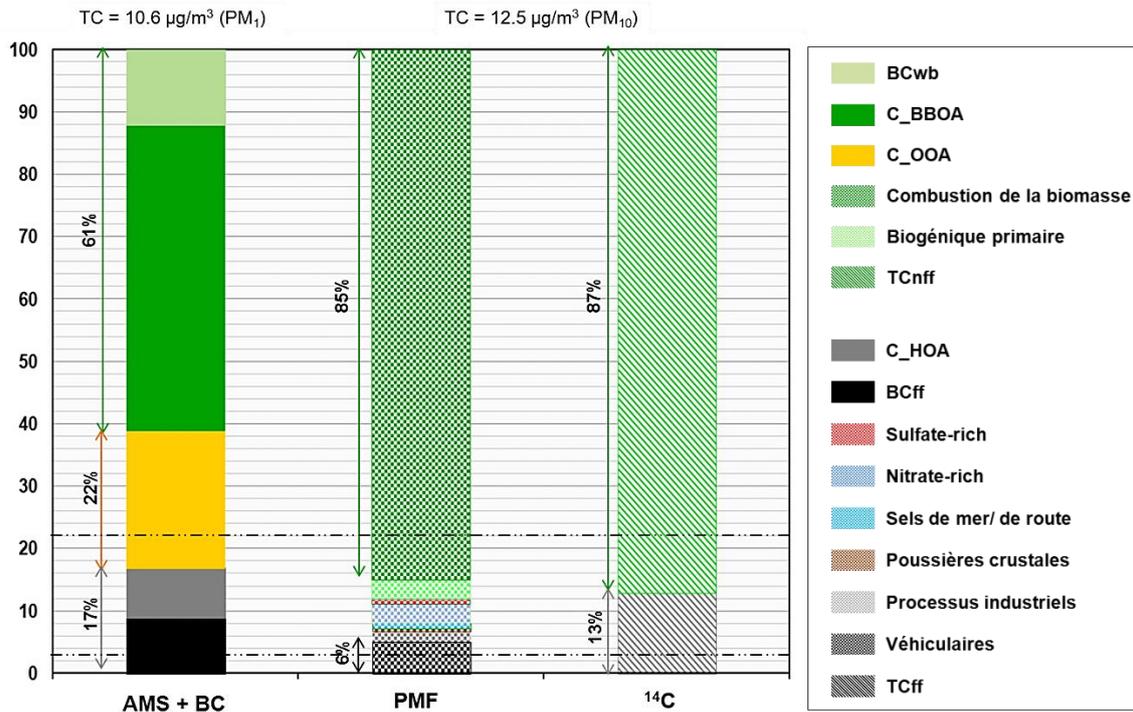


Figure 19 : Contributions relatives des principales sources au carbone total (TC) issues de mesures AMS et eBC ainsi que des mesures sur filtres et comparaison des mesures ^{14}C réalisées sur TC au cours de la campagne.. Les concentrations des facteurs HOA, BBOA et OOA sont convertis en $\mu\text{gC}\cdot\text{m}^{-3}$ en utilisant les ratios OM/OC spécifiques pour chaque facteur déterminés au cours de cette étude. On note la différence de taille de coupure entre les trois approches (PM_1 pour AMS+BC, et PM_{10} pour les analyses de ^{14}C et les mesures sur filtres).

L'origine exacte de cette fraction secondaire ne peut être déterminée de manière formelle directement via ces mesures. Toutefois, Il est important de noter que l'augmentation de la contribution de cette fraction secondaire se fait essentiellement au détriment de celle de la combustion de biomasse, dont la contribution relative diminue à environ 40% en milieu d'après-midi. De plus, les comparaisons avec les mesures de ^{14}C (réalisées sur le carbone total mesuré sur les filtres, cf section 3.2.3) mettent clairement en évidence l'origine très majoritairement moderne du carbone de la fraction secondaire (Figure 19). A minima, ces deux observations impliquent une relation étroite entre la source de combustion de biomasse et la fraction secondaire. Compte tenu du très fort potentiel de formation d'aérosol secondaire par les émissions de combustion de bois récemment mis en évidence (Bertrand et al., 2017; Bruns et al., 2016; Hennigan et al., 2011), l'origine de cette fraction oxydée est donc très probablement majoritairement la combustion de biomasse elle-même. L'impact global de la combustion de biomasse sur les PM doit donc être appréhendé en considérant les émissions primaires, mais également la fraction formée in situ dans l'atmosphère. Du fait de son caractère potentiellement plus impactante sur la santé que la fraction primaire (Platt et al, 2014), un intérêt particulier doit être porté sur cette fraction secondaire, et donc sur les émissions « âgées » de combustion de biomasse.

Enfin, on note le très bon accord quantitatif entre les contributions des sources avec l'approche off-line (section 3.2) et les résultats obtenus au cours de cette campagne avec des instruments de mesure rapide. Si la fraction secondaire n'apparaît pas de façon formelle dans les résultats obtenus par l'analyse PMF des données sur filtres (section 3.2), elle peut cependant être considérée comme incluse dans le facteur combustion de biomasse déterminé par cette méthode. Cette différence est en grande partie due à la fréquence d'échantillonnage des 2 approches, les mesures on-line permettant l'observation des phénomènes intra journaliers.

3.4. Quantification de la contribution de la source de la combustion de la biomasse aux PM_{10} au cours des 4 hivers

3.4.1. Estimation des incertitudes

La confrontation des mesures d'eBC avec EC sur 4 hivers ainsi que des mesures de BC_{wb} et de lévoglucosan a permis de valider les mesures de BC_{wb} comme traceur de la source de combustion de la biomasse. Par ailleurs, les mesures de $\text{PM}_{10\text{wb}}$ ont été évaluées à partir d'un modèle PMF optimisé

au contexte de la vallée et validées par la comparaison avec d'autres méthodes d'attribution des sources. Il est ainsi envisageable de pouvoir estimer les concentrations de PM_{10wb} sur les 4 hivers du programme à partir des mesures de BC_{wb} et d'un facteur multiplicatif spécifique correspondant au rapport PM_{10wb}/BC_{wb} , **qui sera noté par la suite α** . Ce dernier est déterminé à partir des concentrations PM_{10wb} modélisées par le modèle PMF optimisé et des mesures de BC_{wb} lors du 1^{er} hiver. L'utilisation d'un coefficient constant sur les 4 hivers à partir des mesures de BC_{wb} dans un contexte de renouvellement d'appareils de chauffage au bois est cependant possiblement sujette à différentes incertitudes :

- Celles des mesures de BC_{wb} et de PM_{10wb} modélisées par PMF,
- Celles de l'utilisation d'un même coefficient α pour les 4 hivers de mesures, en faisant l'hypothèse que la contribution de BC_{wb} aux particules issues de la combustion de la biomasse n'a pas varié au cours des hivers,
- Celles de la variabilité journalière naturelle de la contribution de BC_{wb} aux PM_{10wb} .

Certaines de ces incertitudes ne sont pas quantifiables directement, mais les mesures réalisées sur les filtres nous permettent cependant d'appréhender la robustesse des mesures de BC_{wb} pour le suivi de la source de combustion de la biomasse et d'analyser le profil chimique des particules au cours des 4 hivers.

Il a été précédemment montré que les évolutions temporelles de BC_{wb} et du lévoglucosan concordaient presque identiquement sur les 4 hivers. Cependant, des variations des ratios $BC_{wb}/\text{lévoglucosan}$ mais également de eBC/EC ont été montrés entre les différents hivers. De telles variations ont été retrouvées dans le cadre du projet Lanslebourg pour un nombre cependant, plus faible de mesures (15 mesures par hiver, rapport intermédiaire ADEME, JL Besombes et al, 2016). L'ordre de grandeur de ces variations reste aussi dans la gamme de variabilité naturelle du MAC (Zanatta et al, 2016), à partir duquel sont déduites les mesures de concentrations d'eBC. Ainsi, ces résultats associés à ceux de l'analyse de sensibilité sur les exposants d'Angstrom (voir 3.1.1) montrent qu'une incertitude relative de 25% sur les mesures de BC_{wb} est certainement raisonnable. C'est l'incertitude qui sera utilisée dans la suite de ce rapport.

Bien que ces ratios restent dans la gamme d'incertitude généralement considérée comme raisonnable, une étude plus fine de la composition chimique des PM_{10} montre qu'une diminution de la contribution à la matière carbonée des principaux marqueurs de la combustion de la biomasse est également visible sur les 3 sites au cours des hivers (voir Annexe 10). Il n'est donc pas impossible que l'action du Fond Air Bois commence à modifier de manière sensible la composition chimique des aérosols. Cependant, les « profils chimiques biomasse » mesurés restent là encore dans la variabilité des profil-type des sites alpins impactés par la source de combustion de la biomasse (Herich et al., 2014). Ainsi, nous faisons l'hypothèse que l'utilisation des coefficients spécifiques PM_{wb}/BC_{wb} déterminés (pour chaque site) sur les mesures du 1^{er} hiver reste valide pour estimer les concentrations de PM_{wb} sur les hivers suivants. Les concentrations estimées de PM_{wb} du dernier hiver sont cependant certainement plus incertaines que celles des autres hivers du fait de ces variations du profil chimique de la matière carbonée émise par la combustion de biomasse, sans qu'il ne soit actuellement possible de quantifier cet effet.

L'incertitude des concentrations de PM_{10wb} modélisées par le modèle PMF optimisé peut également influencer sur la détermination du coefficient α (donné par la moyenne des rapports entre ces PM_{10wb} modélisées et les concentrations de BC_{wb} mesurées, pour les journées prises en compte dans l'étude PMF sur 2013-2014). Aucun outil ne permet actuellement de quantifier l'incertitude sur les reconstructions des concentrations PM_{10wb} journalières. L'écart-type donné dans le tableau 7 ci-dessous pour les valeurs de α correspond à la variabilité des rapports sur les séries de journées de mesures, pour lesquelles quelques valeurs extrêmes ont été enlevées.

Site	Passy	Chamonix	Marnaz
Effectif pour la détermination de α	29	26	30
Coefficients α	13.3 ± 1.7 (13%)	13.7 ± 2.1 (15%)	17.0 ± 3.0 (18%)
Incertainitude relative des concentrations journalières de PM_{10wb} ($\alpha * [BC_{wb}]$)	38%	40%	43%

Tableau 7 : Coefficients α des 3 sites déterminés à partir des concentrations PM_{10wb} de la PMF et des mesures AE33 de BC_{wb} (moyenne \pm écart-type). Incertitude relative résultant des concentrations journalières PM_{10wb} .

Ainsi, ce Tableau 7 reporte les coefficients α déterminés pour chacun des 3 sites sur la période du 15/11/13 au 15/03/14 pour les 3 sites. A partir de cette dernière date, les mesures de BC_{wb} dans le

facteur de combustion de la biomasse suivent moins bien les mesures de BC_{wb} des AE33 (écarts pouvant être de plus de 50% entre les valeurs journalières), sans doute en raison d'évolution des propriétés physico-chimiques et optiques.

Dans la littérature, l'étude ayant la méthodologie la plus semblable à celle proposée ici a été réalisé par Petit et al (2014) sur un site de fond urbain (à Paris) où les contributions de la combustion de la biomasse aux PM_{10} ont été estimées à environ 15 % (de février à mars 2012) grâce à une méthode combinant données ACSM et analyse PMF. Un ratio PM_{wb}/BC_{wb} d'environ 12,4 a été estimé ce qui est relativement proche des coefficients obtenus en hiver pour les sites de Passy et Chamonix. Le site de Marnaz présente un coefficient α plus élevé, qui pourrait s'expliquer par la topographie plus ouverte de la vallée permettant des apports extérieurs avec des PM_{10} issues de la combustion de biomasse présentant une fraction secondaire plus importante. Une discussion plus poussée sur ces coefficients dans les études de la littérature est proposée dans Chevrier (2016).

3.4.2. Evolution des concentrations PM_{10wb}

L'évolution des concentrations moyennes des PM_{10} issues de la source « combustion de la biomasse » (PM_{10wb}) au cours des hivers est représentée sur la figure 20a. Ces concentrations sont donc calculées avec les mesures de BC_{wb} (moyennes journalières des mesures AE33) multipliées par le coefficient α . On observe que, si les concentrations de PM_{10wb} ont une tendance à diminuer entre le 1^{er} et 3^{ème} hiver du programme sur les 3 sites, une augmentation relativement forte de ces concentrations est observable le 4^{ème} hiver. On note en particulier que les concentrations des particules liées à la combustion de la biomasse sur les sites de Passy et Marnaz sont plus élevées (de l'ordre de 16 et 37%, respectivement) lors du 4^{ème} hiver par rapport au 1^{er} hiver du programme. Sur le site de Chamonix, malgré une augmentation des concentrations de PM_{10wb} entre le 3^{ème} et 4^{ème} hiver du programme, ces dernières ont diminué de 13% par rapport au 1^{er} hiver.

Les évolutions des contributions de la source combustion de la biomasse aux PM_{10} (PM_{wb}/PM_{10}) au cours des hivers sont représentées sur la figure 20b. Cette fraction est déterminée avec les concentrations de PM_{wb} (ci-dessus) et les concentrations de PM_{10} correspondant aux mesures réglementaires du TEOM-FDMS. La considération de ces mesures TEOM (pour les besoins réglementaires) alors que les études PMF ont été conduites sur les fractions massiques reconstruites avec les données chimiques est un facteur d'incertitude supplémentaire dans les calculs. Le site de Chamonix présente une diminution de la fraction PM_{wb}/PM_{10} de l'ordre de 15% en moyenne entre le 1^{er} hiver et le 4^{ème} hiver. Aucune tendance significative n'est visible sur les autres sites, les fractions PM_{wb}/PM_{10} pouvant varier cependant fortement d'un hiver à l'autre, notamment entre les hivers 14-15 et 15-16 à Passy où cette fraction a augmenté de 24% en moyenne.

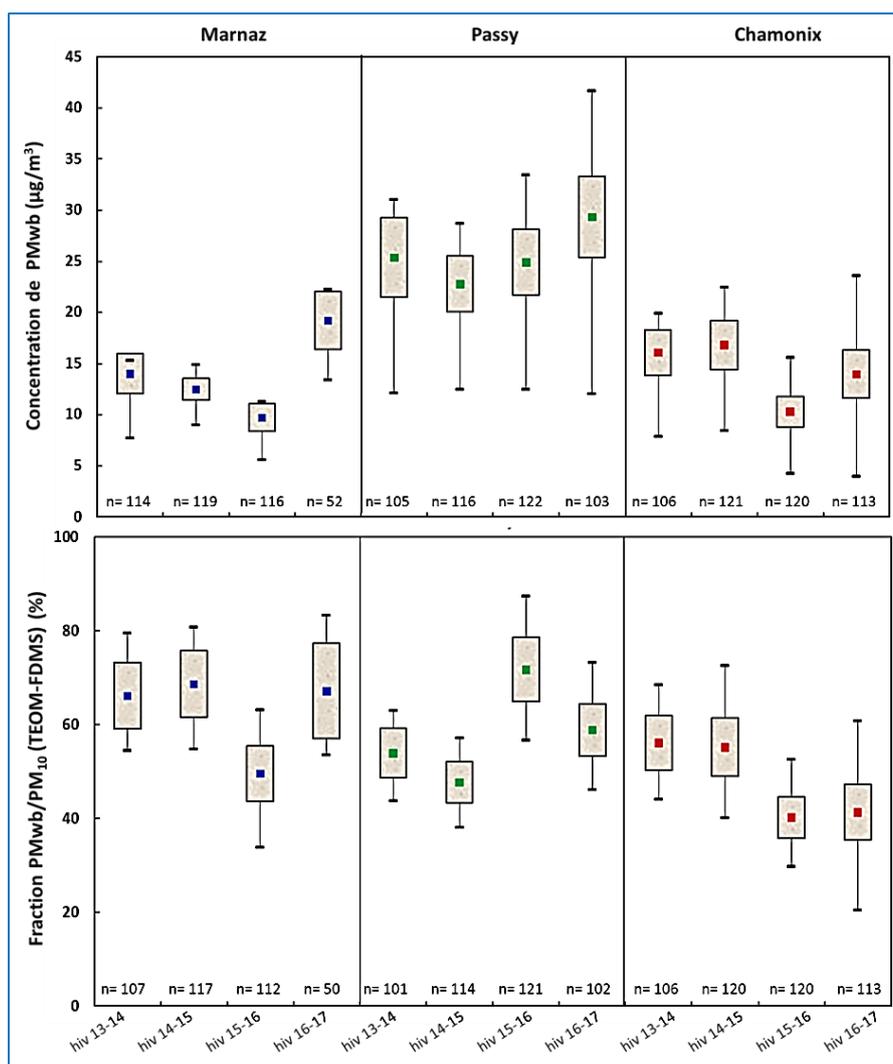


Figure 20 : Evolutions des concentrations moyennes de PM_{10wb} (a) et de la fraction moyenne PM_{10wb}/PM₁₀ (b) au cours des 4 hivers sur les 3 sites, représentées par les carrés colorés. Les concentrations PM_{10wb} sont issues du rapport des mesures de BC_{wb} (AE33) par le coefficient α . Le rectangle grisé correspond à l'intervalle de confiance 95% de la moyenne² et les barres noires représentent l'interquartile Q1-Q3 des fractions PM_{10wb}/PM₁₀.

En première approche, l'augmentation des concentrations lors de l'hiver 16-17 par rapport aux autres hivers pourrait s'expliquer par une fréquence plus élevée de journées avec des conditions défavorables pour la dispersion (entre 12 et 22% selon le site par rapport à l'hiver 13-14) (figure 21). Les températures moyennes sont également plus faibles de 0,6 et 1,3°C lors du 4^{ème} hiver par rapport au 1^{er} hiver du programme sur le site de Marnaz et Passy respectivement, ayant induit un besoin de chauffage supérieur pour cet hiver. Pour le site de Chamonix, la température moyenne est similaire entre le 1^{er} et le 4^{ème} hiver du programme.

Ainsi, un calcul avec l'ensemble des jours disponibles sur les différents hivers ne permet pas de mettre en évidence directement un impact du renouvellement des appareils de chauffage au bois non-performants soit sur les concentrations de PM_{wb} ou bien sur la fraction PM_{10wb}/PM₁₀, à l'exception peut-être du site de Chamonix.

Au-delà des incertitudes sur les mesures et les paramètres utilisés, **certaines facteurs importants de variabilité ne sont pas pris en compte dans une telle approche**, incluant au premier chef :

² L'intervalle de confiance 95% de la moyenne est calculé en faisant l'hypothèse que la distribution de la moyenne empirique tend vers une loi Normale d'après le théorème central limite. Pour un intervalle de confiance 95%, soit avec un risque α de 5%, la moyenne se situe entre $\left[\mu - \sigma * \frac{\tau_{97,5\%}}{\sqrt{N}}, \mu + \sigma * \frac{\tau_{97,5\%}}{\sqrt{N}} \right]$ avec μ , la moyenne, σ , l'écart-type, N, l'effectif des mesures et T, le fractile d'ordre $1-\alpha/2$ de la loi Student à (N-1) degrés de libertés.

- i. l'évolution possible du profil chimique de la matière carbonée : ainsi, comme on l'a vu, les variations inter-hivernales des rapports eBC/EC et BC_{wb} /Lévoglucosan ont également un impact sur le calcul de l'évolution de la fraction PM_{10wb}/PM_{10} au cours des 4 hivers, bien que restant dans les domaines de variation du MAC (Mass Absorption Coefficient). Une démarche alternative en appliquant un facteur rectificatif sur les mesures de eBC pour les hivers présentant des rapports eBC/EC et BC_{wb} /Lévoglucosan significativement différents par rapport à ceux du 1^{er} hiver est décrite en Annexe 9.
- ii. l'impact des conditions météorologiques sur les concentrations. Ce second point constitue un facteur de confusion de premier ordre, et l'influence de la météorologie est donc considérée en détail dans le chapitre 4 suivant.

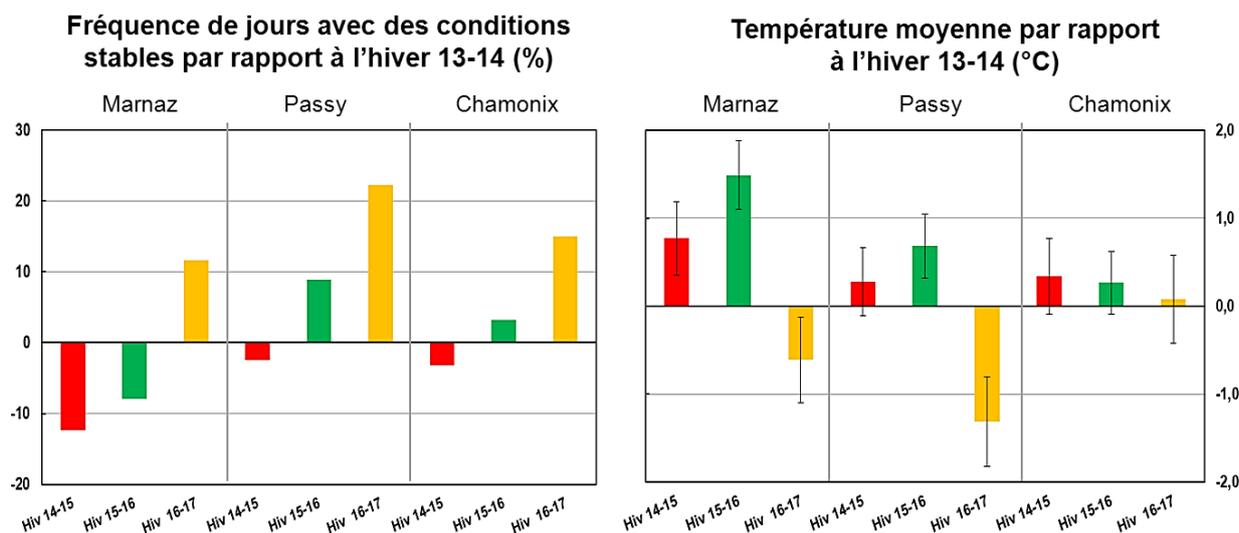


Figure 21 : Fréquences de jours avec des conditions stables (journées présentant une différence de température > 0°C sur les 600 premiers m d'altitude, voir Section 4.1) sur les périodes du 15/11 au 15/03 par rapport à la fréquence de journées stables lors de l'hiver 13-14. Température moyenne hivernale avec un intervalle de confiance de 50% par rapport à la température journalière moyenne lors de l'hiver 13-14.

L'objectif des mesures de la chimie des PM était de quantifier la fraction PM_{10wb} sur les 4 hivers et les 3 sites du programme DECOMBIO.

- Une **approche PMF optimisée** a permis d'attribuer les sources de PM_{10} au niveau des 3 sites, en contournant le problème de fortes colinéarités des concentrations dues à la dynamique atmosphérique particulière des vallées.
- La source de **combustion de la biomasse contribue entre 60 et 70% des PM_{10}** en fonction du site, sur l'hiver 13-14. Ce résultat concorde avec les analyses ^{14}C ainsi qu'avec l'analyse des mesures AMS réalisées durant une campagne intensive en Février 2014.
- Les **concentrations de PM_{10wb}** peuvent être quantifiées à partir des mesures de BC_{wb} des AE33 et d'un coefficient α constant déterminé par le rapport PM_{10wb}/BC_{wb} via les résultats de la PMF sur les mesures du 1^{er} hiver.
- Les **mesures sur filtres** réalisées sur les 4 hivers du programme permettent d'appréhender certaines sources d'**incertitudes liées à cette méthode de quantification**.
- **Aucune évolution marquante** de la source de combustion de la biomasse en termes de fraction ou de concentration n'est visible au bout du 4^{ème} hiver sur les 3 sites. Cependant, les **conditions atmosphériques sont un facteur de confusion** de premier ordre, très largement susceptibles de masquer les évolutions réelles des changements liées à la source « combustion de biomasse ».

4. Influence de la météorologie locale sur les concentrations hivernales

La topographie de la vallée de l'Arve est responsable de situations de dispersion des particules atmosphériques très contrastées (Sabatier et al., 2018). En hiver, les vallées sont généralement le cadre du phénomène météorologique local de « Cold-Air Pool » (Lareau et al, 2011) qui se caractérise par une inversion de température de surface qui peut être journalière ou persister sur plusieurs jours. Lorsque ces inversions persistantes surviennent dans des vallées urbanisées, les particules émises par des rejets anthropiques s'accumulent près du sol conduisant à une dégradation importante de la qualité de l'air (Reddy et al, 1995 ; Malek et al, 2006 ; Silcox et al, 2012). Si ce phénomène est bien connu, la mise en évidence plus ou moins quantifiée de son impact sur les concentrations atmosphériques est encore rare. C'est le premier objet de la section 4.1

Dans une seconde partie (section 4.2), nous proposons de définir des classes de journées météorologiquement « semblables » permettant de comparer à conditions équivalentes les concentrations mesurées lors des différents hivers pour les traceurs et les indicateurs des émissions de la combustion de biomasse, pour pouvoir correctement évaluer les tendances annuelles de leurs évolutions.

4.1. Mise en évidence de l'impact des inversions de température

La figure 22 ci-dessous représente les profils verticaux de la température de l'air d'une part et de la concentration d'eBC d'autre part, mesurés sur le site de Passy lors d'un épisode d'inversion durant la campagne LEFE-PASSY. La température augmente fortement avec l'altitude dans les très basses couches (avec un gradient de l'ordre de 4°C/100m), alors que la concentration de BC varie de 7µg.m⁻³ au sol pour devenir homogène vers 1µg.m⁻³ au-dessus de l'inversion de basse couche, à partir d'environ 40 m au-dessus du sol. Cet exemple (peut-être paroxysmique) montre bien que les concentrations mesurées au sol sont totalement dépendantes des conditions d'inversion, et sans doute très fluctuantes selon la hauteur de ces inversions (dépendante de l'intensité du gradient thermique de basses couches). Une augmentation d'un facteur 7 des concentrations est à comparer avec les gains espérés par l'opération « Fond Air Bois ».

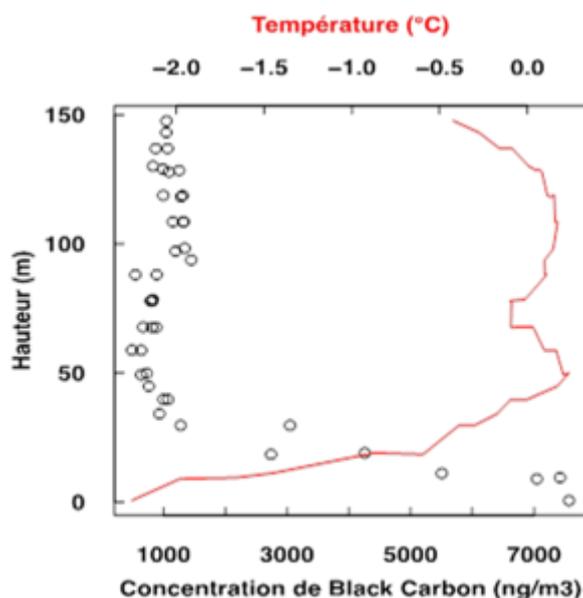


Figure 22 : Profils verticaux de température (sonde Vaisala) et concentrations de BC (Micro-aethalomètre AE52, Magee Scientific) réalisés sous ballon captif le 13/02/15 à 07h à Passy.

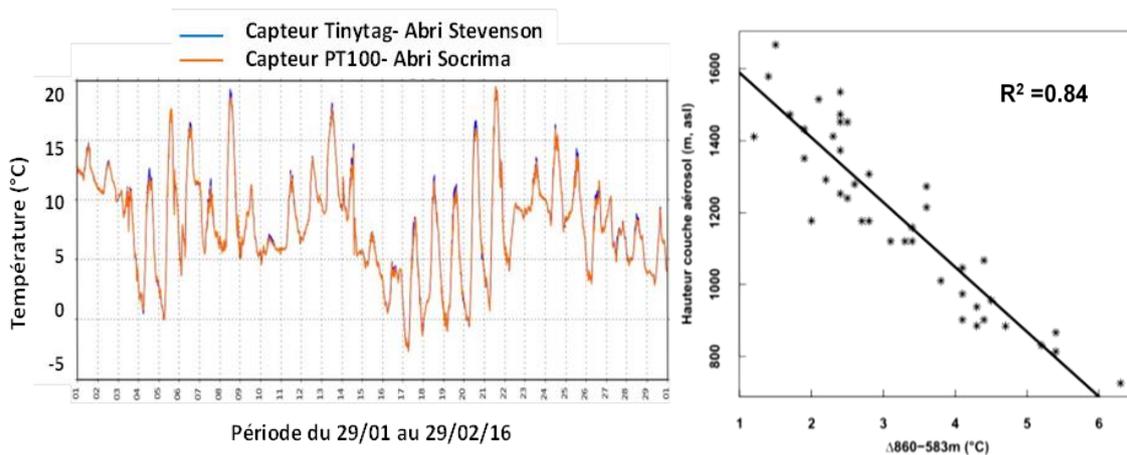


Figure 23 : a) Inter-comparaison du système capteur de température + abri utilisé dans le réseau RADOME de Météo-France et dans le programme DECOMBIO. b) Différences de températures en fonction de la portée du lidar WLS200S à l'échelle horaire sur la période du 8 au 12/02/13 à Passy.

Dans le cadre du programme DECOMBIO, la mesure de la hauteur de la couche limite est indirectement suivie par un système de capteurs de température (Tinytags TGP-4500 de Gemini Data Loggers) sous abri installés le long des versants des 3 sites de mesures. Ce système a été validé par plusieurs comparaisons (voir Annexe 2) dont notamment :

- Une comparaison des températures sur 6 mois (29/01 au 16/06) d'un Tinytag sous abri avec une sonde PT100 sous abri utilisée dans le réseau RADOME de MétéoFrance. La figure 23a présente l'évolution de températures des 2 capteurs sur le mois le plus représentatif des conditions hivernales rencontrées.
- La comparaison des mesures de températures issues des radiosondages (53 lancers, un toutes les 3 heures) effectuées lors de la campagne Passy-2015 (Paci et al ; 2016) avec les mesures des capteurs installés le long de la pente à Passy.
- La comparaison de l'écart thermique obtenu entre 2 capteurs installés le long des pentes avec un proxy de la hauteur de la couche aérosol mesuré par le lidar vent (WLS200S de Leosphere) déployé lors de la campagne Passy-2015 (figure 23b).

Finalement, on montre que la différence de températures provenant de 2 capteurs séparés d'une hauteur relativement élevée (> 100 m) permet de s'affranchir de certains effets de l'environnement local sur les mesures de températures et de pouvoir suivre l'état de stabilité des basses couches atmosphériques de manière continue sur les 3 sites DECOMBIO.

L'évolution des concentrations avec la mesure de ΔT issues des mesures des capteurs peut être étudiée à une échelle infra-journalière sur des périodes relativement longues. La Figure 24 présente les évolutions de la concentration de eBC et de la différence de températures sur les 300 premiers mètres à Passy lors de l'épisode d'inversion thermique persistante durant la Campagne Passy-2015 (Paci et al., 2016). Un cycle journalier des concentrations à « double pic » est retrouvé en moyenne, avec des amplitudes très élevées pour les périodes de forte inversion. Ce profil journalier de concentrations a été observé sur d'autres sites dans des vallées urbanisées comme la vallée de Katmandou ou à Salt Lake City, mais également, dans des villes en plaine comme Athènes ou New Delhi (Green et al, 2015 ; Whiteman et al, 2014 ; Panday and Prinn, 2009 ; Tiwari et al, 2012 ; Fourtziou et al, 2017). Ce profil des concentrations est expliqué par la dynamique des inversions de basses couches et par les émissions locales. On observe bien une diminution très rapide des concentrations simultanée à la rupture de l'inversion en fin de nuit, vers 9h UTC.

Cependant, ce graphique met en avant une diminution nocturne des concentrations alors que la couche atmosphérique devient de plus en plus stable, qui ne peut être attribuée à la seule diminution des émissions. Une hypothèse avancée dans la littérature pour expliquer ce phénomène est le drainage par un flux d'air « propre », généré par les vents de pentes venant d'altitude, ce qui est en accord avec des résultats de modélisation numérique sur des vallées idéalisées ou non (Panday and Prinn, 2009 ; Arduini et al, 2015). Une autre hypothèse pourrait être l'addition d'un phénomène de déposition des particules, peut être avec des brouillards nocturnes sous inversion. Cette hypothèse est cohérente avec la décroissance nocturne bien moindre observée pour les concentrations de CO_2 que pour eBC. Des



mesures et le développement de modélisation à très fine échelle sont donc encore nécessaires pour améliorer la connaissance de ces processus.

Un dernier exemple de l'impact des inversions de température est présenté avec la figure 25 suivante. Elle montre les évolutions des concentrations journalières en PM₁₀ à Chamonix cette fois ci sur l'ensemble de l'hiver 2016-2017 (Nov à Mars), en parallèle avec la différence de température entre le sol (1139 masl) et 600 m d'altitude. La corrélation est frappante entre les deux séries de mesures, indiquant que la structuration thermique des basses couches atmosphérique joue là encore un rôle fondamental, sur une échelle temporelle de plusieurs mois.

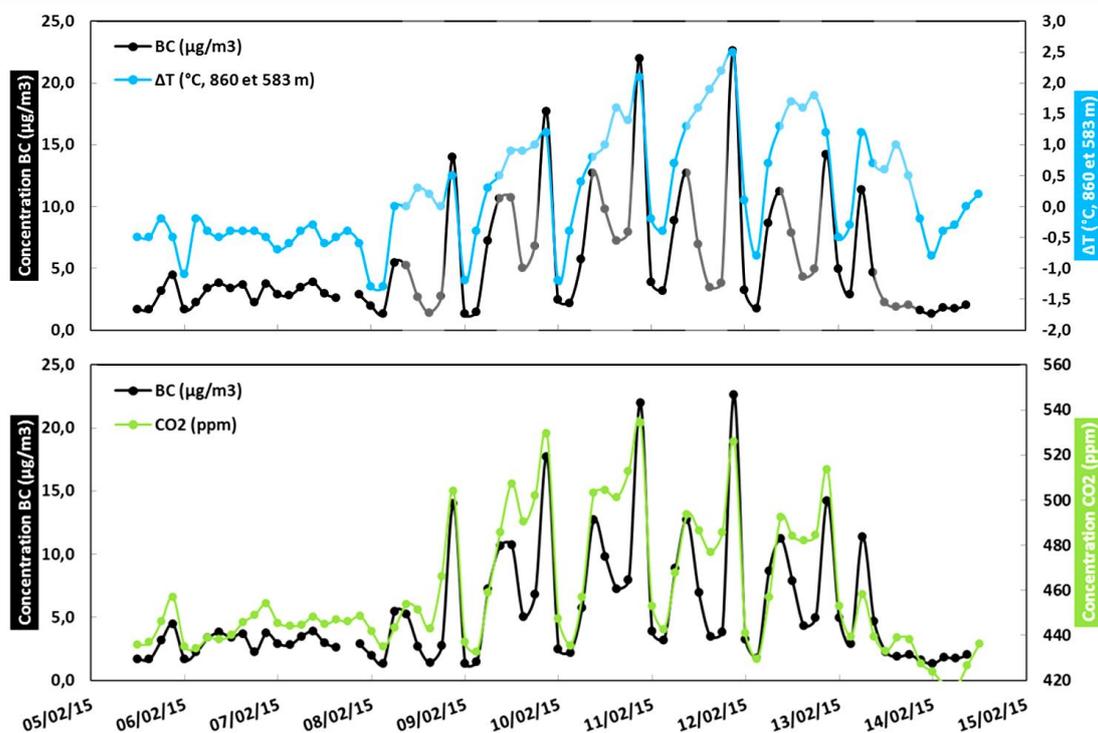


Figure 24 : Evolutions des concentrations tri-horaires d'eBC et de CO₂, et différences de température sur les 300 premiers m d'altitude (mesures des capteurs le long des pentes) lors d'un épisode de pollution durant la campagne Passy-2015. En grisé sont représentées les périodes nocturnes.

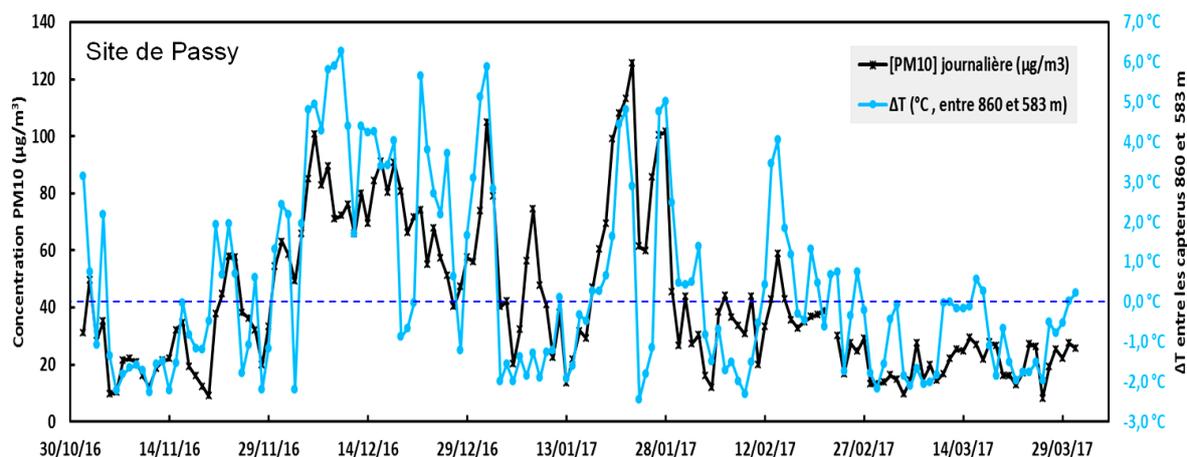


Figure 25 : Evolutions des concentrations journalières des PM₁₀, et différences de température sur les 280 premiers m d'altitude (mesures des capteurs le long des pentes) lors de l'ensemble de la période Nov 2016 – Mars 2017 à Passy.

On montre bien avec ces différents exemples (à différentes échelles de temps et d'espace) que l'analyse de mesures de concentrations pour évaluer l'impact de l'action de réduction des émissions serait totalement faussée si les différences de conditions atmosphériques entre hivers ne sont pas prises en

compte. Ainsi, afin d'obtenir des situations météorologiquement comparables au cours des hivers, une classification des typologies des conditions météorologiques a été développée en fonction de l'influence des différentes variables sur les concentrations des particules.

4.2. Classification des conditions météorologiques selon leur influence sur les concentrations des particules

4.2.1. Démarche développée, classification, et validité

Une méthodologie a été développée afin de pouvoir déterminer des classes de conditions météorologiques hivernales comparables (Figure 26 et Annexe 11). Une première étape est la sélection des variables d'influence, qui est faite à partir de la littérature. Les variables dont un impact a été montré ont été répertoriées, certaines caractérisant l'état atmosphérique de la journée X, d'autres, celui de la journée X-1, alors que d'autres encore sont dites sociales comme le type de jour.

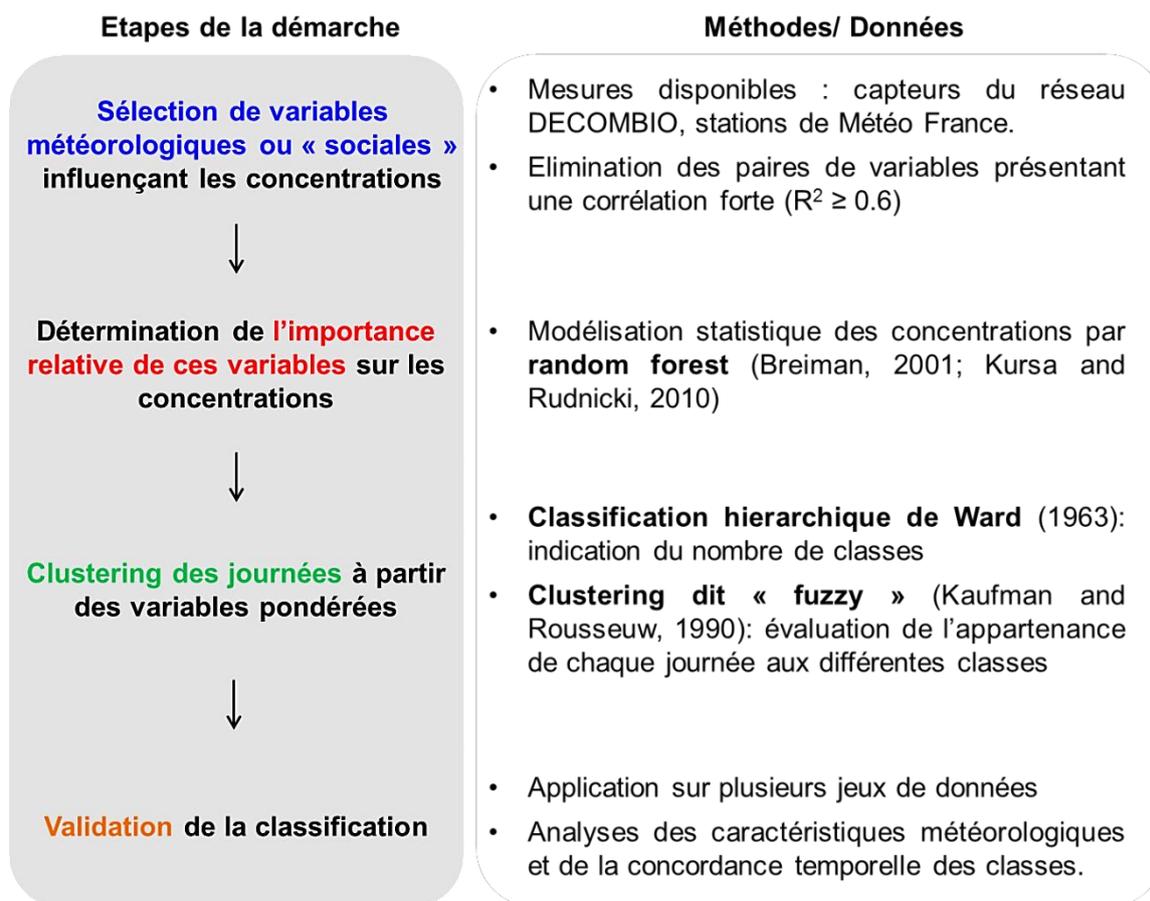


Figure 26 : Schéma de la méthodologie appliquée afin de pouvoir classer les conditions atmosphériques journalières au niveau des 3 sites de mesures en fonction de leur influence sur les concentrations des particules.

Les mesures réalisées par les stations Météo-France proche des stations de mesures DECOMBIO ainsi que par le système de capteurs de température installé le long des pentes ont finalement permis, à la suite d'un processus de sélection, de prendre en compte 9 à 10 variables selon le site, dont la fiabilité des mesures a été vérifiée. Ces variables sont (1) la température journalière, (2) l'amplitude thermique journalière près du sol, (3) le ΔT déterminé, pour chaque site, sur les 600 premiers m, (4) la vitesse du vent, (5 et 6) les taux de précipitation du jour et de la veille, (7) l'épaisseur de neige au sol, (8) la concentration journalière de BC_{wb} de la veille et (9) la distinction des vacances/ hors vacances (pour le site de Chamonix essentiellement). Ces variables ont été choisies après une étude bibliographique poussée. Une concentration journalière de la veille élevée peut impacter les concentrations du jour par un renforcement de la concentration lors d'épisodes stables. Cette variable, non météorologique à proprement parlé, a cependant été intégrée dans les variables influençant les concentrations. Les périodes de mesures sélectionnées vont du 01/11 au 31/03.

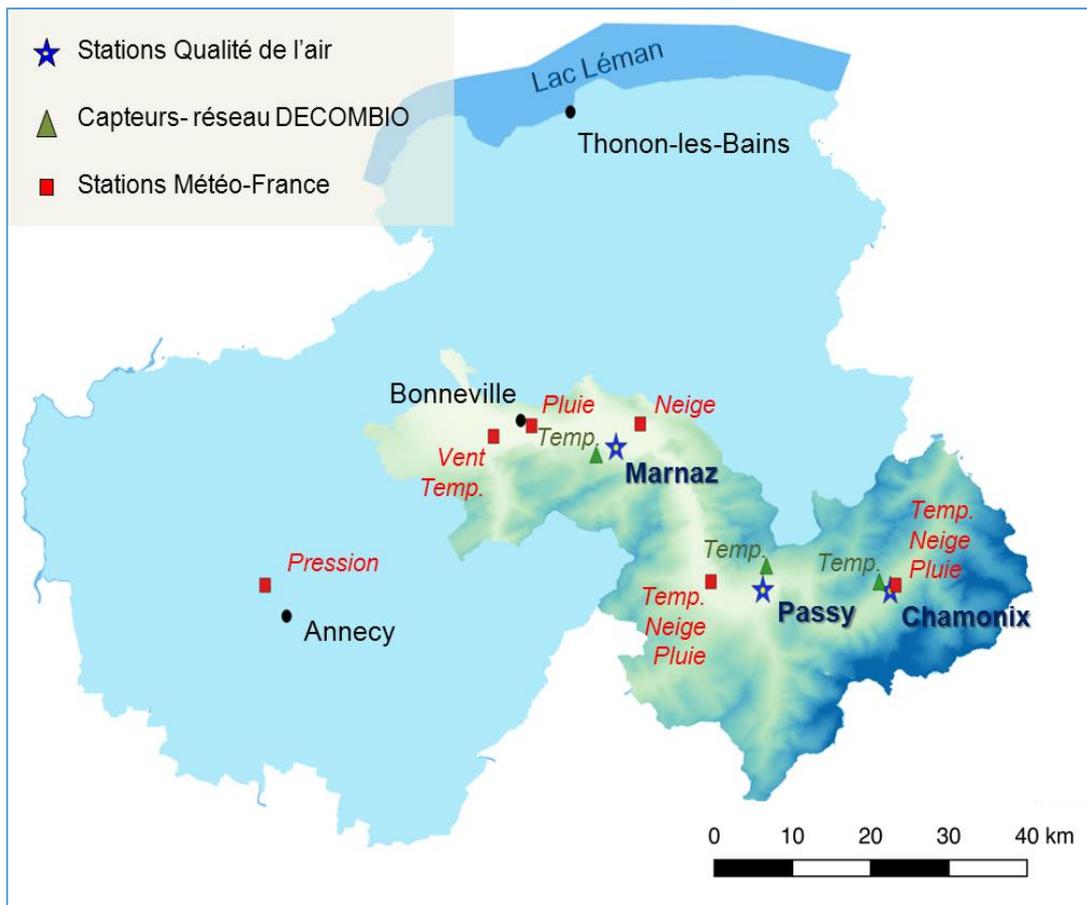


Figure 27 : Localisations de la provenance des différentes variables météorologiques ainsi que des sites de mesures DECOMBIO.

Une deuxième étape est de classer ses variables selon leur importance relative vis-à-vis de leur impact sur les concentrations. L'algorithme « random forest » permet de modéliser les concentrations et d'obtenir des influences relatives moyennes robustes pour chacune des ces variables. Les variables sélectionnées expliquent plus de 70% de la variance des concentrations sur les 3 sites. Parmi ces variables, le gradient de température (représentant l'état de stabilité des basses couches), la concentration moyenne de la veille, la température et la vitesse du vent sont les plus influentes sur les concentrations pour ces 3 sites (plus de 60% de l'influence expliquée par l'ensemble de ces variables). La Figure 28 représente les différents poids d'influence des variables sur les concentrations de BC_{wb} sur les 3 sites qui présentent de faibles différences entre les sites.

Les variables ont ensuite été pondérées par leur influence relative sur les concentrations en fonction du site, et utilisées comme telles dans deux algorithmes de clustering. La classification hiérarchique de Ward permet d'indiquer le (ou les) nombre(s) de classes optimal à partir des mesures, tandis que le clustering dit « fuzzy » permet d'évaluer le degré d'appartenance de chaque journée aux différentes classes. Cette mesure de degré d'appartenance aux classes a été utilisée pour sélectionner les journées « bien classées » de celles présentant des conditions atmosphériques non réellement définies. Une typologie en 4 classes a finalement été retenue, qui présentent des caractéristiques suivantes:

- les journées **d'inversion**, caractérisées par des ΔT , concentration de la veille, pression et amplitude élevées, des températures froides, et une absence de précipitation,
- les journées **de concentration forte la veille** caractérisées par des conditions de dispersion (ΔT faible, vitesse de vent moyen, précipitations moyennes, faible amplitude). Elles surviennent à la suite des journées d'inversion,
- les journées de **dispersion** correspondant à une vitesse de vent $< 2,5 \text{ m.s}^{-1}$, des précipitations, une épaisseur de neige significatives, et un ΔT et une concentration de la veille faibles,
- les journées de **conditions printanières** avec une température, une amplitude et une pression élevées et une absence de précipitation.

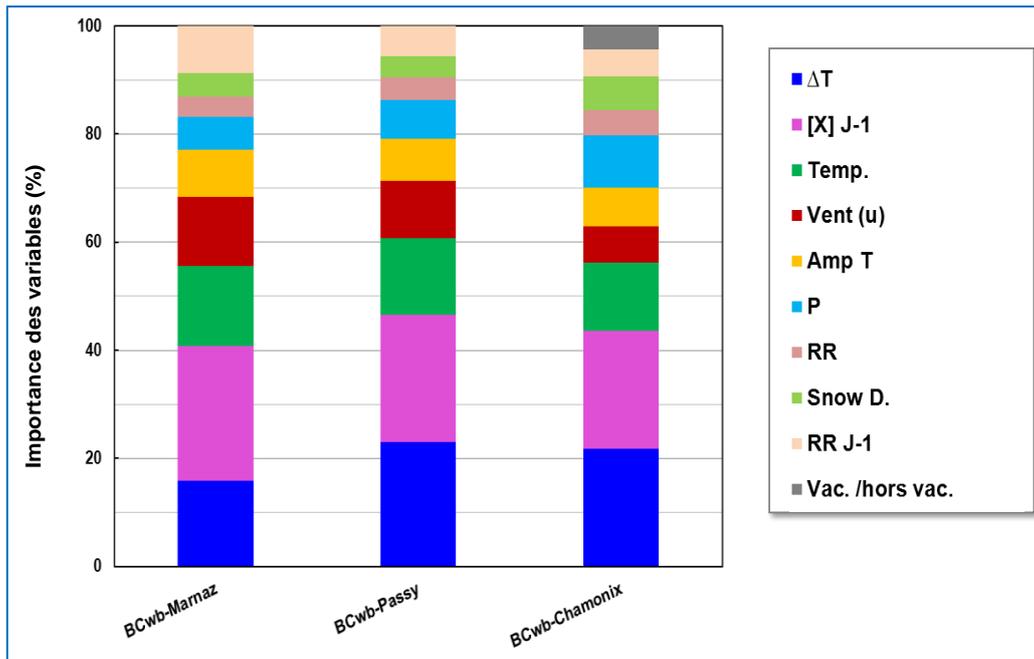


Figure 28 : Influence relative des variables sur les concentrations journalières hivernales de BC_{wb} sur les sites de Passy, Chamonix et Marnaz.

Ces 4 classes sont météorologiquement très distinctes entre elles (voir Annexe 12) ; toutefois elles présentent également pour certaines des différences importantes de conditions atmosphériques entre les 4 hivers, interdisant des comparaisons statistiquement rigoureuses des concentrations. De plus, certains effectifs par hiver sont très faibles (< 5) pour certaines classes selon le site, limitant également la comparaison des concentrations.

Le Tableau 8 répertorie les différents critères analysés pour évaluer la pertinence de la comparaison des concentrations au cours des hivers. Parmi les 4 variables les plus influentes sur les concentrations, ce sont les ΔT et les températures journalières qui présentent le plus de variabilité entre les hivers selon la classe de conditions atmosphériques. Le ratio entre les concentrations de BC_{wb} à J-1 et J a été utilisé au lieu de la concentration de BC_{wb} à J-1 pour tester l'homogénéité entre les hivers de l'influence de cette variable sur les concentrations. En effet, il est attendu que les concentrations diminuent au cours des hivers avec l'opération du Fond Air Bois, les concentrations de BC_{wb} à J-1 devraient donc varier d'un hiver à l'autre, mais pas les rapports entre les concentrations à J-1 et J. La figure 29 représente les écarts moyens hivernaux (en valeur absolue de la variable) par rapport aux valeurs moyennes du 1^{er} hiver du programme pour la température et ΔT . Les écarts moyens pour la vitesse du vent et le ratio entre les concentrations [BC_{wb}] à J-1/J sont rapportés dans l'Annexe 12. Des écarts entre les moyennes hivernales élevés traduisent une différence de conditions atmosphériques entre les hivers, tandis que des valeurs faibles traduisent une homogénéité de ces conditions. Selon le site, les écarts peuvent être différents pour une même typologie de conditions atmosphériques.



	Dispersion	Inversion	Conc. Forte à J-1	Printanière
Ecart de T (°C) par rapport à la moyenne saisonnière	+3,3 °C à Marnaz +1,9°C à Passy +0,4°C à Chamonix	-2,6 °C à Passy -3,5°C à Marnaz et Chamonix	-2,3°C à Marnaz -1,3°C à Passy	+3,8 °C à Marnaz + 3,1 °C à Passy -0,4°C à Chamonix
Effectif statistique limitant pour la comparaison	Non	Non	Oui à Marnaz (4 ^{ème} hiver) et Passy (3 ^{ème} hiver)	Oui à Marnaz (4 ^{ème} hiver et Chamonix (1 ^{er} hiver)
Effectif moyen par hiver	24	15	12	11
Homogénéité de ΔT entre les 4 hivers	+++	Non à Marnaz +++ à Passy et Chamonix	+++	+++
Homogénéité du ratio [BCwb] J-1 / J entre les 4 hivers	++ à Passy et Marnaz + à Chamonix	+++	+++	Non à Chamonix +++ à Passy et Marnaz
Homogénéité de la température entre les 4 hivers	+	Non (4 ^{ème} hiver très différent des autres)	+	Non à Chamonix ++ à Passy et Marnaz
Homogénéité de la vitesse du vent entre les 4 hivers	++	++	++	++

Tableau 8 : Critères d'évaluation des classes de conditions atmosphériques pour la comparaison des concentrations au cours des 4 hivers. Les jours pris en compte sont situés entre le 15/11 et le 15/03.

La **classe « Inversion »** présente le plus d'intérêt pour les problématiques de la qualité de l'air, les conditions atmosphériques de cette classe étant extrêmement reliées aux épisodes de pollution. La comparaison des concentrations est cependant limitée par des variations relativement importantes au cours des hivers du ΔT moyen sur le site de Marnaz et de la température moyenne sur les 3 sites. Sur le site de Marnaz, les ΔT moyens sont inférieurs de 3 à 4°C lors des 3 derniers hivers du programme par rapport à l'hiver 13-14, tandis que les températures journalières moyennes sont supérieures de 3,5 à 4,4°C par rapport au 1^{er} hiver. Sur les sites de Passy et Chamonix, les ΔT sont homogènes entre les hivers, par contre le 4^{ème} hiver présente une température journalière plus faible de -1,8 et -3,6°C en moyenne, respectivement, par rapport à la température du 1^{er} hiver. Les jours de cette classe lors de l'hiver 16-17 présentent donc des conditions plus défavorables à Passy et Chamonix que lors du 1^{er} hiver.

La **classe de type « Concentration forte à J-1 »** est une classe particulière car elle n'est pas retrouvée sur le site de Chamonix. Le profil météorologique des jours de cette classe est très similaire à celui de la classe « Dispersion », à l'exception d'une concentration forte à J-1. Les jours correspondant à cette classes sur le site de Passy sont classés « Dispersion » sur le site de Chamonix. La comparaison des concentrations au cours des hivers pour cette classe est rendue complexe avec un effectif très restreint lors du 4^{ème} hiver à Marnaz (4 mesures).

La **classe « Printanière »** présente des conditions météorologiques homogènes sur les 4 hivers et des effectifs statistiques robustes pour la comparaison des concentrations sur le site de Passy. Ces jours présentent une température moyenne de +3°C par rapport à la température moyenne entre le 15/11 et le 15/03 calculés sur les 4 ans du programme. Le besoin de chauffage est donc moins fort pour cette classe. Les journées présentent également des profils météorologiques homogènes à Marnaz, mais seulement 3 mesures correspondent à ce type de condition lors du 4^{ème} hiver du programme. La comparaison des concentrations selon cette classe est également limitée sur le site de Chamonix du fait d'effectif statistique trop faible, ainsi que de variations importantes de la température et du ratio entre les concentrations de BC_{wb} à J-1 et J au cours des 4 hivers.

Au regard des autres classes, la **classe de type « Dispersion »** est celle présentant le profil météorologique le plus homogène au cours des hivers sur les 3 sites, et avec les effectifs statistiques les plus élevés. La température moyenne de ces journées est de 5,9°C, 3,8°C et 1,1°C sur les sites de Marnaz, Passy et Chamonix respectivement. Ces journées ne correspondent pas à des journées de « grand froid » mais nécessitent néanmoins le recours à un moyen de chauffage.

Ainsi, les comparaisons des concentrations au cours des hivers afin de permettre de quantifier l'effectivité de l'opération sur le Fond Air Bois ne sont réellement interprétables que pour la classe Dispersion sur les 3 sites au cours des 4 hivers, ainsi que pour les 4 classes sur le site de Passy. Les journées de type « Dispersion » correspondent à des conditions très favorables de dispersion, avec des concentrations particulières faibles. Cependant les effectifs statistiques relativement élevés de journées par hiver ainsi que l'analyse des évolutions de concentrations selon les autres classes pour les 3 sites (voir Annexe 13) permettent de confirmer la tendance des concentrations observées pour cette classe au moins sur les sites de Passy et Chamonix.

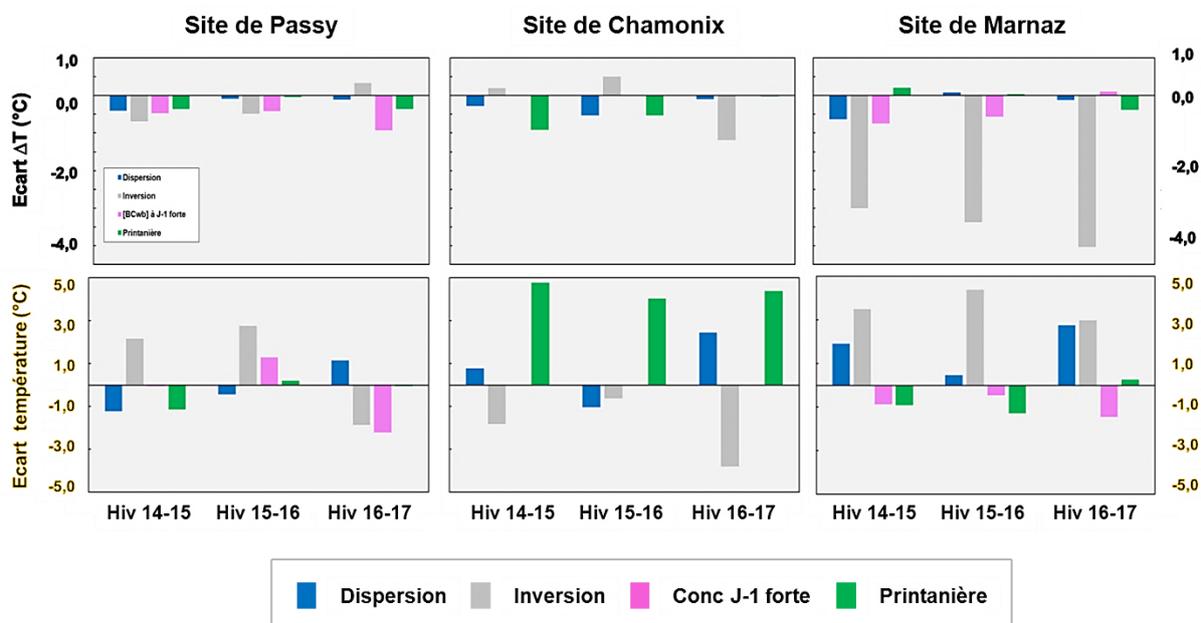


Figure 29 : Ecart moyen entre les moyennes hivernales et celles du 1^{er} hiver de ΔT sur les 500 premiers mètres et de la température journalière sur les 3 sites selon les 4 classes de conditions atmosphériques définies.

4.2.2. Comparaison des concentrations hivernales pour la classe « Dispersion »

Comme décrit précédemment, la classe « Dispersion » est la seule permettant de pouvoir analyser l'évolution des concentrations pour des situations atmosphériques comparables sur les 3 sites à la fois, dans des conditions statistiquement valides. La figure 30 ci-dessous présente les évolutions des concentrations moyennes entre hivers pour les PM_{10} et les traceurs de combustion (eBC, BC_{wb} , EC et lévoglucosan) pour les 3 sites. Pour cette classe, les effectifs varient selon les sites, les hivers, et les espèces chimiques considérées, avec entre 10 et 40 journées par hiver pour les concentrations de BC_{wb} . Les résultats pour les autres classes sont représentés en Annexe 13, même si il faut rappeler que ces comparaisons ont leurs limites. Les comparaisons des évolutions entre hivers à Passy (site pour lequel les comparaisons des concentrations au cours des hivers selon les autres classes sont également pertinentes) sont présentées dans la section suivante.

Cette figure 30 montre un résultat majeur qui est que, d'une façon générale, les concentrations des espèces présentées, qui sont influencées par les émissions de la combustion de la biomasse, décroissent d'hiver en hiver pour les sites de Passy et de Chamonix. Pour le site de Marnaz, une augmentation des concentrations des traceurs est observée entre le 1^{er} et le 2^{ème} hiver, suivie d'une diminution sur les autres hivers. Ce résultat d'évolution est cependant moins robuste que sur les 2 autres sites du fait d'un effectif statistique plus faible. On retiendra que les concentrations moyennes de PM_{10} totales diminuent très fortement à Passy au long des 4 hivers, beaucoup moins à Marnaz ou Chamonix.

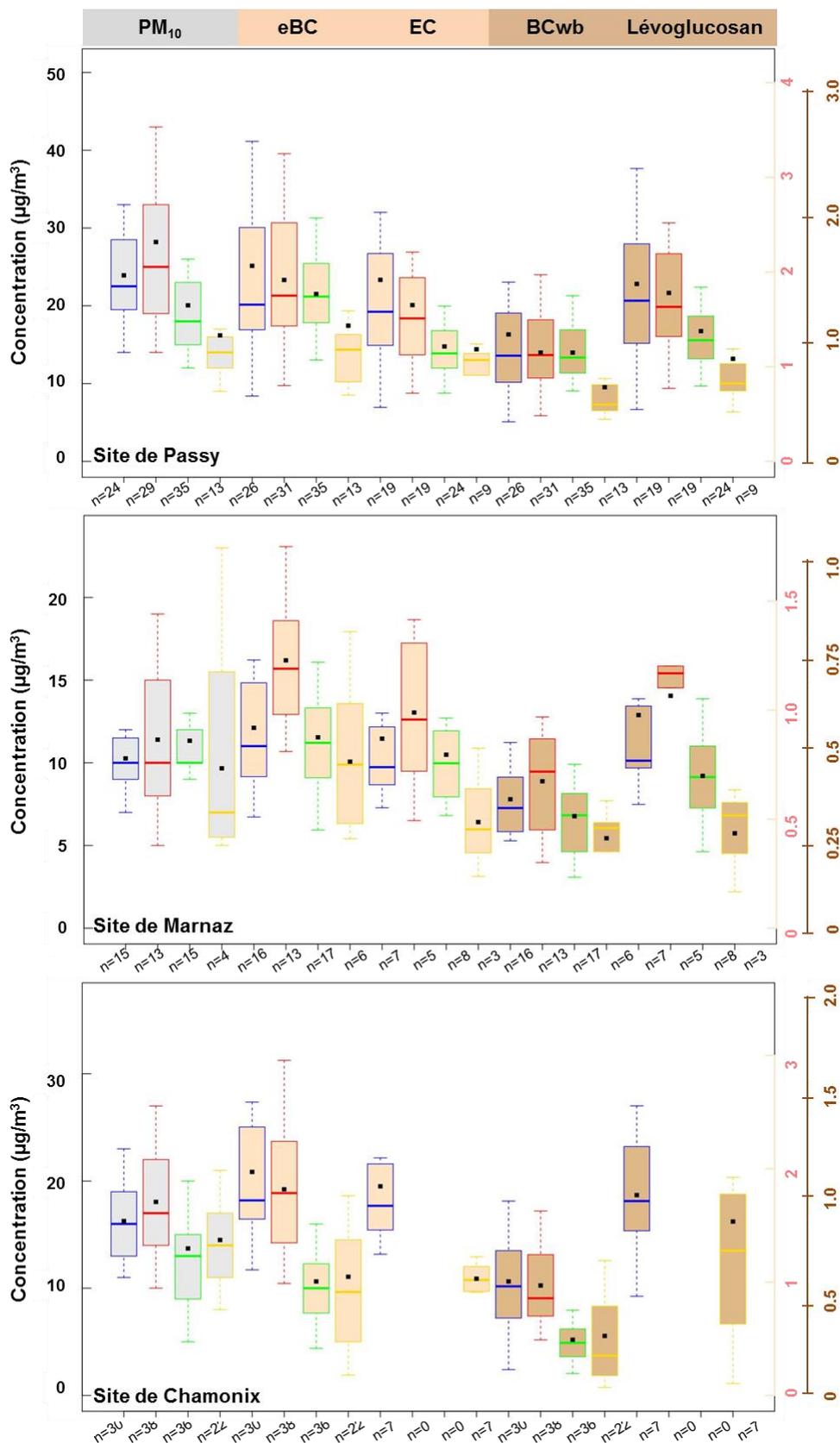


Figure 30 : Représentation de type boxplot des distributions des concentrations de PM₁₀, eBC, EC, BC_{wb} et lévoglucosan sur les 3 sites lors des journées de type « Dispersion » au cours des 4 hivers (15/11 au 15/03 pour Passy et Chamonix et 01/11 au 31/03 pour le site de Marnaz. Axe de gauche : concentration PM₁₀ (µg.m⁻³). Axe de droite en rose: concentration eBC et EC (µg.m⁻³) ; axe orange: concentration BC_{wb} et lévoglucosan (µg.m⁻³).

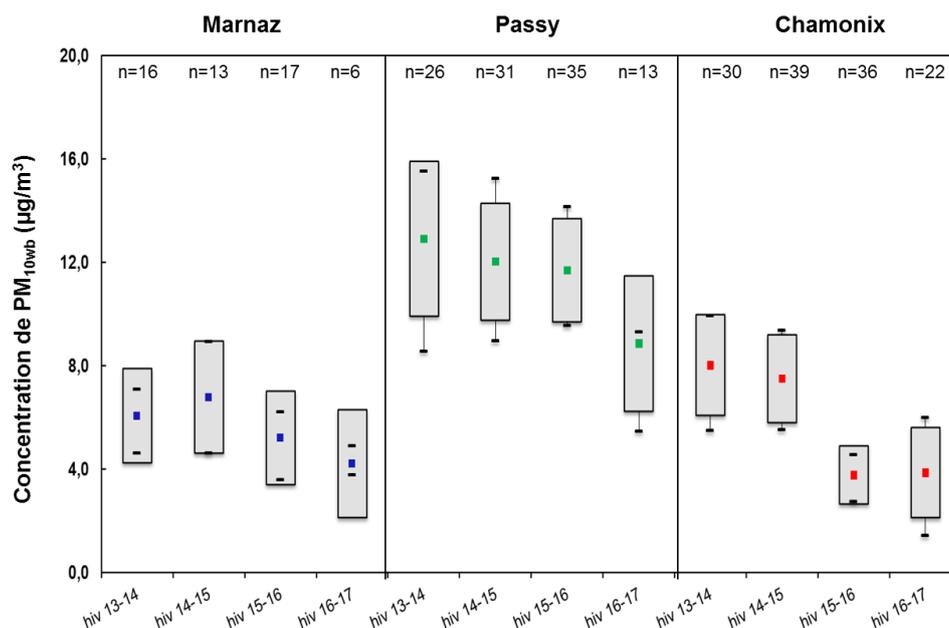


Figure 31 : Evolutions moyennes des concentrations de PM_{10wb} au cours des 4 hivers (15/11 au 15/03) pour les journées de type « Dispersion ». La moyenne des concentrations de PM_{10wb} pour chaque hiver est représentée par le carré tandis que l'aire grisée représente son incertitude. Les barres horizontales noires représentent respectivement les premier et troisième quartiles des concentrations.

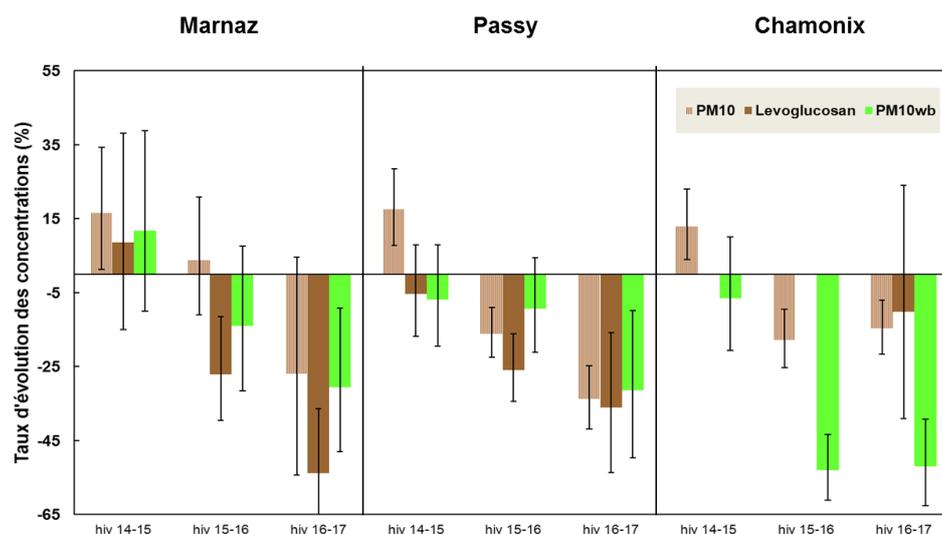


Figure 32 : Taux d'évolution des concentrations moyennes de PM₁₀, lévoglucosan et PM_{10wb} au cours des hivers par rapport à l'hiver 2013-2014 pour les journées de type « Dispersion » sur les 3 sites avec un intervalle de confiance de 50%. *Les mesures de PM_{10wb} du site de Marnaz de l'hiver 16-17 correspondent aux mesures des jours de type « Dispersion » sur une période plus élargie (01/11/16 au 31/03/17) nécessaire pour obtenir une meilleure représentativité statistique.

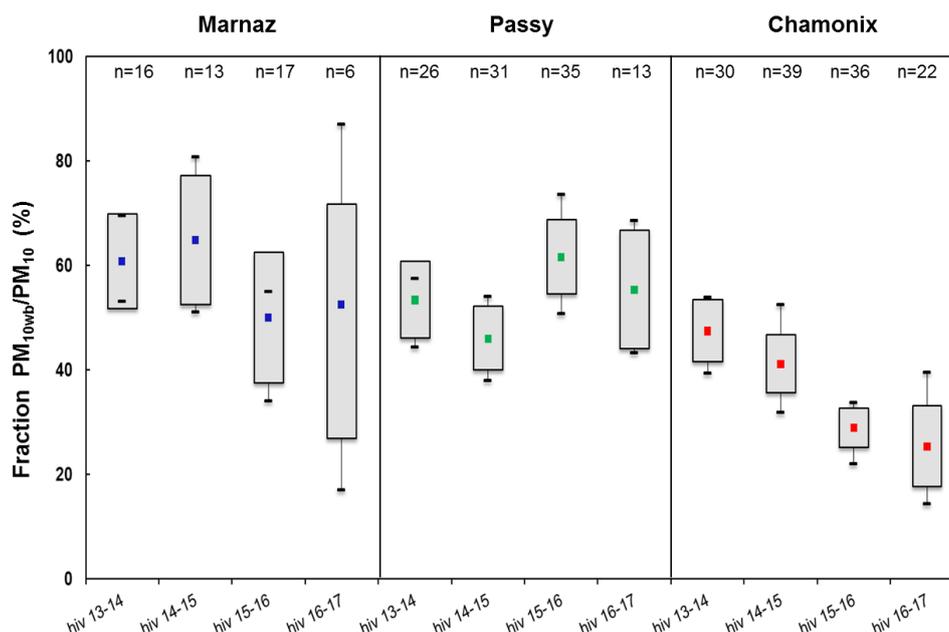


Figure 33 : Evolution de la fraction moyenne PM_{10wb}/PM_{10} au cours des 4 hivers sur les 3 sites pour les journées de type « Dispersion ». La fraction moyenne pour chaque hiver est représentée par le carré tandis que l'aire grisée représente son incertitude. Les barres horizontales noires représentent respectivement le premier et troisième quartile des fractions PM_{10wb}/PM_{10} .

Les mesures de BC_{wb} permettent d'estimer les concentrations de PM_{10wb} à partir des coefficients α déterminés avec les concentrations de PM_{10wb} modélisées par l'approche PMF durant l'hiver 13-14 (section 3.3.3). L'évolution des concentrations moyennes de PM_{10wb} au cours des hivers lors des journées de type « Dispersion » est représentée sur la figure 31. On voit que, malgré une incertitude relativement élevée sur les moyennes, une nette diminution des concentrations PM_{10wb} est observée, surtout lors des 3^{ème} et 4^{ème} années du programme, et cette fois pour les 3 sites.

La figure 32 représente quant à elle les taux de variations moyens de ces mêmes concentrations par rapport au 1^{er} hiver du programme. Ces diminutions des concentrations moyennes des PM_{10wb} (mais aussi des autres indicateurs) sont **continues d'hiver en hiver**, pour les 3 sites, même si les moyennes du second hiver sont dans la fourchette d'incertitude des valeurs initiales de l'hiver 2013-2014. **On note donc un effet qui semble persistant, et bien marqué sur les hivers 3 et 4.** Si l'on compare les concentrations mesurées lors du 1^{er} hiver et celles mesurées lors du 4^{ème} hiver, on atteint une réduction moyenne des concentrations de PM_{10wb} d'environ 52% en 4 ans à Chamonix et d'environ 31% à Passy. On observe également une diminution de l'ordre de 31% à Marnaz, mais en prenant en compte une période plus élargie pour les mesures (nécessaire pour obtenir une meilleure représentativité statistique). Si les concentrations de lévoglucosan diminuent environ du même ordre de grandeur que les concentrations de BC_{wb} et de PM_{10wb} sur le site de Marnaz et Passy, elles diminuent cependant plus faiblement entre le 1^{er} et le 4^{ème} hiver sur le site de Chamonix comparativement aux concentrations de PM_{10wb} (diminutions de 12% et de 52%, respectivement).

Les évolutions des contributions de la source de combustion de la biomasse aux PM_{10} totales sont finalement présentées sur la figure 33, toujours pour la classe des journées de type « Dispersion ». On remarque que, si les concentrations des particules issues de la biomasse ont diminué au cours des 4 hivers du programme, il n'en est pas forcément de même pour leurs contributions aux PM_{10} . Sur le site de Passy notamment, la contribution de la source de combustion de la biomasse est peu changeante au cours des 4 hivers tandis qu'on observe une diminution moyenne d'environ 25% sur le site de Chamonix entre le 1^{er} et le 4^{ème} hiver. Ces différences de comportement pourraient s'expliquer par une réduction concomitante des concentrations de PM_{10} issues d'autres sources, ou par les incertitudes dans les mesures de PM_{10} et d'estimations des PM_{10wb} .

Il est donc certainement préférable de considérer plutôt les valeurs de concentrations des PM_{10wb} que celles de leurs contributions aux PM_{10} pour discuter de l'effectivité du Fond Air Bois.

4.2.3. Comparaison pour les 4 classes à Passy

Bien que des variations (notamment de la température moyenne journalière) existent entre les différents hivers, en particulier pour les jours classés de type « Inversion », la figure 29 ainsi que l'annexe 12 montrent que les profils météorologiques des 3 autres classes sur le site de Passy sont suffisamment homogènes pour pouvoir considérer la comparaison des concentrations au cours des hivers. Ainsi, la figure 34 présente les évolutions des moyennes pour les 4 classes (la classe « Dispersion » ayant été discutée ci-dessus, et la classe « Inversion » étant donnée à titre indicatif), pour les concentrations de lévoglucosan, et PM_{10wb} sur les 4 hivers du programme.

Cette figure montre que les concentrations moyennes de la classe « Dispersion » sont bien plus faibles que celles des autres classes, pour l'ensemble des indicateurs, avec en particulier des concentrations moyennes pour la classe « Inversion » 5 à 6 fois plus élevées. On note que ces concentrations décroissent, pour le lévoglucosan et les PM_{10wb} et pour chaque classe, entre le 1^{er} et le 4^{ème} hiver du programme. La figure 35 quantifie (en %) cette diminution, et montre quelles sont très significatives, sauf pour la classe « Printanières » : en moyenne les concentrations diminuent de 12% par hiver. **Les décroissances des concentrations de PM_{10wb} sont de 31, 39, et 21 % pour les classes « Dispersion », « Inversion », et « Concentrations fortes à J-1 », avec une moyenne de -31% entre le 1^{er} et le 4^{ème} hiver du programme.**

La classe « Printanière » regroupe les journées très ensoleillées de l'hiver avec des températures journalières moyennes de 5°C et des vents relativement faibles (vitesse de l'ordre de 1,2 m.s⁻¹). Les concentrations de PM_{10} présentent une diminution similaire par rapport à celles de la classe « Dispersion », avec une diminution de 32% des concentrations moyennes lors du 4^{ème} hiver par rapport au 1^{er} hiver (contre 38% pour de la classe « Dispersion »). Par contre, les concentrations de lévoglucosan diminuent beaucoup plus faiblement (-14%, contre -24 à -36% pour les autres classes). Les concentrations de BC_{wb} , quant-à-elles, restent extrêmement stables au cours des 4 hivers avec moins de 5% de différence avec les concentrations du 1^{er} hiver du programme. A ce stade, il est très difficile d'apporter une explication cohérente aux comportements observés pour cette classe.

Au final, et si on ne doit retenir qu'un seul chiffre : en ne tenant compte que des journées « au cœur de l'hiver » (et donc hors classe « printanière »), c'est donc une diminution moyenne de 31% qui est observée pour les concentrations de PM_{10wb} entre le 1^{er} et le 4^{ème} hiver sur le site de Passy.

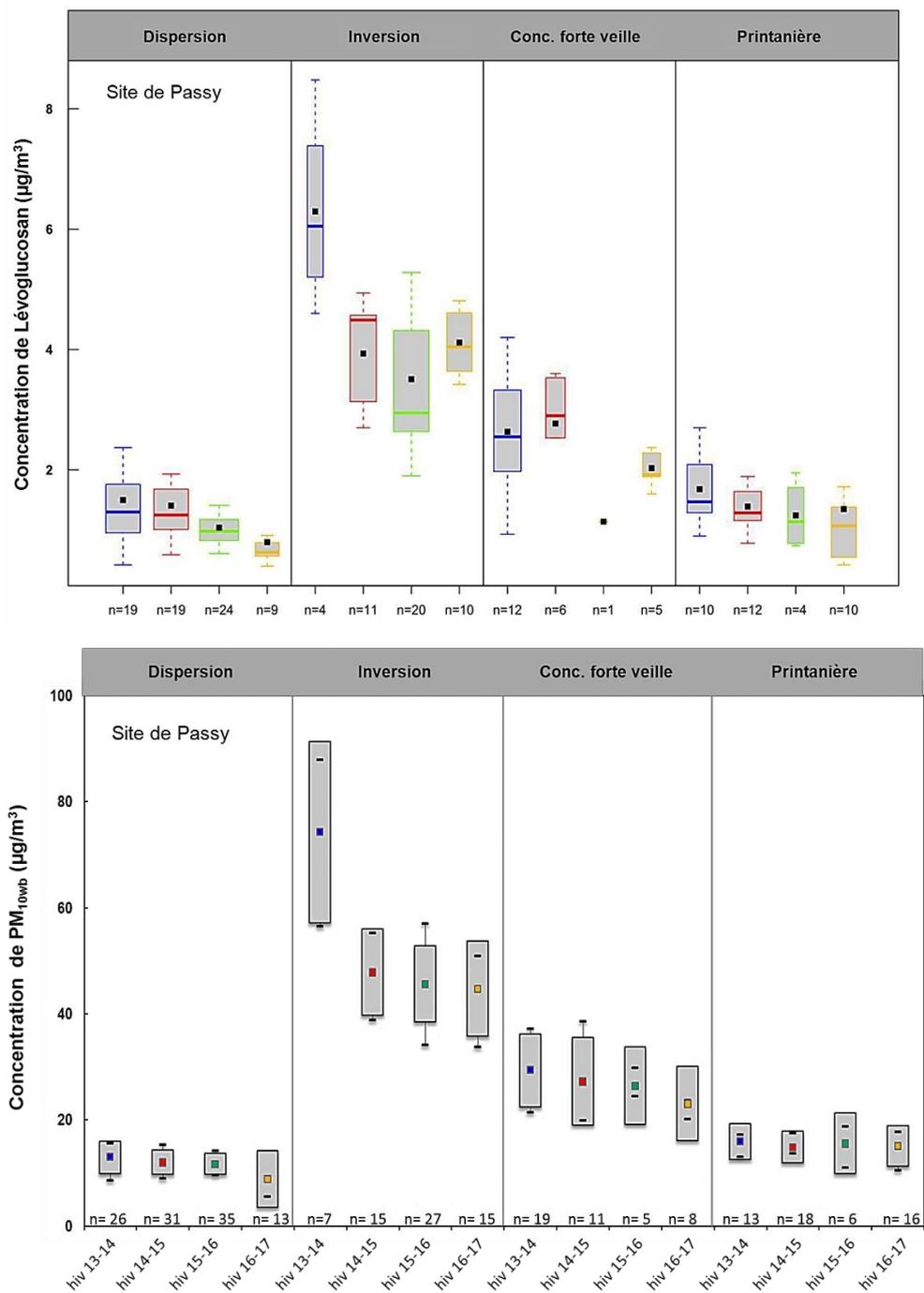


Figure 34 : Evolution des concentrations de lévoglucosan et de $\text{PM}_{10\text{wb}}$ selon les 4 classes de temps à Passy.

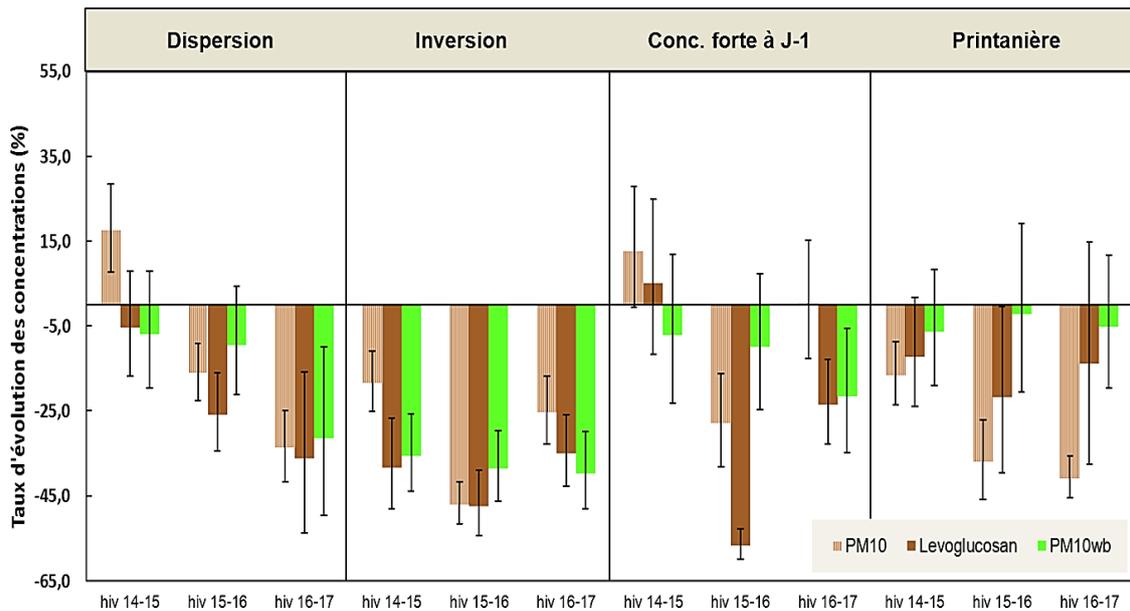


Figure 35 : Taux d'évolution des concentrations moyennes de PM₁₀, lévoglucosan et PM_{10wb} au cours des hivers par rapport à l'hiver 2013-14 en fonction des différentes classes de conditions atmosphériques sur le site de Passy. Un intervalle de confiance de 50% est représenté.

L'objectif de cette partie était de quantifier l'évolution des concentrations de PM_{10wb} sur les 4 hivers en prenant en compte l'influence de la météorologie locale sur les concentrations.

- La mise en place d'un **système de capteurs de T°C peu onéreux** permet de mettre en évidence l'impact prépondérant des **inversions thermiques** sur les concentrations des PM sur plusieurs échelles de temps.
- Pour permettre de comparer les concentrations dans des **situations météorologiques semblables**, nous avons développé une **méthode originale de classification** des conditions atmosphériques en fonction de leurs influences sur les concentrations particulaires.
- Parmi les 4 classes de temps hivernales déterminées, la classe « **Dispersion** » caractérisée par l'absence d'inversion thermique présente des journées aux **conditions météorologiques les plus homogènes sur les 4 hivers** et les 3 sites, avec des effectifs statistiques robustes.
- Pour ces journées de **type « Dispersion »**, les **concentrations moyennes** des traceurs et des particules issues de la source de combustion de la biomasse (**PM_{10wb}**) **diminuent progressivement entre les hivers sur les 3 sites** (de l'ordre de 14 à 18% par hiver pour les concentrations de PM_{10wb}). Entre le 1^{er} et le 4^{ème} hiver, une diminution des PM_{10wb} est observée de 31% sur le site de Passy, de 52% sur le site de Chamonix, et de 30% pour le site de Marnaz (avec des effectifs statistiques par hiver plus faibles pour ce site)
- On retrouve des diminutions similaires à Passy pour les classes de temps « Inversion » (-39% entre le 1^{er} et 4^{ème} hiver) et « concentrations fortes la veille » (-21%), mais pas pour la classe « printanière » (-5%). Ainsi, pour une grande partie **des jours du cœur de l'hiver, une diminution moyenne de 12% des PM_{10wb} par hiver** est observée sur ce site.
- Les comportements des **fractions PM_{10wb}/PM₁₀** montrent **toutefois des tendances différentes** sur les 4 hivers par rapport à celles des concentrations de PM_{10wb}. Les incertitudes associées plus grandes, ainsi que les évolutions des autres sources de PM₁₀ sont sans doute à mettre en avant pour expliquer ces différences.
- La prise en compte des conditions météorologiques est un passage obligé pour mener ces comparaisons dans des conditions statistiquement valides.

Pour pouvoir justifier du fait que les diminutions des concentrations de PM_{10wb} observées sur les 4 hivers correspondent bien au renouvellement des appareils non-performants du Fond Air Bois, le dernier objectif du programme DECOMBIO est de mettre en relation l'évolution de la réduction des émissions estimées des PM_{10} liée au renouvellement des appareils avec l'évolution des concentrations de PM_{10wb} telle que déterminée dans cette section 4. Pour cela, les informations techniques et de consommations de bois des dossiers de demande d'aide du Fond Air Bois ont été utilisées, grâce à la collaboration avec le SM3A. Cette partie du travail est l'objet de la section 5.

5. Evolution comparée des concentrations mesurées avec l'avancée des remplacements des appareils

Les estimations des émissions issues du chauffage au bois résidentiel présentent généralement de fortes incertitudes (CITEPA, 2017; Karvosenoja et al, 2008) à une échelle locale. Descendre à cette échelle est cependant nécessaire dans DECOMBIO pour comparer les émissions à des mesures de concentrations réalisées sur des sites ponctuels. A l'instar d'autres émissions, les émissions issues du chauffage au bois sont estimées par le produit d'une activité ou consommation, avec un facteur d'émission. Or, entre deux logements homogènes, la consommation de bois comme les facteurs d'émissions des appareils du chauffage au bois peuvent être extrêmement variables.

Des variables de type comportemental et sociodémographique telles que la température de confort, le taux d'occupation, ou encore le revenu du ménage influent sur les consommations de chauffage réelles (Destais, 2017; Morley and Hazas, 2011; Cayla et al, 2010). Les facteurs d'émissions des appareils de chauffage au bois sont dépendants de la technologie et du type d'appareil mais également de variables de type comportemental comme l'utilisation et la maintenance de l'appareil, la nature et humidité du combustible (EAA, 2016; Besombes et al, 2014; Collet, 2016). Ces données ne sont pas accessibles dans le cadre de l'opération du Fond Air Bois (FAB) et n'ont jamais été connues (à notre connaissance) pour l'établissement des inventaires d'émissions réglementaires.

Néanmoins, les dossiers de demande du FAB fournissent des informations techniques précises à la fois sur les appareils de chauffage au bois remplacés et sur ceux achetés, ainsi que sur leur mode d'utilisation. D'autres informations sont également apportées, comme la quantité de bois annuelle brûlée avec l'ancien appareil, les coordonnées GPS des logements, ou l'hiver de mise en service des nouveaux appareils. Par ailleurs, une enquête ménage a été réalisée par l'institut BVA afin de connaître le parc quantitatif des appareils sur le territoire et de dimensionner l'opération FAB (Rapport ADEME-Institut BVA, 2013). Ces données vont pouvoir permettre de spatialiser et de temporaliser l'évolution des émissions de PM_{10} liée aux renouvellements des appareils, afin de pouvoir vérifier la correspondance de l'évolution des émissions estimées avec celle des concentrations de PM_{10wb} mesurées sur les 4 hivers.

5.1. Méthodologie

Au sein des « aires de représentativité » des sites de mesures, c'est-à-dire les zones où une variation d'émission peut être détectée grâce aux mesures de concentrations du site, sont inclus des logements

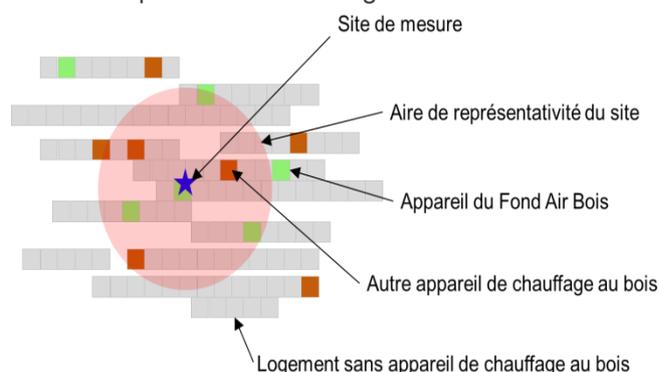


Figure 36 : Schéma conceptuel sur la représentativité des mesures de concentrations effectuées au niveau des sites

équipés d'appareils de chauffage au bois ayant fait l'objet d'un renouvellement avec le FAB ou non. Les 3 sites de mesures sont des stations urbaine ou périurbaine de fond. Le rayon de l'aire de représentativité pour ce type de station est évalué entre 100m et 2 km (EUROAIRNET, 1998). Les émissions liées au secteur résidentiel sont très variables spatialement à cette échelle, ce qui nécessite d'utiliser toutes les informations disponibles afin de pouvoir caractériser cette variabilité. Les émissions de PM_{10} provenant des appareils qui n'ont pas été renouvelés avec l'opération du FAB ont été estimées à partir des parcs d'appareils définis à l'échelle des communautés de commune dans

l'enquête BVA avant le début de l'opération FAB. Les émissions liées aux appareils du FAB ont, quant-à-elles, été estimées à partir de certaines informations contenues dans les dossiers techniques et de simulations de Monte-Carlo. Pour ce dernier point, dans le calcul des émissions, certaines variables sont sélectionnées à partir de lois de probabilité qui ont été préalablement définies. 100 itérations ont été effectuées permettant d'obtenir une distribution des émissions estimées dont on peut calculer l'incertitude. Cette méthode a été également utilisée pour compléter les données manquantes des dossiers FAB.

Consommation de bois

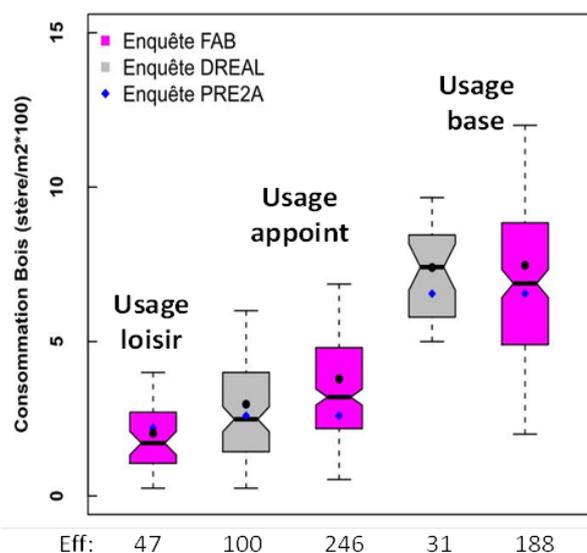
Les consommations de bois annuelles déclarées dans les dossiers pour les anciens appareils peuvent être des informations précises sur les consommations réelles de bois. Les consommations de bois sont en effet très complexes à modéliser du fait d'une influence importante des comportements qui n'est pas expliquée par des éléments techniques. Cela repose en partie sur le fait que le chauffage au bois est davantage appréhendé par les habitants comme un mode de chauffage relié à une notion de plaisir et de traditions familiales plutôt qu'à la notion d'un besoin élémentaire de se chauffer (Rapport Ademe-PRE2A-Juillet 2016; Rapport ADEME-PROGIS, 2015). Cependant, les consommations de bois déclarées peuvent être jugées peu fiables du fait par exemple de l'absence d'unité standard du volume de bois (et de facteur de conversion standard entre les unités), ou encore d'un approvisionnement majoritairement personnel du bois (42% des habitants ayant bénéficié du FAB ont déclaré s'approvisionner par eux-mêmes).

L'opportunité de l'existence d'enquêtes ménages réalisées indépendamment dans la Vallée de l'Arve entre 2010 et 2014 et portant sur le chauffage au bois a permis d'analyser les consommations déclarées dans ces différentes enquêtes (voir Annexe 14). Nous disposons des résultats détaillés des enquêtes ménages DREAL (ATMO-AuRA, 2011) et PRE2A (SEPIA-Santé, rapport ADEME, 2015) tandis que les résultats de l'enquête BVA ne nous sont connus que par le rapport ADEME de cette étude qui en présente les résultats généraux.

Il a ainsi pu être montré que :

- les quantités de bois consommé (ramenées par m² de logement) et pour chaque type d'utilisation de l'appareil (base ou appoint) ne présentent pas de différence statistique significative entre les enquêtes DREAL, PRE2A, et les données du FAB (p -value >0.05 , test de Mann-Whitney, figure 35),
- les proportions des classes de quantité de bois consommé en fonction du type d'appareil (foyer ouvert ou foyer fermé antérieur à 2002) sont quasiment identiques entre les données du FAB et l'enquête BVA,
- les quantités déclarées (ramenées par m² de logement) présentent, comme dans le cas d'autres études portant sur des consommations énergétiques réelles, une grande variabilité qui s'expliquerait davantage par des aspects comportementaux plutôt qu'environnementaux, (telle que la période de construction du logement).

Les consommations unitaires déclarées pour l'usage de l'ancien appareil dans les fiches du FAB peuvent donc être considérées comme les données les plus fiables dont nous disposons pour estimer les consommations de bois réelles à une échelle spatiale fine. L'utilisation d'un facteur de conversion est cependant encore nécessaire pour transformer cette quantité de bois en quantité d'énergie dit Pouvoir Calorifique Inférieur (PCI). Ce PCI dépend de nombreux paramètres comme l'humidité du bois. Une recherche bibliographique a été menée sur les PCI pour un bois plutôt de type feuillus et d'humidité d'environ 30%, situation majoritairement déclarée dans la vallée de l'Arve (voir Annexe 14) permettant de déterminer un PCI moyen de 1613 kWh/stère (± 40 kWh/stère). Afin de prendre en compte l'incertitude des consommations unitaires déclarées ainsi que la variabilité naturelle du PCI, ce dernier est introduit sous forme d'une loi Normale dans les simulations Monte-Carlo.



Effectif Enquête PRE2A	Usage loisir	Usage appoint	Usage base
[0 ; 4] stères/an	94	197	25
[5 ; 8] stères/an	5	37	30
[9 ; 12] stères/an	2	2	32
[13; 16] stères/an	0	2	7
> 16 stères/an	0	0	2

- Calcul de la consommation unitaire de l'enquête PRE2A : valeurs moyennes des intervalles de consommation et surface moyenne habitable de 118 m².
- Conversion des consommations de l'enquête FAB : 1m³ = 1 stère³

Figure 37 : Représentation de type Boxplot des consommations annuelles de bois déclarées par m² pour des appareils non-performants des enquêtes FAB³ et DREAL selon le mode d'usage de l'appareil. Les 2 enquêtes ménages DREAL et PRE2A ont été réalisées sur le territoire de la vallée de l'Arve en 2010 et 2014 respectivement (ATMO-AuRA, 2011 ; SEPIA-Santé, rapport ADEME, 2015).

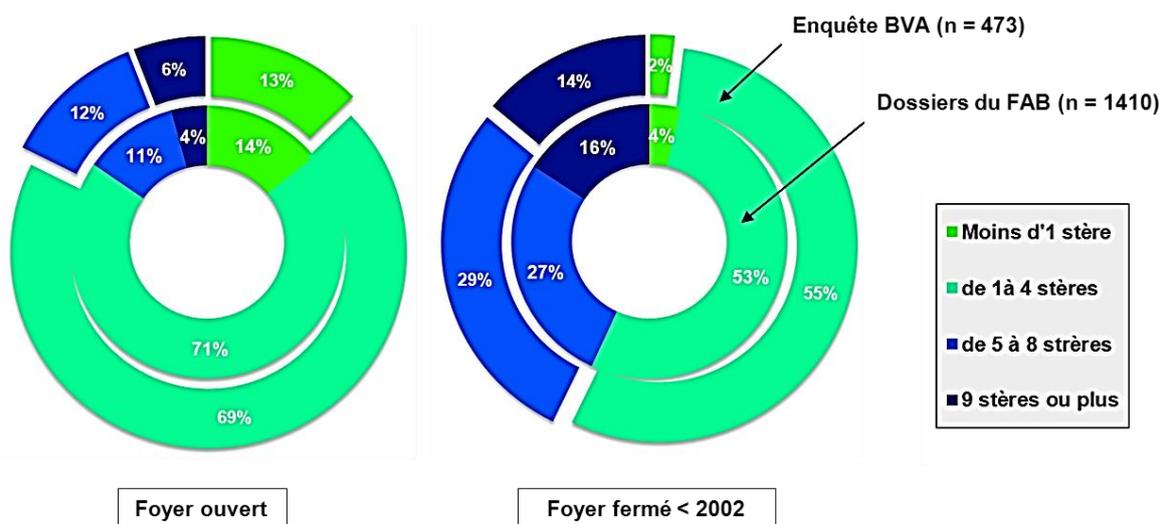


Figure 38 : Proportions de classes de quantités de bois consommées déclarées (stère/an) pour les foyers ouverts et les foyers fermés antérieurs à 2002 selon l'enquête BVA et les dossiers du FAB.

Concernant les consommations de combustible après renouvellement, seul le mode d'utilisation prévue avec le nouvel appareil est connu, et dont on a montré qu'il était bien une variable explicative de la variation des consommations déclarées (voir Annexe 14). Par ailleurs, les appareils de type Flamme Verte 5* ou équivalent ont un rendement énergétique supérieur aux appareils anciens ou aux foyers ouverts. Les consommations après renouvellement ont été estimées à partir des consommations avec l'ancien appareil et de facteurs correctifs prenant en compte l'augmentation de la performance de l'appareil (rendements des appareils tels que cités dans le rapport ADEME (2008)), ainsi qu'un facteur si le mode d'usage est différent entre les deux appareils (voir Annexe 14). En effet, une part relativement élevée des habitants ayant bénéficié du FAB ont déclaré avoir changé d'un usage de chauffage d'appoint ou plaisir avec l'ancien appareil vers un usage de chauffage principal avec le nouvel appareil (20% des dossiers sur un effectif de 1731 dossiers dont les paramètres « mode d'utilisation » ne sont

³ Contrairement aux autres enquêtes, les quantités de bois transmises dans les dossiers du FAB sont indiquées en m³ et non en stère. Plusieurs facteurs de conversion ont été testés (1 stère = 0,8 ; 0,9 et 1m³). L'équivalence entre le stère et le m³ pour les quantités déclarées conduit aux résultats les plus réalistes, ainsi qu'à la correspondance avec les consommations des autres enquêtes. Ce facteur de conversion est celui indiqué dans l'enquête BVA.

pas manquants). Les consommations après renouvellement sont donc supérieures à ce qu'elles étaient attendues en théorie, ce qu'on nomme « effet rebond ». Il peut être fait également l'hypothèse que tous les nouveaux appareils soient plus utilisés que les anciens appareils.

Facteurs d'émission

Les facteurs d'émissions sont définis selon les performances des appareils. Les appareils, hors foyers ouverts, sont définis comme non-performants lorsqu'ils sont antérieurs à 2002, tandis que les foyers ouverts sont définis comme non-performants quelle que soit leur date de construction. Le Tableau 9 récapitule les différents FE utilisés par différentes institutions (ADEME, ATMO-AuRA, CITEPA, EAA). Ces facteurs d'émissions sont proches de ceux issus du Guidebook EMEP/EAA qui répertorie les références des études qui ont permis la détermination de ces FEs. Ces facteurs d'émissions proviennent de mesures réalisées par tunnel de dilution permettant de prendre en compte la fraction condensable des particules.

Cependant, une recherche bibliographique poussée (cf annexe 15) montre que ces facteurs d'émission présentent une grande variabilité, même lorsqu'ils sont segmentés selon la technologie et le combustible de l'appareil. La variabilité élevée de ces facteurs d'émissions serait due à l'influence de nombreux paramètres, comme l'humidité du bois ou les conditions de combustion (Besombes et al., 2014). Ces données étant variables dans le temps et l'espace, une approche alternative est proposée dans le cadre de DECOMBIO (cf Annexe 15) en introduisant les facteurs d'émissions sous forme de loi de probabilité, comme déjà réalisé dans d'autres travaux d'évaluation des incertitudes des émissions liées au chauffage au bois (Rao et al, 2017; Karvosenoja et al, 2008). Cette voie nous a paru indispensable pour essayer de borner au mieux les valeurs possibles, en vue de la comparaison avec les données de concentrations. Il résulte de l'application de ces lois de probabilité des facteurs d'émissions probabilistes présentant des valeurs moyennes inférieures à ceux utilisés dans les méthodes réglementaires (cf tableau 9).

Typologie d'appareil	Source : Ademe	Source : ATMO-aura	EAA, 2016	FE « probabilistes »
Foyer ouvert	750	860	840 [420-1680]	478 (91-1066)
Foyer fermé < 2002	700	737,5	760 [380-1520]	271 (16-4375)
Foyer fermé 2002 -2007	260	273,9	480 [240-960]	665 (46-2131)
Foyer fermé > 2007	140	Chaudière : 95	380 [290 -760]	
Foyer fermé 5* et eq -bûche	50	147,5	95 [19-238]	104 (8 -213)
Foyer fermé 5* et eq - granulé	50	Chaudière : 52,3	29 [10-48]	38 (12-78)
		93		
		Chaudière : 33		
		54		
		Chaudière : 22		

Tableau 9 : Facteurs d'émissions de PM₁₀ exprimés en g/GJ des appareils de chauffage au bois selon la typologie des appareils préconisée par l'Ademe. Entre certains FE utilisés par l'Ademe et ceux utilisés dans l'inventaire ATMO-AuRA, un facteur de 95% a été appliqué correspond à la fraction moyenne des PM₁₀ par rapport aux particules totales. L'Annexe 15 répertorie les références des FE issus du Guidebook EMEP/EAA ainsi que celles utilisées pour la détermination de loi de probabilité des FE. Les mesures des FE issues des études prennent en compte la partie condensable des particules. Un intervalle de 95% est indiqué pour les FE issus du Guidebook EAA tandis que les valeurs minimales et maximales sont indiquées pour les probabilités de FE déterminées selon la typologie des appareils.

Données manquantes

L'estimation des émissions se basant sur des variables des dossiers (type d'appareil ancien et nouveau, mode d'utilisation des 2 appareils, surface du logement, consommation déclarée), les données manquantes des dossiers FAB ont dû être complétées. Plus de 30% des dossiers présentent au moins une donnée manquante pour un paramètre utilisé pour estimer les émissions. L'étude Ademe (2015) ayant montré des liens entre les caractéristiques des appareils et leur utilisation, ainsi qu'avec la période d'achèvement des logements, une méthode d'imputation multiple a été développée permettant de prendre en compte ces relations et de quantifier l'incertitude due aux données manquantes (voir Annexe 16).

En dehors des différentes variables introduites sous forme de variables aléatoires (PCI, données manquantes), plusieurs simulations de résultats ont été effectuées en variant les facteurs d'émissions et les hypothèses sur les consommations après renouvellement. Ces différentes simulations vont

pouvoir permettre d'évaluer quantitativement les incertitudes sur les émissions en déterminant un intervalle de résultats possibles.

5.2. Quantification de la réduction des émissions de PM₁₀ liées au renouvellement des appareils du Fond Air Bois

Entre le début de l'opération et le 01/11/2016, 1 932 appareils de chauffage au bois ont été remplacés, représentant un renouvellement de 9,9% par rapport au parc d'appareil des résidences principales déterminé dans l'enquête BVA (Figure 39). Les renouvellements d'appareils ont été effectués de manière relativement hétérogène au sein du territoire. Le Tableau 10 décrit les résultats des émissions estimées pour le renouvellement de 1 903 appareils selon différentes hypothèses sur la consommation avec le nouvel appareil et selon les facteurs d'émissions utilisés. 1,5% des dossiers présentant de nombreuses données manquantes (dont les types d'appareil) n'ont pas été pris en compte dans le calcul de la réduction des émissions de PM₁₀, la méthodologie définie précédemment ne pouvant s'appliquer (voir Annexe 15).

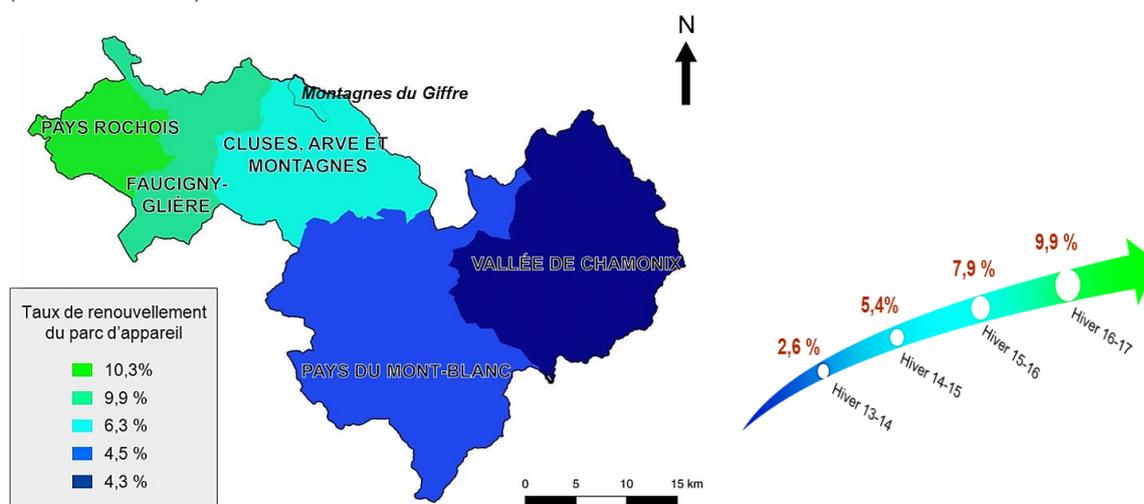


Figure 39 : Taux de renouvellement du parc d'appareil des logements principaux et des résidences secondaires en fonction des communautés de communes. Taux de renouvellement des appareils sur le parc d'appareils des logements principaux sur le territoire de la vallée de l'Arve au cours des hivers.

*Le taux de renouvellement du parc des appareils a été déterminé en fonction des parcs établis dans l'étude ADEME-Institut BVA (2013). Seuls sont comptabilisés les appareils de l'opération du Fond Air Bois. Les appareils renouvelés situés dans des logements de la commune de Châtillon-sur-Cluses ont été comptabilisés dans le taux de renouvellement du parc d'appareil de la communauté de commune Cluses, Arve et Montagnes.

A l'échelle de ces 1 903 appareils ayant été renouvelés entre le début de l'opération et le 01/11/2016, on trouve un facteur de 3 entre les réductions moyennes des émissions de PM_{10wb} les plus élevées et les plus faibles, selon les scénarii de mode de calcul utilisés. Ces réductions d'émissions de PM₁₀ représentent entre 3,7 et 11,6 % des émissions totales de PM₁₀ du chauffage au bois résidentiel estimées par ATMO-AuRA pour l'année 2015 et pour l'ensemble du territoire couvert par le PPA, sans prise en compte des renouvellements d'appareils.

	Facteurs d'émission	Hypothèse sur la consommation avec le nouvel appareil (kWh/an)	Réduction des émissions (tPM ₁₀ .an ⁻¹)	%par rapport aux émissions de PM _{10wb} totales
I	ADEME	Cancien * f cgt.util * f rdt	37.2 ± 0.5	11.2 %
II	ADEME	Cancien * f cgt.util	35.6 ± 0.5	10.8 %
III	ATMO-aura	Cancien * f cgt.util * f rdt	38.4 ± 0.5	11.6 %
IV	ATMO-aura	Cancien * f cgt.util	35.2 ± 0.5	10.6 %
V	« Probabilistes »	Cancien * f cgt.util * f rdt	16.0 ± 0.5	4.8 %
VI	« Probabilistes »	Cancien * f cgt.util	12.4 ± 0.5	3.7 %

Tableau 10 : Réduction des émissions en tPM₁₀.an⁻¹ provenant du renouvellement des 1903 appareils du Fond Air Bois sur le territoire du PPA à climat normal pour 6 scénarii mêlant différentes bases de données de facteurs d'émissions et d'hypothèses sur la consommation énergétique avec le nouvel appareil (f cgt.util = facteur appliqué lors d'un changement d'usage avec le nouvel appareil et f rdt = rapport entre les rendements énergétiques de

l'ancien et du nouvel appareil). Les émissions de PM_{10wb} totales correspondent à celles d'une version de l'inventaire de 2015 d'ATMO-AuRA sans prise en compte des renouvellements des appareils du FAB. Les évolutions annuelles moyennes sont calculées sur la base de l'estimation des gains d'émissions obtenues avec le FAB sur les 4 ans, sans tenir compte d'un plus ou moins grand renouvellement des appareils non-performants selon les hivers.

Certaines hypothèses n'impactent pas de façon importante le résultat de l'estimation des réductions des émissions de PM_{10} , comme celle concernant l'évolution des consommations après renouvellement de l'appareil. Ainsi, une différence de seulement 8% est trouvée dans les quantités émises selon que l'on considère des consommations identiques entre ancien et nouvel appareil si le mode d'usage n'a pas varié (ce qui correspondrait à un relativement fort « effet rebond ») ou une diminution de consommation proportionnelle à l'amélioration du rendement énergétique due au nouvel appareil. Les gains d'émissions varient par contre de 54% lorsqu'on utilise soit les facteurs d'émissions des inventaires ou de l'ADEME, soit ceux sélectionnés de manière probabiliste pour chacun des types d'appareil selon la méthodologie présentée en annexe 15.

Parmi ces différentes méthodes d'estimation de la réduction des émissions proposées dans le tableau 10, la méthode avec les facteurs d'émissions de l'ADEME (scénarii I et II) se rapproche le plus de la méthode utilisée pour le dimensionnement du FAB. Ces résultats sont aussi très proches des résultats obtenus avec les FE d'ATMO-AuRA (scénarii III et IV). Les facteurs d'émissions « probabilistes » (scénarii V et VI) conduisent à des estimations de gains plus faibles ; ils constituent une alternative dont l'utilisation se développe dans les travaux scientifiques. Dans la mesure où le débat reste ouvert sur la pertinence de ces facteurs d'émissions (obtenus en conditions contrôlée) par rapport à des conditions d'utilisations réelles (Collet, 2016), ces différents scénarii sont intéressants à considérer dans notre étude, en vue de la comparaison avec des mesures réelles en atmosphère libre (cf section 5.1.3. suivante).

La Figure 40 représente les réductions moyennes par logement et les incertitudes relatives associées pour 2 scénarios : l'un avec les FE de l'Ademe (scénario I) l'autre avec les FE « probabilistes » (scénario VI). On observe que les incertitudes relatives sont beaucoup plus faibles dans le scénario I que dans le scénario IV. Dans le scénario I, seuls sont prises en compte l'incertitude provenant des données manquantes des dossiers et du PCI, tandis que la variabilité des FE selon les lois de probabilité établis (Annexe 15) est introduite dans le scénario VI. On montre ainsi que ce sont donc davantage les incertitudes des FE qui font varier les résultats à l'échelle d'un logement, plutôt que celles sur les données manquantes ou le PCI.

Au final, on montre que la réduction des émissions de PM_{10} liée à l'opération du Fond Air Bois peut être considérée raisonnablement comprise entre 12 et 38 tonnes de $PM_{10}.an^{-1}$ à climat normal, ce qui représenterait entre 4 et 12% des émissions totales liées au chauffage au bois estimées par Atmo-AuRA sur l'ensemble du territoire du PPA (pour l'année 2015).

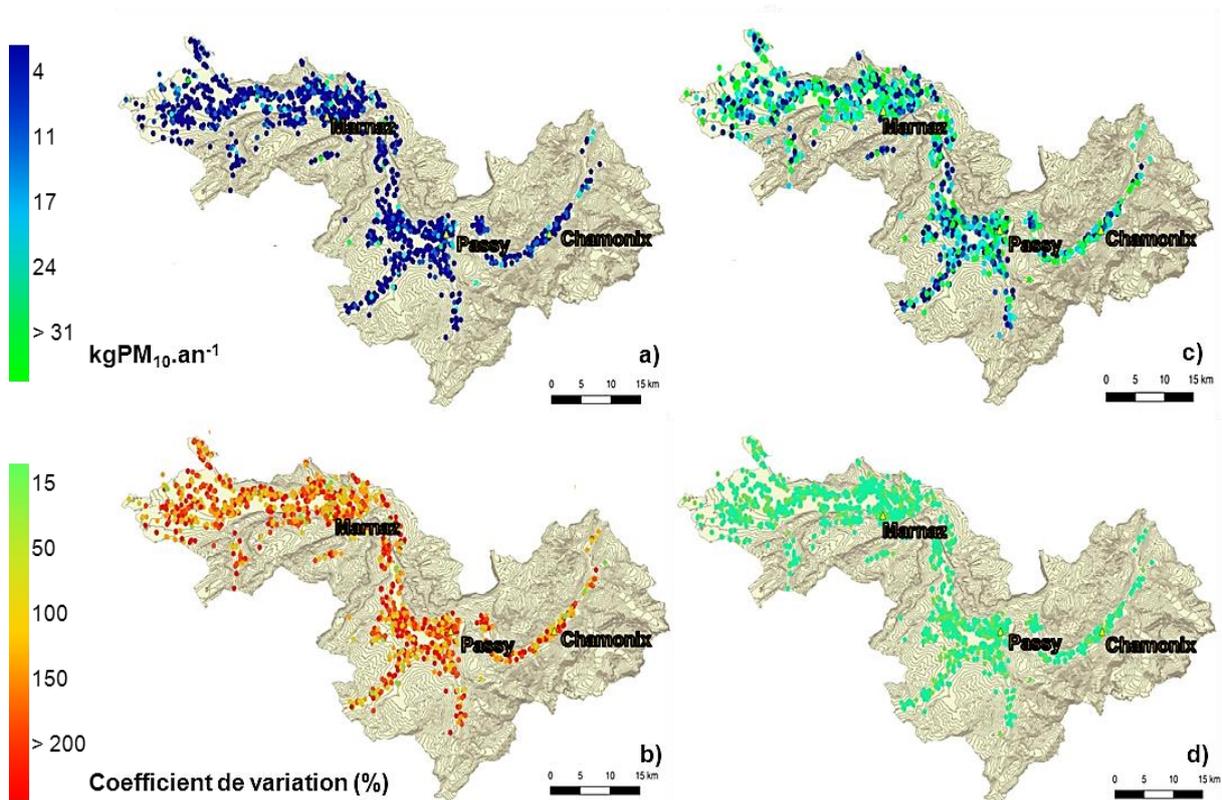


Figure 40 : Réduction des émissions liées au renouvellement des appareils et leurs incertitudes relatives (coefficient de variation). Les estimations des figures a) et b) reposent sur les FE « probabilistes » et les consommations avec le nouvel appareil avec un fort « effet rebond » ($\text{Cancien} \times f_{\text{cgt.}} \times f_{\text{rdt}}$) tandis que les figures c) et d) ont été établies à partir d'estimations avec les FE de l'ADEME et les consommations avec le nouvel appareil ($\text{Cancien} \times f_{\text{cgt.}} \times \text{util}$)

Pour comparer l'évolution des émissions avec les concentrations de $\text{PM}_{10\text{wb}}$ mesurées, les émissions de $\text{PM}_{10\text{wb}}$ des appareils du Fond Air Bois estimées avant et après renouvellement ont été spatialisées et temporalisées dans des couches de SIG, selon l'hiver de mise en service du nouvel appareil⁴. Certaines étapes sont encore nécessaires avant de pouvoir comparer les émissions et les mesures de concentrations, en particulier l'estimation des émissions de PM_{10} provenant des autres appareils autour des sites de mesures. Ces aspects font l'objet de la section suivante.

5.3. Comparaison des évolutions de concentrations de $\text{PM}_{10\text{wb}}$ et des réductions d'émissions

L'estimation des émissions de $\text{PM}_{10\text{wb}}$ issues des appareils de chauffage au bois autre que ceux décrits dans les dossiers du Fond Air Bois est nécessaire pour pouvoir comparer les évolutions des concentrations et des émissions au cours des 4 hivers. Pour estimer les émissions de $\text{PM}_{10\text{wb}}$ autour des sites de mesures, un premier test a été conduit en utilisant le cadastre à l'échelle de 100m issu de l'inventaire 2013 d'ATMO-AuRA. Des incohérences au niveau local sont apparues, les émissions estimées pour les seuls appareils du FAB autour des stations étaient supérieures aux émissions totales des mailles de 100m, ne nous permettant pas d'utiliser les résultats de ce cadastre à fine échelle. L'enquête BVA réalisée dans la vallée de l'Arve à partir d'un échantillon représentatif de la population a permis de connaître le nombre d'appareils et leurs typologies à l'échelle de chacune des 5 communautés de communes du PPA pour les résidences principales et secondaires (Rapport Ademe, 2013). Les parcs d'appareils utilisés par ATMO-AuRA proviennent d'une autre méthodologie, en reposant sur une étude prospective du parc d'appareil départemental sur plusieurs années qui est ensuite reconstruit à l'échelle communale à partir d'enquêtes publiques (INSEE, Sit@del, etc ; ATMO-

⁴ Pour 65% des dossiers, la date d'envoi de l'aide financière a été transmise correspondant à un délai de pose moyen de l'appareil 2 mois auparavant. Pour les autres dossiers, il a été fait l'hypothèse que pour tous les dossiers ayant été réceptionnés avant le 1^{er} novembre de l'année X, le nouvel appareil a pu être installé pour une première utilisation lors de l'hiver X- X+1

AuRA, 2017). Le nombre d'appareil n'est pas exactement le même entre les deux parcs: par exemple, l'enquête BVA dénombre 14 713 appareils de chauffage au bois dans les résidences principales et secondaires de la CC des Pays du Mont-Blanc, tandis que l'inventaire d'ATMO-AuRA de 2015 (sans prise en compte de l'action du Fond Air Bois) comptabilisait 10 792 appareils. **Il a été choisi pour cette dernière partie de DECOMBIO de se baser sur les parcs d'appareils issus de l'enquête BVA puisque que les résultats de cette enquête ont servi au dimensionnement du FAB.**

La quantification de la réduction des émissions de PM_{10wb} issues des appareils du FAB renouvelés entre le début de l'opération et le 1^{er} novembre 2016 a montré que des différences relativement importantes pouvaient exister selon la méthode d'estimation (cf section précédente). Les scénarii I et VI correspondant respectivement à la méthode la plus proche de celle utilisée pour le dimensionnement du FAB et à celle ayant donnée la réduction la plus faible (avec les FEs « probabilistes ») ont été sélectionnés pour la comparaison avec les concentrations atmosphériques. Avant de pouvoir calculer les émissions provenant des appareils non renseignés par le FAB de manière cohérente avec les 2 scénarii, des hypothèses doivent être posées pour pouvoir estimer et désagréger les émissions reposant sur les parcs des appareils des CC :

- Le nombre d'appareils par classe selon la classe de performances des appareils a été segmenté selon le mode d'usage de l'appareil (base/appoint) selon les mêmes proportions que pour le parc global,
- Le nombre d'appareil a été également segmenté entre les résidences principales et secondaires en faisant l'hypothèse que les appareils de chauffage au bois sont également répartis selon ces types de logement. La proportion des résidences secondaires donnée pour les CC de l'enquête Logement de l'INSEE 2009 a été utilisée,
- Les consommations des appareils situés dans des logements secondaires ont été définies comme étant égales à 50% des consommations des appareils situés dans des logements principaux,
- Les émissions estimées à l'échelle de la CC sont définies comme réparties de façon homogène selon la densité de population de la CC,
- Les émissions estimées pour les appareils hors ceux du « Fond Air Bois » sont considérées comme constantes au cours des 4 hivers.

Les émissions hors appareils du FAB ont été estimées à partir des consommations moyennes déterminées dans l'étude BVA nationale (rapport Ademe, Etudes sur le chauffage domestique au bois : marchés et approvisionnement, 2013) et des FEs correspondant respectivement aux scénarii I et VI, respectivement). Le Tableau 11 récapitule les émissions estimées pour les appareils hors FAB autour des stations selon ces 2 méthodes de calcul. La Figure 41 représente les émissions de PM_{10wb} provenant des appareils hors FAB et des appareils du FAB autour du site de Passy avant et durant les 4 premiers hivers de l'opération du FAB selon le scénario de calcul I. Les figures pour les autres sites ainsi que les segmentations d'appareil obtenus sont rapportées dans l'Annexe 18.

Sites de mesures	Marnaz	Passy	Chamonix
Communauté de commune	Cluses, Arve et Montagnes	Pays du Mont-Blanc	Vallée de Chamonix
Part des logements secondaires dans la CC (INSEE, 2009)	27,8 %	54,8 %	67,0 %
Nombre d'habitants estimés dans un rayon de 1km autour des stations*	307	1010	194
% du nombre d'habitant autour des stations par rapport à la population des CC	0,8	2,3	1,5
Emissions en kgPM₁₀.an⁻¹ provenant des appareils hors FAB sur la CC	Scén. I : 111 174 Scén. VI : 86 046	Scén. I : 160 138 Scén. IV : 123 135	Scén. I : 49 167 Scén. IV : 37 090
Emissions en kgPM₁₀.an⁻¹ provenant des appareils hors FAB dans un rayon de 1km autour des sites	Scén. I : 978 Scén. VI : 721	Scén. I : 5 697 Scén. IV : 2 886	Scén. I : 1 022 Scén. IV : 549
Nombre d'appareils du Fond Air Bois situés dans un rayon de 1 km autour des sites	44	81	20

Tableau 11 : Récapitulatif des éléments ayant permis d'estimer les émissions de PM₁₀ provenant des appareils de chauffage au bois hors appareils du Fond Air Bois. Les émissions de PM₁₀ ont été estimées à partir des consommations moyennes de bois du rapport ADEME (Juin 2013), d'une valeur PCI de 1570 kWh/stère et des facteurs d'émissions de l'ADEME (Scénario I) ou « probabilistes » (Scénario VI) (voir Tableau 10). Les consommations des résidences secondaires ont été divisées par 2 par rapport à celles des résidences principales. *La part des habitants autour des sites de mesure a été déterminée à partir d'une couche SIG de densité de population à 100 m provenant du cadastre ATMO-AuRA.

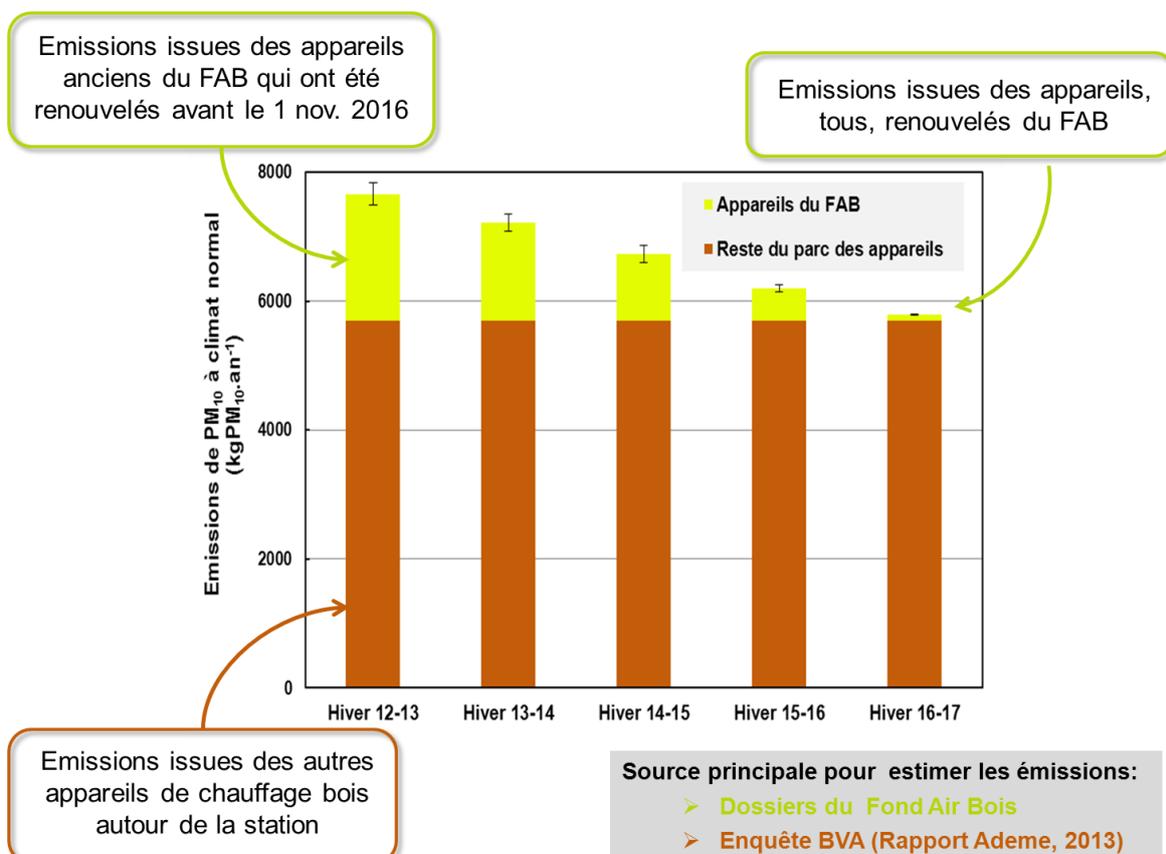


Figure 41 : Evolutions des émissions liées aux appareils de chauffage au bois autour du site de mesure de Passy avant (hiver 2012-2013) et durant l'opération du FAB, à climat normal, en kgPM₁₀.an⁻¹. Les émissions ont été estimées à partir des FE de l'Ademe (Scénario I).

Deux autres points sont à considérés pour la mise en relation des émissions estimées avec l'évolution des concentrations de PM_{10wb} pour des jours présentant des conditions atmosphériques similaires (section 4.2) :

- d'une part, l'échelle temporelle de la saison de chauffe a été choisie pour l'estimation des émissions afin de ne pas ajouter d'incertitude supplémentaire, les variations journalières des émissions de chauffage n'étant pas connues. Les mesures prises en compte pour évaluer les diminutions de concentrations sont cependant pour les 3 classes météorologiques « au cœur de l'hiver »,
- d'autre part, les « aires de représentativité » des sites de mesures, zones où un changement d'émissions d'un appareil de chauffage impacterait les concentrations mesurées au site de prélèvement, ne sont pas réellement connues et peuvent varier selon les conditions de dispersion.

Ce sont les évolutions des concentrations de PM_{10wb} mesurées sur les 3 sites pour les journées présentant des conditions atmosphériques dites de « Dispersion » (voir Section 4.2) qui serviront à la comparaison avec les émissions estimées. Sur le site de Chamonix, ces jours présentent des DJU moyens de 16,0, 16,7, 17,0 et 15,5 lors des 4 hivers du programme, respectivement. Ces DJU sont supérieurs au DJU moyen déterminé sur les périodes de chauffe de 2002 à 2016 (avec une valeur de 13,2, cf annexe 17) mais peuvent être considérés statistiquement comme homogènes entre les 4 hivers (p -value > 0,20, test de Mann-Whitney). Nous avons par la suite admis que la comparaison des évolutions des émissions de PM_{10wb} sur la période de chauffe à climat « normal » et des mesures de concentrations pour des journées de type « Dispersion » était valable de ce point de vue météorologique.

L'aire de représentativité maximale des stations peut être considérée d'un rayon de 1 km autour des sites de mesures. En effet, du fait de l'encaissement des vallées, un rayon d'un km autour de chacune de nos 3 stations présente déjà des différences de topographie supérieures à 100 m de hauteur (voir Annexe 1), incluant donc des habitations avec des installations FAB qui ne participent que peu ou pas du tout à la qualité de l'air vue à la station correspondante, les montagnes obligeant généralement les flux d'air à s'écouler dans le sens des vallées. L'influence de l'aire de représentativité sur l'évolution des émissions estimées provenant des appareils du Fond Air Bois a été évaluée en testant une aire de représentativité de 500m, 1000m et dans le cas de Passy, en calculant une influence relative de chaque appareil du Fond Air Bois sur les mesures de concentrations à partir d'un modèle de dispersion gaussien (Annexe 19). Une différence moyenne de 6% a été trouvée entre les évolutions au cours des hivers selon les différentes aires de représentativité. Finalement, une aire de représentativité des sites de mesures de 1 km de rayon donne des résultats se rapprochant le plus en moyenne des évolutions des concentrations de PM_{10wb} pour les jours dits de « Dispersion » au cours des hivers.

La Figure 42 représente les % de variations au cours des hivers des concentrations mesurées des PM_{10wb} pour des journées de type « Dispersion » avec les % de variations estimés des émissions de PM_{10wb} liées aux appareils de chauffage au bois autour des sites de mesures selon les scénarii I et VI. Globalement, les estimations de l'évolution des émissions correspondent aux évolutions des concentrations de PM_{10wb} pour les journées de type « Dispersion » pour les sites de Marnaz et Passy avec les incertitudes quantifiées⁵. Pour Chamonix, les estimations de diminution d'émission sont cependant très inférieures aux diminutions observées pour les hivers 15-16 et 16-17 (20% de variation estimée pour les émissions entre le 4^{ème} et le 1^{er} hiver du programme, pour une diminution des concentrations de 55%). Cette différence par rapport aux autres sites pourrait s'expliquer par les hypothèses appliquées pour estimer les émissions issues des appareils hors FAB autour de cette station, qui sont plus incertaines pour ce site très urbain. On note que toutes les incertitudes n'ont pu être quantifiées et que les émissions, comme les concentrations de PM_{10wb} , présentent des incertitudes élevées.

⁵ Les incertitudes des variations entre les hivers et l'hiver 1 ont été calculées avec les lois de propagation des incertitudes sur les sommes et les rapports de deux termes (JCCM, 2008). Préalablement, un intervalle de confiance de 95% a été déterminé pour la concentration moyenne hivernale de PM_{10wb} (voir 3.4). L'intervalle de 95% des émissions correspond exclusivement aux incertitudes quantifiées pour les émissions issues des appareils du Fond Air Bois avec des simulations de Monte-Carlo.

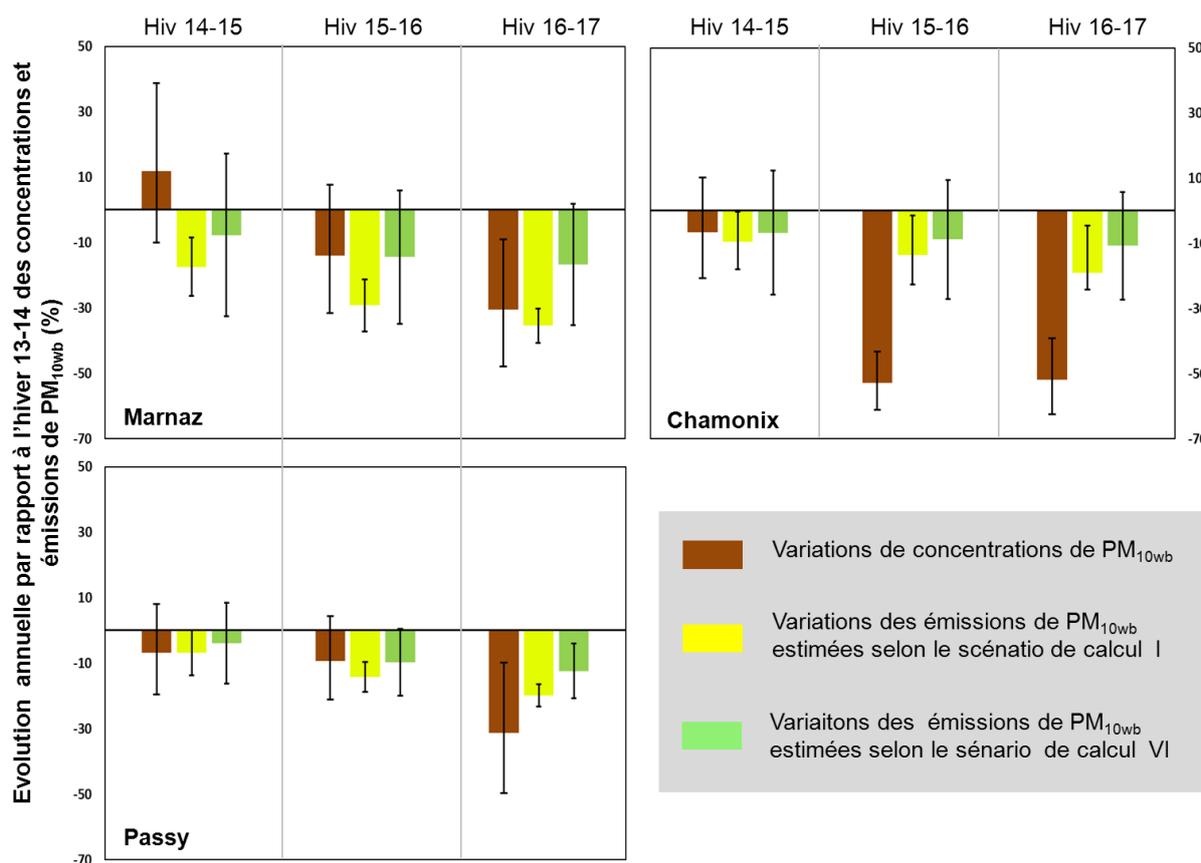


Figure 42 : Evolutions (en %) des émissions liées aux appareils de chauffage au bois autour des sites de mesures et des concentrations de PM_{10wb} pour des journées de type « Dispersion » en référence au 1^{er} hiver du programme (hiver 13-14). Les évolutions des émissions estimées à partir de 2 scénarii sont représentées, constituant un intervalle des résultats possibles. Un intervalle de 95% est représenté pour chacun. Pour les émissions, seules les incertitudes provenant des émissions liées aux appareils du Fond Air Bois ont pu être comptabilisées.

Les incertitudes des variations des émissions estimées proviennent majoritairement des émissions des PM_{10} provenant des appareils qui n'ont pas fait l'objet d'un renouvellement par le biais du FAB. En effet, selon la méthode appliquée, les émissions des appareils du FAB lors de l'hiver 12-13 ne représenteraient que 25% des émissions totales de PM_{10wb} estimées dans un rayon d'1 km autour des sites de Passy et Chamonix et 49% des émissions totales de PM_{10wb} autour du site de Marnaz. Parmi les hypothèses appliquées, certaines sont très incertaines :

- Premièrement, le manque de données concernant le parc et les usages des appareils de chauffage au bois dans les résidences secondaires constitue une importante source d'incertitude sur les émissions totales estimées du fait de l'importance de la proportion de ces résidences (plus de 50% des résidences sont des résidences secondaires pour les CC de la Vallée de Chamonix et des Pays du Mont-Blanc).
- Deuxièmement, les émissions sont considérées comme constantes au cours du temps sans prise en compte d'autres émissions de combustion de la biomasse, comme le brûlage des déchets verts ou les émissions issues des scieries. Les installations et renouvellements qui n'ouvriraient pas droit à l'aide du FAB ne sont également pas pris en compte (nouvelles installations dans des logements neufs ou déjà existants, renouvellements ou installations dans les résidences secondaires). Par ailleurs, l'opération du FAB consiste également dans des campagnes de communication sur les meilleures méthodes d'utilisation des combustibles et des appareils. L'impact des éventuels changements de comportements n'a pas été pris en compte mais pourrait être élevé : par exemple, un appareil fonctionnant à allure nominale pourrait émettre 50% de moins par rapport à un appareil à allure réduite (Collet, 2016).
- Troisièmement, l'utilisation de la densité de population pour répartir les émissions estimées à l'échelle de la CC est discutable, du fait que les appareils de chauffage au bois sont davantage retrouvés dans les maisons plutôt que les appartements (Hélien et al, 2017 ; Plejdrup et al, 2016).

C'est notamment le cas du site de Chamonix qui est situé en centre-ville avec un nombre relativement élevé d'immeubles. Les émissions estimées autour de ce site pourraient donc être très surestimées.

- Finalement, les incertitudes sur les émissions de PM_{10wb} liées aux appareils du Fond Air Bois découlent principalement de l'incertitude sur les facteurs d'émissions. Pour réduire ces incertitudes, une meilleure connaissance des paramètres comportementaux prépondérants sur les facteurs d'émissions permettrait de pouvoir investiguer le comportement moyen des utilisateurs et ainsi de pouvoir quantifier des facteurs d'émissions « moyens » plus représentatifs.

On rappelle que les évolutions des concentrations de PM_{10wb} , comme discuté dans la section 3.3.3, présentent également des facteurs d'incertitudes, notamment, l'utilisation d'un coefficient α stable pour déterminer les concentrations de PM_{10wb} , alors que le profil chimique de la composition carbonée tend à se modifier. L'analyse de la validité de l'usage d'un coefficient stable (entre BC_{wb} et PM_{10wb}) dans une nouvelle étude PMF dans le contexte de renouvellements d'appareils permettrait de consolider la validation d'un tel dispositif pour l'évaluation de futures opérations équivalentes. Enfin, si la classification météorologique permet de comparer de façon robuste les mesures de concentrations pour des conditions similaires entre les hivers, une modélisation de la dispersion atmosphérique prenant en compte les conditions atmosphériques réelles et la dispersion à fine échelle semble nécessaire pour une mise en relations plus rigoureuse entre les concentrations mesurées et les émissions de PM_{10wb} .

L'objectif de cette partie était de comparer l'évolution des concentrations hivernales de PM_{10wb} mesurée pour les journées de type « Dispersion » avec l'évolution des émissions estimées pour les PM_{10} liées aux remplacements des appareils pour les sites de mesure.

- *Les données techniques et d'utilisation des appareils des **dossiers de demande du « Fond Air Bois »** fournissent des **données locales plus précises** pour estimer les émissions des appareils de chauffage au bois que celles utilisées dans les inventaires d'émissions.*
- *Selon les **hypothèses et données de facteurs d'émissions utilisées**, la réduction des émissions due à l'ensemble de l'opération du « Fond Air Bois » est estimée **entre 12 et 38 t PM_{10} /an à climat normal**, soit **entre 4 et 12% des émissions totales** estimées liées au chauffage au bois résidentiel sur l'ensemble de la zone PPA.*
- *La **spatialisation et la temporalisation des émissions** de PM_{10wb} des appareils du Fond Air Bois est effectuée à partir des **coordonnées GPS et de l'information sur l'hiver de la mise en service du nouvel appareil**.*
- *La fraction des émissions de PM_{10wb} issus des appareils du FAB a été estimée entre 25 et 45% des émissions de PM_{10wb} totales dans un rayon de 1 km autour des sites de mesures avec de **fortes incertitudes**. Les **diminutions correspondent globalement** à celles déterminées pour les concentrations de PM_{10wb} **sur les sites de Passy et Marnaz** mais sont inférieures sur le site de Chamonix, probablement en raison de la méthode d'estimation des émissions de PM_{10wb} des appareils hors FAB.*
- *Une **modélisation de la dispersion atmosphérique** de la concentration autour des sites résultant des émissions des appareils en prenant en compte les conditions atmosphériques serait intéressante pour mieux tenir compte des effets météorologiques, même si on sait que des fortes incertitudes existent aussi pour la modélisation des processus à petites échelles nécessaire dans ces vallées étroites.*

6. Conclusion générale

Entre avril 2013, début de l'opération « Fond Air Bois » sur le territoire du Plan de Protection de l'Atmosphère de la Vallée de l'Arve, et novembre 2016, date finale prise en compte pour la rédaction de ce rapport, 1 932 appareils non-performants ont été renouvelés sur un effectif estimé à 11 000 dispositifs non-performants. Sur cette période, le programme de recherche DECOMBIO a eu pour but d'aider à l'évaluation de cette opération pilote « Fonds Air Bois » en déterminant son impact sur la qualité de l'air extérieur à partir de mesures chimiques et météorologiques de terrain. En particulier, les **objectifs de DECOMBIO** étaient (i) de déterminer si les concentrations de PM₁₀ issues de la combustion de la biomasse évoluaient au cours des hivers successifs et (ii) si une éventuelle baisse de ces concentrations était proportionnée à l'estimation de la baisse des émissions.

La **stratégie générale** proposée pour DECOMBIO reposait sur la détermination des concentrations de particules issues de la combustion de la biomasse sur les 4 hivers du programme via des mesures, et la comparaison de ces résultats avec les estimations des émissions qui peuvent être faites avec le renouvellement des appareils de chauffage au bois. Dans ce contexte de vallée, il s'avère indispensable de prendre en compte l'influence de la météorologie, notamment celle des inversions thermiques, sur les concentrations observées.

Pour cela, la **méthodologie** mise en place a comporté des mesures réalisées à trois stations de surveillance de la qualité de l'air de type « fond urbain », sélectionnées pour leur environnement représentatif des diversités d'influences rencontrées dans la vallée (industrie, densité de population, trafic). Outre les mesures de la qualité de l'air maintenues en continu par ATMO-AuRA, un aethalomètre a été installé sur chaque site mesurant l'eBC (carbone suie mesuré par ses propriétés optiques) à une échelle temporelle fine durant 4 ans. Lors de la 1^{ère} année, des prélèvements sur filtres 1 jour sur 3 ont été réalisés, permettant de réaliser systématiquement la caractérisation chimique détaillée des PM₁₀. Afin de suivre l'éventuelle évolution du profil chimique des particules, les prélèvements ont été continués, en supplément au projet initial, sur les hivers suivants du programme. Une campagne intensive a également eu lieu en février 2014 sur le site de Passy, avec des instruments permettant des mesures chimiques à un pas de temps infra journalier. Conjointement, des capteurs de température ont été implantés le long des versants des sites de mesures. Une collaboration avec le SM3A a permis de disposer des informations techniques sur les dossiers de remplacement des appareillages dans le cadre du Fond Air Bois.

L'analyse de ces résultats a conduit à soulever certains enjeux méthodologiques et à **développer des outils** transférables pour l'évaluation de futures opérations de « Fond Air Bois » :

1. L'évaluation des concentrations des particules issues de la combustion de la biomasse (PM_{10wb}) nécessitait de déterminer des coefficients spécifiques pour chacun des 3 sites permettant de passer des mesures de BC_{wb} des aethalomètres à des estimations de PM_{10wb}. Ceci a été fait via des études d'attribution des sources des PM, l'approche **PMF utilisée ayant été spécifiquement développée** afin de contourner le problème des fortes colinéarités des concentrations dues à la dynamique atmosphérique particulière des vallées.
2. Ces mesures en première année ont été poursuivies sur les hivers suivants, permettant d'évaluer s'il pouvait exister des incertitudes dans les déterminations des PM_{10wb} en particulier avec les évolutions éventuelles des profils chimiques des émissions « combustion de biomasse » au fur et à mesure des remplacements des dispositifs de chauffage au bois.
3. On a pu montrer que le **système de capteurs de température** le long des pentes permet d'analyser la stabilité atmosphérique des basses couches à fine échelle temporelle, et de manière peu onéreuse.
4. Le développement d'une méthode de **classification des conditions atmosphériques selon leurs influences sur les concentrations** permet de prendre en compte le facteur météorologique dans l'analyse de l'évolution des concentrations, en les comparant pour des classes de situations météorologiques semblables.
5. Le calcul de la **réduction des émissions de PM_{10wb}** liée à l'opération du « Fond Air Bois » a été réalisé en tenant compte de tous les paramètres connus pouvant expliquer la **variabilité des émissions liées au chauffage au bois à l'échelle d'un km** par des **simulations Monte-Carlo**. Les incertitudes ont été évaluées **en testant plusieurs hypothèses et données de facteurs d'émission**, dont notamment des simulations avec des facteurs d'émissions probabilistes.

Ces différents outils ont permis de générer des **résultats fiables**, montrant que :

- La **source de combustion de la biomasse** contribuait en moyenne hivernale **entre 60 et 70% des PM₁₀** en fonction du site lors du 1^{er} hiver du programme.
- Les **inversions thermiques hivernales** ont un impact prépondérant sur les concentrations des PM₁₀ même sur une échelle saisonnière, et sont un **facteur de confusion de premier ordre** pour l'évaluation d'une action de réduction des émissions qui doit impérativement être pris en compte pour toute comparaison des concentrations.
- En **comparant les concentrations entre conditions atmosphériques semblables**, une **diminution continue de 12% des PM_{10wb} en moyenne par hiver** est observée **sur le site de Passy** pour une grande partie des journées situées « au cœur de l'hiver » (entre le 01/12 et le 28/02). Une **diminution, également, progressive** des concentrations des traceurs de la combustion de la biomasse et des PM_{10wb} est observés sur les 4 ans du programme **sur les sites de Chamonix et Marnaz** pour un type de conditions météorologiques dit de « **Dispersion** ».
- Selon les hypothèses et les données de facteurs d'émissions utilisées, la **réduction des émissions** due à l'ensemble de l'opération du Fond Air Bois est estimée **entre 12 et 38 t de PM₁₀ par an** à climat normal, soit entre **4 et 12% des émissions totales liées au chauffage au bois résidentiel** sur l'ensemble de la zone PPA, estimées par Atmo AuRA.
- Avec des **incertitudes très élevées** notamment pour l'estimation des émissions de PM_{10wb} issues d'appareils autres que ceux du Fond Air Bois autour des sites, les **diminutions des émissions de PM_{10wb} estimées autour des sites** correspondent **aux variations des concentrations de PM_{10wb} mesurées**.

Ainsi, au terme des 4 années du programme des méthodologies solides ont pu être développées pour répondre pleinement aux objectifs de DECOMBIO.



Travaux concernant DECOMBIO et références

Thèses et articles scientifiques

- P1. Chevrier F (2016) Chauffage au bois et qualité de l'air en Vallée de l'Arve : définition d'un système de surveillance et impact d'une politique de rénovation du parc des appareils anciens. Thèse de l'Université de Grenoble Alpes, 260p. <https://tel.archives-ouvertes.fr/tel-01527559>
- P2. Chevrier F, Jezek I, Brulfert G, Mocnik G, Marchand N, Jaffrezo JL and Besombes JL, 2016. DECOMBIO- Biomass burning contribution of PM₁₀ in Arve valley: implementation and validation of a monitoring system. *Pollution Atmosphérique*. N°231 - 232, mis à jour le : 09/02/2017, URL : <http://lodel.irevues.inist.fr/pollution-atmospherique/index.php?id=5952>, <https://doi.org/10.4267/pollution-atmospherique.5952>
- P3. Bonvalot L, Tuna T, Fagault Y, Jaffrezo JL, Jacob V, Chevrier F, and Bard E (2016) Estimating contributions from biomass burning and fossil fuel combustion by means of radiocarbon analysis of carbonaceous aerosols: application to the Valley of Chamonix. *Atmos. Chem. Phys.*, 16, 13753-13772, doi:10.5194/acp-16-13753-2016.
- P4. Aude Calas (2017) Pollution atmosphérique particulaire : développement de méthodologies non-invasives et acellulaires pour l'évaluation de l'impact sanitaire ». Thèse de l'Université de Grenoble Alpes, soutenue le 21/12/2017.
- P5. Calas A, Uzu G, Martins JMF, Houdier S, Thomas F., Molton F, Lacroix T, Charron A, Jacob V, Besombes JL, Chevrier F, Brulfert G, Dunster C, Oliete A, Kelly FJ, and Jaffrezo JL (2018) Comparison between five acellular assays of oxidative potential (OP) of particulate matter and their correlation with detailed chemistry: insights from one year of measurements in the alpine city of Chamonix. Published in *ACPD* on 11/12/17, acp-2017-1062.
- P6. Weber S, Uzu G, Calas A, Chevrier F, Besombes JL, Charron A, Salameh D, Jezek I, Mocnik G, and Jaffrezo JL (2018) Attribution of Oxidative Potential fractions to sources of atmospheric PM. Published in *ACPD* on 29/12/17, acp-2017-1053.

Communications dans des meetings et congrès

- C1. Jaffrezo JL, Chevrier F, Waked A, Cozic J, Besombes JL, Piot C, Golly B, Marchand, Brulfert G, Guillaud G, Chapuis D, Mocnik G, Jezek I (2013) Monitoring and research for the evaluation of the impact of biomass combustion on PM in the French Alps. Intern. workshop on "Wood burning, Elemental/ Black/Brown Carbon", Ghent, Dec 2-3, 2013.
- C2. Chevrier F, Bernard A, Brulfert G, Jaffrezo JL, et Besombes JL (2014) Caractérisation chimique des particules atmosphériques dans la Vallée de l'Arve. Journée de la Soc Chim. Fran., 12/06/14, Chambéry.
- C3. Chevrier F, Bernard A, Brulfert G, Mocnik G, Laurent JP, Jaffrezo JL and Besombes JL (2014) Contribution de la combustion de biomasse sur les niveaux de PM₁₀ dans la Vallée de l'Arve. Colloque Combustion et Pollution Atmosphérique. Tanger (Maroc), 21-25 Octobre.
- C4. Bertrand A, H. Langley DeWitt, Brice Temime-Roussel, Thorsten Hohaus, Donna Sueper, Florie Chevrier, Jean-Luc Besombes, Jean-Luc Jaffrezo, Grisa Mocnik, Nathan Kreisberg, Gabriel Isaacman, Susanne Hering, Allen H. Goldstein, John Jayne, Henri Wortham, Nicolas Marchand (2014) Analysis of Polar Organic Compounds by TAG-AMS: Case Study of an Alpine Valley in France", AAAR 33rd Annual Conference, October 2014, Orlando, USA
- C5. Chevrier F, Brulfert G, Jaffrezo JL, Besombes JL (2014) Le chauffage au bois : une source majeure de pollution dans la vallée de l'Arve. Colloque 2014 du Comité National Français de Géodésie et de Géophysique (5-7 Nov), Orléans, France.
- C6. Chevrier F, Močnik G, Brulfert G, Laurent JP, Jaffrezo JL, and Besombes JL (2014) Impact of wood burning in an Alpine valley : the DECOMBIO program. 4th Sino-French Joint Workshop on Atmospheric Environment: "Changing complexity of air pollution: sources, chemistry, impacts & regulations ». Lyon, Dec 10-13, 2014.
- C7. Bertrand A, Dewitt L, Temime-Roussel B, Chevrier F, Močnik G, Jézek I, Allard J, Laurent JP,

- Canonaco F, Prevôt ASH, Besombes JL, Jaffrezo JL, Wortham H, and Marchand N (2015) Synergy of multi-source apportionment approaches in an environment highly driven by atmospheric dynamic: case study of an Alpine valley during winter. European Aerosol Conf., Sept 6-11, Milan (Italy).
- C8. Chevrier F, Golly B, Ježek I, Močnik G, Brulfert G, Laurent JP, Jaffrezo JL, and Besombes JL (2015) Contribution of one year measurements in Arve valley to the chemical knowledge of alpine valleys and deconvolution of combustion sources. Ibid.
- C9. Chevrier F, Golly B, Ježek I, Močnik G, Brulfert G, Laurent JP, Jaffrezo JL and Besombes JL (2015) Contribution of one year measurements in Arve valley to the chemical knowledge of alpine valleys and deconvolution of combustion sources. Colloque LEFE/CHAT, Aussois, France (September 16-18, 2015)
- C10. Paci A, Staquet C, and 31 others including JL Jaffrezo (2015) The Passy project: 2015 field experiment and preliminary results. 33rd Intern. Conf. Alpine Met. (ICAM) 31/08 – 04/09/15, Innsbruck, Austria.
- C11. Staquet C, Paci A, and 24 others, including JL Jaffrezo (2015). The Passy project: objectives, scientific questions and preliminary results. Ibid
- C12. Jaffrezo JL, Besombes JL and Favez O (2015) Estimation de la contribution de la source « combustion de biomasse » aux PM atmosphériques. 5^{ème} Congrès national professionnel ProPellets, Chambéry, 20-21/05/15.
- C13. Besombes JL et Jaffrezo JL (2016) Caractérisation chimique des aérosols atmosphériques : vers une meilleure connaissance des sources. Réunion plénière et journée thématique du GDR Suie, 12 octobre 2016 Orléans (France)
- C14. Chevrier F, Ježek I, Močnik G, Brulfert G, Jaffrezo JL and Besombes JL (2016) Source apportionment in a complex environment using advanced Positive Matrix Factorization: advantages and limitations. European Aerosol Conference, Tours, France (September 4-9, 2016).
- C15. Allard J, Chevrier F, Ježek I, Močnik G, Jaffrezo JL, Brulfert G, Laurent JP and Besombes JL (2016) Investigation of the impact of local meteorology on PM₁₀ and BC atmospheric concentrations in the Alpine Arve valley, France. European Aerosol Conference, Tours, France (September 4-9, 2016)
- C16. Jaffrezo JL and Besombes JL (2016) Particules atmosphériques : de quoi parle-t-on ? Journée technique du Pôle d'excellence AXELERA « Particules dans l'air », 02/03/2016, Lyon.
- C17. Besombes JL and Jaffrezo JL (2016) Impact du chauffage au bois sur les niveaux de particules : état des lieux en région Rhône-Alpes. Ibid
- C18. Jaffrezo JL and Besombes JL (2016) Qualité de l'air dans la vallée de l'Arve. Journée d'étude du CITEPA 2016. Emissions de polluants et qualité de l'Air : des relations complexes. 05/04/16, Paris
- C19. Jaffrezo JL (2016) Caractérisations physico-chimiques des aérosols. Colloque du Collège de France « **Les aérosols carbonés: impacts sur le climat et la qualité de l'air** ». **17/06/2016. Paris.**
- C20. Jaffrezo JL (2016) Pollution atmosphérique dans les vallées alpines : de POVA au PPA Vallée de l'Arve, programme Primequal. Colloque de la Direction Recherche Innovation du MEEM « Transition écologique : pour une interaction entre politiques publiques et recherches finalisées », 5-6/07/2016, Paris.
- C21. Salameh D, Golly B, Besombes JL, Alleman L, Favez O, and Jaffrezo JL (2016) Seasonal variation of PM chemical constituents in different French urban environments. European Geosciences Union General Assembly, Vienne, Austria (April 18-22, 2016).
- C22. Paci A, and 45 others including Jaffrezo JL (2016) The Passy-2015 field experiment: wintertime atmospheric dynamics and air quality in a narrow alpine valley. Ibid
- C23. Allard J, Chevrier F, Ježek I, Močnik G, Jaffrezo JL, Brulfert G, Laurent JP, and J.L. Besombes JL (2016) Investigation of local meteorology on PM₁₀ and BC atmospheric concentrations in the alpine Arve Valley, France. Eur. Aero. Conf, 05-09/09/2016, Tours, France.



- C24. Chevrier F, Ježek I, Močnik G, Brulfert G, Jaffrezo JL, and Besombes JL (2016) Source apportionment in a complex environment by developed Positive Matrix Factorization: advantages and limitations. Ibid
- C25. Salameh D, Favez O, Golly B, Besombes JL, Alleman L, Albinet A, and Jaffrezo JL (2016) Harmonized PM source apportionment for French sites: results from a large study using constrained PMF (ME-2) receptor model. Ibid
- C26. Uzu G, Calas A, Oliete A, Dunster C, Kelly FJ, Martins J, and Jaffrezo JL (2016) PM pollution: Oxidative Potential of PM₁₀ in the Arve Valley (France) – comparison of two different assays. Ibid
- C27. Allard J, Jaffrezo JL, Besombes JL and Chanut H (2017). Evaluation des variations d'émissions au fur et à mesure du renouvellement d'appareils de chauffage au bois non-performants dans la Vallée de l'Arve. Journées Interdisciplinaires de la Qualité de l'Air, Villeneuve d'Asq.
- C28. Allard J, Chevrier F, Jezek I, Mocnik G, Brulfert G, Besombes JL and Jaffrezo JL (2018). Meteorological conditions classification: application for evaluation of biomass burning emission abatement on air quality in Arve valley (France). 11th International Conference on Air Quality-Science and Application, Barcelona, 12-16 March.

Stages et rapports de M1 et M2 incluant des données DECOMBIO

Alexandre Bernard

M1 Chimie Environnement Durable (Université Savoie Mont Blanc) (Avril-juillet 2014)
Caractérisation des méthoxyphénols dans les PM₁₀ de la vallée de l'Arve

Julie Allard

M2R STUE, option ECE (UJF - Grenoble) (Fév – Juin 2015)
Inversions de température et qualité de l'air dans la Vallée de l'Arve.

Yann Cohen, Pape Bale et Oula Makawi

Projet tuteuré M2P EAR (Lyon) (Fév – Mars 2015)
Réseau de mesures ePM dans le bassin de Passy pendant la campagne LEFE-Passy.

Yann Cohen

M2P EAR (Lyon) (Mars – Sept 2015)
Etude nationale sur la part de la combustion du bois aux PM durant l'hiver 14-15.

Charlène Grillet

M2P STADE IGA Grenoble (Fév – Juillet 2015)
Fonds Chaleur et qualité de l'air dans l'Arve.

Guillaume Vincent

M1 STUE (Université Grenoble-Alpes) (Avril – Juin 2016)
Inversions persistantes de haute altitude et épisodes de pollution particulières hivernaux dans la vallée de l'Arve.

Céline Bégorre

M2R Chimie, Écotox et Chimie de l'Envir. (Univ Bordeaux) (Janv – Juillet 2017)
Climatologie des mesures de Potentiel Oxydant des PM en France.

Samuel Weber

M2R STUE, option ECE (UGA - Grenoble) et ENS Cachan (Janv – Juillet 2017)
Potentiel Oxydant et chimie des PM : développements de relations quantitatives.

Références bibliographiques

- Adachi, K., Tainosho, Y., 2004. Characterization of heavy metal particles embedded in tire dust. *Environment International*. 30, 1009-1017.
- ADEME, 2015. Caractérisation technique et segmentation du parc des appareils de chauffage domestique au bois en maison individuelle- Réalisée par SOLAGRO et Enviroconsult- N°1401C0050 *Rapport ADEME*, 93 p
- ADEME, 2013. Etude sur le chauffage domestique au bois: marchés et approvisionnement- Etude réalisée par Solagro, Biomasse Normandie, BVA et Marketing freelance- N°120100052. *Rapport ADEME-87p*
- ADEME, 2002. Classification et critères d'implantation des stations de surveillance de la qualité de l'air. *Rapport ADEME*, 63 p.
- ADEME, 2013. Enquête sur les Pratiques et utilisation du chauffage au bois dans la Vallée de l'Arve- Etude réalisée par l'Institut BVA. *Marché ADEME n°1262c0002*, 62 p.
- Alleman, L.Y., Lamaison, L., Perdrix, E., Robache, A., Galloo, J.-C., 2010. PM10 metal concentrations and source identification using positive matrix factorization and wind sectoring in a French industrial zone. *Atmospheric Research*. 96, 612-625.
- Almeida, S.M., Pio, C.A., Freitas, M.C., Reis, M.A., Trancoso, M.A., 2006. Source apportionment of atmospheric urban aerosol based on weekdays/weekend variability: evaluation of road re-suspended dust contribution. *Atmospheric Environment*. 40, 2058-2067.
- Amato, F., Alastuey, A., Karanasiou, A., Lucarelli, F., Nava, S., Calzolari, G., Severi, M., Becagli, R., Colombi, C., 2015. AIRUSE-LIFE+: a harmonized PM speciation and source apportionment in 5 Southern European cities. *Atmos. Chem. Phys. Discuss.*, 15, 23989-24039.
- ATMO-aura., 2016. Méthode d'élaboration de l'inventaire des émissions atmosphériques en Rhône-Alpes. 40 p.
- Arduini, G., Staquet, C., Chemel, C. (2015). Interactions between the night-time valley-wind system and a developing cold-air pool. *Bound. Layer Meteorol.*
- Bauer, H., Schueller, E., Weinke, G., Berger, A., Hitzenberger, R., Marr, I.L., Puxbaum, H., 2008. Significant contributions of fungal spores to the organic carbon and to the aerosol mass balance of the urban atmospheric aerosol. *Atmospheric Environment*. 42, 5542-5549.
- Belis, C.A., Favez, O., Harrison, R.M., Larsen, B.R., Amato, F., El Haddad, I., Hopke, P.K., Nava, S., Paatero, P., Prévôt, A., 2014. European Guide on Air Pollution Source Apportionment with Receptor Models. Publications Office.
- Belis, C.A., Karagulian, F., Larsen, B.R., Hopke, P.K., 2013. Critical review and meta-analysis of ambient particulate matter source apportionment using receptor models in Europe. *Atmospheric Environment*. 69, 94-108.
- Bernardoni, V., Vecchi, R., Valli, G., Piazzalunga, A., Fermo, P. (2011). PM10 source apportionment in Milan (Italy) using time-resolved data. *Science of The Total Environment*, 409, 4788-4795.
- Bertrand, A., Stefenelli, G., Bruns, E., Pieber, S., Temime-Roussel, B., Slowik, J. G., Prévôt, A. S?H., Wortham, H., El Haddad, I., Marchand, N., 2017. Primary emissions and secondary aerosol production potential from woodstoves for residential heating: Influence of the stove technology and combustion efficiency. *Atmospheric Environment*, 169, 65-79.
- Besombes, J., Carteret, M., Golly, B., Brulfert, G., Collet, S., Rogaume, C., Rogaume Y. (2014). Evaluation des impacts de la qualité de l'air des actions de modernisation du parc d'appareils de chauffage au bois à Lanslebourg. *Rapport final ADEME*, 149 p.
- Bizjak T., The sensitivity of the model for determination of aerosol black carbon sources to selected input parameters, Bachelor thesis, Fakulteta za znanosti o okolju, 2015
- Bobbia, M., Cori, A., de Fouquet, C., 2008. Représentativité spatiale d'une station de mesure de la pollution atmosphérique. *Pollution Atmosphérique*, 197, 63-75.
- Bonvalot, L., Tuna, T., Fagault, Y., Jaffreo, J.L., Jacob, V., Chevrier, F., Bard, E., 2016. Estimating contributions from biomass burning and fossil fuel combustion by means of radiocarbon analysis of carbonaceous aerosols: application to the Valley of Chamonix. *Atmos. Chem. Phys. Discuss.*, 1-39.
- Bozzetti, C., El Haddad, I., Salameh, D., Daellenbach, K.R., Fermo, P., Gonzalez, R., Minguillon, M.C.,



- linuma, Y., Poullain, L., Müller, E., Slowik, J.G., Jaffrezo, J.-L., Baltensperger, U., Marchand, N., Prévôt, A.S.H., 2017. Organic aerosol source apportionment by offline-AMS over a full year in Marseille. *Atmos. Chem. Phys. Discuss.* 1-46.
- Breiman, L., 2001. Random forests. *Machine learning*, 45, 5-32.
- Bruns, E. A., El Haddad, I., Slowick, J. G., Kilic, D., Klein, F., Baltensperger, U., Prévôt, A. S., 2016. *Identification of significant precursor gases of secondary organic aerosols from residential wood combustion. Scientific reports*, 6:27881.
- Calas, A., Uzu, G., Martins, J., Houdier, S., Thomas, F., Molton, F., Lacroix, T., Charron, A., Jacob, V., Besombes, J.L., Chevrier, F., Brulfert, G., Dunster, C., Oliete, A., Kelly, F.J., Jaffrezo, J.L., 2017. Comparison between five acellular assays of oxidative potential (OP) of particulate matter and their correlation with detailed chemistry: insights from one year of measurements in the alpine city of Chamonix. *ACPD*.
- Cayla, J.M., Allibe, B., Laurent, M.H., 2010. From practices to behaviors: estimating the impact of household behavior on space heating energy consumption. *ACEEE Summer Study on Energy Efficiency in Buildings* p 26-38.
- Chevrier, F. 2016. Chauffage au bois et qualité de l'air en Vallée de l'Arve: définition d'un système de surveillance et impact d'une politique de rénovation du parc des appareils anciens. Thèse de l'UGA, 260p
- Cesari, D., Donateo, A., Conte, M., Merico, E., Giangreco, E., Giangreci, A., Contini, D., 2016. An inter-comparison of PM_{2.5} at urban and urban background sites: Chemical characterization and source apportionment. *Atmospheric Research*, 174-175, 106-109.
- CITEPA, 2017. *Incertitudes des polluants atmosphériques*. Récupéré sur <https://www.citepa.org/fr/activites/inventaire-des-emissions>.
- CITEPA, 2017. Organisation et méthodes des inventaires nationaux des émissions atmosphériques en France. *OMINEA-14ème édition*, 838 p.
- Collet, S., 2016. Détermination de facteurs d'émission de polluants des foyers domestiques alimentés au bois-*Rapport final ADEME*, 51p.
- Currie, L., 1992. Source apportionment of atmospheric particles. *Environmental Particles*, 1, 3-74.
- Destais, G., 2017. Variables explicatives de la consommation de chauffage dans l'habitat: les leçons de l'analyse d'une copropriété sur des données journalières. Développement durables et territoires [en ligne], Vol 8, URL: <http://journals.openedition.org/developpement-durable/11766>
- DeWitt, H.L., Hellebust, S., Temime-Roussel, B., Ravier, S., Polo, L., Jacob, V., Buisson, C., Charron, A., André, M., Pasquier, A., Besombes, J.-L., Jaffrezo, J.L., Wortham, H., Marchand, N., 2015. Near-highway aerosol and gas-phase measurements in a high-diesel environment. *Atmos. Chem. Phys.* 15, 4373-4387.
- Drinovec, L., Močnik, G., Zotter, P., Prévôt, A.S.H., Ruckstuhl, C., Coz, E., Rupakheti, M., Sciare, J., Müller, T., Wiedensohler, A., Hansen, A.D.A., 2015. The "dual-spot" Aethalometer: an improved measurement of aerosol black carbon with real-time loading compensation. *Atmos. Meas. Tech.* 8, 1965-1979.
- EMEP/EAA, 2016. Technical guidance to prepare national emission inventories. *Air pollution emission inventory guidebook*, 28 p.
- EUROAIRNET, 1998. Site selection . *Technical Report n°16_EPA*, p. 54 p.
- Favez, O., Cachier, H., Sciare, J., Sarda-Estève, R., Martinon, L., 2009. Evidence for a significant contribution of wood burning aerosols to PM_{2.5} during the winter season in Paris, France. *Atmospheric Environment*. 43, 3640-3644.
- Favez, O., El Haddad, I., Piot, C., Boréave, A., Abidi, E., Marchand, N., Jaffrezo, J.L., Besombes, J.L., Personnaz, M.B., Sciare, J., Wortham, H., George, C., D'Anna, B., 2010. Inter-comparison of source apportionment models for the estimation of wood burning aerosols during wintertime in an Alpine city (Grenoble, France). *Atmos. Chem. Phys.* 10, 5295-5314.
- Font, A., de Hoogh, K., Leal-Sanchez, M., Ashworth, D.C., Brown, R.J.C., Hansell, A.L., Fuller, G.W., 2015. Using metal ratios to detect emissions from municipal waste incinerators in ambient air pollution data. *Atmospheric Environment*. 113, 177-186.

- Fortziou, L., Liakakou, E., Stavroulas, I., Theodosi, C., Zampas, P., Psiloglou, B., Sciare, J., Maggos, T., Bairachtari, K., Bougiatioti, A.A, Gerasopoulos, E., Sarda-Estève, R., Bonnaire, N., Mihalopoulos, N. (2017). Multi-tracer approach to characterize domestic wood burning in Athens (Greece) during wintertime. *Atmospheric Environment*, 148, 89-101.
- Fuller, G. W., Tremper, A. H., Baker, T. D., Yttri, K. E., Butterfield, D.: Contribution of wood burning to PM10 in London, *Atmos. Environ.*, doi:10.1016/j.atmosenv.2013.12.037, 2014.
- Gianini, M.F.D., Fischer, A., Gehrig, R., Ulrich, A., Wichser, A., Piot, C., Besombes, J.L., Hueglin, C., 2012. Comparative source apportionment of PM10 in Switzerland for 2008/2009 and 1998/1999 by Positive Matrix Factorisation. *Atmospheric Environment*. 54, 149-158.
- Godoy, M.L.D.P., Godoy, J.M., Artaxo, P., 2005. Aerosol source apportionment around a large coal fired power plant—Thermoelectric Complex Jorge Lacerda, Santa Catarina, Brazil. *Atmospheric Environment*. 39, 5307-5324.
- Golly, B., 2014. Étude des sources et de la dynamique atmosphérique de polluants organiques particulaires en vallées alpines : apport de nouveaux traceurs organiques aux modèles récepteurs. Thèse. Université de Grenoble.
- Golly, B., Brulfert, G., Berlioux, G., Jaffrezo, J.L., Besombes, J.L., 2015. Large chemical characterisation of PM10 emitted from graphite material production: Application i source apportionment. *Science of The Total Environment*, 538, 634-643.
- Green, M., Judith, C., Watson, J., 2015. Effects of snow cover and atmospheric stability on winter PM2.5 concentrations in western U.S. Valleys. *Journal of Applied Meteorology and Climatology*, 54, 1191-1201.
- Heal, M., 2013. The application of carbon-14 analyses to the source apportionment of atmospheric carbonaceous particle matter: a review. *Anal Bioanal Chem*, 406, 81-98.
- Hellén, H., Kangas, L., Kousa, A., Vestenius, M., Teinilä, K., Karppinen, A., Kukkonen, J., Niemi, J. V., 2017. Evaluation of the impact of wood combustion on BaP concentrations; ambient measurements and dispersion modeling in Helsinki, Finland. *Atmos. Chem. Phys*, 17, 3475-3487.
- Henne, S., Brunner, D., Folini, D., Solberg, S., Klausen, J., Buchman, B. (2010). Assesment of parameters describing representativeness of air quality in-situ measurement sites. *Atmos. Chem. Phys*, 10, 3561-3581
- Hennigan, C., Miracolo, M., Engelhart, G., May, A., Presto, A., Lee, T., Sullivan, A.P., McMeeking, G.R., Coe, H., Wold, C.E., Hao, W.-H., Gilman, J.B., Kuster, W.C., de Gouv, J., Schichtel, B.A., Collett, Jr, Kreidenweiss, S.M., Robinson, A. (2011). Chemical and physical transformations of organic aerosol from the photo-oxidation of open biomass burning emissions in an environmental chamber. *Atmos. Chem. Phys.*, 11, 7669-7686.
- Hervo, M., 2013 Etude des propriétés optiques et radiatives des aérosols en atmosphère réelle: Impact de l'hygroscopicité. *Thèse de l'Université Blaise Pascal-Clermont-Ferrand*, 171 p.
- Jordan, T.B., Seen, A.J., Jacobsen, G.E., 2006. Levoglucosan as an atmospheric tracer for woodsmoke. *Atmospheric Environment*. 40, 5316-5321.
- Karvosenoja, N., Tainio, M., Kupianen, K., Tuomisto, J. T., Kukkonen, J., Johansson, M., 2008. Evaluation of the emissions and uncertainties of PM2.5 originated from vehicular traffic and domestic wood combustion in Finland. *Boreal Environment Research*, 13, 465-474.
- Kursa, M., Rudnicki, W., 2010. Feature Selection with the Boruta Package. *Journal of Statistical Software*, 26 (11).
- La Branche, S, 2016. Etude sociologique sur la pollution due au chauffage au bois dans l'agglomération grenobloise: synthèse des principaux résultats. *Pollution Atmosphérique n°228*.
- Lanz, V.A., Alfarra, M.R., Baltensperger, U., Buchmann, B., Hueglin, C., Prévot, A.S.H., 2007. Source apportionment of submicron organic aerosols at an urban site by factor analytical modelling of aerosol mass spectra. *Atmos. Chem. Phys*. 7, 1503-1522.
- Lareau, N., Crosman, E., Whiteman, C. D., Horel, J., Hoch, S. W., Brown, W., Horst, T., 2011. The persistent cold-air pool study . *BAMS*, 11, 53-62.
- Largeroy, Y., Staquet, C., 2016. Persistent inversion dynamics and wintertime PM10 air pollution in Alpine valleys. *Atmospheric Environment*, 135, 92-108.



- Larsen, B., Gilardoni, S., Stenström, K., Niedzialek, J., Jimenez, J., Belis, C., 2012. Sources for PM air pollution in the Po Plain, Italy: II. Probabilistic uncertainty characterization and sensitivity analysis of secondary and primary sources. *Atmospheric Environment*, 50, 203-213.
- Liu, D., Li, J., Zhang, Y., Xu, Y., Liu, X., Ding, P., Shen, C., Tian, C., Zhang, G., 2013. The Use of Levoglucosan and Radiocarbon for Source Apportionment of PM_{2.5} Carbonaceous Aerosols at a Background Site in East China. *Environmental Science & Technology*, 47, 10454-10461.
- Malek, E., Davis, T., Martin, R., Silva, P., 2006. Meteorological and environmental aspects of one of the worst national air pollution episodes in Logan, Cache valley, Utah, USA. *Atmos. Res.*, 79, 108-122.
- Martinsson, J., Azeem, H. A., Sporre, M. K., Bergström, R., Ahlberg, E., Öström, E., Kristensson, A., Swietlicki, E., Stenström, K. E., 2017. Carbonaceous aerosol source apportionment using the Aethalometer model-evaluation by radiocarbon and levoglucosan analysis at a rural background site in southern Sweden. *Atmos. Chem. Phys.*, 17, 4265-4281.
- Morly, J., Hazas, M., 2011. The significance of difference: understanding variation in household energy consumption. EC EEE Proceedings, 2037-2046.
- Paatero, P., Tapper, U., 1993. Analysis of different modes of factor analysis as least squares fit problems. *Chemometrics and Intelligent Laboratory Systems*. 18, 183-194.
- Paci, A., Staquet, C., Allard, J., et 21 auteurs, 2016. La campagne Passy-2015: dynamique atmosphérique et qualité de l'air dans la vallée de l'Arve. *Pollution Atmosphérique*, 231-232.
- Panday, A., Prinn, R., 2009. Diurnal cycle of air pollution in the Kathmandu Valley, Nepal: Observations. *Journal of Geophysical Research*, 114, D09305.
- Park, K., Judith, C., Watson, J., Trimble, D., Doraiswamy, P., Pat Arnott, W., Stroud, K.R., Bowers, K., Bode, R., Petzold, D., Hansen, A., 2006. Comparison of continuous and filter-based carbon measurements at the Fresno supersite. *Journal of the Air & Waste Management Association*, 56, 474-491.
- Programme PART'Aera (2014) /www.ige-grenoble.fr/recherche/equipes/chimie-atmospherique-chianti/projets
- PCIT, 2012. *Méthode d'élaboration des inventaires territoriaux des émissions atmosphériques*. Récupéré sur www.lcsqa.org/system/files/ressources, 293 p.
- Petit, J., Favez, O., Sciare, J., Canonaco, F., Croteau, P., Mocnik, G., Jayne, J., Worsnop, D., Leoz-Garziandia, E., 2014. Submicron aerosol source apportionment of wintertime pollution in Paris, France by double positive matrix factorization (PMF2) using an aerosol chemical speciation monitor (ACSM) and a multi-wavelength Aethalometer. *Atmos. Chem. Phys.*, 14, 13773-13787.
- Pio, C.A., Castro, L.M., Cerqueira, M.A., Santos, I.M., Belchior, F., Salgueiro, M.L., 1996. Source assessment of particulate air pollutants measured at the southwest european coast. *Atmospheric Environment*. 30, 3309-3320.
- Piot, C., 2011. Polluants atmosphériques organiques particulaires en Rhône-Alpes : caractérisation chimique et sources d'émissions. Thèse. Université de Grenoble.
- Platt, S., El Haddad, I., Pieber & 19 autres, 2014. Two-stroke scooters are a dominant source of air pollution in many cities. *Nature Communications*, 5:3749.
- Plejdrup, M. S., Nielsen, O.-K., Brandt, J., 2016. Spatial emission modelling for residential wood combustion in Denmark. *Atmos. Envir.*, 144, 389-396.
- Putaud, J.P., Van Dingenen, R., Dell'Acqua, A., Raes, F., Matta, E., Decesari, S., Facchini, M.C., Fuzzi, S., 2004. Size-segregated aerosol mass closure and chemical composition in Monte Cimone (I) during MINATROC. *Atmos. Chem. Phys.* 4, 889-902.
- Puxbaum, H., Caseiro, A., Sánchez-Ochoa, A., Kasper-Giebl, A., Claeys, M., Gelencsér, A., Legrand, M., Preunkert, S., Pio, C., 2007. Levoglucosan levels at background sites in Europe for assessing the impact of biomass combustion on the European aerosol background. *Journal of Geophysical Research: Atmospheres*. 112, n/a-n/a.
- Rao, M., D'Elia, I., Piersanti, A., 2017. An uncertainty quantification of PM_{2.5} emissions from residential wood combustion in Italy. *Atmos. Poll. Res.*, in press.
- RECORD, 2005. Modélisation de la dispersion des émissions atmosphériques d'un site industriel- Vers un guide de l'utilisateur-Phase1: Etat de l'art. Phase 2: Evaluation des modèles. 795 p, n°03-0805/2A.

- Reddy, P., Barbarick, D., Osterburg, R., 1995. Development of a statistical model for forecasting episodes of visibility degradation in the Denver metropolitan area. *J. Appl. Meteor.*, *34*, 616-625.
- Reponen, T., Grinshpun, S., Trakumas, S., Martuzevicius, D., Wang, Z.-M., LeMasters, G., Lockey, J., Biswas, P., 2003. Concentration gradient patterns of aerosol particles near interstate highways in the greater Cincinnati airshed. *J. Environ. Monit.*, *5*, 557-562.
- Sabatier T, Paci, A, Canut G, Llargeron Y, Dabas A, Doneir JM, and Douffet T (2018) Wintertime local wind dynamics from scanning doppler Lidar and air quality in the Arve river valley. *Atmosphere*, *9*, 118. <http://www.mdpi.com/2073-4433/9/4/118>
- Sandradewi, J., Prévôt, A.S.H., Szidat, S., Perron, N., Alfarra, M.R., Lanz, V.A., Weingartner, E., Baltensperger, U., 2008a. Using Aerosol Light Absorption Measurements for the Quantitative Determination of Wood Burning and Traffic Emission Contributions to Particulate Matter. *Environmental Science & Technology*. *42*, 3316-3323.
- Sandradewi, J., Prévôt, A.S.H., Weingartner, E., Schmidhauser, R., Gysel, M., Baltensperger, U., 2008b. A study of wood burning and traffic aerosols in an Alpine valley using a multi-wavelength Aethalometer. *Atmospheric Environment*. *42*, 101-112.
- Sandradewi, J., Prévôt, A. S. H., Alfarra, M. R., Szidat, S., Wehrli, M. N., Ruff, M., Weimer, S., Lanz, V. A., Weingartner, E., Perron, N., Caseiro, A., Kasper-Giebl, A., Puxbaum, H., Wacker, L. and Baltensperger, U.: Comparison of several wood smoke markers and source apportionment methods for wood burning particulate mass, *Atmos. Chem. Phys. Discuss.*, *8*(2), 8091–8118, doi:10.5194/acpd-8-8091-2008, 2008c
- Schneider, J., Kirchner, U., Borrmann, S., Vogt, R. and Scheer, V.: In situ measurements of particle number concentration, chemically resolved size distributions and black carbon content of traffic-related emissions on German motorways, rural roads and in city traffic, *Atmos. Environ.*, *42*, 4257–4268, doi:10.1016/j.atmosenv.2008.01.014, 2008.
- Silcox, G., Kelly, K., Crosman, E., Whiteman, C. D., Allen, B. L., 2012. Wintertime PM_{2.5} concentrations during persistent, multi-day cold-air pools in a mountain valley. *Atmospheric Environment*, *46*, 17-24.
- Subramaniam, R., Donahue, N., Bernardo-Briker, A., Rogge, W., Robinson, A., 2006. Contribution of motor vehicle emissions to organic carbon and fine particle mass in Pittsburgh, Pennsylvania: Effects of varying source profiles and seasonal trends in ambient marker concentrations. *Atmospheric Environment*, *40*, 8002-8019.
- Subramanian, R., Kok, G., Baumgardner, D., Clarke, A., Shinozuka, Y., Campos, T., Heizer, C.G., Stephens, B.B., de Foy, B., Voss, P.B., Zaveri, R., 2010. Black carbon over Mexico: the effect of atmospheric transport on mixing state, mass absorption cross-section, and BC/CO ratios. *Atmos. Chem. Phys.*, *10*, 219-237.
- Szidat, S., Jenk, T., Synal, H.-A., Kalberer, M., Wacker, L., Hajdas, I., Kasper-Giebl, A., Baltensperger, U., 2006. Contributions of fossil fuel, biomass-burning, and biogenic emissions to carbonaceous aerosols in Zurich as traced by ¹⁴C. *Journal of Geophysical Research: Atmospheres*, *111*.
- Tiwari, S., Srivastava, A., Bisht, D., Parmita, P., Srivasta, M., Attri, S., 2013. Diurnal and seasonal variations of black carbon and PM_{2.5} over New Delhi, India: Influence of meteorology. *Atmos. Res.*, *125-126*, 50-62.
- Viana, M., Kuhlbusch, T.A.J., Querol, X., Alastuey, A., Harrison, R.M., Hopke, P.K., Winiwarter, W., Vallius, M., Szidat, S., Prévôt, A.S.H., Hueglin, C., Bloemen, H., Wählin, P., Vecchi, R., Miranda, A.I., Kasper-Giebl, A., Maenhaut, W., Hitznerberger, R., 2008. Source apportionment of particulate matter in Europe: A review of methods and results. *Journal of Aerosol Science*. *39*, 827-849.
- Wang, Y.-F., Huang, K.-L., Li, C.-T., Mi, H.-H., Luo, J.-H., Tsai, P.-J., 2003. Emissions of fuel metals content from a diesel vehicle engine. *Atmospheric Environment*. *37*, 4637-4643.
- Ward, J., 1963. Hierarchical grouping to optimize an objective function. *Journal of the American Statistical Association*, *58* (301), 236-244.
- Watson, J., Judith, C., Anthony, C., 2005. Summary of organic and elemental carbon/Black carbon analysis methods and intercomparisons. *Aerosol and Air Quality Research*, *5*, 65-102.
- Whiteman, C., Zhong, S., Shaw, W., Hubbe, J. M., Bian, X., 2001. Cold Pools in the Columbia Basin. *Weather and Forecasting*, *16*, 432-447.
- Zanatta, M., 2016. The black carbon in european atmosphere: identification, transfert, deposition and impacts. *Thèse de l'Université Grenoble-Alpes*, 192 p.



- Zanatta, M., Gysel, M., Bukowiecki, N., Müller, T., Weingartner, E., Areskoug, H., Fiebig, M., Yttri, K.E., Mikalopoulou, N., Wiedensohler, A., Alastuey, A., Pandolfi, M., Sellegri, K., Swietlicki, E., Jaffrezo, J.L., Baltensperger, U., Laj, P., 2016. A European aerosol phenomenology-5: Climatology of black carbon properties at 9 regional background sites across Europe. *Atmospheric Environment*, 145, 346-364.
- Zhang, Q., Alfarra, M.R., Worsnop, D.R., Allan, J.D., Coe, H., Canagaratna, M.R., Jimenez, J.L., 2005. Deconvolution and Quantification of Hydrocarbon-like and Oxygenated Organic Aerosols Based on Aerosol Mass Spectrometry. *Environ. Sci. Technol.* 39, 4938-4952.
- Zhang, Q., and 32 authors, 2007. Ubiquity and dominance of oxygenated species in organic aerosols in anthropogenically-influenced Northern Hemisphere midlatitudes. *Geophys. Res. Lett.* 34.

GLOSSAIRE

Composés chimiques :

PM₁₀ (Particule Matter)	Particules atmosphériques de moins de 10 µm de diamètre aérodynamique. Les PM ₁₀ sont constitués d'eau, de matière carbonée, d'espèces ioniques, de métaux et d'éléments traces dont les proportions varient suivant l'origine des particules, qui peut être naturelle ou anthropique (produit pas les activités humaines).
BC (Black carbon, carbone suie)	Composé constitué principalement d'atomes de carbone polymérisés et présentant peu de fonctions organiques. Il est formé lors de combustions incomplètes de combustibles fossiles ou de biomasse. En fonction de la propriété physico-chimique à partir de laquelle il est mesuré, il est appelé différemment.
EC (Elemental Carbon)	BC analysé par méthode thermo-optique à partir de prélèvement sur filtre, alors que l' <i>eBC (equivalent Black Carbon)</i> correspond au BC mesuré à partir de ses propriétés optiques, par un <i>aethalomètre</i> .
OM (Organic Matter)	Constitue avec le BC, la matière carbonée des PM ₁₀ . Elle est constituée de très nombreux composés organiques (plusieurs milliers). Elle peut être émise directement dans l'atmosphère ou formée secondairement (par réaction de composés gazeux ou particulaires). Les AOS (<i>aérosols organiques secondaires</i>) proviennent en partie de l'oxydation des COV (<i>composés organiques volatils</i>). L'OM ne se quantifie pas directement, mais sa concentration est déduite de celle de l' <i>OC (carbone organique)</i> , qui est la mesure de la quantité des atomes de carbone.
MSA (acide méthanesulfonique)	Composé organique issu de l'oxydation du <i>DMS (diméthylsulfure)</i> qui est un gaz produit entre autre par les algues marines. Ce composé est utilisé pour identifier la fraction provenant de sources biogéniques (i.e. de la végétation) dans les PM ₁₀ .
HAP (hydrocarbures aromatiques polycycliques)	Famille chimique comprenant de nombreux composés organiques issus des combustions de la matière organique (tout type de biomasse et de combustibles fossiles). Le Benzo a pyrène est le seul HAP dont les concentrations font l'objet d'une valeur cible en atmosphère ambiante. Dans ce rapport sont nommés HAP soufrés des composés de la famille des hydrocarbures aromatiques polycycliques mais présentant un atome de Soufre dans leur structure chimique. Ces composés sont des marqueurs de certaines activités industrielles dont l'industrie du graphite.
Métaux	Le <i>Co (cobalt)</i> , <i>Fe (fer)</i> , <i>Mn (manganèse)</i> , <i>Sr (strontium)</i> , <i>Ti (titane)</i> sont des indicateurs de la source terrigène (émissions provenant du sol), tandis que le <i>Cd (cadmium)</i> , <i>Cu (cuivre)</i> , <i>Pb (plomb)</i> , <i>Zn (zinc)</i> sont utilisés comme indicateurs de sources industrielles. L'usure des freins et plaquettes dans les transports routiers, ainsi que les émissions de carburants, d'huile moteur, ou de fuel lourds émettent également certains métaux, comme le <i>Ba (baryum)</i> , <i>Ni (nickel)</i> , <i>Zr (zirconium)</i> , <i>V (vanadium)</i> .
Ions	Le <i>sulfate (SO₄²⁻)</i> , le <i>nitrate (NO₃⁻)</i> et l' <i>ammonium (NH₄⁺)</i> sont les ions majoritaires en masse dans la constitution des PM, et sont principale formés secondairement dans l'atmosphère à partir des espèces gazeuses (SO ₂ , NO _x , NH ₃). Le <i>potassium (K⁺)</i> peut être un indicateur de la source de combustion de la biomasse. Le <i>clore (Cl⁻)</i> , le <i>sodium (Na⁺)</i> , le <i>magnésium (Mg²⁺)</i> sont des marqueurs de sels marins ou de sels routiers, tandis que le <i>calcium (Ca²⁺)</i> est un composé prédominant de la croûte terrestre.
Autres marqueurs organiques d'intérêt pour la compréhension de la chimie, des propriétés et des sources des PM atmosphériques : le lévoglucosan et les méthoxyphénols sont des composés spécifiques émis par la combustion de la biomasse ; les hopanes sont présents dans le pétrole et sont associés aux combustions fossiles (notamment le trafic routier).	

**Instrumentation et méthodes d'analyse :**

Aethalomètre	(provient du grec αιθάλη « suie »). Appareil mesurant l'atténuation de la lumière due au dépôt de particules atmosphériques sur un filtre. Les mesures se font à 7 longueurs d'ondes spécifiques, permettant de quantifier les concentrations de eBC via la loi de Beer-Lambert et de distinguer la fraction de eBC provenant de la combustion de la biomasse, BC _{wb} , de celle issue des combustions fossiles, BC _{ff} . Cette distinction est faite grâce à une absorption plus forte de BC _{ff} dans l'UV en raison d'une plus grande proportion de noyaux aromatiques produits aux températures de combustion plus faibles.
LIDAR (« light detection and ranging »)	Instrument de télédétection analysant les propriétés d'un faisceau de lumière réceptionnée, qu'il a précédemment émis. De nombreux paramètres peuvent être mesurés par cette technique de mesure, comme la distance d'un objet, la concentration de gaz ou particules, ou la vitesse du vent.
Mesures du Radiocarbone	La mesure de l'isotope ¹⁴ C permet de distinguer la fraction carbonée issue de la combustion de la biomasse de celle issue des combustions fossiles. Les plantes ayant poussé récemment, ayant absorbé le carbone contenu dans l'atmosphère durant leur vie, présentent des taux similaires de ¹⁴ C à ceux l'atmosphère. Les combustibles fossiles, formés à partir d'organismes vivants, mais ayant passé des millions d'années sous terre, présentent quant-à-eux, des quasi nuls de ¹⁴ C dus à la décroissance radioactive de cet élément. A partir de ces analyses et des mesures de concentrations d'OC et de BC _{wb} réalisés par ailleurs, il est possible de quantifier le carbone organique provenant de la source de la biomasse, OC _{wb} , de celui des autres sources OC _{autres} .
PMF (Positive Matrix Factorization)	Modèle mathématique dit « récepteur » développé par l'US-EPA (Environmental Protection Agency). Il permet d'identifier et d'estimer les contributions des différentes sources d'émission de PM à partir de l'évolution temporelle des concentrations des traceurs et indicateurs de sources, mesurées sur un site dit « récepteur » et représentant une base données suffisamment grande.
Potentiel Oxydant des particules	Capacité des particules à induire la formation d'espèces oxydantes. Cette mesure intègre des propriétés des PM (taille, composition chimique, surface active...) reliées au stress oxydant (dommages causés par des radicaux libres) qu'elles peuvent générer dans le système respiratoire.

Emissions issues du chauffage au bois résidentiel

Inventaire d'émissions	Bilan qualitatif et quantitatif des émissions rejetées dans l'atmosphère sur une zone déterminée durant une période définie. Les émissions provenant du chauffage au bois résidentiel sont généralement estimées à l'échelle communale et annuelle à partir des quantités de bois consommées et de facteurs d'émissions.
Simulation de Monte-Carlo	Méthode d'estimation d'une quantité numérique qui utilise des nombres aléatoires. Par exemple, si les facteurs d'émissions sont variables, les émissions peuvent être estimées par la moyenne d'un grand nombre d'itérations au cours desquelles un facteur d'émission est choisi aléatoirement selon une loi de probabilité définie.
Effet rebond	Se dit du phénomène dans le cadre de la transition énergétique où les économies de ressources initialement prévues par l'utilisation d'une nouvelle technologie sont en partie compensées à la suite d'une adaptation des comportements des utilisateurs. Par exemple, dans le cas du renouvellement des appareils de chauffage au bois, on peut parler d'effet rebond si le nouvel appareil de chauffage au bois est utilisé davantage que l'ancien appareil.
PCI (Pouvoir Calorifique Inférieur)	Quantité de chaleur dégagée par la combustion complète de l'unité de masse du combustible, avec l'eau produite restant à l'état de vapeur. Le PCI du bois est fortement influencé par l'humidité du combustible mais également par d'autres paramètres comme l'essence du bois ou la présence d'écorce.

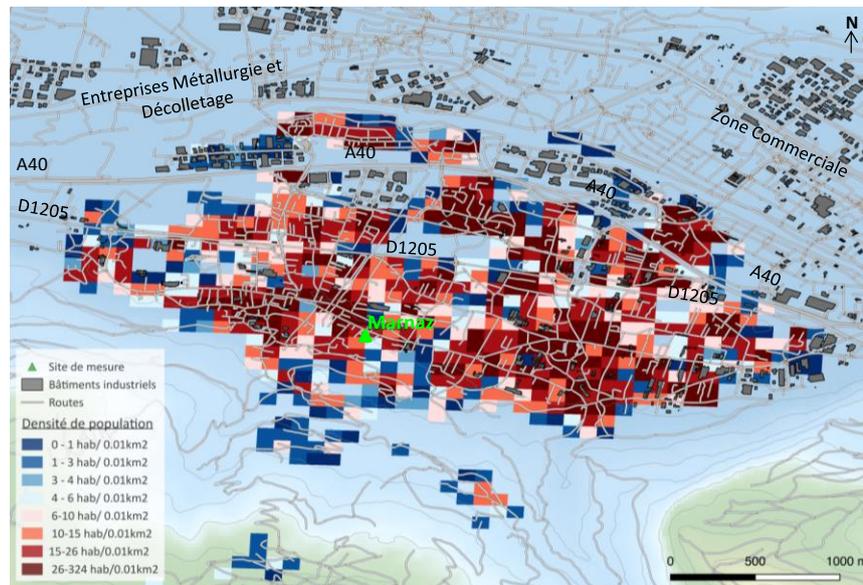
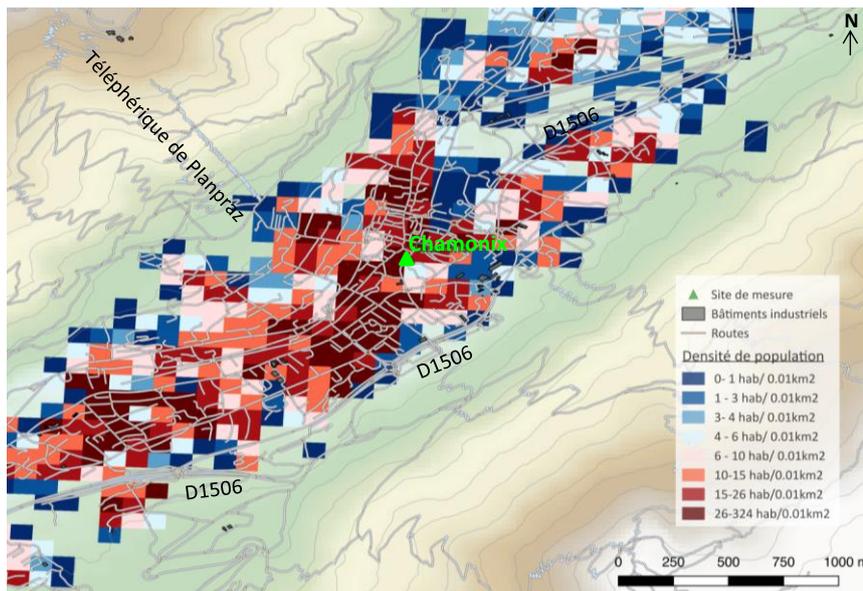
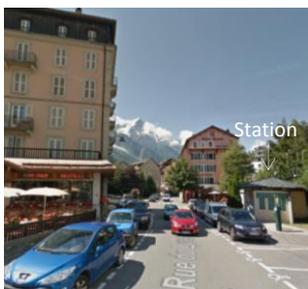
DJU (Degré Jour Unifié)	Différence entre la température extérieure et une température de référence qui permet de réaliser des estimations de consommations d'énergie thermique pour maintenir un bâtiment confortable en proportion de la rigueur de l'hiver.
CC	Communauté de communes.



ANNEXE

Annexe 1 : Environnement proche des sites de mesure

Différentes infrastructures pouvant être source d'émissions particulières impactant les sites de mesures DECOMBIO ont été représentées sur les figures ci-dessous. La densité de population est l'indicateur le plus précis actuellement pour évaluer la source de combustion de biomasse. Par ailleurs, les cadastres d'émissions de chauffage au bois présentant une résolution inférieure à la commune sont désagrégés selon cet indicateur (Méthodologie des Inventaires d'Emissions, Atmo-AuRA, 2016).



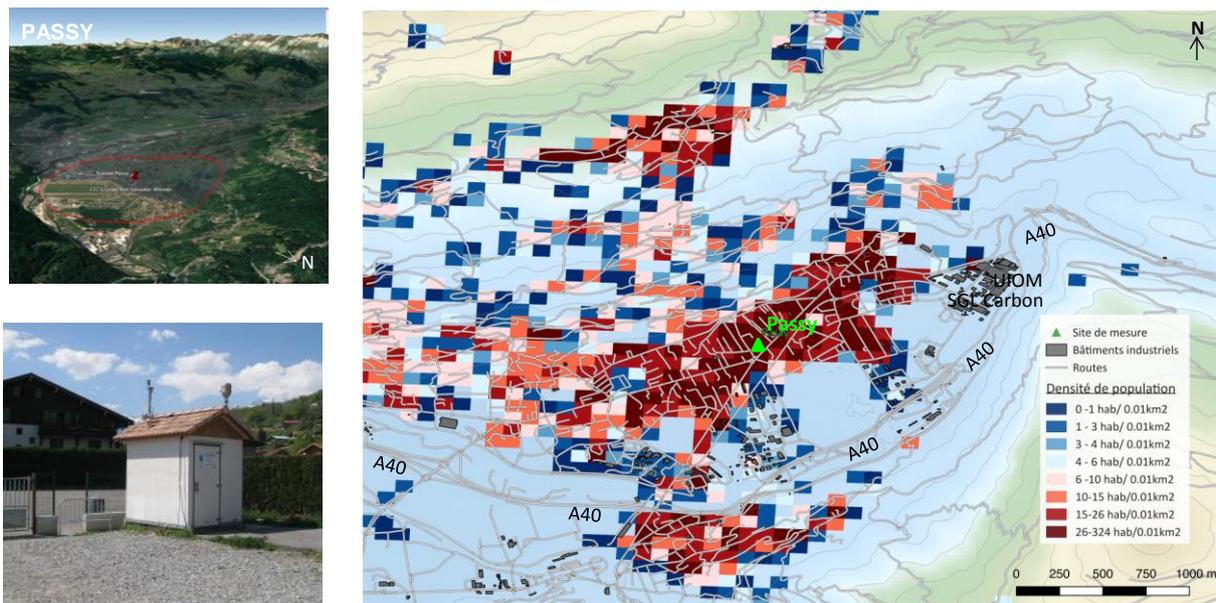


Figure 1-1 : Cartes des densités de population dans les environnements proches des sites de mesures DECOMBIO. Les vignettes à gauche représentent une aire d'influence d'1km autour des stations. La densité de population à une résolution de 100 m a été obtenue en répartissant le nombre des habitants des communes (Source : Insee, 2015) avec la couche SIG des bâtiments résidentiels. Les bâtiments industriels sont représentés en gris foncé, les infrastructures routières en gris clair.

La station de mesure de Marnaz est un camion localisé au fond du parking de l'Eglise de Marnaz. Elle se situe à 1,5km de l'autoroute à vol d'oiseau ainsi qu'à 1,7km de la Z.I. des Valignons. Les entreprises de la vallée de l'Arve sont spécialisées dans la métallurgie et le décolletage. Suivant la méthodologie utilisée, 161 habitants sont dénombrés dans un rayon de 500 m autour de la station.

La station fixe de Passy est située au fond du parking de l'école maternelle de Chedde. La Z.I. du Haut Chedde avec l'implantation de l'entreprise SGL Carbon et de l'UIOM est située à 1,2km à vol d'oiseau de la station. Le Viaduc des Egratz, portion de l'autoroute permettant d'accéder à la vallée de Chamonix est situé à 1,7km de la station. 400 habitants sont dénombrés dans un rayon de 500 m autour de la station.

La station de Chamonix est, quant-à-elle, localisée au pied d'une route donnant sur le centre-ville en face et à côté de restaurants. 91 habitants sont dénombrés dans un rayon de 500 m autour de la station. On note que le nombre d'habitants ne correspond qu'à la population municipale et ne tient pas compte des résidents secondaires.

Annexe 2 : Caractérisation des mesures de température réalisées le long des pentes

1. Caractéristiques des capteurs et du système capteur-mini abri

Sur 36 capteurs composant le dispositif météorologique DECOMBIO de la Vallée de l'Arve, 7 sont des sondes Campbell CS215 (ATMO-aura) et 29 sont des Tinytag installés par l'IGE depuis octobre 2013. Les capteurs sont disposés dans des mini-abris de type Stevenson à ventilation naturelle.



Figure 2-1 : Photographies d'un Tinytag Plus 2, d'une sonde Campbell CS215 et d'un mini-abri de type Stevenson (Source : site Internet Gemini et Campbell).

Avant la mise sur sites, des inter-comparaisons des Tinytags avec une sonde Campbell CS215 (réalisées sur 72h en chambre climatique) ont déterminé une précision de 0,4°C pour les Tinytags et 0,5 °C pour les Campbell CS215 dans le domaine de température compris entre -20 et +30 °C. Les temps de réponse, identiques pour les 2 types de capteurs, sont de 22 minutes à 63 % de la variation totale pour les mesures de température et 27 minutes pour les mesures d'humidité relative. Cela signifie que dans les conditions de la chambre climatique, sans circulation d'air, il faut environ 1h pour que les mesures soient complètement stabilisées lors d'une variation brusque de température. Un biais important sur les mesures d'humidité relative a été observé dès lors que le capteur sature. Les mesures d'humidité relative en conditions réelles ne pourront donc pas être utilisées en valeur absolue.

Une inter-comparaison dans un local non-isolé de 10 Tinytags installés dans leur mini-abri a été utilisée pour analyser les écarts maximaux de température entre 2 capteurs, qui par le nombre de Tinytag de l'inter-comparaison peuvent être assimilés à la précision des capteurs dans leur mini-abri. La majorité des valeurs est située entre 0,5 et 0,9°C. Une modélisation des écarts-maximaux a permis de déduire que les valeurs extrêmes correspondaient aux mesures lors du lever du jour, période journalière où la température varie le plus, pour les journées présentant une forte amplitude thermique ainsi que des températures moyennes élevées. La précision de la température dans les mini-abris est donc estimée à 0,9°C en période hivernale d'après les résultats de cette inter-comparaison. En effet, les abris à ventilation naturelle impactent les mesures de température en cas de rayonnement fort et de vent très faible, l'inter-comparaison ayant été effectuée sans circulation d'air et en période estivale, on peut estimer qu'en conditions réelles la précision est de 0,9°C, qui est l'erreur indiquée par Météo-France pour un capteur avec ce type d'abri pour ces conditions (Leroy, 2002).

A partir de ces résultats de précision et temps de réponse, la fréquence horaire des mesures de températures a été jugée comme la fréquence minimale pouvant être utilisée sans risque de biais de temps de réponse du capteur. La précision du système capteur et mini-abri a été déterminé de 0,9°C. Les mesures d'humidité relative ont été jugées peu fiables.

2. Description des transects de capteurs

Trois réseaux de capteurs ont été installés sur des versants différents choisis pour étudier les structures thermiques des basses couches de l'atmosphère, au droit des sites de mesures choisis pour les mesures chimiques (stations Atmo AuRA). Le choix des versants a été déterminé sur la base de plusieurs critères : dans le cas de vallée encaissée (cas de Passy et Chamonix), le versant ne devait pas être exposé au Nord du fait de l'exposition extrêmement faible au soleil en hiver pouvant entraîner des biais de mesures météorologiques importants. Le deuxième critère est que le versant devait être le

plus près possible de la station de mesures chimiques afin de pouvoir représenter au mieux les caractéristiques de l'atmosphère dans un environnement proche. Enfin, le réseau composé des capteurs devait être le plus vertical possible ainsi que le plus régulier, tout en restant accessible pour les opérations de maintenance.

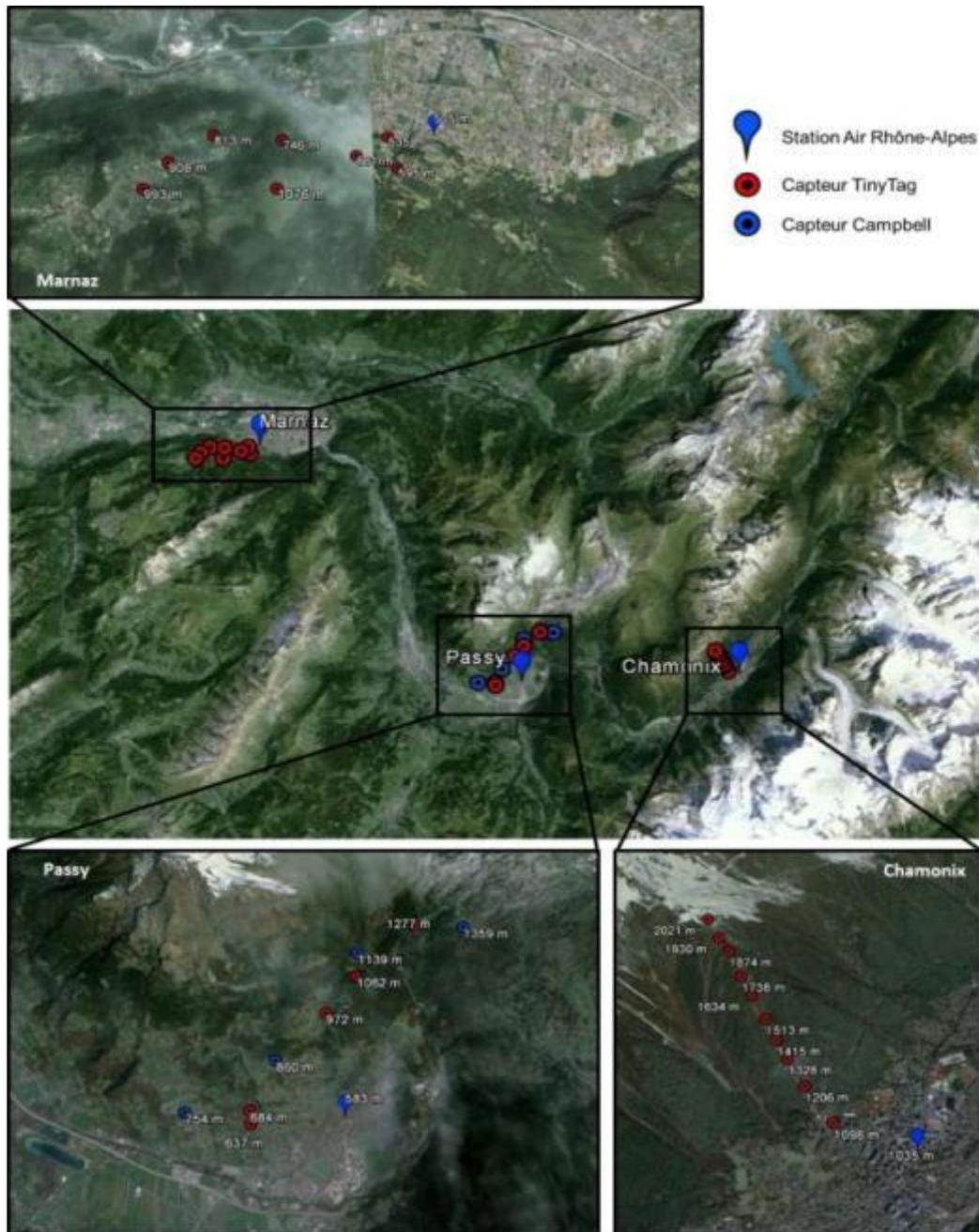


Figure 2-2 : localisation des sites de mesures météorologiques des transects DECOMBIO

Les capteurs Tinytags dans les mini-abris ont été accrochés à environ 4 m du sol sur des piliers en béton, métallique, en bois, ou encore sur des arbres. Les Campbell CS215 d'Atmo AuRA sont situés à 1 m de hauteur du toit des stations de mesures chimiques pour les capteurs les plus bas des trois réseaux, et sur des trépieds à 2 m de hauteur du sol environ pour les capteurs du réseau de Passy. Certains capteurs ont été rajoutés au cours de la campagne pour densifier le réseau au niveau des basses altitudes ainsi que pour pallier le dysfonctionnement des capteurs situés au niveau des stations de mesures chimiques (dont on a pu déterminer qu'ils étaient probablement influencés par les toits des stations). Globalement, la période de fonctionnement des capteurs depuis octobre 2013 à un pas de temps de 15 minutes est supérieure à 86 %.

Les environnements locaux des capteurs présentent des facteurs différents pouvant influencer les mesures de températures et humidité relative : présence d'obstacles comme couverture forestière ou bâtiments, de sources de chaleur comme des structures métalliques ou des routes,... La connaissance de facteurs de terrain ne permet pas d'étudier directement les impacts éventuels sur les mesures de température du fait que ces facteurs ne sont pas tous connus et que la combinaison de ces facteurs et leur évolution au cours du temps est extrêmement difficile à prévoir. Les éventuels impacts de l'environnement des capteurs sur les mesures ont donc été analysés de manière indirecte en comparant certains paramètres thermiques avec ceux qui ont été mesurés dans les Alpes du Nord. Ensuite, l'homogénéité relative des températures entre les capteurs a été testée. Enfin, une comparaison des mesures avec des données de radiosondages pour le transect de Passy a été effectuée.

3. Analyse des éventuels effets de l'environnement sur les mesures

3-a. Comparaison de paramètres thermiques

Les deux paramètres thermiques étudiés dans les Alpes du Nord et pouvant être comparés sont (i) les gradients thermiques annuels et saisonniers et (ii) l'heure de décalage des mesures de températures entre les capteurs le long d'un transect. Le gradient altimétrique moyen annuel dans les Alpes a été déterminé par plusieurs études : de $-0,54$ à $-0,58^{\circ}\text{C}/100\text{m}$ (Roland, 2003), $-0,55^{\circ}\text{C}$ à $-0,60^{\circ}\text{C}$ (Lhotellier, 2005 ; Gottardi, 2009). Lhotellier (2005), avec les mesures de 168 stations de Météo-France sur le domaine des Alpes, a montré qu'en été, la loi commune énonçant que la température décroît avec l'altitude était vérifiée à l'exception de quelques minima en travaillant sur les températures moyennes, minimales et maximales journalières.

Dans nos séries de mesures, on note d'excellents coefficients de corrélation entre température et altitude, avec des R de 0,96 en été et 0,87 en hiver (cf figure 2-3a), ce qui concorde avec les résultats des différentes études. Cela conduit à des gradients annuels de $-0,61^{\circ}\text{C}/100\text{m}$ et $-0,50^{\circ}\text{C}/100\text{m}$, à Passy et Marnaz respectivement, ce qui est légèrement supérieur et inférieur, respectivement, aux valeurs mentionnées précédemment. Aussi, tandis que l'observation d'une inversion thermique en période hivernale est une situation très courante en montagne, une persistance des inversions en période estivale n'a jamais été montrée, alors qu'on la note dans nos mesures (cf figure 2-3b). La position sur le toit des 1^{ers} capteurs a été mise en cause et une analyse à partir de capteurs placés à 3 m du sol et sur le toit a montré qu'en effet, une part de cette température moyenne faible provient de la position sur le toit de ces capteurs.

L'effet de l'environnement sur les mesures des capteurs a aussi été observé par les discontinuités des profils de Passy et Marnaz avec celui de Chamonix, dont à l'exception du 1^{er} capteur, tous sont situés sur les pylônes d'un téléphérique. L'étude du décalage horaire des mesures le long d'un versant à partir des heures correspondant aux températures minimales et maximales journalières a permis de mettre aussi en avant des effets de l'environnement par les discontinuités des profils. Cependant, les décalages horaires maximaux varient entre 1h30 et 2h30 le long d'un versant ce qui coïncide avec le décalage horaire indiqué dans les travaux de Barth (2012).

L'effet de l'altitude sur les mesures des capteurs a été retrouvé dans sa globalité mais des effets de l'environnement sont observables. L'analyse de l'homogénéité relative des capteurs a pour objectif de vérifier que les mesures d'un capteur sont semblables à, au moins celles d'un autre capteur.

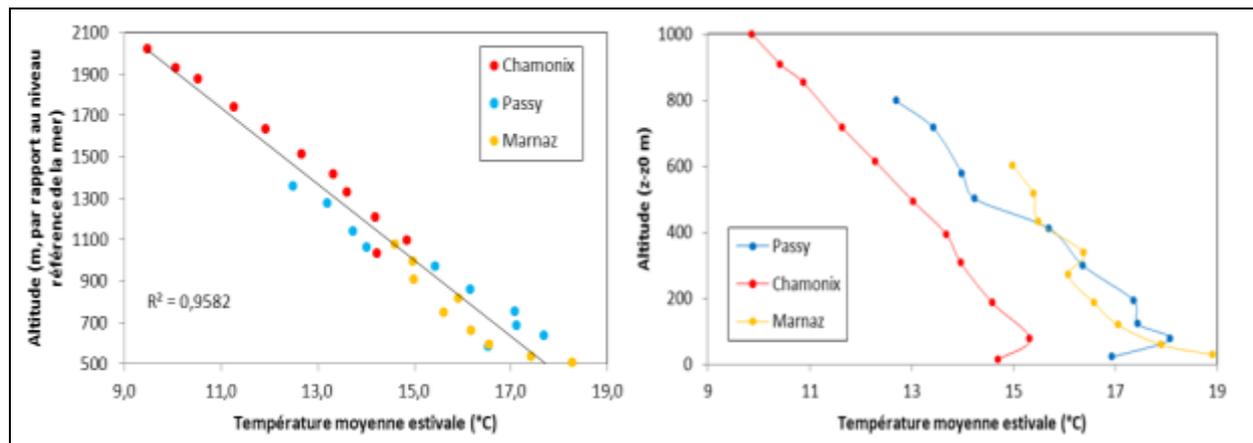


Figure 2-3 : Température moyenne estivale (été 2014) pour les 3 transects en fonction de l'altitude par rapport au niveau de la mer (à gauche) et par rapport à chaque site de fond de vallée (à droite).

3-b. Homogénéité relative des séries de mesures

L'influence de l'environnement peut impacter les mesures de températures à une échelle temporelle de l'ordre de la saison comme à une échelle infra-journalière. Comme décrit par Choissnel (2001), les facteurs correspondant à l'environnement très local seront essentiellement sensibles pour des phénomènes météorologiques à forte évolution diurne. Les mesures de températures ont été décomposées pour obtenir des températures sans la variation journalière et des températures résiduelles correspondant au cycle journalier des températures à partir de l'équation de la moyenne mobile (Cowpertwait, 2006).

La méthode utilisée pour tester l'homogénéité relative des températures est la méthode des doubles cumuls (Lamarque, 1994 ; OMM, 2011) correspondant au tracé du cumul des mesures de températures d'un capteur en fonction de celui provenant d'un autre capteur. Lorsque les séries sont homogènes, on obtient une droite. Les coefficients de corrélation sont très élevés et proches de 1 au sein des profils et entre les capteurs des différents profils pour la température sans variation du cycle diurne. Les coefficients sont plus diversifiés pour la température résiduelle correspondant au cycle diurne des températures. Les mesures de température sont davantage homogènes pour les capteurs situés sur le même transect et à des altitudes très proches. Les coefficients de pente de la régression linéaire des cumuls des températures résiduelles mettent aussi en avant certaines hétérogénéités entre des capteurs pouvant s'expliquer avec des facteurs de terrain connus. Ainsi, les mesures de températures des capteurs sont homogènes au moins à un autre capteur traduisant le fait qu'aucun capteur n'est impacté de manière singulière par les facteurs de son environnement local.

3-c. Comparaison des mesures de température avec les données de radiosondages

La campagne Passy-2015 (Paci et al, 2016) a donné l'opportunité d'aller encore plus loin dans l'analyse des mesures de températures le long des pentes en les comparant à des mesures de températures réalisées verticalement par radiosondages à fine échelle. Une période d'observation intensive s'est déroulée durant un épisode anticyclonique du 06/02/2015 au 14/02/2015, au cours de laquelle 56 lancers de radio sondages ont été effectués à un pas de temps tri-horaire. Du fait de la condition synoptique anticyclonique et de l'augmentation de l'énergie solaire à partir du mois de février, cette période d'observation intensive est représentative des écarts de température les plus importants que nous pourrions observer en période hivernale entre des mesures de températures réalisées verticalement et les mesures de capteurs situés le long des pentes.

Les mesures de températures entre les données de radiosondages et celles des capteurs situés le long des pentes sont très bien corrélées, avec un coefficient de corrélation qui varie entre 0,64 et 0,88 pour chacune des mesures des 10 capteurs du transect de Passy. Les mesures d'humidité relative sont moins bien corrélées à cause du biais lors de la saturation du capteur mis en avant dans l'inter-comparaison des capteurs en chambre climatique. Le coefficient de corrélation pour l'humidité relative varie entre 0,44 et 0,82.

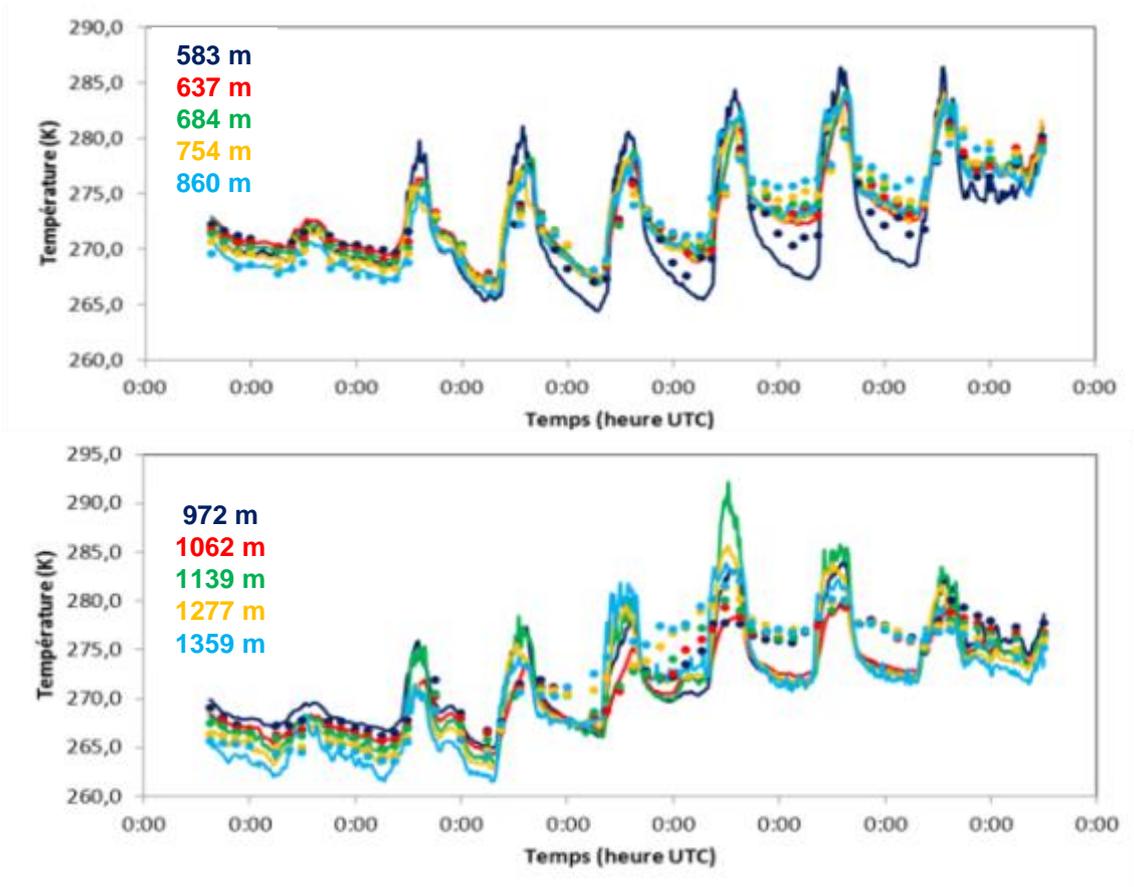


Figure 2-4 : Evolution de la température du 06/02/2015 15 :00 UTC au 14/02/2015 12 :00 UTC provenant des capteurs du transect Passy (CS215 et Tinytag) et des mesures de radiosondage prises à la même altitude représentées par les points.

Bien que les corrélations entre les 2 types de mesures soient fortes, les écarts de température entre une mesure réalisée verticalement et une mesure provenant des capteurs situés le long des pentes peuvent atteindre une valeur de 4°C au moment des heures les plus chaudes de la journée ainsi qu'au moment les plus froides. Ceci peut s'expliquer par les amplitudes thermiques qui sont très différentes entre les mesures de radiosondages et celles provenant des capteurs. Les mesures des capteurs présentent de façon générale des températures plus chaudes lors des heures correspondant aux températures les plus élevées (entre 12h et 15h UTC) par rapport aux mesures de radiosondages et des températures plus froides la nuit, notamment pour les capteurs situés à une altitude élevée. Cette différence d'amplitude thermique peut s'expliquer selon deux facteurs : tout d'abord les capteurs se trouvent toujours situés entre 2 et 3 m du sol quelle que soit l'altitude, les mesures subissent donc l'effet thermique du sol qui induit une amplitude thermique journalière plus élevée que de « l'air libre ». On observe ce phénomène sur les amplitudes thermiques calculées à partir des données de radiosondage, à l'altitude du 1^{er} capteur, l'amplitude thermique est de l'ordre de 10 °C ce qui correspond à la moyenne des amplitudes thermiques des mesures de capteurs. On observe qu'avec l'altitude, les amplitudes thermiques décroissent exponentiellement, ce qui n'est pas observé avec les mesures des capteurs. Ceci s'explique par le 2^{ème} facteur, les amplitudes thermiques des capteurs sont influencées par leur environnement local.

Ainsi, les mesures de températures provenant de capteurs situés le long des pentes coïncident avec des mesures réalisées verticalement en ce qui concerne leur évolution. A une échelle de temps infra-journalière, les amplitudes thermiques différentes des mesures entre les 2 systèmes d'instrumentation conduisent à des écarts de l'ordre de 4°C lors des heures chaudes et il en est de même pour les heures froides pour les capteurs situés à plus haute altitude. L'amplitude thermique, en plus de l'influence de l'effet thermique du sol, subit des impacts des facteurs de l'environnement très local du capteur. Pour éliminer cet effet de l'amplitude thermique sur les capteurs, on peut utiliser les

différences entre mesures de températures pour des capteurs ayant des effets de l'environnement sur leurs mesures de température qui soient homogène. Cette différence de température ΔT permet en effet de ne garder que « l'information des températures correspondant à l'altitude ».

Ainsi, en travaillant avec les différences de mesures de températures entre les capteurs, nous avons accès à une information sur la stabilité atmosphérique, et les mesures en continu nous permettent de suivre son évolution à fine échelle temporelle. En comparant les mesures de ΔT (860-583m, Passy) avec la portée du lidar vent (WLS200S, Leosphere) présent lors de la campagne-Pass-2015, on trouve une bonne corrélation lors des périodes nocturnes. Il existe donc bien un lien entre la hauteur de la couche aérosol et les différences de températures pour les mesures de température du fond de la vallée.

4. Conclusion : intérêts et limites du système de capteur le long des pentes

L'idée première de ce système de capteurs de température le long des pentes était d'investiguer les hauteurs d'inversion. La précision des capteurs dans leurs abris a été évaluée à 0,9°C pour les conditions d'épisodes anticycloniques, c'est-à-dire par vent très faible et fort ensoleillement. La différence de température entre 2 capteurs adjacents (situés à environ 100m de différence d'altitude) est rarement supérieure à la précision des capteurs. L'analyse de l'homogénéité relative des mesures de température ainsi que leur comparaison avec d'autres études effectuées dans les Alpes a mis en avant le fait que les différences qui n'ont pas pu être évitées des micro-environnements des capteurs avaient un impact sur les mesures de température. La qualité de précision des capteurs sous abri couplé à la différence existante des micro-environnements des capteurs induisent des biais sur les profils de température en fonction de l'altitude, ne permettant pas de déterminer une hauteur d'inversion thermique.

Cependant, la comparaison des mesures de température avec celles réalisées par radiosondes à des altitudes correspondantes a permis de montrer que leurs évolutions temporelles correspondaient bien durant un épisode d'inversion thermique. Les écarts de température entre ces 2 types de mesures proviennent du fait que les mesures de température des capteurs sont soumises à l'effet du sol, contrairement à des mesures de températures libres en altitude. La différence de température entre des capteurs, notée ΔT , permet de s'affranchir de cet impact. En prenant les mesures de température d'un capteur situé à un écart d'altitude suffisamment important (> 200 m) du capteur situé en fond de vallée, les mesures de ΔT correspondent à celles déterminées par radiomicromètre ou radiosondage (Passy et al, 2016). Par ailleurs, cette mesure est un indice de la stabilité atmosphérique pour laquelle un lien direct avec les mesures de concentration de PM_{10} au sol a déjà été montré dans les Alpes (Chemel et al, 2016; LARGERON et al, 2016).



Annexe 3 : Analyses chimiques des filtres de PM10

Afin de permettre une spéciation chimique globale de particules atmosphériques ainsi qu'une caractérisation très détaillée de la fraction organique de l'aérosol sur un même échantillon, les filtres prélevés ont été fractionnés en différentes parties à l'aide de poinçonneurs en acier inoxydable de différentes surfaces (de 0,20 cm² à 11,34 cm²). Ces différents poinçons ont ensuite été utilisés pour les différentes analyses :

- la matière carbonée globale
- la fraction ionique
- les métaux et les éléments traces
- les acides organiques et les HULIS
- une large gamme de composés organiques
- le potentiel oxydant
- le carbone 14.

Analyse de la matière carbonée

L'analyse de la matière carbonée (carbone organique (OC) et carbone élémentaire (EC)) se fait par une méthode thermo-optique grâce à un analyseur EC-OC Sunset Lab avec la méthode EUSSAR2. Le but de cet instrument est de séparer la fraction organique et la fraction élémentaire provenant d'un même échantillon. Pour cela, l'appareil mesure la concentration en CH₄, grâce à un détecteur à ionisation de flamme, après combustion, à différents plateaux de température et sous des atmosphères plus ou moins oxydantes, puis réduction de la matière carbonée.

Analyse de la fraction ionique

L'analyse de la fraction ionique se fait en phase aqueuse par chromatographie ionique grâce à un chromatographe Dionex ICS300. La séparation des anions est réalisée sur une colonne Dionex AS11HC et celle des cations sur une colonne Dionex CS16. La quantification s'effectue grâce à un détecteur conductimétrique. Cet appareil permet ainsi la mesure du chlore, du nitrate, du sulfate, de l'oxalate et du MSA (acide méthanesulfonique) pour les anions et du sodium, de l'ammonium, du potassium, du magnésium et du calcium pour les cations.

Analyse des métaux et des éléments traces

Les métaux et les éléments traces sont analysés par spectroscopie de masse à plasma à couplage inductif (ICP-MS) par un laboratoire proposant une prestation d'analyse chimique (Tera Environnement). Cette technique d'analyse permet la détection d'un très grand nombre d'éléments et elle est réalisée après extraction par attaque acide d'une fraction de filtre en four μ onde. Les éléments pouvant ainsi être quantifiés sont les suivants : Al, As, Ba, Ca, Cd, Ce, Co, Cr, Cs, Cu, Fe, K, La, Li, Mg, Mn, Mo, Na, Ni, Pb, Pd, Pt, Rb, Sb, Sc, Se, Sn, Sr, Ti, Tl, V, Zn, Zr.

Analyse des acides organiques et des HULIS

L'analyse des acides organiques se fait en phase aqueuse par HPLC-MS. La séparation des acides est réalisée sur une colonne Phenomenex (Synergi 4u Fusion-RP80A) à polarité mixte. L'ionisation se fait par électronébuliseur (ESI) en mode ionisation négative. Cette technique permet de quantifier un grand nombre d'acides : Glycolic, Glyoxylic, Tartaric, Malic, Lactic, Malonic, Succinic, Hydroxybutyric, Methylmalonic, Fumaric, Kétobutyric, Maleic, Glutaric, Oxoheptanedioic, Citraconic, Methy succinic, Methylglutaric, Adipic, Pimelic, Phtalic, Pinic, Isophtalic, Suberic, Benzoic, Azelaic, Sebacic.

Les HULIS (HUmic Like Sustances) contenus dans la fraction soluble du carbone organique sont, quant à eux, extraits par HPLC couplée à un détecteur UV multi-longueurs d'onde permettant de déterminer la fraction HULIS qui est ensuite collectée et quantifiée grâce à un analyseur DOC.

Analyse des sucres et des polyols

L'analyse de la fraction soluble des sucres et des polyols est réalisée par HPLC équipée de trois colonnes Metrosep (Carb 1 – Guard + A Supp 15 – 150 + Carb 1 – 150) et couplée à un détecteur

ampérométrie pulsé (PAD). Cette technique d'analyse permet la quantification des saccharides anhydres (lévoglucosan, mannosan, galactosan), des polyols (arabitol, sorbitol, mannitol) et du glucose.

Analyse d'autres traceurs organiques

Les composés organiques et solubles sont extraits par extraction solide/liquide grâce à un Accelerated Solvant Extractor (ASE 200 - Dionex). De façon à extraire un maximum de composés organiques, trois cycles d'extraction sont réalisés. Les extraits sont ensuite rassemblés et concentrés grâce à un évaporateur TurboVap II (Zimark) permettant une évaporation du solvant sous flux d'azote jusqu'à un volume de 1 mL. Cet extrait est finalement filtré grâce à un filtre PTFE à 0.2 µm avant d'être analysé. Cet échantillon extrait est analysé de trois manières différentes afin de quantifier différents types de composés : les Hydrocarbures Aromatiques Polycycliques (HAP), les composés apolaires et polaires tels que les alcanes, les hopanes, les HAP méthylés, les HAP soufrés et les composés polaires que sont les méthoxyphénols.

Les HAP sont analysés par HPLC de type Series 200 couplée à un détecteur par fluorescence de type Series 200a (Perkin Elmer). Les composés sont séparés par passage sur une colonne de type phase inverse C₁₈ (NUCLEOSIL 100-5 C₁₈ PAH, 25 cm x 4.6 cm) et élués avec une phase mobile formée d'un mélange méthanol/eau. Cette technique permet la quantification de 16 HAP.

L'analyse des composés apolaires est effectuée par GC Clarus 500 couplé à un spectromètre de masse MS 560 (Perkin Elmer). La quantification se fait par étalonnage interne à l'aide d'une solution de tétracosane-d₅₀ et d'une solution de benzo(a)anthracène-d₁₂. Cette analyse permet l'identification de 64 composés dont les alcanes linéaires et ramifiés (C₁₁ à C₄₀, pristane et phytane), 10 hopanes, des HAP méthylés, des HAP soufrés et le TMPD (6,10,14-triméthyl 2-pentadecanone).

L'analyse des composés polaires se fait par GC HP 6890 couplé à une MS HP 5973 (Agilent Technologies). Cette analyse est précédée d'une dérivatisation de l'échantillon par ajout du N,O-Bis(triméthylsilyl)trifluoroacétamide (BSTFA) et catalysée avec du triméthylchlorosilane (TMCS) en proportion 99 :1 sous agitation pendant 2 heures à 50°C. La quantification est, comme précédemment, réalisée par étalonnage interne à l'aide d'une solution de guaiacol-d₄. Cette analyse permet l'identification de 13 méthoxyphénols et du cholestérol.



Annexe 4 : Comparaison des concentrations mesurées dans la vallée de l'Arve avec celles d'autres sites en France

Cette annexe présente les moyennes saisonnières de concentrations d'un grand nombre d'espèces chimiques mesurées pendant la première année du programme DECOMBIO, en parallèle avec les mêmes résultats obtenus dans le cadre de programmes récents menés sur le territoire national. Cette compilation a été réalisée dans le cadre du programme ADEME SOURCES, mené en collaboration entre l'INERIS et l'IGE. C'est la première fois qu'est rassemblée une telle base de données, obtenues de façon homogène, et elle permet de comparer de façon statistiquement valide les concentrations de très nombreuses espèces chimiques, pour lesquelles nous ne disposons que de très peu d'information. Au-delà de cette synthèse, l'objectif du programme SOURCES était aussi de réaliser des analyses PMF de quantification des sources d'émissions de PM, avec une méthodologie standardisée.

L'ensemble de ces résultats ne sera ni commenté ni discuté dans ce cadre de cette annexe du rapport DECOMBIO. Le lecteur intéressé pourra se reporter aux rapports LCSQA qui ont été édités à ce sujet :

- <https://www.lcsqa.org/rapport/2016/ineris/programmes-recherche-experimentaux-etude-sources-pm-air-ambiant>
- <https://www.lcsqa.org/rapport/2016/ineris/traitement-harmonise-jeux-donnees-multi-sites-etude-sources-pm-positive-matrix-f>

ainsi qu'au rapport ADEME (en cours de validation) et aux articles scientifiques (en cours de rédaction).

Tableau 3 : Récapitulatif d'études nationales conduites au cours des 6 dernières années sur différents typologies de sites dans différents programmes de qualité de l'air. Récapitulatif réalisé dans le cadre du programme SOURCE financé par l'ADEME et piloté par O Favez (INERIS). Cette synthèse a été préparée par Dalia Salameh (postdoc à l'IGE).

Site de mesure	Typologie	Période	N échantillons	Fraction PM	Programme	Coordinateurs†
Talence	urbain	02/02/2012 au 07/04/2013	159	PM10	CARA	INERIS, OF
Lyon	urbain	03/01/2012 au 31/12/2012	122	PM10	CARA	INERIS, OF
Poitiers	urbain	16/11/2014 au 29/12/2015	133	PM10	CARA	INERIS, OF
Nice	urbain	04/06/2014 au 29/06/2016	197	PM10	3 VILLES	IGE, JLJ
Marseille	urbain	01/06/2014 au 27/06/2016	203	PM10	3 VILLES	IGE, JLJ
Port de Bouc	urbain	01/06/2014 au 27/06/2016	191	PM10	3 VILLES	IGE, JLJ
Aix en Provence	urbain	18/07/2013 au 13/07/2014	120	PM10	PART'AERA	IGE, JLJ
Nogent	urbain	02/01/2013 au 02/06/2014	158	PM10	CARA	INERIS, OF
Rouen	urbain	02/01/2013 au 01/06/2014	168	PM10	CARA	INERIS, OF
Lens	urbain	02/01/2013 au 01/06/2014	169	PM10	CARA	INERIS, OF
Grenoble les Frênes	urbain	02/01/2013 au 29/12/2014	242	PM10	CARA	INERIS, OF
Roubaix	trafic	20/01/2013 au 26/05/2014	159	PM10	CARA	INERIS, OF
Strasbourg	trafic	02/04/2013 au 08/04/2014	92	PM10	CARA	INERIS, OF
Passy	vallées alpines	02/11/2013 au 31/10/2014	242	PM10	DECOMBIO	IGE, JLJ
Marnaz	vallées alpines	02/11/2013 au 31/10/2014	117	PM10	DECOMBIO	IGE, JLJ
Chamonix	vallées alpines	02/11/2013 au 31/10/2014	120	PM10	DECOMBIO	IGE, JLJ
Revin	rural	02/01/2013 au 01/06/2014	168	PM10	CARA	INERIS, OF
OPE ANDRA	rural	10/01/2012 au 28/12/2015	191	PM10	ANDRA	IGE, JLJ
Peyrusse Vieille	rural	10/01/2011 au 26/12/2013	155	PM2.5	CAMERA	IGE, JLJ
Revin	rural	10/01/2011 au 26/12/2013	166	PM2.5	CAMERA	IGE, JLJ
OPE ANDRA	rural	02/01/2012 au 29/12/2015	220	PM2.5	ANDRA	IGE, JLJ

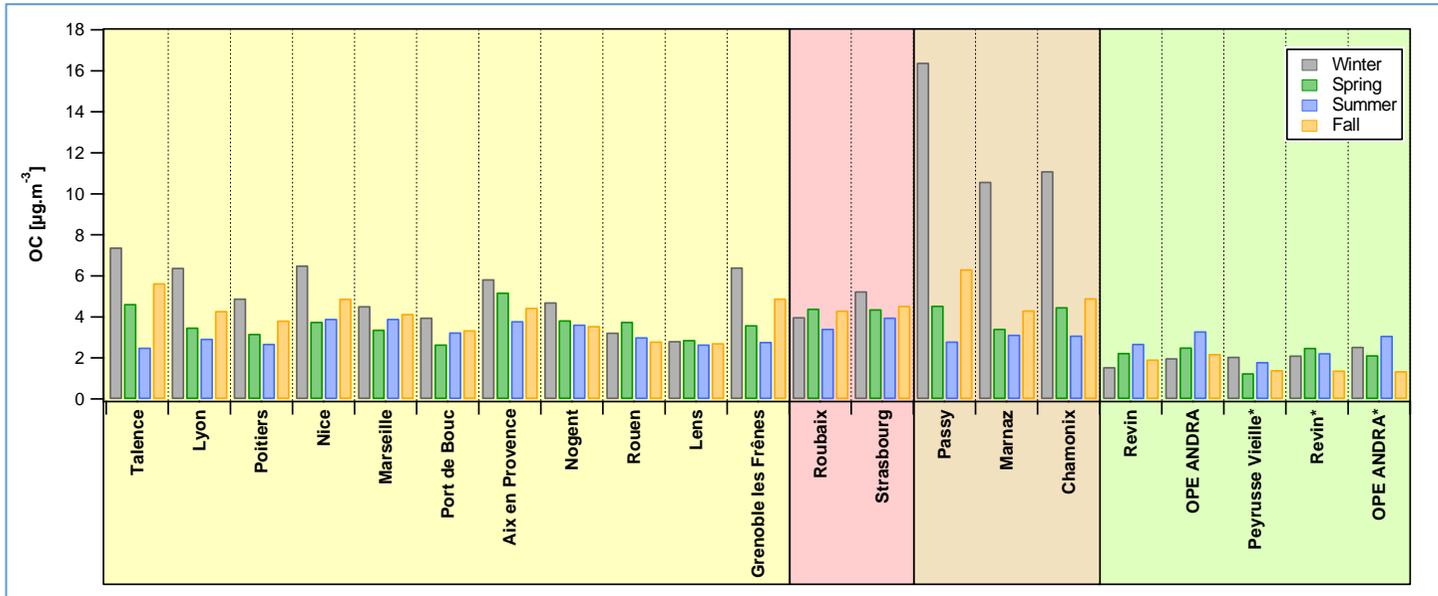
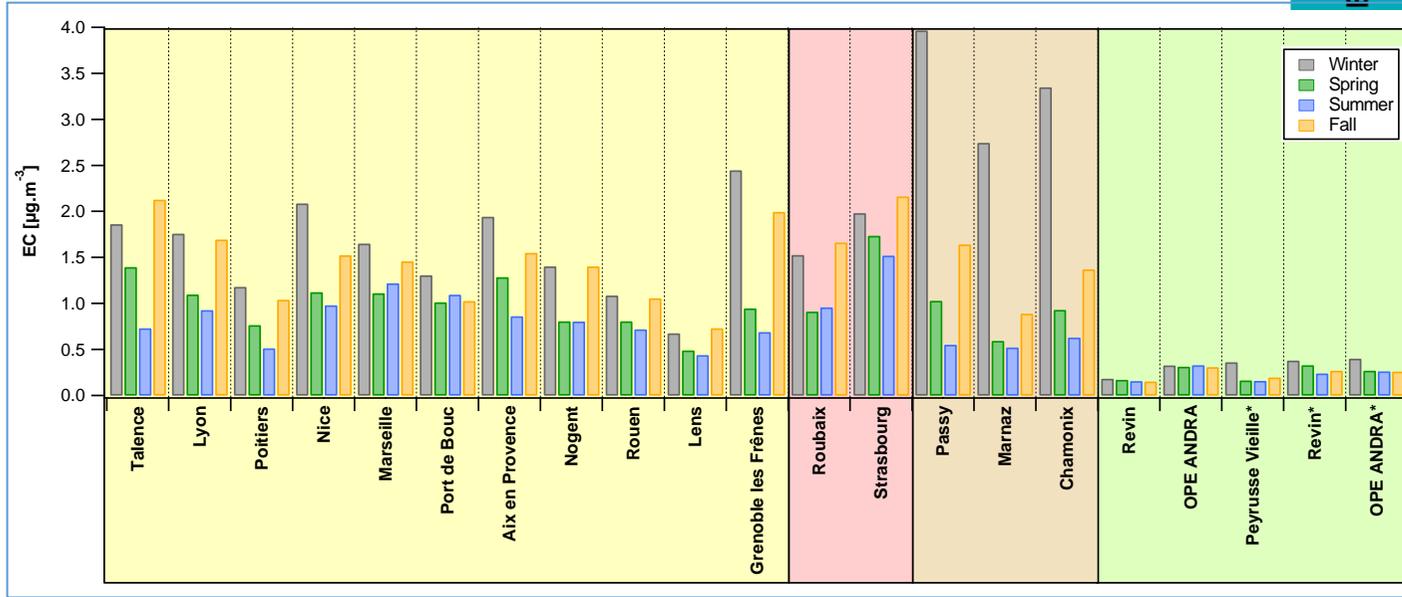
† **Contacts** : OF: Olivier.FAVEZ@ineris.fr ; JLJ: Jean-Luc.Jaffrezo@univ-grenoble-alpes.fr

Tous ces programmes ont été réalisés en collaboration étroite avec les AASQA concernées, et avec l'ANDRA pour le site OPE.

Les auteurs souhaitent remercier chaleureusement ces partenaires indispensables

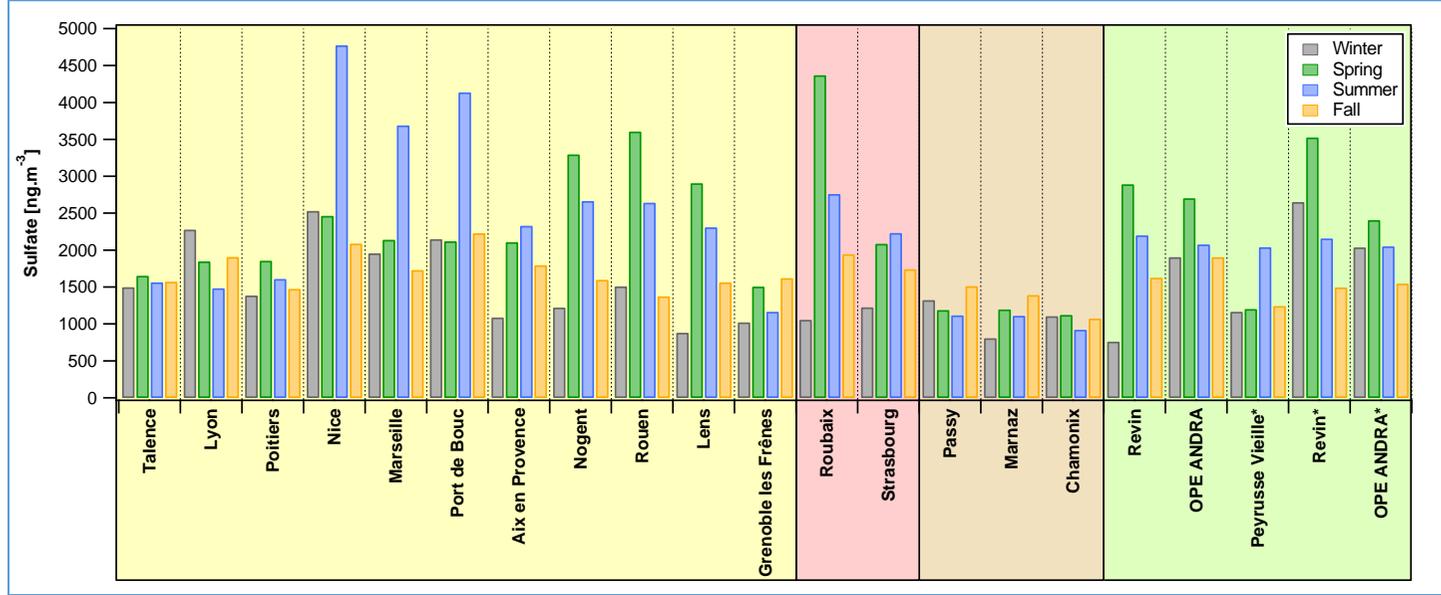
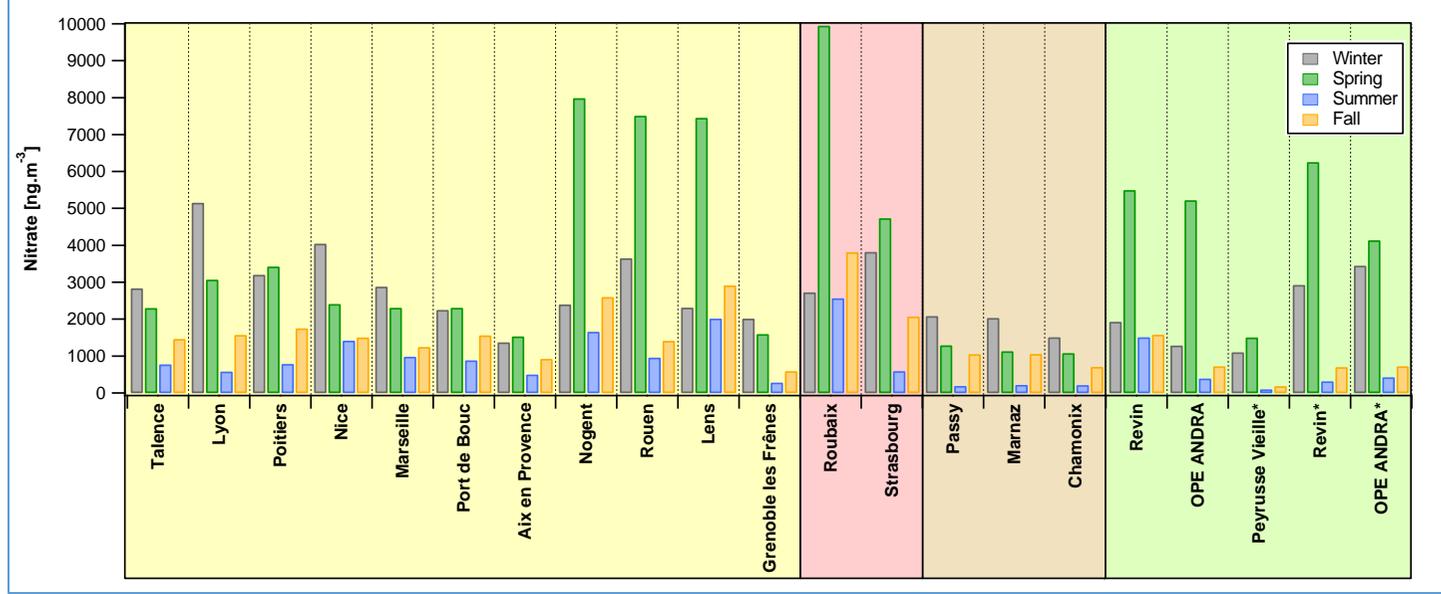


ES



Variabilités saisonnières et spatiales des concentrations moyennes en EC et en OC (µg.m⁻³) déterminées sur 19 sites français de typologies différentes.

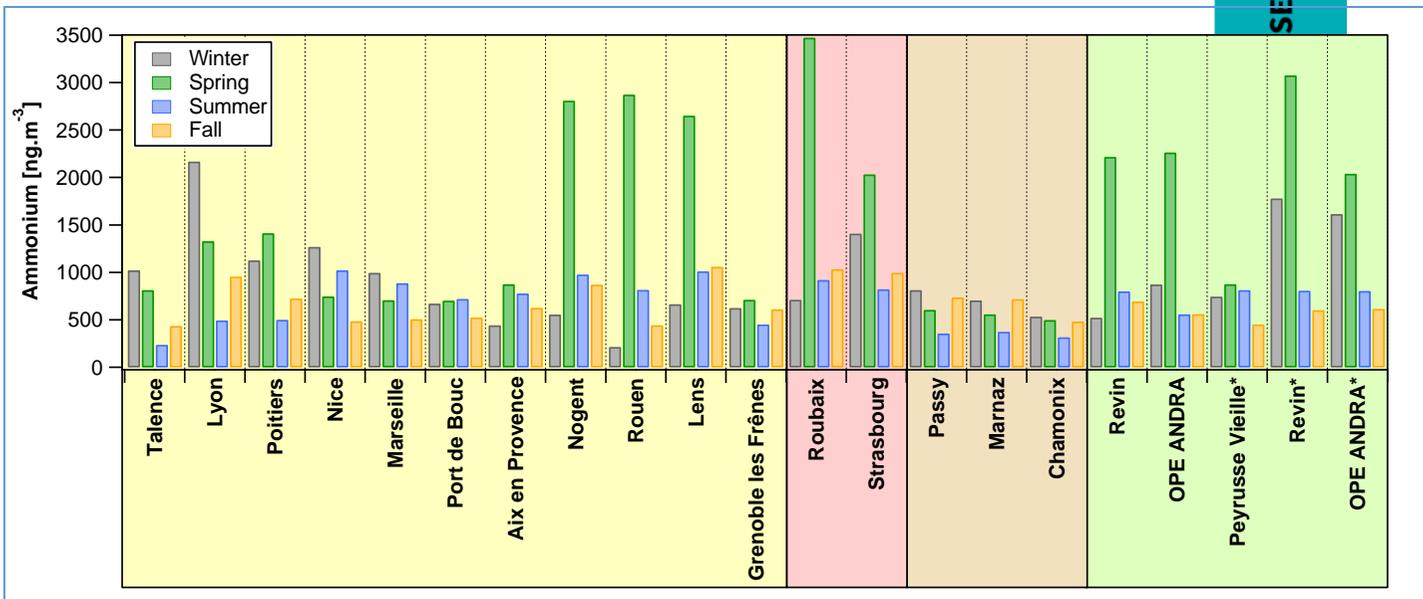
Les sites urbains de fond sont présentés dans la zone en orange ; les sites de proximité routière sont présentés dans la zone rose ; les sites de vallée alpine sont présentés dans la zone marron ; les sites ruraux de fond sont présentés dans la zone verte.



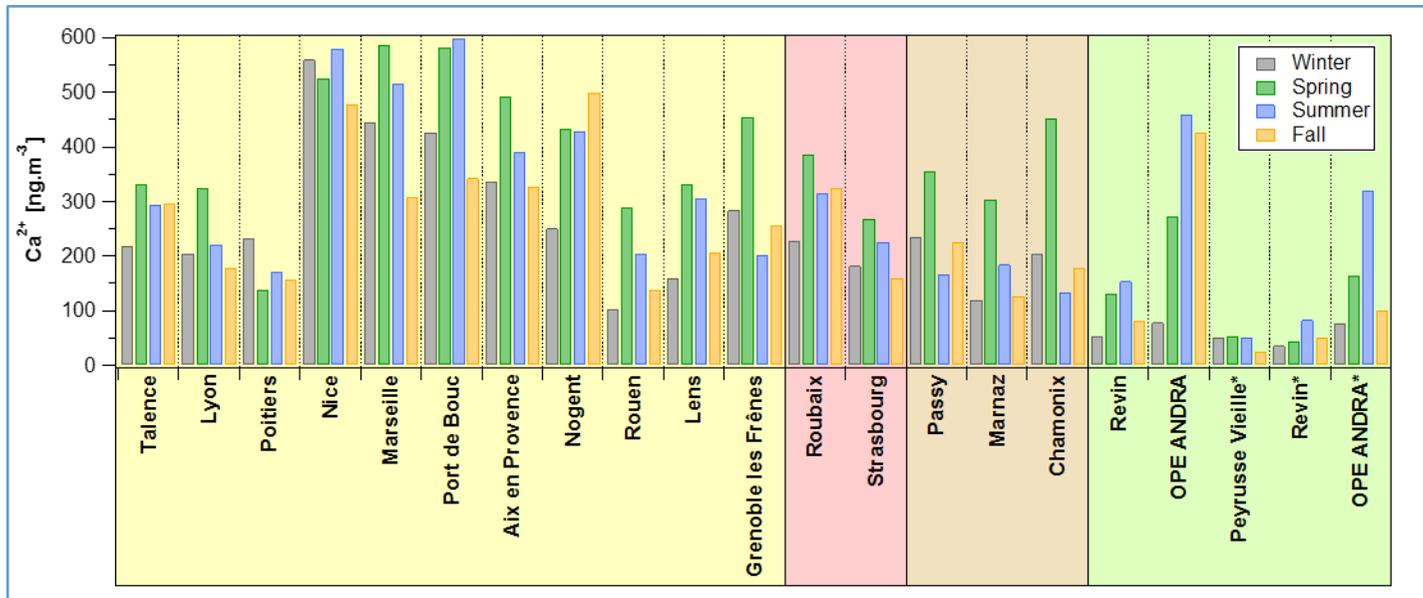
Variabilités saisonnières et spatiales des concentrations moyennes en nitrate (NO₃⁻) et en sulfate (SO₄²⁻) (en ng.m⁻³) déterminées sur 19 sites français de typologies différentes

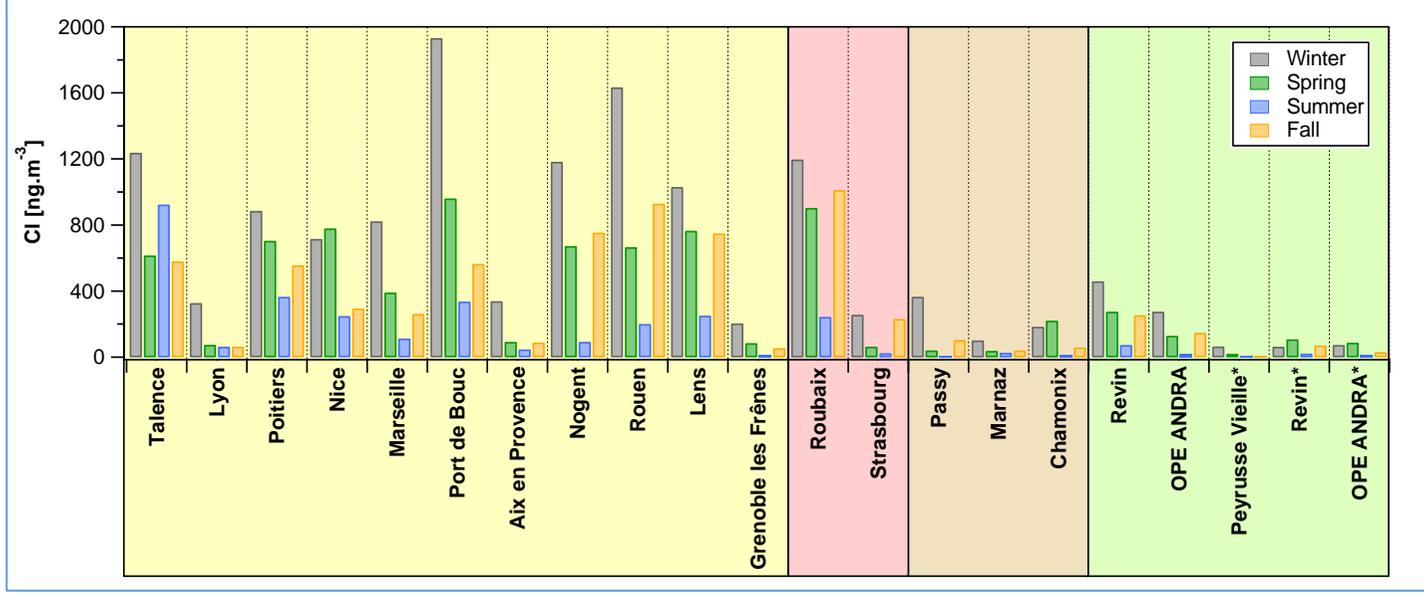


SIS

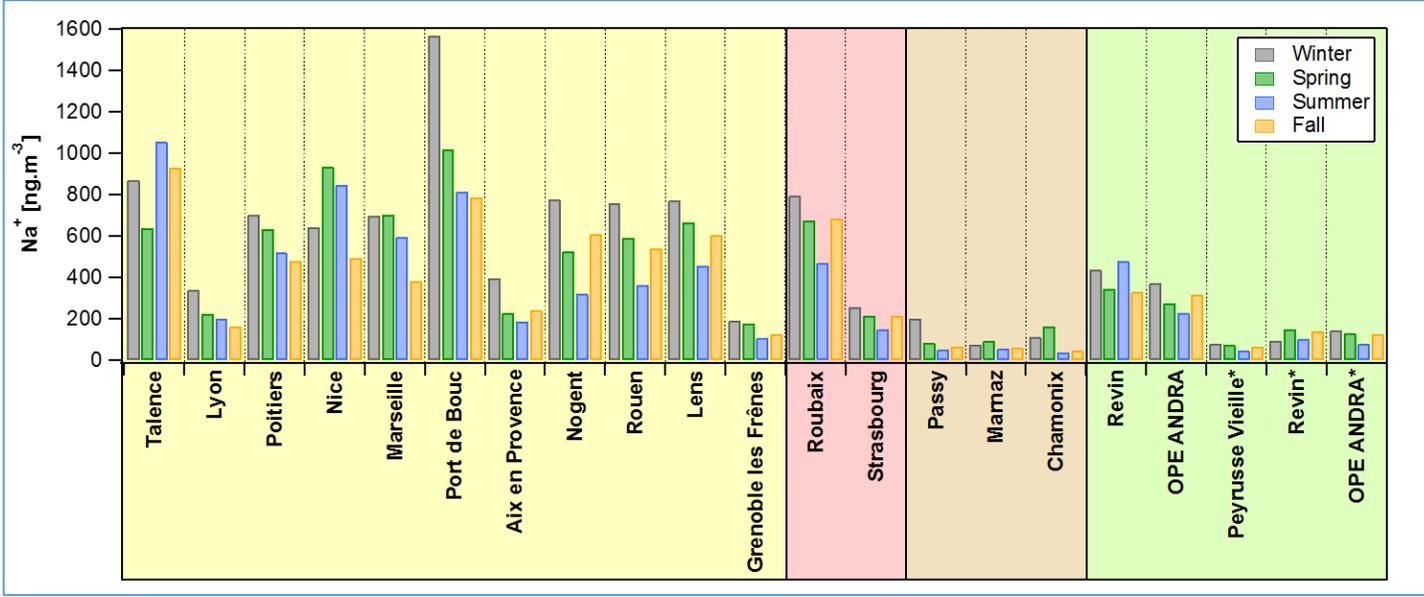


Variabilités saisonnières et spatiales des concentrations moyennes en ammonium et calcium (en ng.m^{-3}) déterminées sur 19 sites français de typologies différentes



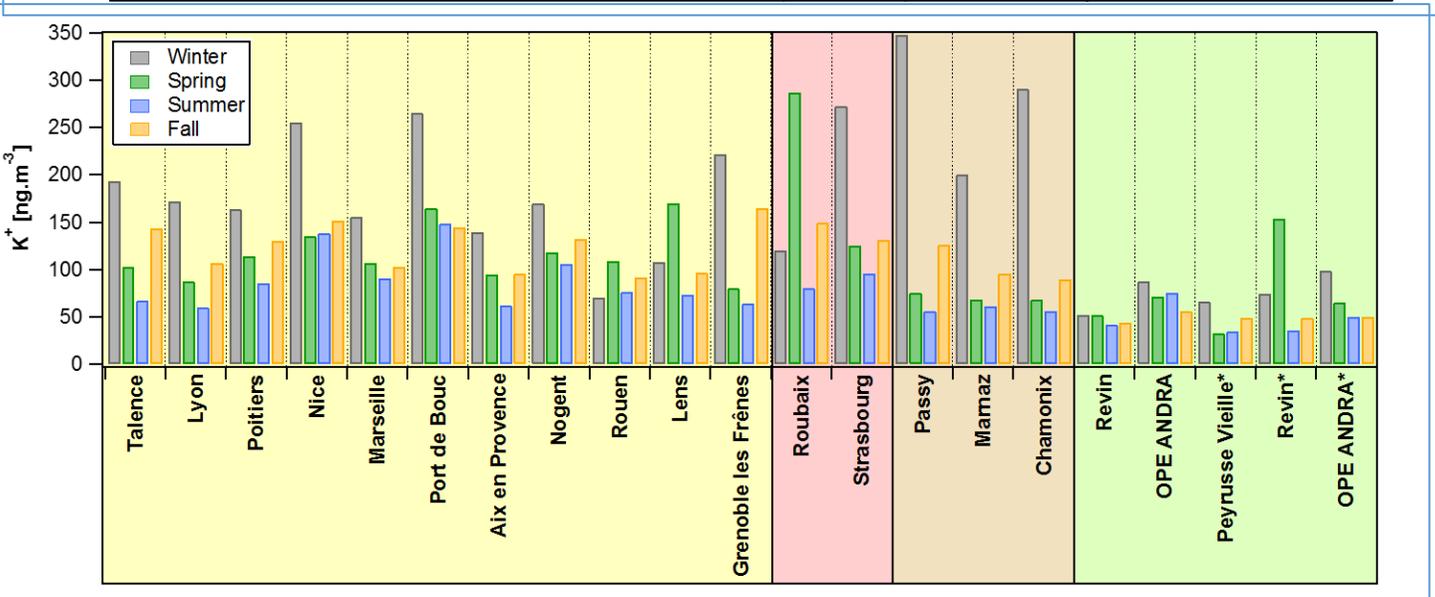
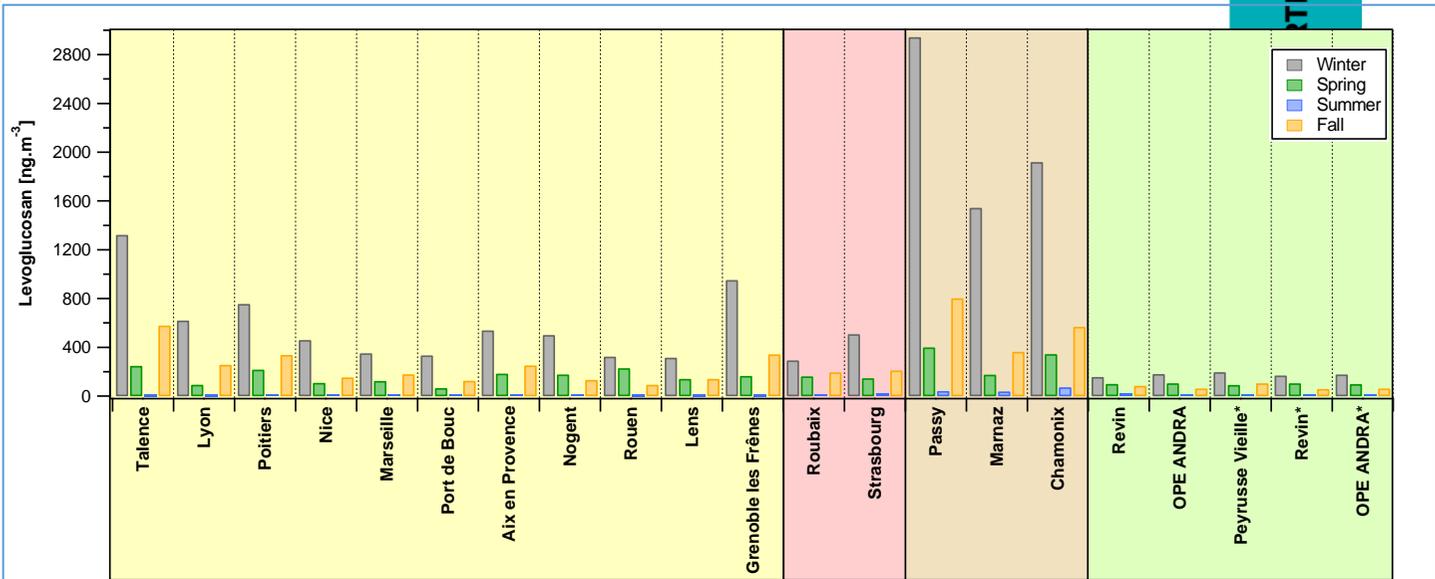


Variabilités saisonnières et spatiales des concentrations moyennes en chlorure et sodium (en ng.m⁻³) déterminées sur 19 sites français de typologies différentes

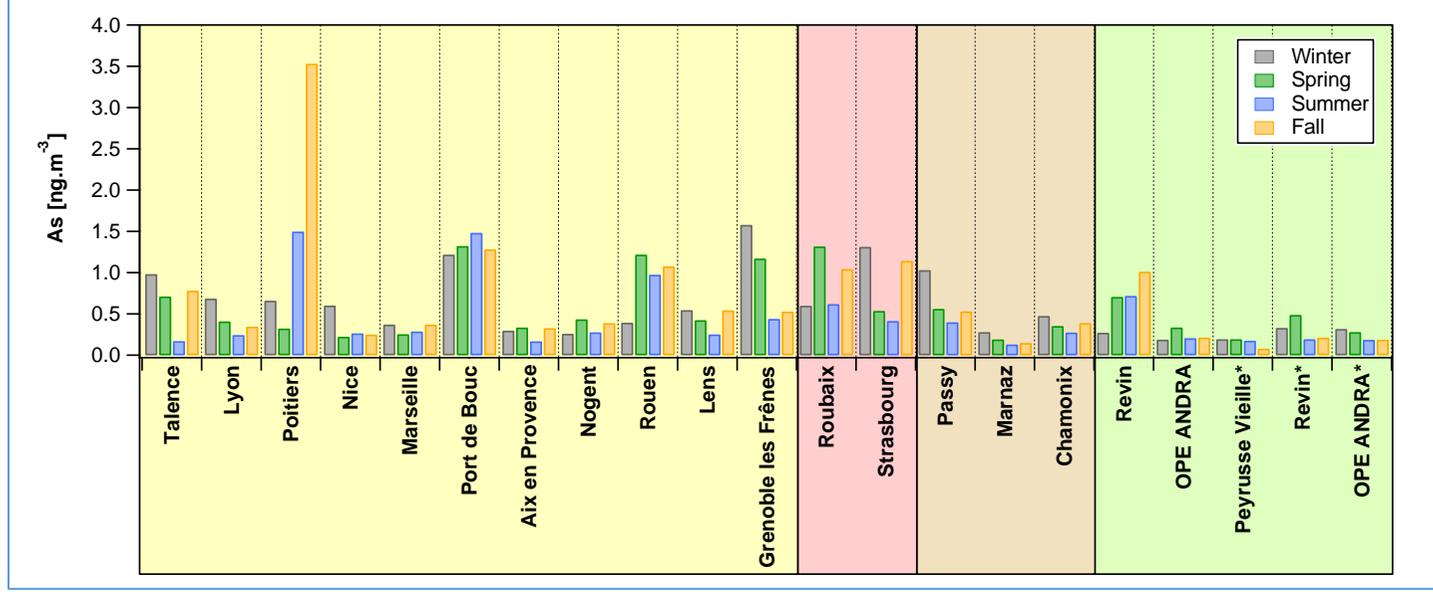
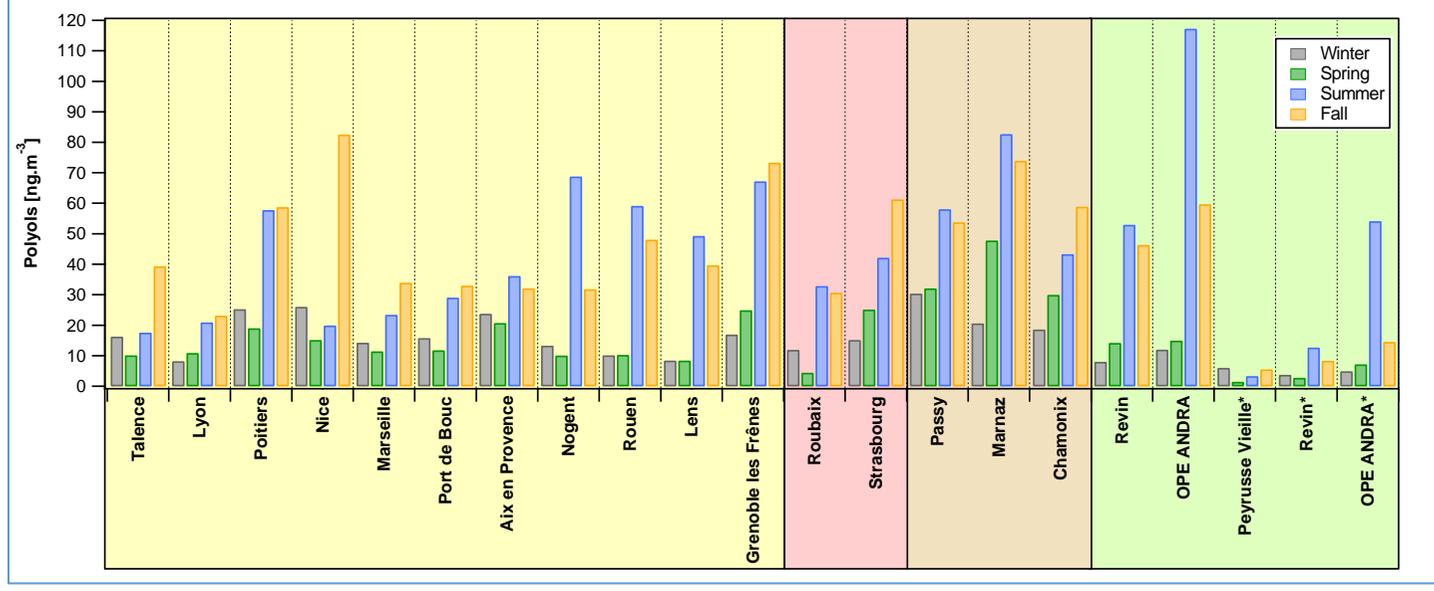




RTISES

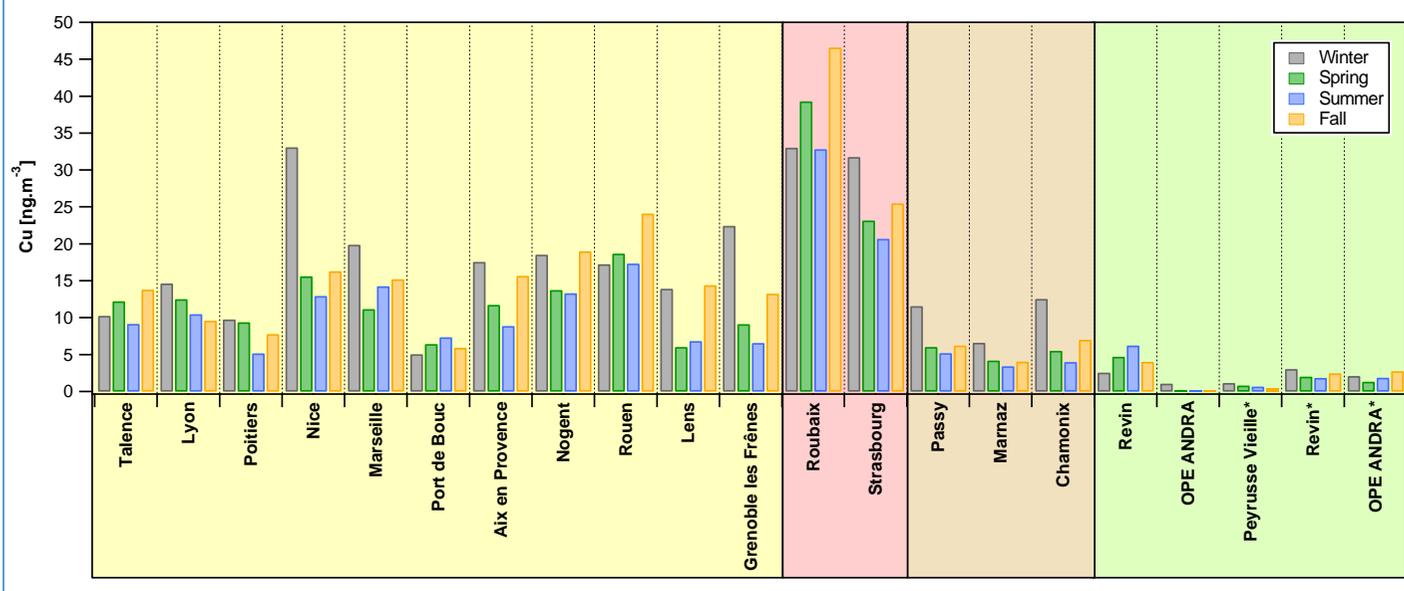
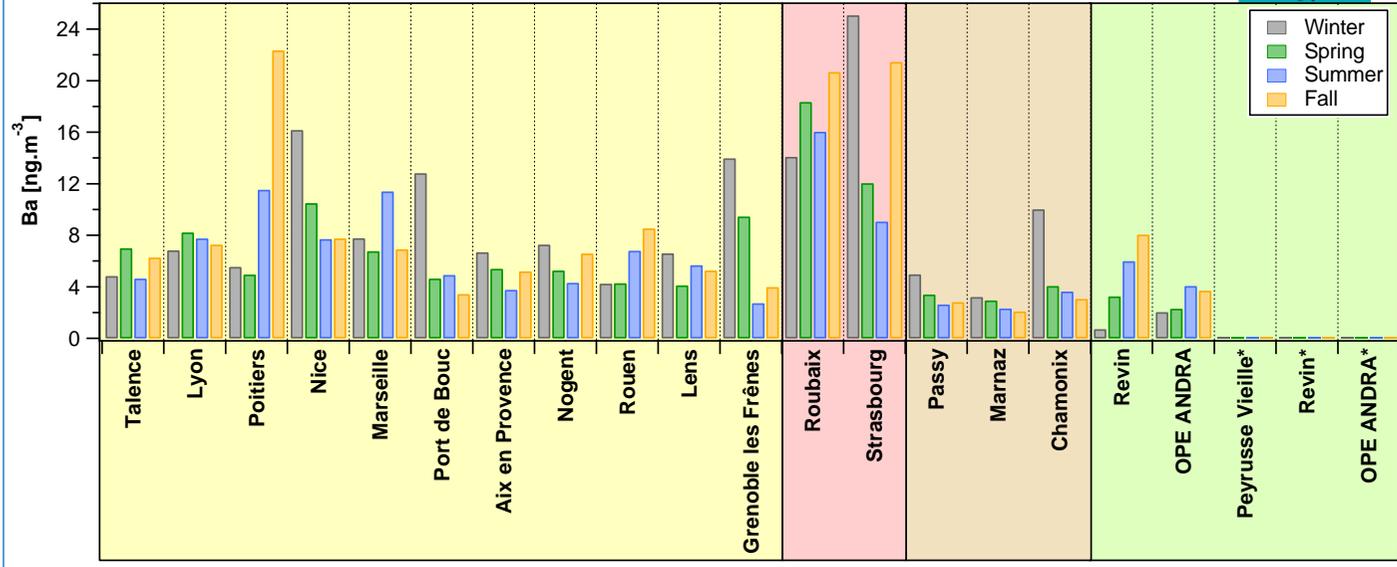


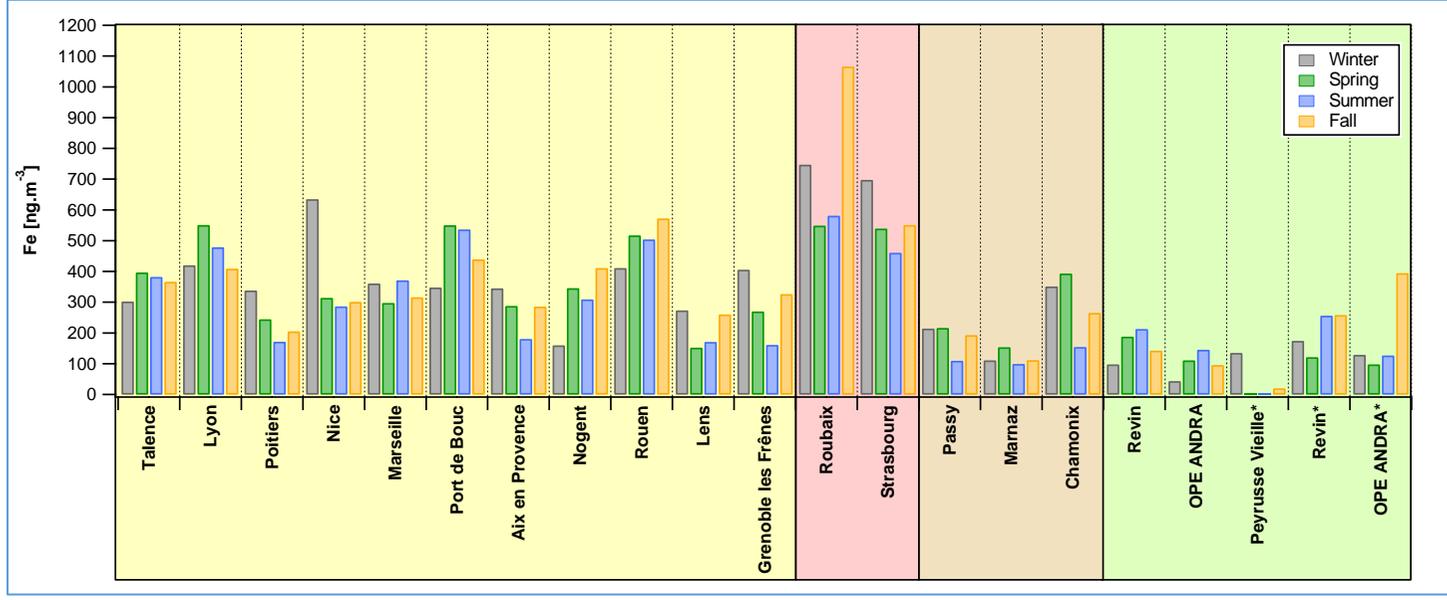
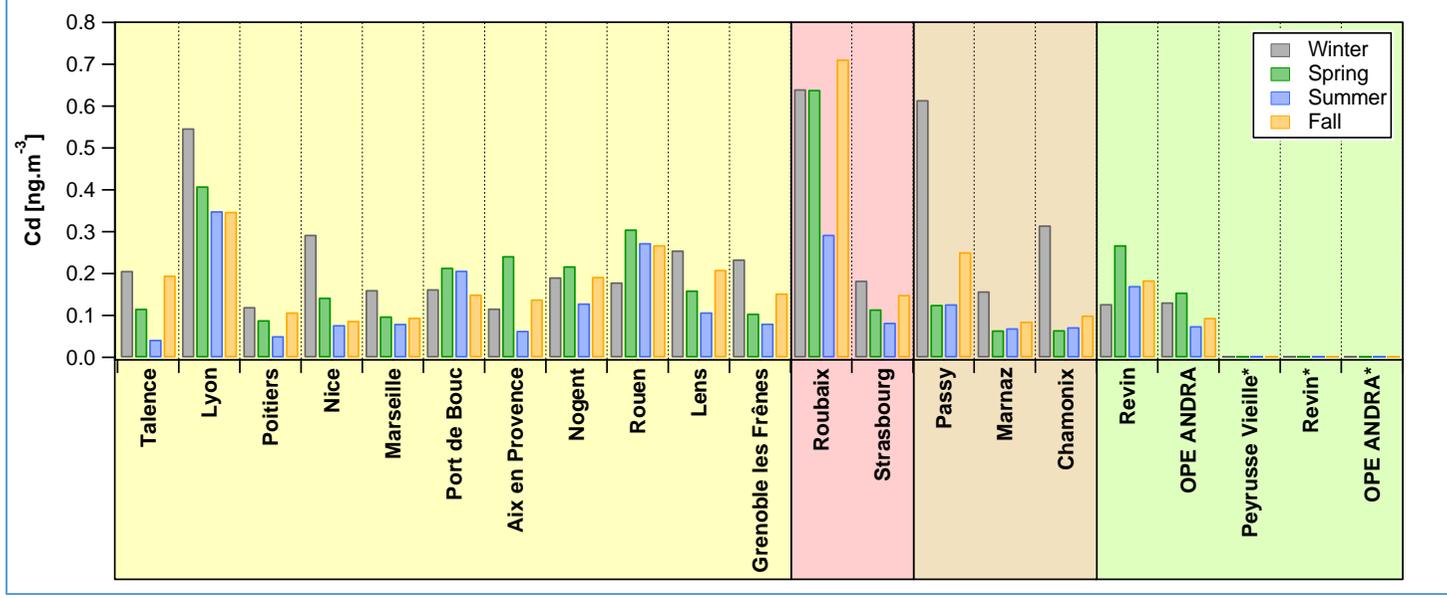
Variabilités saisonnières et spatiales des concentrations moyennes en lévoglucosan, et potassium (ng.m⁻³) déterminées sur 19 sites français de typologies différentes





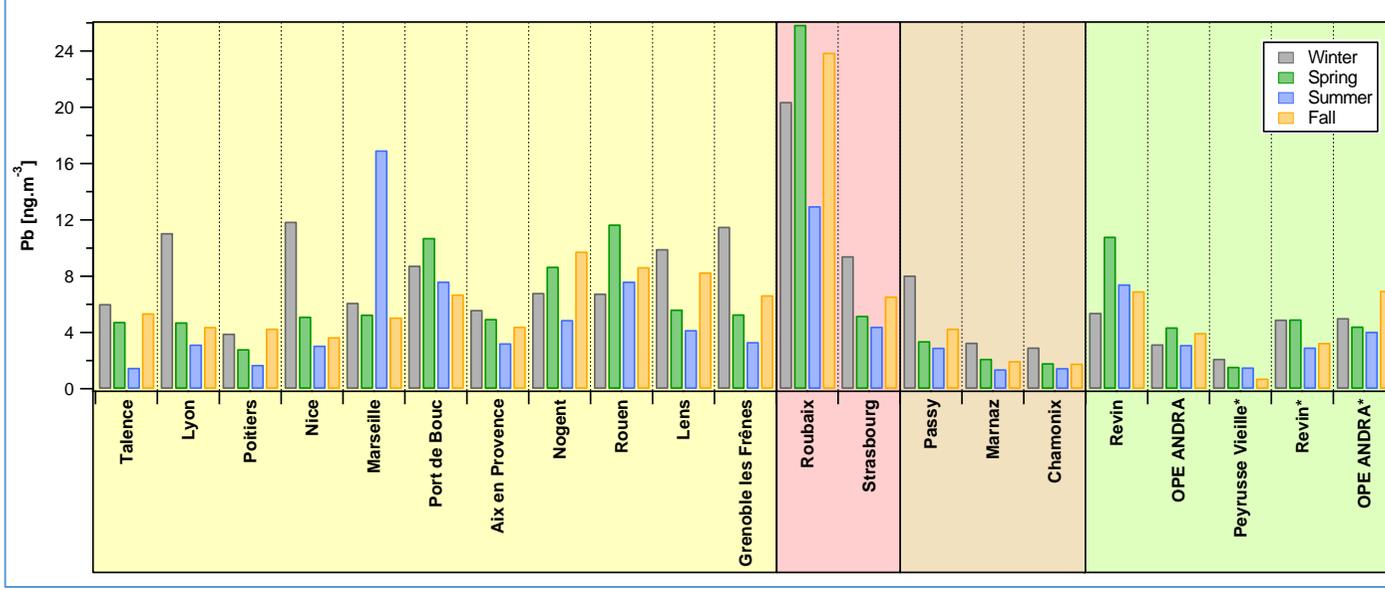
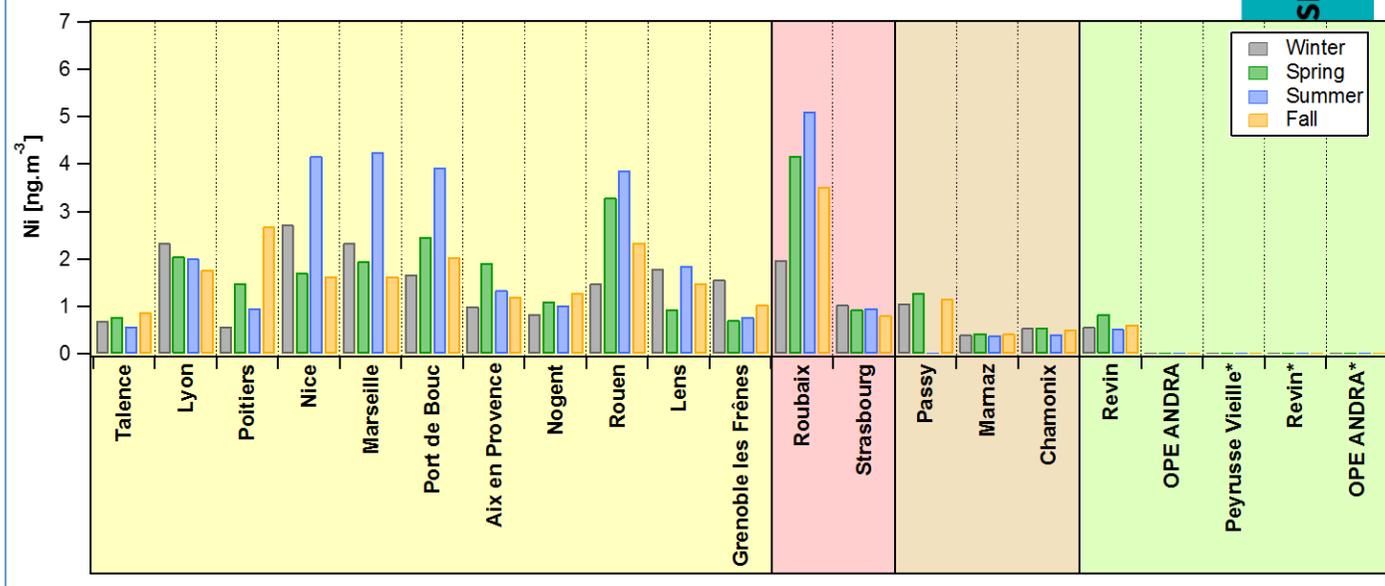
SIS

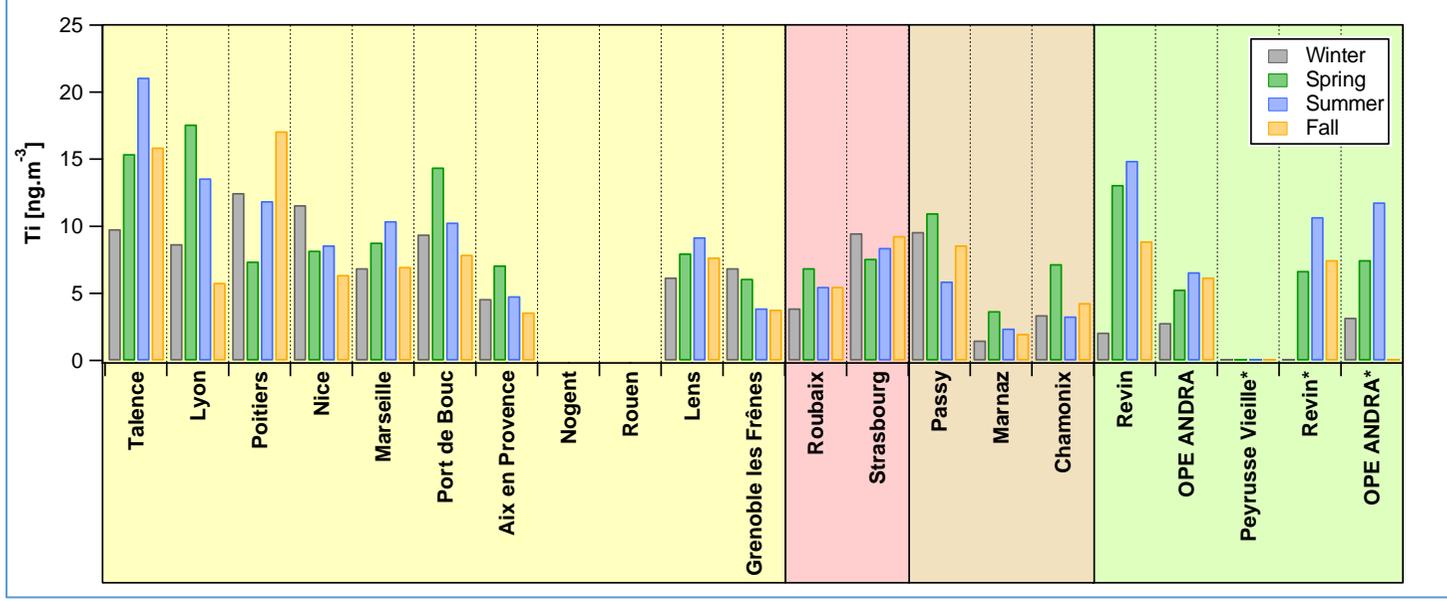
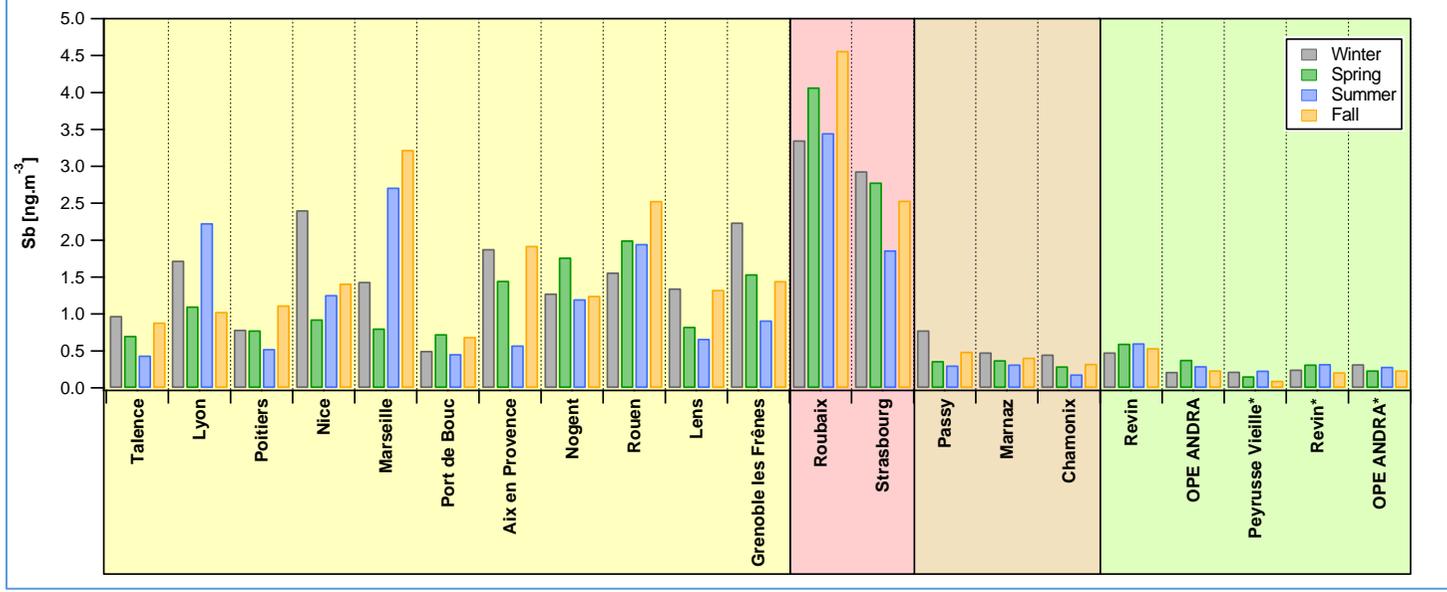






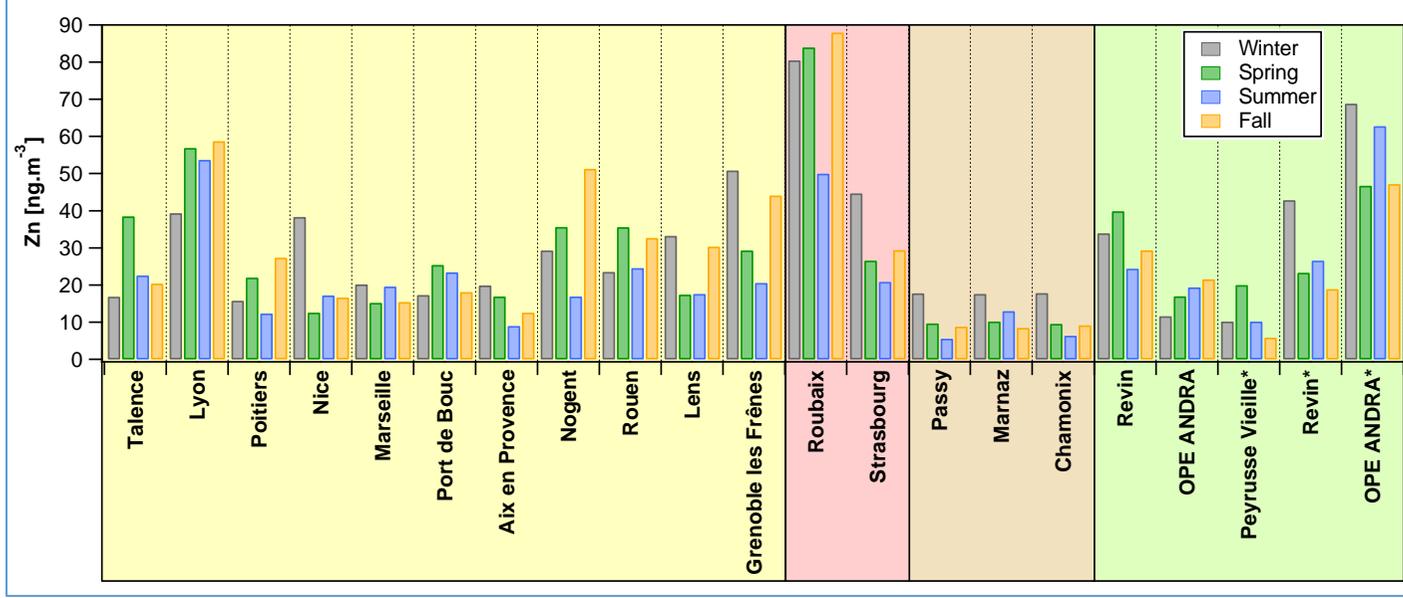
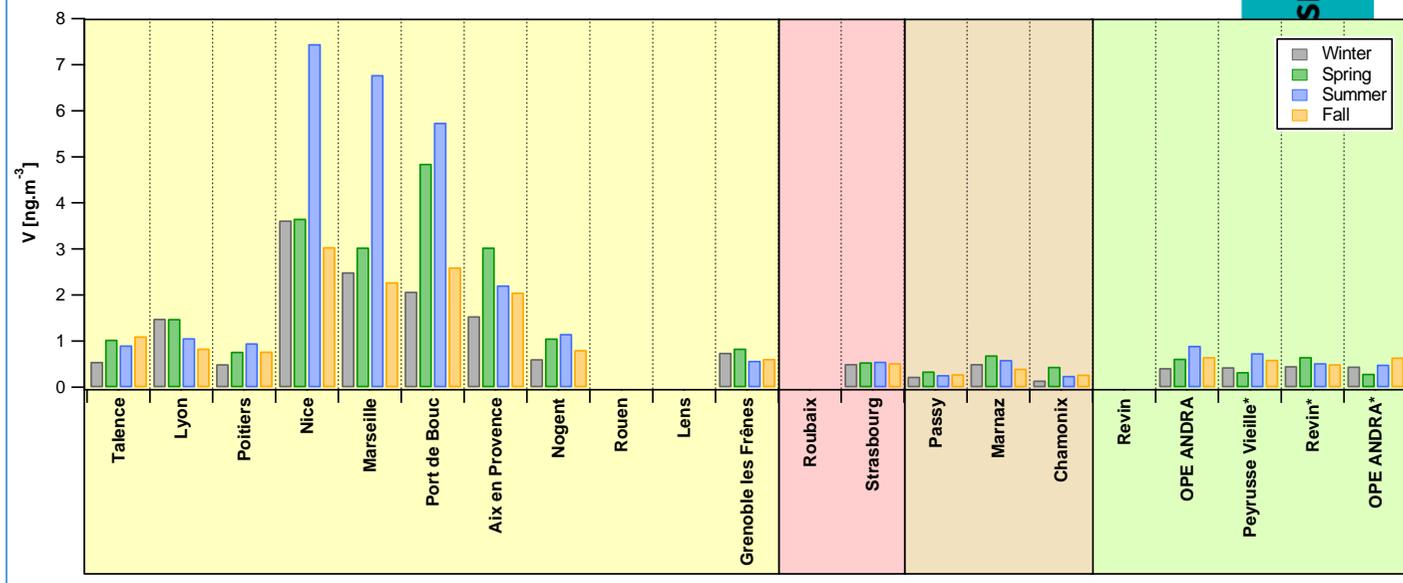
SIS







SIS



Annexe 5 : Utilisation des mesures de ¹⁴C dans les analyses PMF

La mesure du radiocarbone (¹⁴C) de la fraction carbonée de l'aérosol constitue une méthode efficace de déconvolution des sources de particules atmosphériques permettant de distinguer la part carbonée provenant de combustions fossiles (charbon ou pétrole), dépourvues de ¹⁴C, de la part « moderne » issue de combustion de biomasse ou d'émissions biogéniques (Jordan et al., 2006b ; Liu et al., 2013 ; Szidat et al., 2006). Le ¹⁴C est produit dans la haute atmosphère (ou dans les réactions nucléaires), il est ensuite oxydé en ¹⁴CO₂ pour être finalement absorbé par les plantes lors de la photosynthèse (Currie, 1992 ; Heal, 2013). De ce fait, la biomasse contient des niveaux en ¹⁴C similaires à ceux trouvés dans l'atmosphère : les sources associées (combustion, émissions de COV, ..) sont considérées comme des sources de carbone moderne. Au contraire, compte tenu de la décroissance radioactive du ¹⁴C, les combustibles fossiles, bien plus âgés que son temps de demi-vie, (T_{1/2} = 5730 ans) ne contiennent plus de ¹⁴C.

Les mesures de ¹⁴C permettent ainsi la distinction entre TC_{Non-Fossile} et TC_{Fossile}. Sur les analyses des filtres DECOMBIO (collaboration E. Bard, CEREGE ; Bonvallot et al, 2016), une relation directe est trouvée entre les concentrations de lévoglucosan et de TC_{Non-Fossile}. Le nombre de mesures étant insuffisant pour utiliser directement les mesures TC_{Non-Fossile} et TC_{Fossile} dans le modèle PMF, la part organique provenant de la combustion de la biomasse a été calculée en se basant sur la relation entre lévoglucosan et TC_{Non-Fossile}.

$$\begin{aligned} [TC_{wb}] &= a \times [\text{lévoglucosan}] + b = [OC_{wb}] + [BC_{wb}] \\ \text{donc } [OC_{wb}] &= (a \times [\text{lévoglucosan}] + [b]) - [BC_{wb}] \\ \text{et } [OC_{autres}] &= [OC] - [OC_{wb}] \end{aligned}$$

avec [TC_{wb}] : concentration en carbone total issu de la combustion de la biomasse mesurée par analyse du radiocarbone

[OC_{wb}] : concentration en carbone organique issu de la combustion de la biomasse

[BC_{wb}] : concentration en Black Carbon issu de la combustion de la biomasse mesurée par le modèle Aethalomètre

[OC] : concentration en carbone organique mesurée grâce à un analyseur EC/OC Sunset Lab

[OC_{autres}] : concentration en carbone organique provenant de toutes les sources émettrices de cette composante de l'aérosol autres que la combustion de la biomasse

a : pente de la droite de régression entre les concentrations en TC_{NF} et lévoglucosan (a = 5,96 à Chamonix et 6,08 à Passy)

b : ordonnée à l'origine de cette même droite (b = 0,05 à Chamonix et 0,13 à Passy).



Annexe 6 : Identification et caractéristiques des facteurs obtenus par analyses PMF

Une description détaillée des méthodologies de détermination et d'attribution des facteurs PMF dans le cadre de la Vallée de l'Arve est proposée dans Chevrier (2016). On rappelle ci-dessous les principales caractéristiques des facteurs qui permettent leur attribution à une source précise.

Combustion de biomasse

Un profil hautement représenté par un proxy de combustion de biomasse, le lévoglucosan. Associé à lui, du potassium et du rubidium sont également présents dans cette source. Ces espèces sont bien connues pour être des indicateurs d'activité de combustion de biomasse (Godoy et al. 2005; Jordan et al. 2006; Nava et al. 2015; Puxbaum et al. 2007).

Véhiculaire

Avec une très grande contribution de métaux (As, Cu, Mo, Pb, Sb, Fe, Zr, Ti) ainsi qu'une quantité significative de matière carbonée (principalement EC) et de composés organiques (HAP). Pour presque tous les sites présentés ici, les deux sources provenant des émissions véhiculaires, à savoir « exhaust » (c.-à-d. les émissions directes issues de la combustion de carburant (Allen et al. 2001; Viana et al. 2008) et « non-exhaust » (c.-à-d. l'abrasion de la route, l'usure des freins, etc. (Sanders et al. 2003; Sternbeck et al. 2002)) sont mélangées dans ce profil.

Biogénique primaire

Source identifiée grâce à la présence de polyols (arabitol, sorbitol et mannitol) provenant de l'activité biogénique (fongique, pollens et bactérienne) majoritairement depuis les sols (Bauer et al. 2008). Elle pourrait également inclure les émissions de débris végétaux (Yttri et al. 2007). La contribution temporelle de ce facteur (principalement pendant les périodes chaudes) plaide également en faveur de l'activité biogénique.

Biogénique secondaire

Source dominée par le MSA (Methane Sulfonic Acid) qui est un produit de l'oxydation DMS (sulfate de diméthyle). Le DMS est bien connu pour être émis par les algues marines (Saltzman et al. 1983; Zhang et al. 2014) ou la microbiologie du sol et la végétation (Jardine et al. 2015).

Industrielle

Source identifiable grâce à la présence de proxy spécifiques de processus industriels tels que Cd, Pb ou Zn émis par la production de coke ou la métallurgie (Alleman et al. 2010). Mais (Golly 2014) montre également que d'autres industries carbonées peuvent émettre tels composés.

Poussières crustales

Prédominance élevée de Mg^{2+} , Ca^{2+} , Ti, Mn, Fe, qui sont des éléments de la croûte terrestre. Nous pouvons ensuite identifier cette source comme la re-suspension des poussières du sol ou de roche (Almeida et al. 2005; Dall'Osto et al. 2013; Moreno et al. 2011; Putaud et al. 2004). Cette source peut être mélangée avec la re-suspension des poussières de route par les véhicules, voir les émissions issues de la détérioration mécanique de véhicule (plaquette de freinage, par exemple) (Garg et al. 2000; Sanders et al. 2003; Sternbeck et al. 2002).

Nitrate-rich

Concentration importante d'ions nitrate (NO_3^-) associée à de l'ammonium (NH_4^+) dans un rapport proche de la stoechiométrie. Ceci indique la présence de nitrate d'ammonium NO_3NH_4 . Ce facteur secondaire peut contenir d'autres espèces, dont une fraction organique non négligeable dans laquelle on trouvera assez souvent de l'oxalate.

Sulfate-rich

Source dominée par les ions sulfate (SO_4^{2-}) associés à de l'ammonium (NH_4^+) dans un rapport proche de la stoechiométrie. Ceci indique la présence de sulfate d'ammonium $SO_4(NH_4)_2$. Ce facteur secondaire peut contenir d'autres espèces, dont une fraction organique non négligeable, dans laquelle on trouvera assez souvent de l'oxalate.

Sel de mer/route

Source dominée par Na^+ et Cl^- , mais aussi Mg^{2+} et parfois SO_4^{2-} . Ces ions sont les proxy du sel marin (Belis et al. 2013; O'Dowd et al. 1997; Pio et al. 2007), mais aussi du sel de route, surtout pendant l'hiver dans les régions continentales froides.

Sel âgé (non trouvé dans la Vallée de l'Arve)

Source avec le même profil que le sel de mer, sauf que les chlorures sont absents. Puisque le chlore est volatilisé, il indique un transport prolongé de la source d'émission vers le récepteur. Ce profil peut comporter des métaux ou d'autres espèces collectées par les sels pendant leur transport.

HFO (non trouvé dans la Vallée de l'Arve)

La source Heavy Fuel Oil, provient de la combustion de l'huile lourde (par exemple des navires ou de l'industrie pétrolière) et est identifiée par la présence de vanadium et de nickel dans le profil (Duce and Hoffman 1976; Jang et al. 2007; Moreno et al. 2010; Pacyna et al. 2007; Querol et al. 2002).

Marqueurs chimiques spécifiques aux différents facteurs

Facteurs identifiés	Principaux traceurs chimiques
Combustion de la biomasse	Levoglucosan, mannosan, OC, K ⁺
Trafic routier primaire	EC, Ba, Cu, Fe, Sb
<i>Nitrate-rich</i>	NO ₃ ⁻ , NH ₄ ⁺
<i>Sulfate-rich</i>	SO ₄ ²⁻ , NH ₄ ⁺ , OC
Biogénique primaire	Polyols
Biogénique secondaire marin	MSA
Poussières minérales	Ca ²⁺ , Al, Cu, Fe, Mn, Ti
Sels marins frais	Na ⁺ , Mg ²⁺ , Cl ⁻
Sels marins vieillis	Na ⁺ , Mg ²⁺ , NO ₃ ⁻ , SO ₄ ²⁻
Industries	As, Cd, Cr, Cs, Co, Ni, Pb, Rb, Se, V, Zn
Combustion de fuel lourd	V, Ni, La, SO ₄ ²⁻ , EC

Annexe 7 : Impact de la nature de la variable totale PM₁₀ utilisée dans l'étude PMF sur le facteur « combustion de la biomasse »

Dans le modèle PMF, les concentrations de PM₁₀ sont introduites en tant que « variable totale » sur lesquelles le modèle va chercher à boucler chimiquement la masse des particules à partir des composés introduits dans la matrice d'observation. Il se pose donc la question de savoir si on doit utiliser comme variable totale les mesures de PM₁₀ obtenues avec les mesures TEOM-FDMS, ou les estimations de la masse des PM₁₀ obtenues par reconstruction via les mesures chimiques. Ni les documents « officiels » d'utilisation de la PMF5.0 EPA, ni les nombreuses publications sur le sujet ne traitent en détail de ce point. D'un côté, l'utilisation des données TEOM-FDMS permet un raccordement direct aux mesures réglementaires ; d'un autre côté, leur utilisation présente l'inconvénient d'introduire dans le système une fraction massique (celle des espèces semi volatiles) sur laquelle les mesures chimiques ne donnent aucune information fiable, et pour laquelle les contraintes de reconstruction (ie, leur attribution à telles ou telles sources) ne sont ni spécifiées ni maîtrisées, avec en particulier une part volatile variable dans le temps, dépendant des conditions météorologiques et non pas reliée aux sources.

Compte tenu de ces inconvénients qui nous semblent majeurs, l'étude PMF conduite sur la première année de mesure a été faite en utilisant les masses reconstruites comme variables totales. L'impact de ce choix sur la définition du facteur « combustion de biomasse est discuté ci-dessous.

On note tout d'abord que les concentrations issues du TEOM-FDMS présentent des différences avec les PM₁₀ reconstruites pouvant aller jusqu'à un facteur moyen de 2,2 durant la saison estivale à Passy. Les différences sont bien moindres lors de la période hivernale, à basses températures. Une relation quasiment proportionnelle entre les écarts de ces 2 types de concentrations de PM₁₀ et la température journalière a été trouvée. Ces différences peuvent s'expliquer en grande partie par la quantification de la fraction semi- volatile des aérosols par le module FDMS alors qu'elle est sujette à la volatilisation lors des prélèvements sur filtre (Lee et al, 2007 ; Zhu et al, 2012). Certaines espèces, notamment le nitrate, peuvent présenter un taux de volatilisation par prélèvement sur filtre d'environ 10% de sa masse en hiver et supérieur à 80% en été (Chow et al, 2005).

L'utilisation des concentrations de PM₁₀ mesurées par le TEOM-FDMS conduit sur les 3 sites à des résultats PMF donnant un mélange de sources véhiculaires, biogéniques et des poussières crustales, en particulier. L'introduction des concentrations PM₁₀ reconstruites permet d'améliorer la fermeture chimique du modèle ainsi que la réalité géochimique des résultats, en diminuant ces mélanges entre sources. Les résultats de l'approche PMF optimisé concernant le facteur « combustion de la biomasse » sont cependant très semblables, que la variable totale soit les mesures du TEOM-FDMS ou les concentrations reconstruites.

Ainsi, la composition des PM₁₀ et de l'OC dans le facteur « combustion de la biomasse » diffère très peu entre le profil chimique obtenu à partir des concentrations de PM₁₀ reconstruites ou à partir des mesures TEOM-FDMS pour les 3 sites. Le ratio EC/OC est retrouvé inférieur à 0.1, ce qui est caractéristique des émissions de la combustion de la biomasse (Fine et al, 2004a). Les proportions de lévoglucosan et des méthoxyphénols, traceurs de la source de combustion de la biomasse ne diffèrent pas entre les 2 solutions (> 81% de la masse totale de l'espèce dans le facteur). Les proportions de BC_{wb} sont par contre plus faibles (de 2, 4 et 9% pour les sites de Chamonix, Passy et Marnaz respectivement) pour le facteur issu des concentrations du TEOM-FDMS. Les compositions de PM₁₀ et OC sont cohérentes dans les 2 cas avec celles issues de la base de donnée SPECIEUROPE (Bernardoni et al, 2011 ; Larsen et al, 2012). Finalement, les évolutions temporelles des concentrations de PM_{wb} issues des deux PMF sont également très analogues, comme le montre pour les 3 sites les coefficients de corrélation élevés de la Figure 7-1.

De même que pour les concentrations PM_{wb}, les concentrations en lévoglucosan et BC_{wb} issues de l'analyse chimique et du modèle aethalomètre (respectivement) sont très bien corrélées avec les concentrations modélisées dans les facteurs « combustion de la biomasse » de chaque type de PMF. Toutefois, quantitativement les concentrations modélisées issues des PM₁₀ du TEOM-FDMS permettent de moins bonnes restitutions des concentrations du lévoglucosan et du BC_{wb} que les concentrations modélisées issues des PM₁₀ reconstruites (cf figure 7-2).

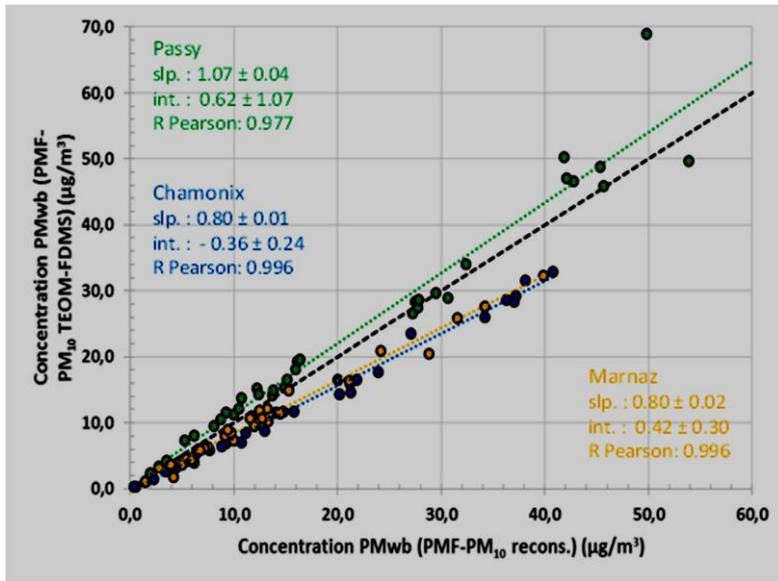


Figure 7-1 : Comparaison des concentrations PM_{wb} issues de l'approche PMF optimisé avec les concentrations de PM_{10} reconstruites ou avec les mesures du TEOM-FDMS, sur la période hivernale (15/11/13 au 31/03/14).

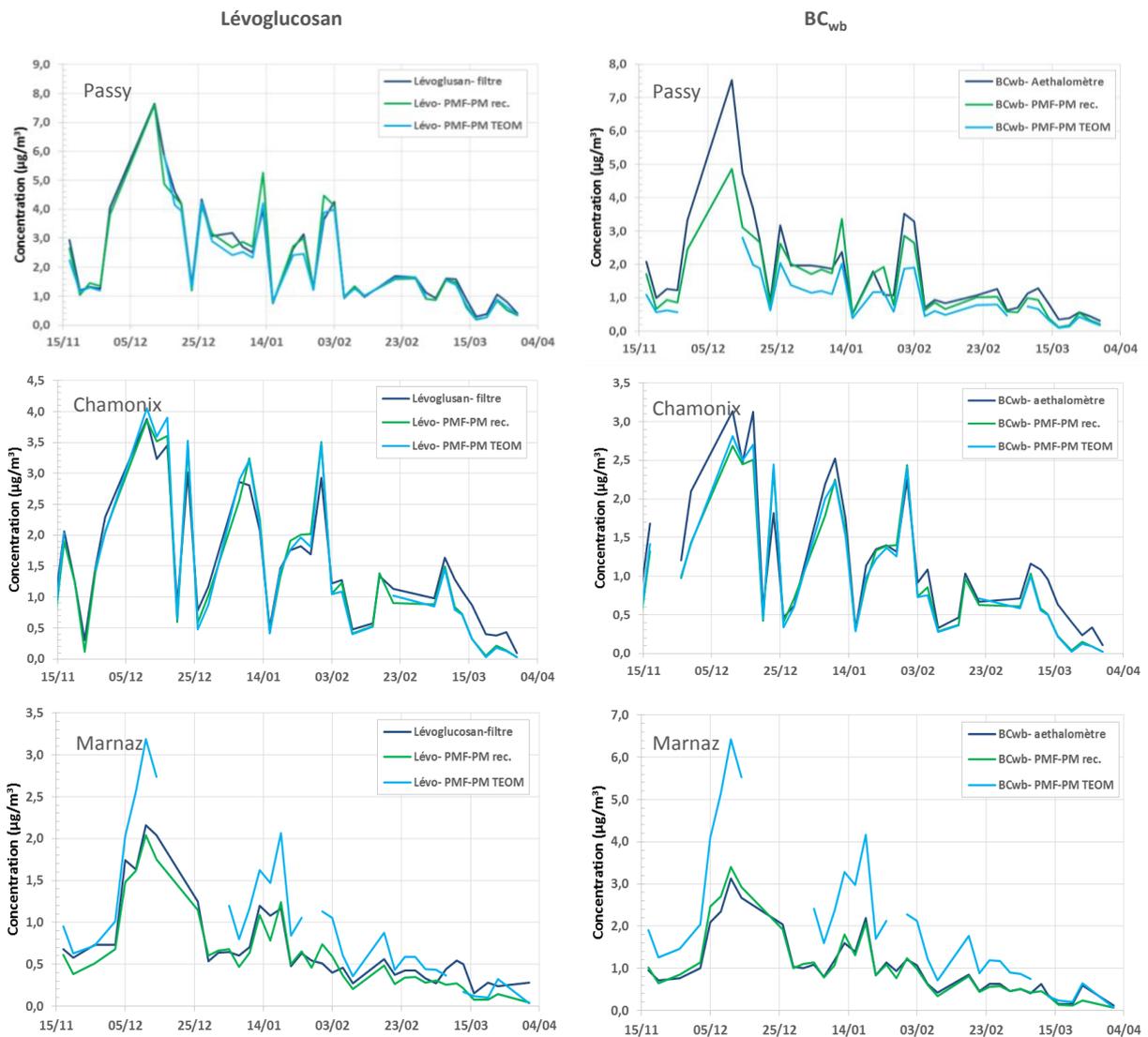


Figure 7-2 : Evolutions des mesures de lévoglucosan et de BC_{wb} et de leurs concentrations modélisées dans le facteur « combustion de la biomasse » issue des PMF optimisés avec les concentrations de PM_{10} reconstruites et les mesures du TEOM-FDMS sur la période hivernale (15/11 au 01/04).



Le site de Marnaz présente les écarts les plus importants entre les différentes concentrations : les concentrations du lévoglucosan et de BC_{wb} issue de la solution basée sur les mesures du TEOM-FDMS sont surestimées par rapport aux concentrations mesurées et modélisées avec les PM_{10} reconstruites d'un facteur 1.46 et 1.93, respectivement. A l'opposé, sur le site de Chamonix, les concentrations de BC_{wb} , ainsi que les concentrations de lévoglucosan du facteur « combustion de la biomasse » sont reconstruite de façon analogue par la solution des deux PMF. A Passy, les concentrations de lévoglucosan sont quasiment reconstruites identiquement par les résultats des 2 PMF, les concentrations de BC_{wb} sont par contre sous-estimées d'un facteur 1.65 en moyenne dans le cas des concentrations issues de la PMF avec les mesures PM_{10} du TEOM-FDMS.

Ainsi, si l'utilisation des mesures de PM_{10} du TEOM-FDMS dans la PMF permet d'obtenir un facteur « combustion de la biomasse » satisfaisant du point de vue de son profil chimique et de son évolution temporelle par rapport à la source, les concentrations de BC_{wb} sont surestimées ou sous-estimées de manière relativement importante selon le site par les concentrations modélisées. La PMF optimisée avec les mesures de PM_{10} reconstruites permet une bien meilleure reconstruction des concentrations mesurées du lévoglucosan et du BC_{wb} .

Annexe 8 : Evolutions des concentrations mesurées par les AE33

Extrait d'un rapport interne réalisé par I. Jezeck, Aerosol.d.o.o.

For the starting winter 2013/14, we have analyzed the average diurnal profile of BC concentrations on workdays for each site. We present them with diurnal graph for workdays in winter 2013/14, for each site respectively (figure 7-1). The graphs show the hourly average, median, 5th, 25th, 75th and 95th percentile values. The dynamics of the increased concentrations shows two peaks, one in the morning starting at about 6:00 and peaking at about 8:00; and one in the afternoon, which starts at about 15 and peaks at 18:00. This diurnal cycle is very strong in Passy while it is much smoother in Marnaz, and with nearly joined peaks in Chamonix. Hence, the local emissions have a much lower influence a Marnaz, while they tend to be well mixed during the daytime in Chamonix.

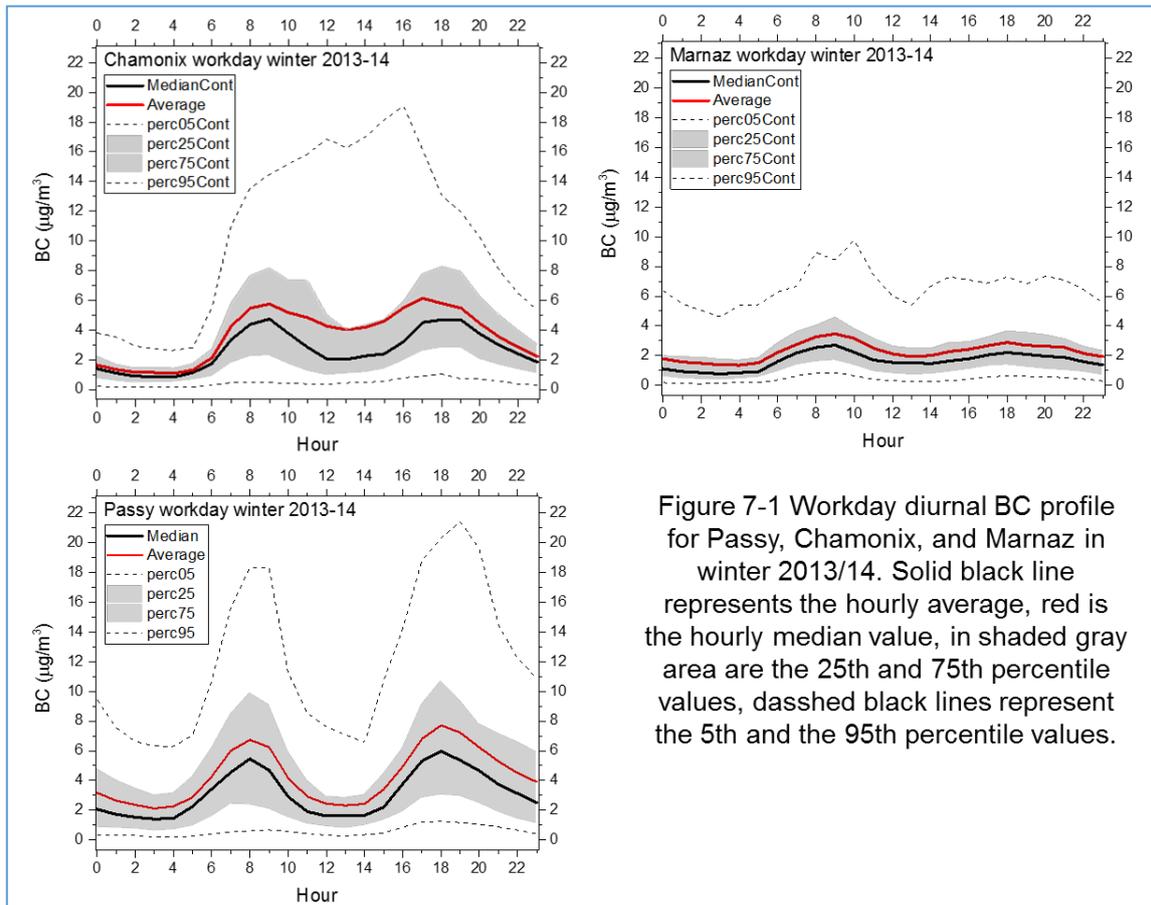


Figure 7-1 Workday diurnal BC profile for Passy, Chamonix, and Marnaz in winter 2013/14. Solid black line represents the hourly average, red is the hourly median value, in shaded gray area are the 25th and 75th percentile values, dashed black lines represent the 5th and the 95th percentile values.

To see the influence of the emission reduction measures we have analysed the following winters in the same way, adding the same analysis for weekends, and for both fossile fuel and biomass burning fractions of BC.

In figure 7-2 are shown the hourly average diurnal BC concentration for workdays and weekends, and the diurnal workday profiles for both fossile fuel and biomass burning fractions for all winters in **Passy**. We can see that over the years there was some variation in the average workday BC diurnal profile, most notable in the afternoon peak. However there isn't an apparent trend that would show reduction in BC concentrations. Interestingly, there isn't much difference between an average workday and an average weekend. The weekend BC concentrations are indeed a bit lower but not by much compared with the average workday 2013/14. All results are well within in the 25th – 75th percentile of the first winter.

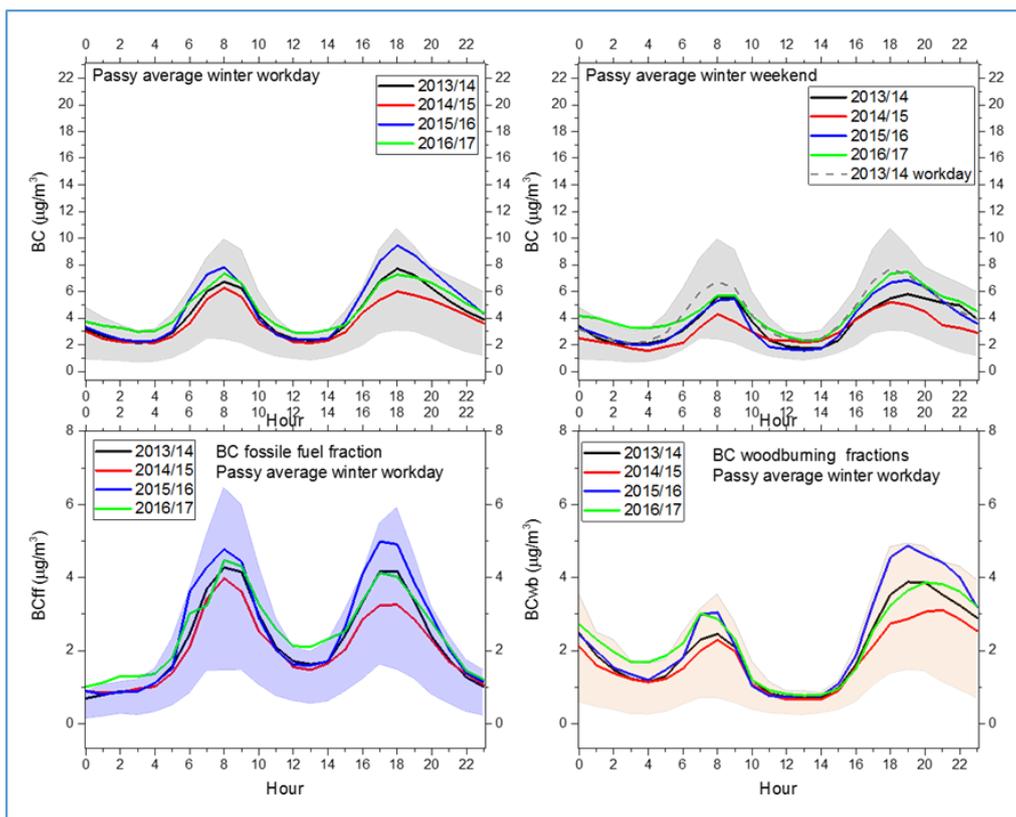


Figure 7-2 : Average hourly diurnal plots for Passy. Top right average hourly workdays and top left are the average weekends for winters 2013/14, 2014/15, 2015/16 and 2016/17. The shaded gray area in both top plots are the 25th – 75th percentile from winter workday 2013/14. In the bottom left and right are the fossil fuel and biomass burning fractions, respectively. The shaded blue and orange areas are the 25th – 75th percentile for the two respective fractions in year 2013/14

We made the same analysis for Chamonix and Marnaz. In **Chamonix** (figure 7-3) the average diurnal workday BC concentrations are gradually reduced from 2013/14 to 2016/17. Weekend concentrations compared to workdays are lower – most notably the morning peak that is mostly related to traffic emissions. Although the average weekend concentration nearly follows the year to year decrease apparent on workdays, we can see that in the last winter 2016/17, the weekend afternoon peak in BC concentrations increased to the average level of the first year 2013/14. Breaking the workday concentrations to BC's main sources – traffic and biomass burning -, we can see an overall decreasing trend in fossil fuel BC fraction, while for biomass burning BC there is an increase in the afternoon peak. The overall decrease in traffic-originated-BC reflects in total BC reduction, while the increase in biomass burning emissions reflects mostly in the increased afternoon peak on the average weekend.

In **Marnaz** (figure 7-4) there was an increase in BCff in winter 2014/15, which was in turn reflected in total BC concentrations. The BCwfb fraction was slightly decreased from 2013/14 to 2015/16. Overall the concentrations in Marnaz were the lowest of the three investigated sites.

From monitoring BC concentrations in Passy, Chamonix and Marnaz, we could find a decreasing trend in BC concentrations only in Chamonix. Using the Aethalometer model, we could find that the decrease in BC concentrations was due to decrease in BC originated from traffic emissions, while the wood burning emissions remained the same. It would be interesting (but out of the scope of DECOMBIO) to apply the meteorological classification proposed in section 4.2 to the BC_f data in order to validate a potential decrease in concentrations for BC from vehicular emissions.

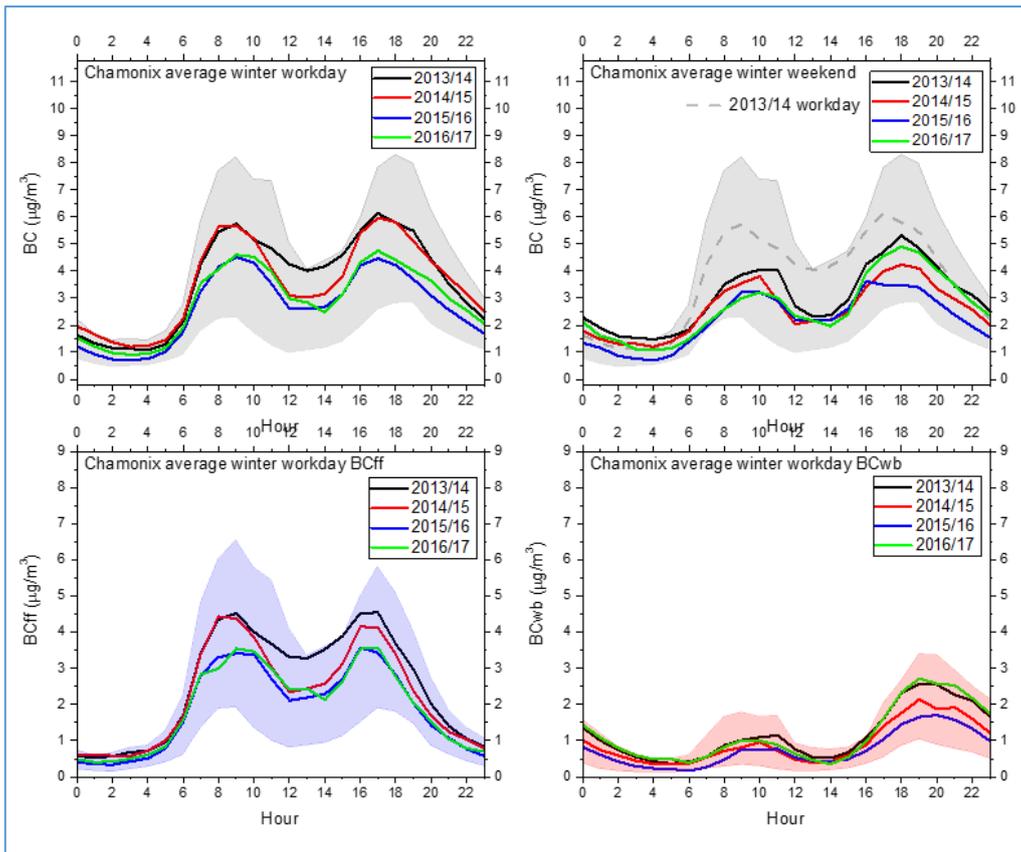


Figure 7-3: average hourly diurnal plots for Chamonix.

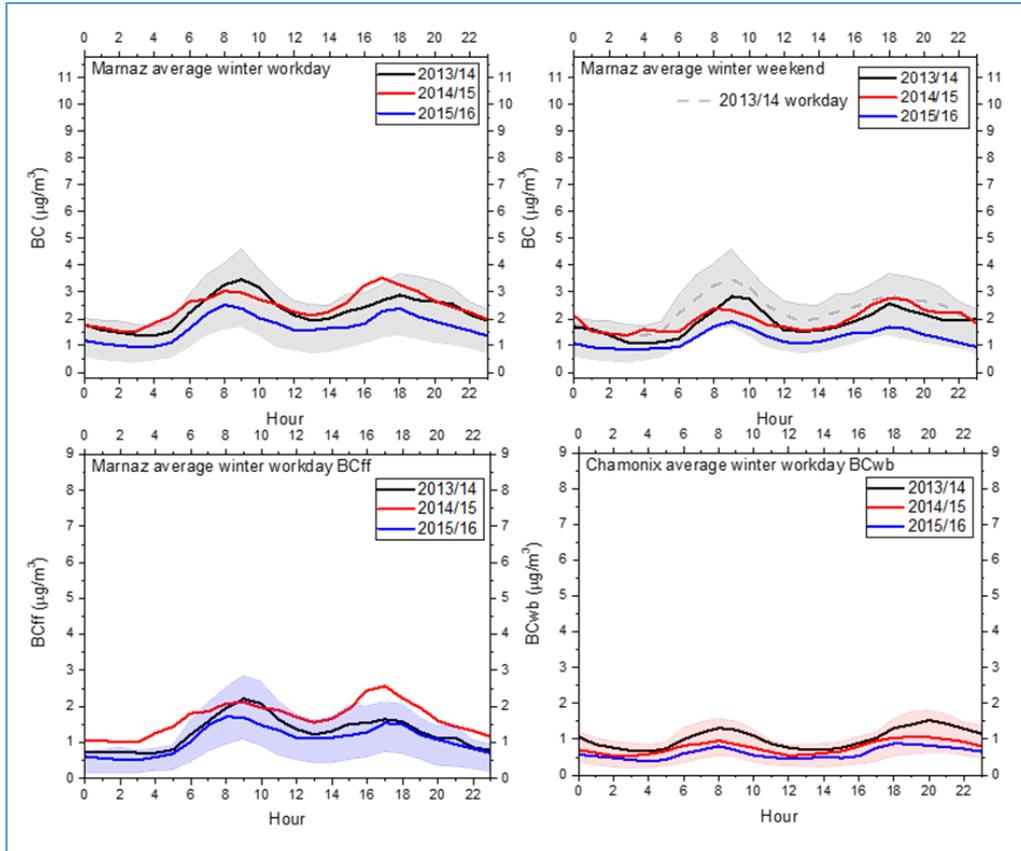


Figure 7-4: average hourly diurnal plots for Marnaz.

Annexe 9 : Evolution de la fraction PM_{10wb}/PM_{10} avec l'application d'un facteur rectificatif sur les concentrations d'eBC à partir des mesures filtres

La comparaison entre mesures par aethalomètres d'eBC⁶ et mesures chimiques sur filtres (EC et lévoglucosan) a permis de vérifier la bonne cohérence des mesures de BC_{wb} comme traceur de la combustion de la biomasse dans les conditions qui peuvent être extrêmes dans la Vallée de l'Arve. Le lévoglucosan est un traceur primaire univoque de la source de combustion de la biomasse (Cesari et al, 2016) tandis que l'EC correspond, comme l'eBC, à une mesure du carbone-suié. Les rapports eBC/EC et BC_{wb} /lévoglucosan sont cependant variables d'un hiver à l'autre, notamment à Passy et Marnaz, et ce, de façon analogue. Cette observation nécessite de considérer les causes possibles de ces évolutions. Elles peuvent être liées au changement de nature chimique des émissions, ou à des évolutions des propriétés optiques des PM qui interviendraient dans les mesures de BC_{wb} .

Comme discuté dans la partie 3.1.2, les mesures des AE33 sont des mesures du taux de changement dans le temps de l'atténuation d'un rayonnement laser au travers d'un filtre, due au dépôt des particules prélevées sur ce filtre, l'atténuation étant calculée comme l'absorption multipliée par un coefficient constant spécifique du type de filtre utilisé. Un coefficient d'absorption massique (le MAC, par définition la pente entre coefficient d'absorption et EC) est nécessaire afin de convertir les mesures d'atténuation en mesures de concentrations massique d'eBC. Ce MAC est considéré comme constant dans les mesures aethalomètres. Zotter et al. (2017) ont montré que le MAC n'est pas différent entre les sources « wood burning » (wb) et « fossil fuel » (ff), avec une variabilité de moins de 25%. Cependant, Zanatta et al (2016) ont montré que le MAC pouvait varier de $\pm 30\%$ avec la variabilité naturelle des propriétés optiques de l'aérosol (induites entre autre par les concentrations des espèces ioniques et organiques importantes en masse), ou encore en raison des incertitudes de mesures aethalomètre et filtre. Les variations inter-hivers des rapports eBC/EC et BC_{wb} /lévoglucosan mesurées sur DECOMBIO restent dans ce domaine de variation de MAC. Ceci a permis de considérer comme valide la quantification des concentrations de PM_{10wb} par l'application d'un coefficient spécifique α (issu des résultats des études PMF) aux concentrations de BC_{wb} . L'hypothèse qui est utilisée pour ce dernier point est que les profils chimiques des émissions moyennes du parc des dispositifs de chauffage au bois restent identiques au cours des 4 hivers. Ce point est discuté dans l'annexe 10.

Néanmoins, lorsque l'on s'intéresse aux fractions PM_{10wb}/PM_{10} , les surestimations (ou sous-estimations) de BC_{wb} par rapport aux concentrations de lévoglucosan ont un effet non-négligeable. Le programme DECOMBIO est une des rares études dans laquelle des mesures aethalomètres et des mesures chimiques par prélèvement sur filtres ont été effectuées en parallèle sur plusieurs hivers et sur les mêmes sites. Dans le cadre du projet Lanslebourg (rapport intermédiaire ADEME, JL Besombes, 2016), une approche similaire a été conduite mais sur la base de données plus réduite (15 jours par hiver).

Les variations inter-hivers des rapports eBC/EC et BC_{wb} /lévoglucosan n'ont donc jamais été rapportées dans la littérature sur des périodes aussi longues, et il est difficile d'évaluer si les variations observées dans nos données sont dans un domaine raisonnable. Cependant, dans le cadre de l'évaluation de l'opération du Fond Air Bois, il est apparu intéressant d'estimer l'évolution de la fraction PM_{10wb}/PM_{10} au cours des 4 hivers, en faisant l'hypothèse d'une stabilité du ratio entre concentrations de BC_{wb} (resp. d'eBC) et concentrations de lévoglucosan (resp. de EC), et donc implicitement en changeant le MAC des PM. Le tableau 9-1 répertorie les médianes des ratios eBC/EC en fonction des hivers sur les 3 sites. Les ratios eBC/EC du 3^{ème} et 4^{ème} hiver de Passy sont significativement supérieurs à ceux mesurés lors du 1^{er} hiver, de même pour les ratios du 2^{ème} et 4^{ème} à Marnaz. L'objectif a été d'estimer les fractions PM_{10wb}/PM_{10} au cours des hivers en appliquant un facteur correctif sur les concentrations d'eBC pour les sites et hivers précédemment cités afin que les ratios hivernaux moyens d'eBC/EC soient identiques en fonction des 4 hivers.

⁶ Le Black Carbon possède plusieurs propriétés physiques comme sa capacité d'absorption dans le visible et son caractère réfractaire qui ont permis le développement de différents appareils pour mesurer sa concentration atmosphérique. Les mesures ne sont cependant pas totalement équivalentes selon l'appareil et donc la propriété physique du BC utilisé. Petzold (et al, 2013) a recommandé d'utiliser une terminologie différente pour qualifier la méthode de mesure : on devrait nommer eBC (équivalent BC), les mesures de concentration basées sur les propriétés optiques du BC et EC, les mesures basées sur les propriétés thermiques du BC.

Ratio eBC/EC	Passy	Marnaz	Chamonix
Hiv 13-14	1.17	1.13	1.28
Hiv 14-15	1.17 (p-value = 0.136)	1.37 (p-value $1.4 \cdot 10^{-9}$)	(-)
Hiv 15-16	1.60 (p-value $< 2.2 \cdot 10^{-16}$)	1.21 (p-value $7 \cdot 10^{-3}$)	(-)
Hiv 16-17	1.42 (p-value $2 \cdot 10^{-6}$)	1.42 (p-value $2 \cdot 10^{-5}$)	1.18 (p-value = 0.103)

Tableau 9-1 : Médiane des ratios eBC/EC en fonction des 4 hivers sur les 3 sites. Le test Mann-Whitney-Wilcoxon a été utilisé afin de connaître les ratios hivernaux eBC/EC significativement différent avec les ratios eBC/EC mesurés lors du 1^{er} hiver pour chacun des sites. Les ratios eBC/EC présentant une valeur de $p < 1 \cdot 10^{-3}$ ont été considérés comme significativement différents des ratios eBC/EC du 1^{er} hiver mesurés pour chaque site (représentés en bleu). Les effectifs varient entre 50 et 120 mesures par hiver.

Un facteur rectificatif a été appliqué aux concentrations de BC_{wb} du 3^{ème} et 4^{ème} à Passy et du 2^{ème} et 4^{ème} hiver à Marnaz. Ce facteur correspond au rapport entre les médianes des ratios eBC/EC de l'hiver où une augmentation des ratios eBC/EC a été observée et celles du 1^{er} hiver. Ces facteurs sont de 0.73, 0.82, 0.83 et 0.79 pour les mesures du 3^{ème} et 4^{ème} à Passy et du 2^{ème} et 4^{ème} hiver à Marnaz. En rectifiant ainsi les concentrations de BC_{wb}, la déconvolution d'eBC entre BC_{wb} et BC_{ff} réalisée par le modèle aethalomètre est conservée et les ratios eBC/EC moyens sont retrouvés identiques entre les hivers. Les concentrations de PM_{10wb} sont ensuite estimées par la même procédure que précédemment (application du coefficient α spécifique déterminé via la PMF ; voir partie 3.3.3 sur les concentrations de BC_{wb}). Ces concentrations sont ensuite rapportées sur les concentrations de PM₁₀ mesurées par le TEOM-FDMS pour estimer la fraction des PM₁₀ issues de la source de combustion de la biomasse.

Ces concentrations BC_{wb} transformées entraînent une modification de l'évolution de la fraction PM_{10wb}/PM₁₀ au cours des hivers par rapport à celle représentée sur la Figure 20b de la partie 3.3.3. Une diminution significative de cette fraction PM_{10wb} est toujours observée entre les premiers et derniers hivers. Les diminutions les plus fortes sont observées sur les sites de Marnaz et de Chamonix avec une diminution de 16% en moyenne de la contribution de la source de combustion de la biomasse aux PM₁₀ entre le 1^{er} et le 4^{ème} hiver. Les variations sont beaucoup plus faibles sur le site de Passy, une diminution de 8 % est cependant observée entre le 1^{er} et le 4^{ème} hiver. Le Tableau 9-2 répertorie les fractions de PM_{10wb}/PM₁₀ moyennes selon les hivers en fonction des mesures de concentrations utilisées pour estimer les PM_{10wb}. A titre de comparaison, la fraction moyenne PM_{10wb}/PM₁₀ calculées à partir des concentrations de lévoglucosan⁷ et non plus de BC_{wb} est aussi indiquée. Les fractions moyennes de PM_{10wb}/PM₁₀ estimées à partir des concentrations de lévoglucosan présentent des valeurs beaucoup plus proches des fractions moyennes de PM_{10wb}/PM₁₀ issues des concentrations de BC_{wb} sur lesquelles ont été appliquées un facteur rectificatif que de celles issues directement des concentrations de BC_{wb}. Les mesures de lévoglucosan n'ont cependant pas été réalisées aussi fréquemment que les mesures en continu des AE33, les effectifs sont donc inférieurs par hiver (en moyenne 40 mesures seulement par hiver).

⁷ Les concentrations de PM_{10wb} ont été quantifiées par la relation $\alpha * [\text{Lévoglucosan}]$ similairement à la quantification à partir des concentrations de BC_{wb}. Le coefficient α a été déterminé, spécifiquement pour chacun des sites, à partir des ratios sur l'hiver 1 entre les concentrations de PM_{10wb} modélisées par l'approche PMF et les concentrations mesurées de lévoglucosan. Un coefficient α de 10.0 ($\pm 12\%$) a été déterminé pour Passy, 9.9 ($\pm 17\%$) pour Chamonix et 11.6 ($\pm 10\%$) pour Marnaz. Les fractions PM_{10wb}/PM₁₀ ont ensuite été quantifiées par le rapport des concentrations de PM_{10wb} par les mesures de PM₁₀ du TEOM-FDMS.

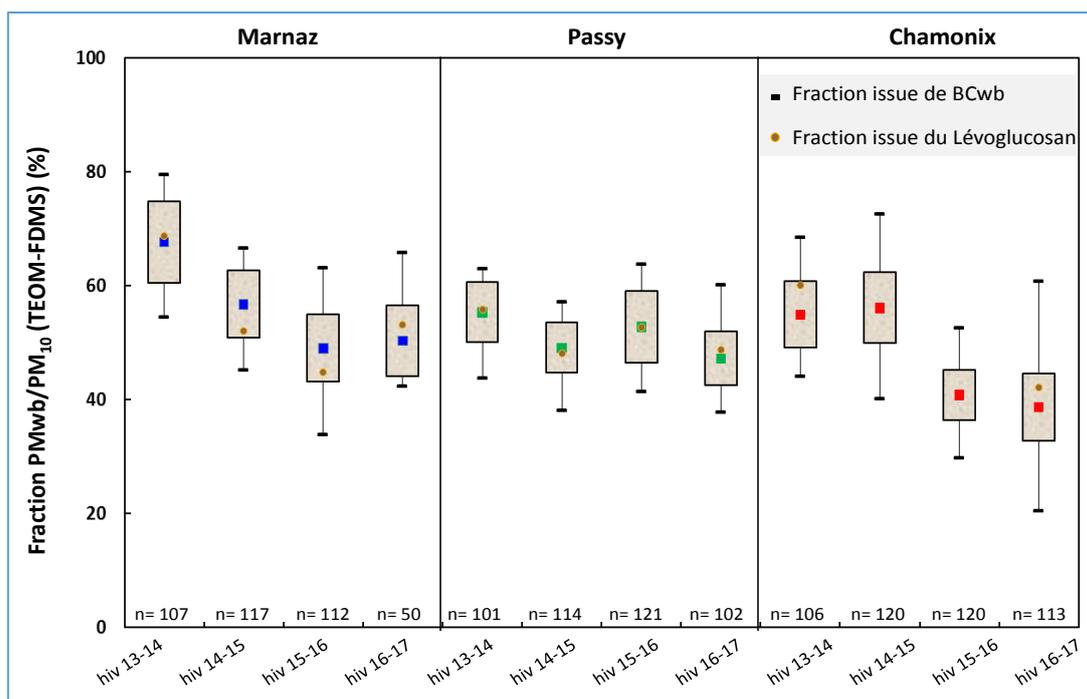


Figure 9-2: Evolution de la fraction moyenne PM_{wb}/PM_{10} au cours des 4 hivers sur les 3 sites. Les carrés colorés correspondent aux fractions avec les concentrations PM_{wb} issues du rapport des mesures de BC_{wb} (AE33) par le coefficient α . Le rectangle gris correspond à l'intervalle de confiance 95% de la moyenne et les barres noires représentent l'interquartile Q1-Q3 des fractions PM_{wb}/PM_{10} . Les ronds bruns correspondent à la fraction moyenne PM_{10wb}/PM_{10} avec les concentrations PM_{wb} issues du rapport des mesures de lévoglucosan par un coefficient $PM_{10wb}/\text{lévoglucosan}$ déterminé avec la même méthodologie que pour le coefficient α .

Ainsi, les analyses des composés sur filtres réalisées sur tous les hivers ont permis de mettre en avant une variabilité des rapports eBC/EC sur un même site. Les ordres de grandeurs de ces variations peuvent correspondre à des variations naturelles résultant de variations des propriétés optiques des aérosols ou d'incertitudes sur les mesures. Parallèlement aux rapports eBC/EC, les rapports $BC_{wb}/\text{lévoglucosan}$ varient au cours des hivers similairement aux rapports eBC/EC, alors que les mesures EC et lévoglucosan sont analytiquement indépendantes ; ceci pourrait conforter l'hypothèse de variations réelles des propriétés optiques des PM_{10} , ce qui a une incidence non négligeable sur les calculs de l'évolution au cours des 4 hivers des fractions PM_{10wb}/PM_{10} .

Cependant, la variabilité du rapport eBC/EC étant pour une des premières fois observée sur un même site et sur une temporalité importante, et les mesures par prélèvement comme les mesures de BC_{wb} présentant des incertitudes, il reste difficile à ce stade d'évaluer la pertinence d'utiliser un facteur correctif pour corriger ces variations. Dans l'état actuel de nos connaissances sur les déterminants des MAC, il n'est pas envisageable de préciser un intervalle de confiance plus réduit, permettant de diminuer ces incertitudes sur l'estimation de BC_{wb} .

Références bibliographiques:

- Andreae, M.O., Gelencsér, A., 2006. Black carbon or brown carbon? The nature of light-absorbing carbonaceous aerosols, *Atmos.Chem.Phys.*, 6, 3131-3148.
- Besombes J.L. et al, 2016. Evaluation des impacts sur la qualité de l'air des actions de modernisation du parc d'appareils de chauffage au bois à Lanslebourg. Programme Lanslebourg III. Rapport interm. ADEME, 65 p.
- Cesari, D, Donato, A., Conte, M., Merico, E., Giangreco, A., Giangreco, F., Cartini, D., 2016. An inter-comparaison of $PM_{2.5}$ at urban and urban background sites: Chemical characterization and source apportionment. *Atmospheric Research*, 174-175, 106-119.
- Petzold, A., Ogren, J.A., Fiebig, M., Laj, P., Li, S.-M., Baltensperger, U., Holzer-Popp, T., Kinne, S., Pappalardo, G., Sugimoto, N., Wehrli, C., Wiedensohler, A., Zhang, X.Y., 2013. Recommendations for reporting "black carbon" measurements. *Atmospheric Chemistry and Physics*, 8365-8379.
- Zanatta, M., Gysel, M., Bukowiecki, N., Mühler, T., Weingartner, E., Areskou, H., Fiebig, M., Yttri, K.E.,

Mikalopoulos, N., Kouvarakis, G., Beddows, D., Harrison, H.M., Cavalli, F., Putaud, J.P., Spindler, G., Wiedensohler, A., Alastuey, A., Pandolfi, M., Sellegri, K., Swietlicki, E., Jaffrezo, J.L., Baltensperger, U., Laj, P., 2016. A european aerosol phenomenology-5: Climatology of black carbon optical properties at 9 regional background sites across Europe. *Atmospheric Environment*, 145, 346-364

Zotter, P., Herich, H., Gysel, M., El-Haddad, I., Zhang, Y., Močnik, G., Hüglin, C., Baltensperger, U., Szidat, S., and Prévôt, A. S. H., 2017. Evaluation of the absorption Ångström exponents for traffic and wood burning in the Aethalometer-based source apportionment using radiocarbon measurements of ambient aerosol, *Atmos. Chem. Phys.*, 4229-4249,

Annexe 10 : Evolution des contributions des principaux marqueurs de la combustion de la biomasse à la matière organique au cours des 4 hivers

L'analyse des composés chimiques sur filtres permet également d'étudier les éventuelles évolutions des profils chimiques de l'aérosol qui pourraient être dues à l'avancée de l'opération du Fond Air Bois au cours des hivers. La figure ci-dessous présente les profils chimiques moyens des PM₁₀ au cours des 4 hivers pour les 3 sites. Comme rencontré dans les sites de vallées alpines impactées par la source de combustion de la biomasse (Golly 2014 ; Piot 2011), la composition chimique des aérosols est dominée par la matière organique (OM) sur les 4 hivers. Une diminution est cependant observable sur le site de Marnaz où cette fraction a diminué de 10,7% entre le 1^{er} et le 4^{ème} hiver, tandis qu'elle reste relativement constante à Passy et Chamonix (entre 67 et 72% de la masse des PM₁₀ reconstituée). On observe également que la fraction du carbone élémentaire, en partie aussi liée aux sources de combustions fossiles, diminue au cours des hivers sur les 3 sites, de l'ordre de 1% par hiver en moyenne. Ces diminutions de contributions aux PM₁₀ se font au bénéfice de la fraction ionique dont les contributions relatives augmentent.

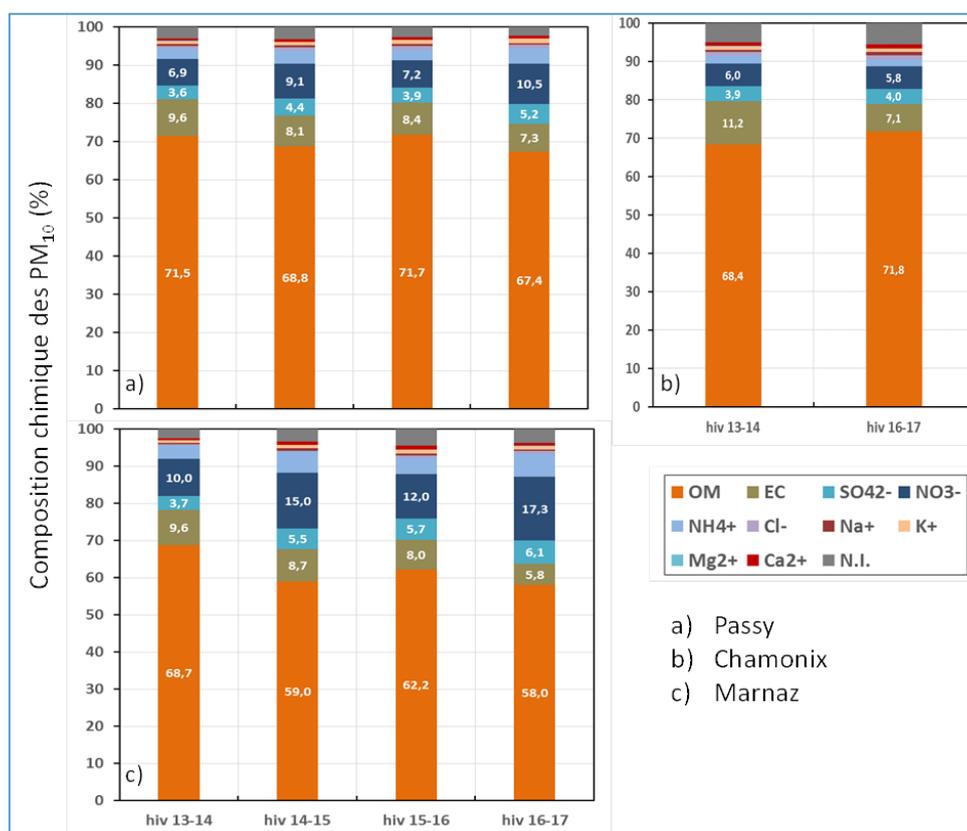


Figure 10-1 : Evolution de la composition chimique moyenne des PM₁₀ au cours des 4 hivers (15/11 au 15/03) à Passy, Marnaz et Chamonix.

L'évolution des rapports entre traceurs de la combustion biomasse et le carbone organique permettent d'évaluer une éventuelle évolution du profil moyen de ces émissions avec le renouvellement des appareils de chauffage au bois non-performants (figure 10-2). Le lévoglucosan ainsi que les méthoxyphénols sont des traceurs primaires de la combustion de la biomasse, qui est également très émettrice d'HAPs. Une diminution des ratios de ces différents traceurs (par rapport à l'OC total) est observée au cours des 4 hivers à Passy et Marnaz et entre le 1^{er} et le 4^{ème} hiver à Chamonix. Le ratio lévoglucosan/OC diminue de 12% (en considérant les valeurs médianes) entre le 1^{er} et le 4^{ème} hiver à Marnaz, de 14% à Passy et de 19% à Chamonix.

Malgré ces évolutions, les ratios du 4^{ème} hiver sont encore représentatifs de ceux mesurés en sites alpins impactés par la combustion de la biomasse (lévoglucosan/OC_{wb} = 10 - 18.9 %, Herich et al 2014). Entre le 1^{er} et le 4^{ème} hiver, les ratios \sum méthoxyphénols/OC ont diminué de 76%, 42% et 12% en

moyenne à Marnaz, Passy et Chamonix, respectivement. De même, une diminution des ratios Σ HAP/OC de 38%, 27% et 44% est observée entre le 1^{er} et le 4^{ème} hiver sur les sites de Marnaz, Passy et Chamonix, respectivement.

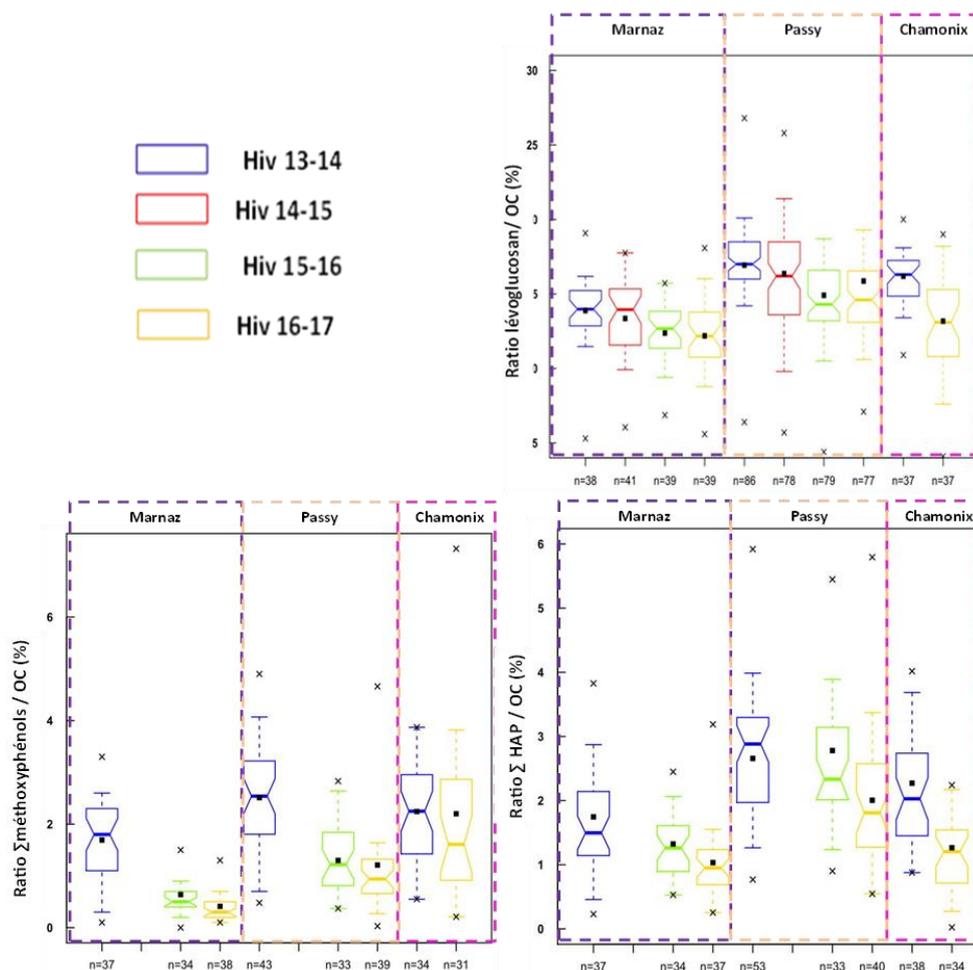


Figure 10-2 : Boxplots des ratios lévoglucosan/OC, Σ méthoxyphénols/OC et Σ HAP/OC au cours des 4 hivers (15/11 au 15/03) sur les 3 sites DECOMBIO. Sont représentées la valeur moyenne (carré noir), la médiane (barre horizontale), les valeurs min et max (croix). 50% des valeurs sont situées dans l'amplitude de la boîte et 95% des valeurs dans l'amplitude des barres verticales.

La contribution des traceurs de la combustion de la biomasse à la matière organique totale diminue donc au cours des 4 hivers et sur les 3 sites. La diminution importante des traceurs mineurs (méthoxyphénols, HAPs) pourrait provenir d'un changement du profil de combustion moyen, tel que mis en avant par Bertrand et al (2017) entre des poêles à bûche et des poêles à granulés. L'analyse des changements des appareils du Fond Air Bois autour des sites de mesures, associée à une recherche bibliographique approfondie sur ces profils d'émission, permettrait peut-être de préciser la nature de la diminution des contributions de ces traceurs à la matière carbonée.

Ainsi, il est possible que l'action du Fond Air Bois commence à modifier de manière visible la composition chimique des aérosols, avec une diminution de la matière organique totale sur le site de Marnaz et une diminution des contributions des principaux traceurs de la source de combustion de la biomasse à la matière carbonée sur les 3 sites. Ces évolutions ne changent cependant pas drastiquement le profil chimique des PM, qui reste un profil-type hivernal des sites alpins impactés par la source de combustion de la biomasse.

Annexe 11 : Méthodologie développée pour classier les conditions météorologiques selon leurs influences sur les concentrations

L'établissement de classifications est un domaine de recherche historique en météorologie et en climatologie. Récemment, leur usage s'est élargi à de nombreux champs des sciences atmosphériques, notamment avec le développement de méthodes de classification automatique (Huth et al, 2008). Les classifications pour l'investigation du lien entre la météorologie et la qualité de l'air sont très majoritairement des classifications de circulation atmosphériques ou de rétro-trajectoires (Russo et al, 2014 ; Demuzere et al, 2009 ; Karaca and Camci, 2010 ; Kahl et al, 1997). Parmi d'autres applications, Pleijel et al, (2016) ont utilisé une classification de circulation atmosphérique dans l'objectif de différencier la tendance des concentrations annuelles de différents polluants provenant de la variabilité climatique inter-annuelle de celle pouvant provenir des mesures de réduction des émissions.

Ces classifications reposent préférentiellement sur des méthodes de clustering avec des données principalement issues de réanalyses (Philipp et al, 2010). Les variables météorologiques considérées ont un poids égal dans le processus de classification. Cependant, des études précédentes ont montrées que certains paramètres comme la hauteur de la couche limite, sont plus corrélés que d'autres avec les concentrations de PM₁₀ ou PM_{2.5} (Czernecki et al, 2017 ; Tai et al, 2010). Par ailleurs, on sait que d'autres paramètres non-météorologiques sont influents pour les concentrations, notamment la différenciation entre week-end et jour de semaine (Carslaw et al, 2009).

La stratégie pour évaluer l'impact des réductions des émissions liées à l'opération du Fond Air Bois sur les concentrations repose sur la comparaison des concentrations au cours des 4 hivers du programme, **pour des conditions journalières d'« influences » similaires sur les concentrations**. A cette fin, une classification automatique a été développée à partir des variables météorologiques et sociales (type de journées, week-end, semaine, vacances, ...), que l'on cherche à pondérer selon leur influence relative sur les concentrations.

Cette méthode est le couplage d'un algorithme Random Forest suivie de 2 algorithmes de clustering, un dit hiérarchique, permettant de définir le nombre le plus approprié de classes et l'autre dit « fuzzy », permettant d'obtenir une quantification de l'appartenance des jours aux différentes classes. Les différentes étapes suivies pour l'établissement de cette méthode sont rapportées ci-dessous :

- 1) le pré-traitement des variables météorologiques et sociales disponibles dont un impact a été montré sur les concentrations dans d'autres études.
- 2) la pertinence de la modélisation des concentrations par l'algorithme Random Forest et de la robustesse des importances relatives des variables sur les concentrations.
- 3) la classification hiérarchique des conditions atmosphériques à partir des variables pondérées et la détermination du nombre de classes.
- 4) les limites et apport de cette méthode de classification en vue de l'application pour quantifier l'impact de réduction d'émissions sur les concentrations.

1) Variables météorologiques et sociales impactant les concentrations particulières

Le tableau ci-dessous récapitule les variables météorologiques et sociales dont l'impact a été montré sur les concentrations atmosphériques dans des études ayant fait l'objet d'une publication. Les processus physico-chimiques de certains de ces paramètres sur le cycle de vie des particules sont relativement bien connus, comme le dépôt humide ou le transport par le vent. Ils le sont moins pour d'autres, comme l'influence de la couverture neigeuse au sol ou les épisodes d'inversions persistantes (Green et al, 2015 ; Paci et al, 2016).

A l'exception de celle du rayonnement solaire, les mesures directes ou indirectes des variables météorologiques reportées dans le Tableau 11-1 sont obtenues dans le cadre de notre étude soit dans les stations Météo-France proche des sites DECOMBIO, soit avec le système de capteurs de température installés le long des pentes. La représentativité des mesures réalisées dans les stations Météo-France pour notre étude a été appréhendée en comparant ces mesures avec celles d'autres

stations proches ainsi qu'avec les évolutions de concentrations. Lors de l'étude sur la détermination d'un indicateur de la stabilité thermique atmosphérique à partir des mesures des capteurs de température (Annexe 2), il a été montré que tous les ΔT journaliers calculés à partir du capteur le plus bas étaient pertinents pour étudier l'impact des inversions thermiques (ou de la stabilité atmosphérique) sur les concentrations. Afin d'avoir des ΔT les plus homogènes possibles entre les 3 sites DECOMBIO, le 2^{ème} capteur a été choisi en respectant une distance altitudinale la plus grande et la plus semblable entre les sites (à environ 600 m de hauteur au-dessus du niveau de fond de la vallée pour les 3 sites).

Variable	Processus impactant les concentrations	Référence
Température	Emissions liées à la consommation énergétique	Lee et al, 2005 ; Fung et al, 2006
	Réactions secondaires des particules	Aymoz et al, 2004 ; Robert.G et al, 1999
Rayonnement	Réactions photochimiques des particules	Zoras et al 2006 ; Giri et al 2008
Vitesse du vent	Dispersion des particules /re-suspension	Vardoulakis et al, 2008 ; Triantafyllou, 2001
Précipitation	Dépôt humide	Karagramnidis et al, 2015 ; Vardoulakis et al, 2008
Humidité	Dépôt humide /grossissement des particules	Giri et al, 2008
Couverture de neige	Serait probablement liée à une intensification de la stabilité atmosphérique des basses couches	Green et al 2015 ; Whiteman et al 2014
Conditions synoptiques	Conditions anticycloniques	Wang et al, 2009 ; Triantafyllou, 2001
Hauteur de la couche limite	Réduction du transport vertical et accumulation des particules dans les basses couches en cas d'épisode d'inversion.	Vechi et al, 2007; Silcox et al 2012 ; LARGERON et al ; 2016; Chemel et al, 2016 ; Whiteman et al 2014
Dépendance temporelle des concentrations	La concentration étant une série temporelle, elle dépend de la concentration du passé.	Ionescu, 2013 ; Lavancier, 2014 ; Barmpadinos et al, 2011 ; Czernecki et al, 2017
Type de jour	Distinction entre jours semaine et week-end (composants liés au trafic)	Aymoz G, 2005 ; Carslaw D et al, 2009

Tableau 11-1 : Variables météorologiques ou sociales dont l'influence sur les concentrations atmosphériques particulières a été montrée.

Lors de l'étude POVA (Jaffrezo et al, Rapport final Ademe, 2005), l'impact du trafic routier sur les concentrations de PM_{10} et NO_2 a été mis en évidence dans la vallée de Chamonix, avec des différences importantes entre jours ouvrés et weekend. La vallée de l'Arve étant également une importante zone d'activités touristiques, l'influence de la distinction entre les périodes de vacances, jours ouvrés et week-end sur les concentrations hivernales de BC_{ff} et BC_{wb} a été appréhendée sur les 3 sites (cf figure 11-1). Les concentrations de BC_{wb} , traceur des émissions de la combustion de la biomasse ne sont pas impactées par la distinction de ces types de jours sur les sites de Passy et Marnaz. En revanche, les concentrations sont statistiquement supérieures (p-value <0.004, test de Mann-Whitney) lors des périodes de vacances par rapport aux autres jours sur le site de Chamonix. A l'opposé, les concentrations de BC_{ff} y sont inférieures les jours de week-end par rapport aux jours ouvrés, comme dans l'étude de POVA. Sur les sites de Passy et Chamonix, les concentrations de BC_{ff} sont équivalentes lors des jours ouvrés et des périodes de vacances tandis que sur le site de Marnaz, les concentrations

lors des périodes de vacances sont inférieures à celles des jours ouvrés (et équivalentes à celles des jours de week-end). Ainsi, au final, notre étude ne portant que sur l'évaluation de l'action du Fond Air Bois, seule la distinction entre périodes de vacances et hors-vacances a été sélectionnée comme variable pour la classification des conditions atmosphériques, essentiellement pour le site de Chamonix.

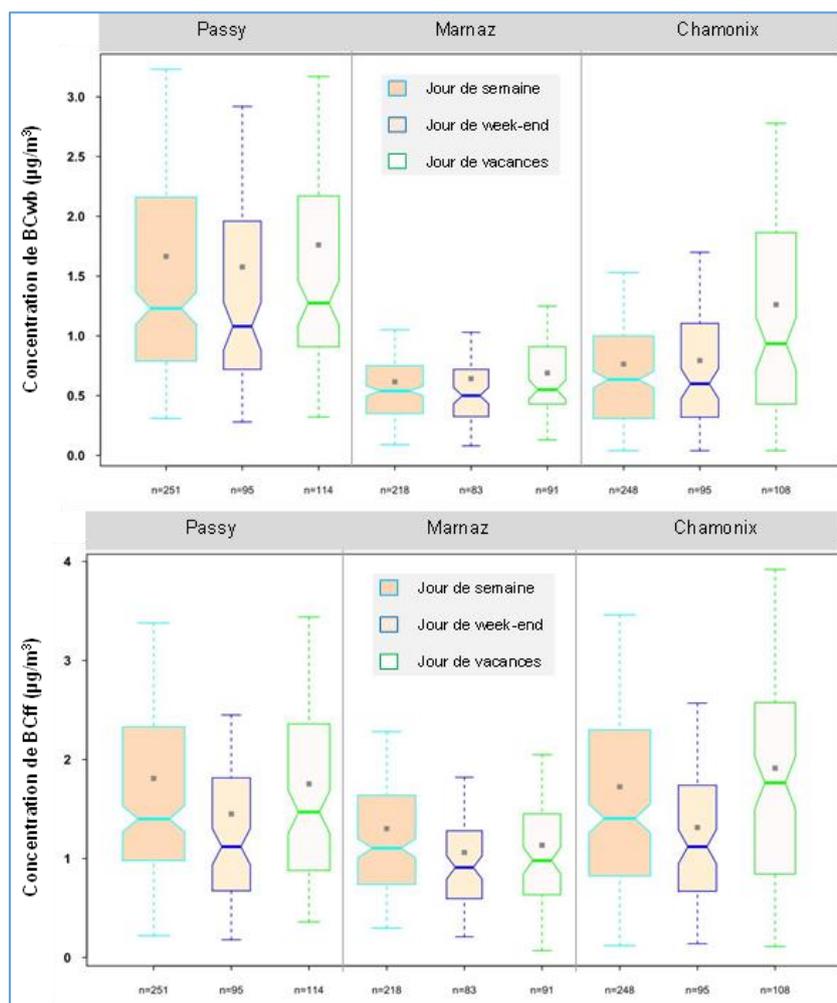


Figure 11-1 : Distributions des concentrations de BC_{wb} et BC_{ff} lors des périodes hivernales (01/11 au 31/03) en fonction des périodes de vacances, jours ouvrés et week-ends à Passy, Marnaz, et Chamonix.

Certains couples de variables (l'humidité relative et l'amplitude thermique ; le ΔT sur les 600 premiers mètres et le ΔT entre le capteur situé le plus haut et celui situé à 600m au-dessus du fond de la vallée) présentent des corrélations temporelles très élevées ($r^2 > 0.6$). Ces fortes colinéarités entre les variables produisent une influence disproportionnée des variables dans les méthodes de clustering (Davis, 1991). L'humidité relative et le ΔT en altitude ont été éliminées, l'amplitude thermique et le ΔT sur les 600 premiers mètres présentant des corrélations plus élevées avec les concentrations. Au final, 9 variables météorologiques et sociales ont été sélectionnées pour les sites de Passy et Marnaz et 10 pour le site de Chamonix. La vitesse du vent et la pression sont les 2 seules variables dont les mesures proviennent d'un capteur identique pour les 3 sites, les autres variables sont mesurées par des capteurs situés au plus près de chaque site (cf figure 26 du rapport). Le nombre de journées ne présentant aucune donnée manquante reste conséquent pour chacun des 3 sites (effectif > 450), aucune méthode d'imputation des données manquantes n'a donc été envisagée, et les journées présentant une donnée manquante n'ont donc pas été prises en compte.

2) Modélisation statistique des concentrations

Le modèle Random Forest (Breiman, 2001) fait partie des techniques du Machine Learning. C'est un modèle robuste, non paramétrique, pouvant être utilisé avec des variables qualitatives et

quantitatives, contrairement aux modèles de régressions classiques comme les régressions multiples. Ce modèle présente également l'intérêt de pouvoir analyser les relations entre les variables explicatives et la variable recherchée via les graphiques de dépendance partielle (voir Figure 11-3) et une quantification de l'importance des variables. Grange et al (2018) ont ainsi analysé l'influence de la météorologie sur les concentrations de PM₁₀ sur 20 ans en Suisse.

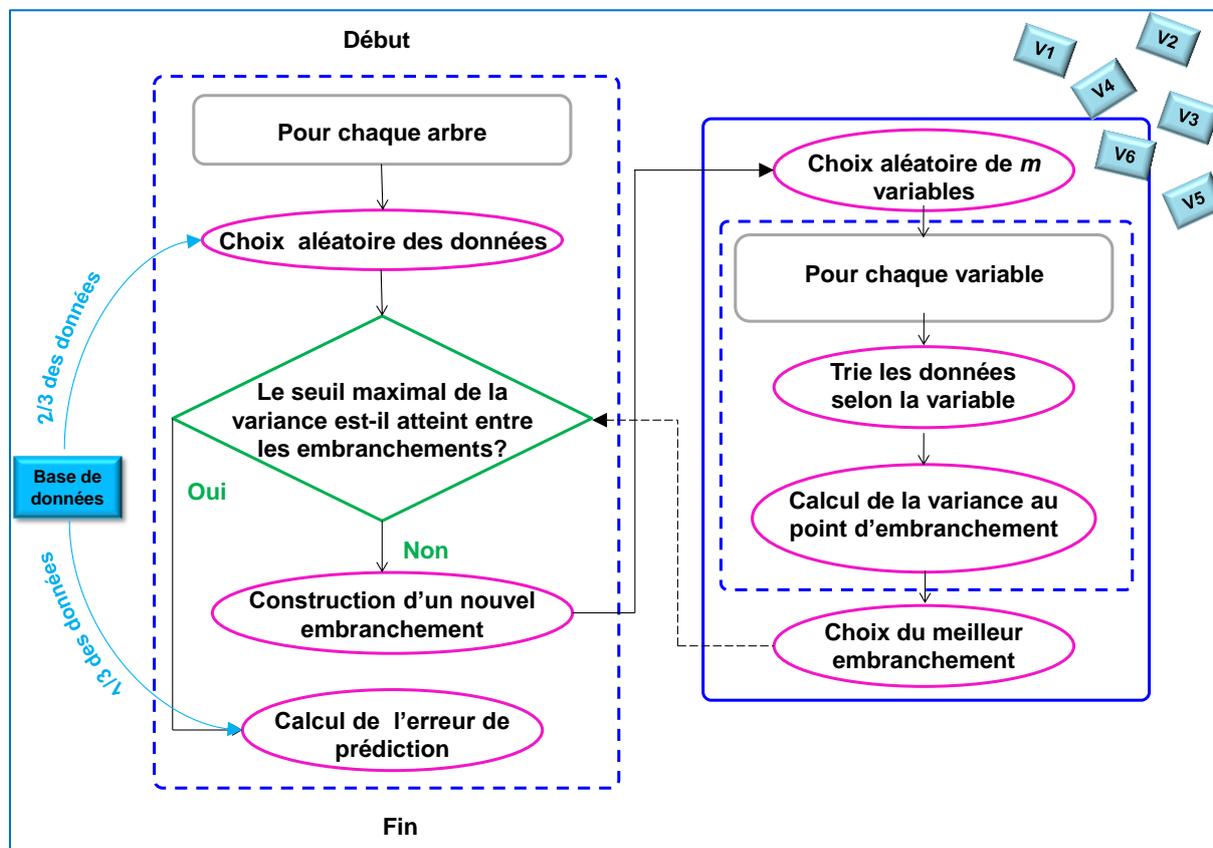


Figure 11-2 : Schéma de la procédure Random Forest appliquée pour modéliser les concentrations hivernales sur 4 hivers. Chaque modèle correspond en la construction de 500 arbres avec un choix aléatoire de $m=3$ variables à chaque construction de nouvel embranchement. Une seconde validation croisée à l'échelle de l'ensemble des données a été appliquée : les séries temporelles des concentrations ont été divisées en 5 blocs identiques d'environ 90 données. Chacune des combinaisons de 4 blocs de la série a été modélisée puis le modèle testé avec le 5^{ème} bloc de données n'ayant pas été utilisé pour la construction du modèle.

Le modèle consiste en la construction de nombreux arbres de régression indépendants (Rakotomalala, 2000) en parallèle à partir d'un double sous-échantillonnage des données et des variables explicatives. Les prédictions de la variable recherchée correspondent à la moyenne des prédictions sur l'ensemble des arbres. La Figure 11-2 schématise l'algorithme Random Forest. Les concentrations de BC_{wb} des 3 sites ainsi que de BC_{ff} et PM₁₀ sur le site de Passy ont été modélisées à partir des variables météorologiques ou « sociales ». La robustesse du modèle a été évaluée par validation croisée, tandis que celle de l'importance des variables a été analysée par la comparaison des mesures d'importance obtenues selon les différents composés et selon les sites. Les concentrations journalières hivernales de PM₁₀ ont été, en particulier, choisies car elles présentent des valeurs élevées lors de conditions météorologiques qui peuvent être très différentes. Notamment, les pics de pollution ayant lieu fin mars (qui sont généralement dus au nitrate d'ammonium) se retrouvent dans des conditions atmosphériques différentes par rapport aux épisodes d'inversions persistantes typiquement au cœur de l'hiver. Les packages Random Forest et Boruta (Kursa and Rudnicki, 2010) du logiciel R ont été utilisé pour cette étude.

Série temporelle	R ²	RMSE (µg/m ³)	Concentration moyenne sur l'ensemble des 4 hivers
BCwb- site de Marnaz	0.65 (0.57 – 0.77)	0.27 ± 0.11	0.68 µg/m ³
BCwb- site de Passy	0.72 (0.57 – 0.82)	0.65 ± 0.15	0.88 µg/m ³
BCwb- site de Chamonix	0.79 (0.73 – 0.83)	0.43 ± 0.17	1,80 µg/m ³
PM₁₀- site de Passy	0.67 (0.46-0.79)	12.6 ± 2.6	39,9 µg/m ³
BCff- site de Passy	0.66 (0.60-0.71)	0.70 ± 0.15	1.72 µg/m ³

Tableau 11-2 : Coefficient de corrélation et erreur résiduelle moyenne des 5 prédictions de concentrations hivernales (environ 90 données) selon le composé et le site. Les concentrations moyennes sur l'ensemble des 4 hivers ont été indiquées pour information sur la valeur de l'erreur résiduelle moyenne.

Le modèle « Random Forest » permet de relativement bien prédire les concentrations de BC_{wb} sur les 3 sites ainsi que les concentrations de PM₁₀ et BC_{ff} sur le site de Passy. Les résultats des coefficients de corrélation et les erreurs résiduelles moyennes obtenues sur les données test (environ 90 données) sont rapportées dans le Tableau 11-2. L'erreur résiduelle sur les concentrations de PM₁₀ de 12,5 µg.m⁻³ correspond à celle trouvée par Grange et al (2018) pour les concentrations de PM₁₀ sur certains sites urbains en Suisse. Les variables météorologiques et « sociales » sélectionnées expliquent environ 70% de la variance des concentrations de BC_{wb} sur les 3 sites.

La Figure 11-3 représente les relations des variables météorologiques ou sociales sur les concentrations de BC_{wb} obtenues dans la solution de l'algorithme « Random Forest » sur le site de Chamonix. Cette étape permet de vérifier la concordance des évolutions des variables et des concentrations par rapport aux études précédentes, notamment basées sur des analyses de corrélation. Une relation quasi-linéaire est retrouvée entre les concentrations et le ΔT pour les valeurs de ΔT comprises entre -3 et 4°C sur les 600 premiers mètres. Chemel et al (2016) ont montré également une relation linéaire entre les concentrations de PM₁₀ et un autre indicateur de la stabilité thermique (le « heat deficit »). Les relations météorologiques avec les concentrations qui ont été montrées dans les études référencées dans le tableau 11-1 sont également retrouvées: une diminution des concentrations avec l'augmentation de la vitesse du vent, de la température et du taux de précipitation, une augmentation des concentrations avec la pression et les jours de vacances. Ainsi les concentrations de BC_{wb} modélisées par l'algorithme « random forest » à partir des variables météorologiques et « sociales » reposent sur des relations réalistes entre les variables et les concentrations et qui permettent d'expliquer 70% de la variance des concentrations.

L'importance relative des variables a été quantifiée par la mesure du « score-Z » de l'algorithme Boruta (Kursa and Rudnicki, 2010) correspondant approximativement à l'impact de la permutation des variables au niveau des embranchements des arbres, pondéré sur l'ensemble des arbres. Les mesures d'importance des variables ont été trouvées très robustes entre les différents tests de validation croisée, et également entre les sites et les composés. Quatre variables sont prépondérantes pour les concentrations hivernales : ΔT, la concentration à J-1, la température, et la vitesse moyenne du vent, qui représentent à elles 4 plus de 60% de l'influence de l'ensemble des variables sur les concentrations. Ces résultats sont en accord avec d'autres études (Czernecki et al, 2017; Grange et al, 2018). Malgré cela, quelques différences sont notables entre les sites, notamment pour la variable ΔT, qui a une influence relative de 23% sur le site de Passy avec la concentration à J-1 de PM₁₀, BC_{ff} ou BC_{wb}, 23% sur le site de Chamonix avec la concentration à J-1 de BC_{wb} mais seulement 15% sur le site de Marnaz avec la concentration à J-1 de BC_{wb}. En dépit de ces différences, une classification des journées selon chacun des sites a donc pu être établie à partir des variables, qui prend en compte une pondération par les mesures d'importance déterminées par cet algorithme Boruta.

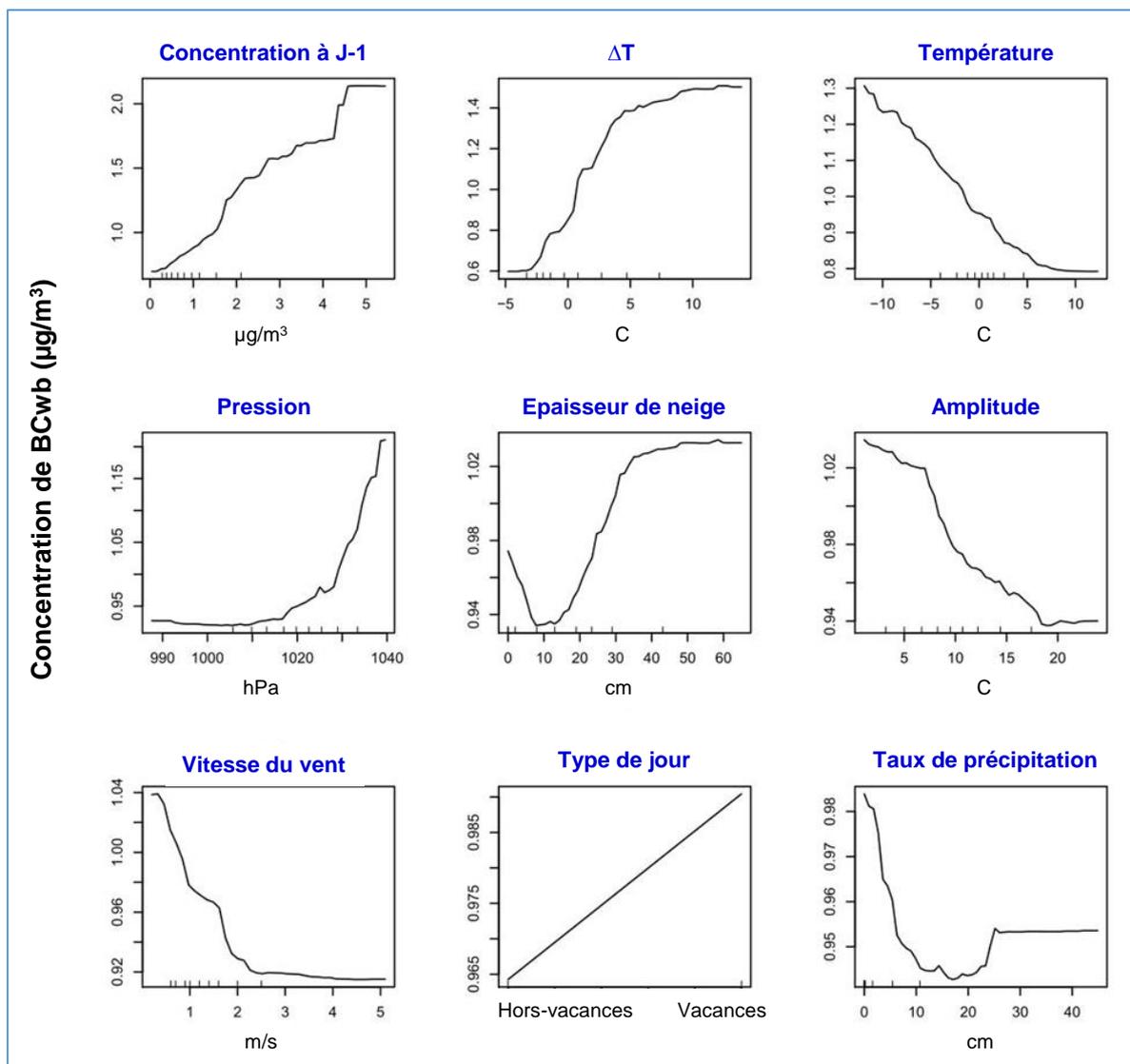


Figure 11-3 : Influence de chaque variable météorologique ou sociale sur les concentrations hivernales de BCwb du site de Chamonix en prenant en compte l'influence des autres variables météorologiques ou sociales.

3) Classification automatique des variables météorologiques et sociales

L'algorithme de classification hiérarchique de Ward (Ward, 1963) est une des méthodes de clustering les plus courantes. Un point délicat ayant une importance élevée sur les résultats obtenus est le choix d'une métrique de dissimilarité à partir de laquelle les dissemblances entre les conditions atmosphériques journalières (dans notre cas) seront calculées. Au début du processus de classification, chaque condition atmosphérique journalière représente une classe puis, à chaque étape, les 2 conditions journalières ou groupe de conditions journalières les plus proches sont regroupés selon le critère d'agrégation de Ward afin d'obtenir à la fin une unique classe contenant toutes les conditions atmosphériques journalières. L'opérateur doit ensuite choisir l'étape du processus (ie le nombre final de classes) correspondant à une agrégation réaliste pour les paramètres considérés.

Dans notre cas, à partir des conditions atmosphériques hiérarchisées, la détermination du nombre de classes le plus pertinent a été effectuée à partir de plusieurs critères de qualité des classes, en se basant aussi sur l'interprétation météorologique et la concordance des classes sur les 3 sites. Le nombre de classes établi, un deuxième algorithme de clustering a été ensuite appliqué dit fuzzy-clustering (Kaufman and Rousseeuw, 1990) permettant de quantifier l'appartenance de chaque journée à chacune des classes. Le Tableau 11-3 récapitule plus précisément les différents outils utilisés. Ce travail se base sur le package cluster du logiciel R.

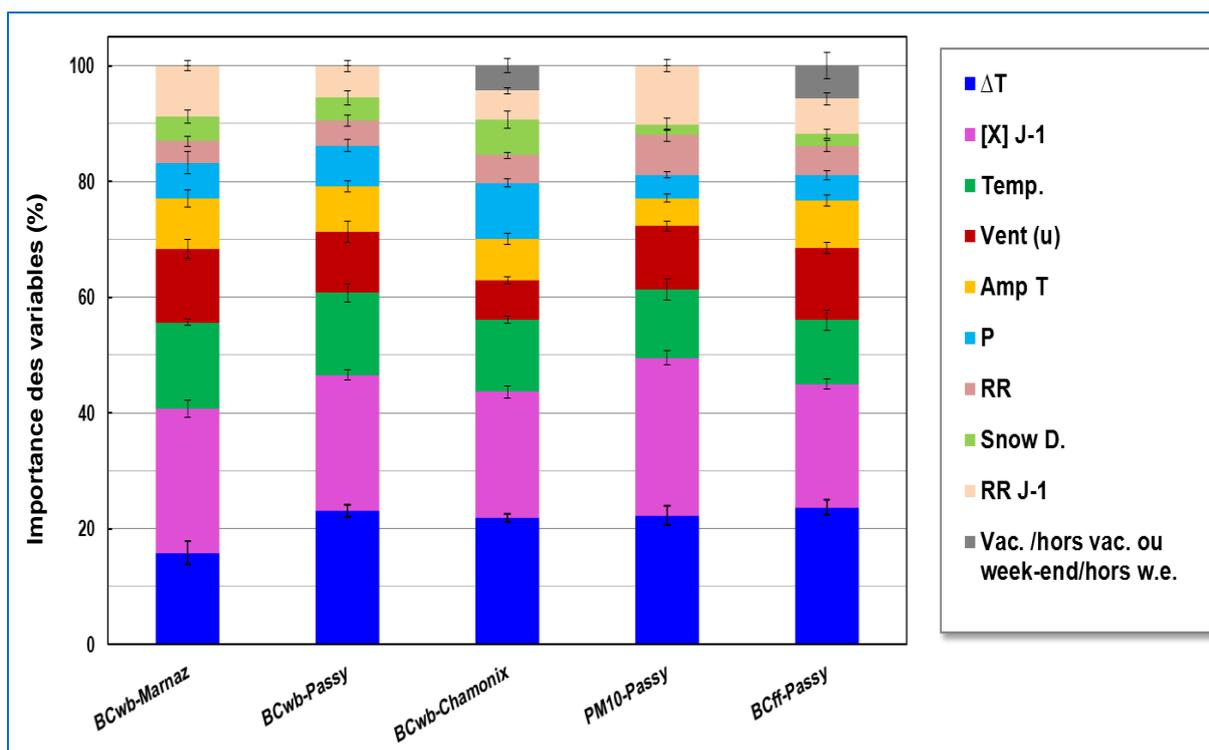


Figure 11-4: Influence relative des variables météorologiques ou « sociales » sur les concentrations de BCwb sur les 3 sites et de BCff et PM₁₀ sur le site de Passy. La mesure d'importance correspond au score Z calculée par l'algorithme Boruta (Kursa and Rudnicki, 2010).

Critère ou Indicateur	Principe d'application
Distance de Gower (Gower, 1971)	Métrique de dissimilarité choisi qui peut prendre en compte des variables qualitatives (type de jour) et quantitatives. Les variables quantitatives ont été normalisées avant d'utiliser la métrique de Gower pondérée par les poids d'influence des variables.
Méthode de Ward (Ward, 1963)	Critère d'agrégation des jours. La meilleure classification est celle qui présentera une inertie intra-classe minimum et une inertie inter-classe maximum. Selon Ward, les classes sont agrégées à chaque itération en minimisant le gain d'inertie intra-classe.
Saut d'inertie	Aide au choix du nombre de classe. Représente la décroissance de la variance inter-classe, on recherche le plus grand « saut » d'inertie selon le nombre de classe.
Appartenance des journées à une classe (Kaufman and Rousseeuw, 1990)	Cette mesure d'appartenance possède plusieurs propriétés : la somme des appartenances d'une journée à l'ensemble des classes est égale à 1. Plus une appartenance s'approche de 1, plus les conditions atmosphériques de la journée correspondent à celles de la classe définie.

Tableau 11-3 : Présentation des différents critères ou indicateurs utilisés dans la classification automatique

Afin de pouvoir déterminer les classes, l'algorithme de Ward a été appliqué sur différentes variantes de jeux de données permettant de tester la robustesse de la classification entre les différents sites et

entre des composés différents pour la variable « concentration à J-1 » sur chacun des sites. Cinq jeux de données ont été utilisés, se distinguant par :

- jeux de données de Passy : utilisation des concentrations à J-1 soit de BC_{ff} , de BC_{wb} , ou de PM_{10}
- jeux de données de Chamonix : utilisation des concentrations à J-1 de BC_{wb}
- jeux de données de Marnaz : utilisation des concentrations à J-1 de BC_{wb} .

Les différents dendrogrammes (dont un exemple est représenté Figure 11-4 ci-dessus) et les graphiques de l'évolution de l'inertie inter-classe en fonction du nombre de classes ont permis de définir que le nombre le plus pertinent de types de conditions atmosphériques était de 4 pour les sites de Passy et Marnaz et de 3 pour le site de Chamonix. Les distributions des variables météorologiques (et « sociales ») sont statistiquement différentes selon les classes et sont présentées plus en détail dans l'Annexe 12. Les mêmes caractéristiques météorologiques entre les différentes classes ont été retrouvées sur les 5 jeux de données. A partir de ces caractéristiques météorologiques, un nom a été attribuée à chacune des 4 classes : « Inversion », « Dispersion », « Concentration forte à J-1 » et « Printanière » (cf section 4.2.1.).

La quantification de l'appartenance des journées aux différentes classes a été utilisée afin de déterminer des journées ayant des conditions atmosphériques le plus homogène possible au sein des classes tout en conservant un effectif statistique relativement grand au sein des classes. Le seuil d'appartenance maximale à une classe de 0,98 permet d'obtenir des effectifs de jours compris entre 44 et 162 par classe. La Figure 11-4 représente les 4 clusters obtenus sur le site de Passy avec cette sélection.

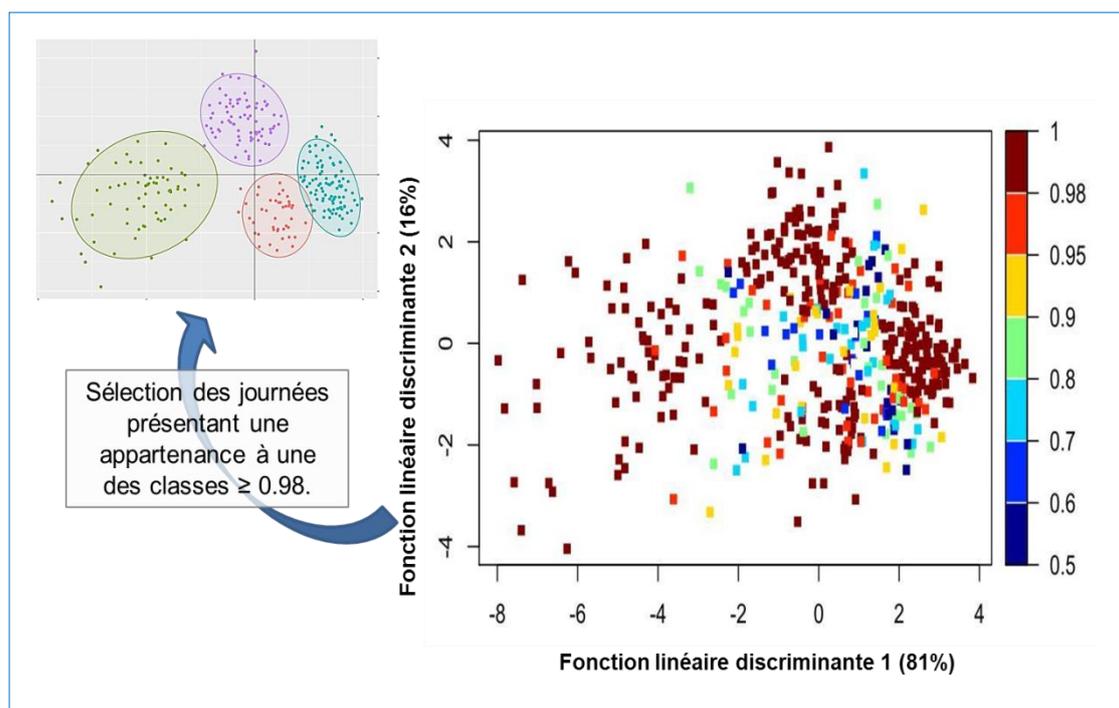


Figure 11-5 : Appartenance maximale d'une journée à une classe pour la base de données de Passy avec les concentrations de BC_{wb} à J-1. La sélection des journées ayant une appartenance maximale $\geq 0,98$ permet d'obtenir des classes de conditions journalières plus homogènes tout en gardant un effectif relativement robuste pour les analyses suivantes.

Dans l'objectif de valider les 3 ou 4 types de conditions atmosphériques déterminés selon le site, la correspondance des jours selon les classes entre les différentes classifications a été vérifiée. La Figure 11-6 représente la correspondance des jours classifiés sur les 4 hivers par l'utilisation de rectangles proportionnels à l'effectif, et colorés selon le type de conditions atmosphériques. Globalement, les types de conditions sont bien retrouvés temporellement sur les 3 sites, malgré

l'utilisation de jeux de données spécifiques à chaque site ainsi que de facteurs de pondération un peu différents, notamment entre Marnaz et les 2 autres sites. Deux jeux de données ne permettent d'établir que 3 types de classes pertinentes au lieu de 4 : celui du site de Chamonix avec les concentrations de BC_{wb} à J-1 et celui du site de Passy avec les concentrations de BC_{ff} à J-1. Dans les deux cas, c'est la classe dite « Concentration forte à J-1 » qui n'est pas retrouvée.

Certains points ont été mis en évidence avec la comparaison des séries temporelles des classes de conditions atmosphériques entre les différentes classifications :

- Les journées classées de type « Dispersion » et « Inversion » sont celles concordant de manière quasi-identique dans toutes les variantes de classification.
- La classe « Concentration forte à J-1 » est particulière, n'étant pas retrouvée avec le jeu de données du site de Chamonix avec les concentrations de BC_{wb} à J-1 et celui du site de Passy avec les concentrations de BC_{ff} à J-1. Cette classe correspond météorologiquement aux conditions des journées de type « Dispersion » avec la caractéristique supplémentaire d'une concentration forte la veille. Cette concentration semble être davantage liée à la source de combustion de la biomasse et aux sites de Marnaz et Passy. On pourrait faire l'hypothèse d'un système de vent de pente plus intense à Chamonix qu'au niveau des 2 autres sites, expliquant que la majorité des journées classées « Concentration forte à J-1 » sur le site de Passy sont classées de type « Dispersion » à Chamonix.
- On peut noter également que certains jours classés de type « Printaniers » dans la classification avec les concentrations de BC_{wb} à J-1 sont classés de type « Concentration forte à J-1 » avec les PM₁₀. Cela peut s'expliquer par l'impact d'autres sources que la combustion de biomasse, notamment des nitrates qui peuvent être à l'origine de pic de pollution particulière au printemps.

On retiendra finalement que les classes « Dispersion » et « Inversion », dont les caractéristiques météorologiques et la concordance temporelle sont retrouvées dans toutes les variantes de classifications, sont les plus robustes.

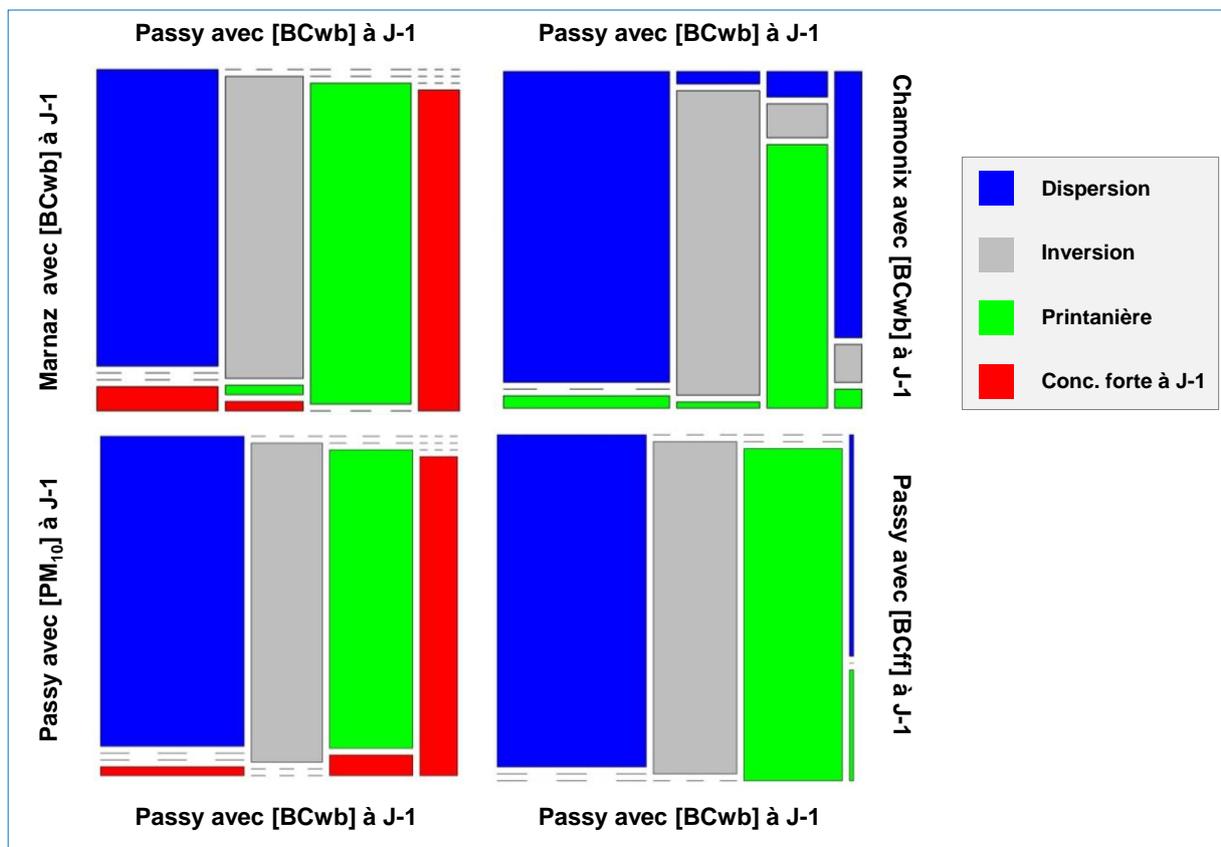


Figure 11-6 : Concordances temporelles des types de conditions atmosphériques selon les différentes classifications effectuées. Seuls sont considérées les classes pour les journées définies comme bien classées avec une appartenance établie par le clustering fuzzy ≥ 0.98 . L'aire des rectangles est proportionnelle à l'effectif et colorée selon le type de conditions atmosphériques.

4) Pertinence et limites de cette classification

La classification effectuée se distingue de la majorité des classifications météorologiques ou synoptiques qui ont été utilisées pour les études de l'influence météorologique sur les concentrations par l'utilisation de variables non-météorologiques : la distinction des jours de vacances et la concentration à J-1. Ces variables présentent un intérêt pour caractériser des conditions similaires puisqu'il a été abondamment montré dans la littérature que ces variables étaient très influentes sur les concentrations (Jaffrezo et al, 2005 ; Barmpadinos et al, 2011). Czernecki et al (2017) ont d'ailleurs montré que la concentration à J-1 était la variable la plus influente sur les concentrations journalières de PM₁₀ dans la ville de Poznan en Pologne, devant la hauteur de la couche limite.

Outre l'utilisation de variables influentes sur les concentrations qui ne sont généralement pas prises en compte, un autre apport de notre méthode provient de la pondération des variables selon leur influence relative sur les concentrations. Pour évaluer cet effet, une comparaison a été effectuée entre des classifications sur le site de Passy avec les concentrations de BC_{wb} à J-1, avec et sans pondération des variables. La détermination du nombre de classes et moins aisée dans ce dernier cas, le graphe (non présenté) de l'inertie entre chaque création de classes ne présentant pas de saut majeur. En considérant 4 classes, la classification à partir des variables non pondérées présente des classes météorologiquement différentes (notamment, la classe « Concentration à J-1 » qui n'est pas reconnue, et la classe « Printanière » qui est météorologiquement plus proches de la classe « Dispersion »). Ceci s'explique par le fait que ce ne sont pas les mêmes variables qui ont permis de déterminer les clusters dans les 2 cas, comme le montre la Figure 11-7. Dans la classification avec les variables pondérées, ce sont les variables ΔT , [BCwb] à J-1, amplitude thermique, et température, qui permettent de discriminer les 4 groupes tandis que ce sont principalement les taux de précipitation, le vent, et ΔT pour l'établissement des clusters sans pondération des variables. Ainsi, la pondération des variables permet bien d'établir une classification des conditions atmosphériques beaucoup plus orientées sur les variables très influentes sur les concentrations.

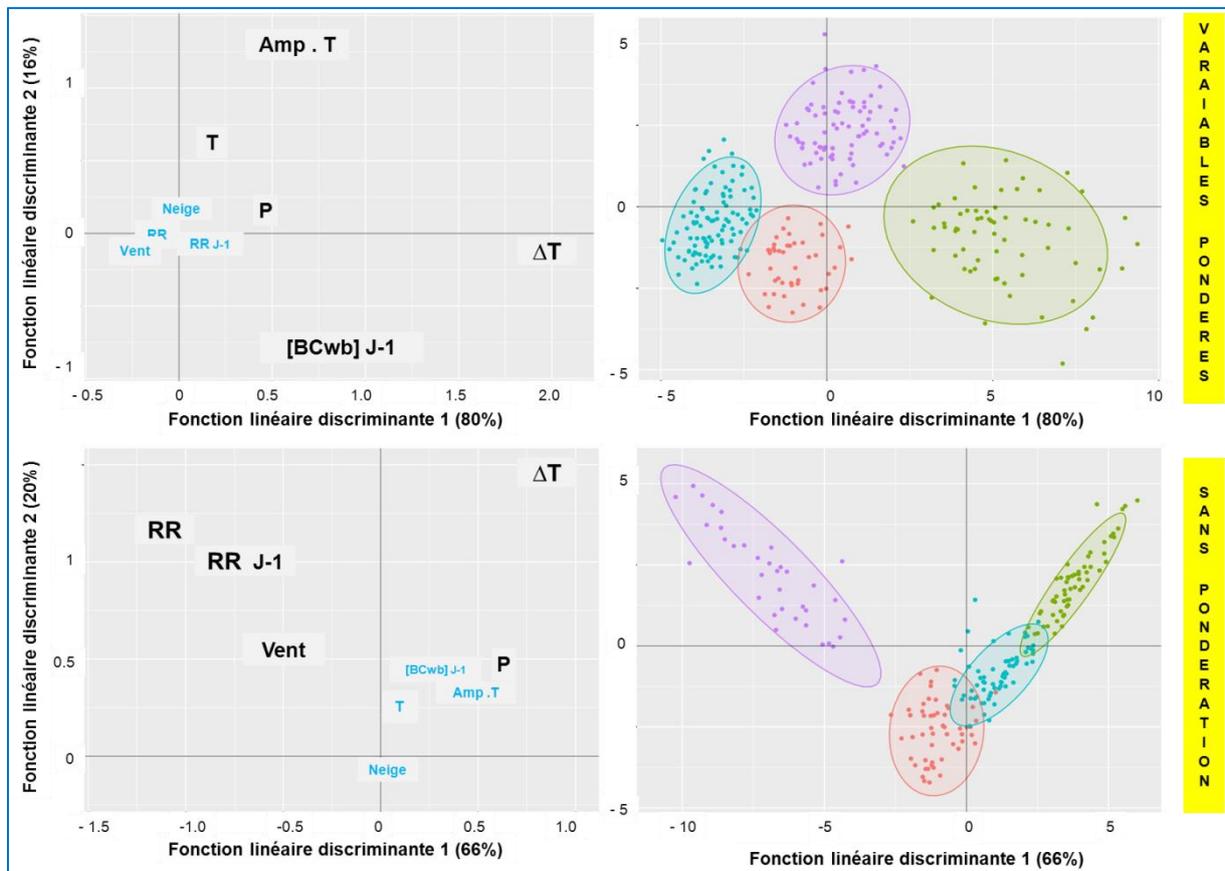


Figure 11-7 : Graphiques de discrimination des variables et représentation des 4 clusters en fonction des 2 premières fonctions linéaires de discrimination pour la classification à partir des variables pondérées et celles obtenues sans pondération des variables avec le jeu de données de Passy [BCwb] à J-1.

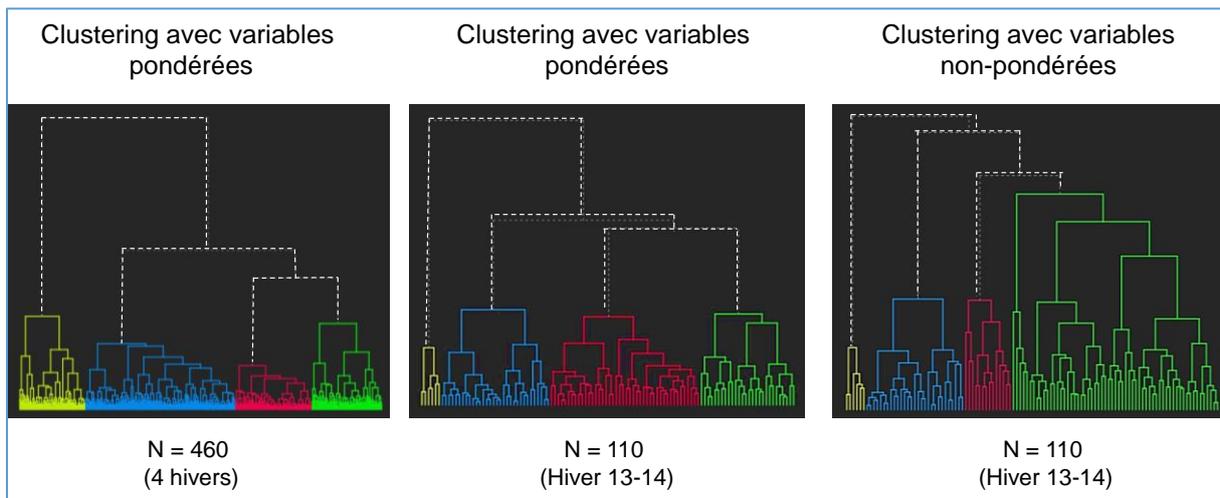


Figure 11-6 : Dendrogrammes issues de l'algorithme de Ward réalisées sur le jeu de données de Passy avec la concentration BC_{wb} à J-1. De gauche à droite, le 1^{er} dendrogramme correspond à l'utilisation des facteurs de pondération des variables et de l'ensemble des données, le 2^{ème} correspond à l'utilisation uniquement des mesures journalières du 1^{er} hiver et le 3^{ème} dendrogramme a été réalisé sur les mesures journalières du 1^{er} hiver mais sans pondérations des variables.

La comparaison des classifications avec ou sans pondération des variables a été également appliquée sur un nombre plus restreint d'observations correspondant aux journées du 1^{er} hiver afin de savoir s'il était possible de retrouver les différentes classes de conditions atmosphériques avec moins de données. La Figure 11-8 illustre aussi les dendrogrammes obtenus avec la classification de Ward avec (a) l'utilisation des variables pondérées sur les 4 hivers, (b) seulement sur le 1^{er} hiver et (c) sur le 1^{er} hiver avec les variables non pondérées. Avec un nombre plus restreint de jours, la pondération des variables permet de classifier plus robustement les journées qu'avec l'utilisation de variables non pondérées.

Cependant, malgré ces apports indéniables, la pertinence de l'utilisation des classifications établies avec les variables pondérées pour l'évaluation de l'impact d'une réduction des émissions est en partie limitée

- par l'existence d'une variabilité des conditions météorologiques inter-hivers au sein des classes. L'Annexe 12 présente plus en détail les écarts mesurés pour les moyennes des différents paramètres importants entre les 4 hivers. Un plus grand nombre de jours serait nécessaire pour une plus grande puissance statistique et une classification peut-être plus fine,
- par l'utilisation de la concentration à J-1 d'une espèce chimique spécifique d'une source, ce qui pose la question de l'utilisation de la classification ainsi établie pour évaluer la réduction d'émissions de sources différentes. Comme on l'a précédemment vu, l'utilisation de la concentration de PM_{10} ou BC_{wb} à J-1 conduit à ce que certains jours soient classés dans des types de conditions différents. De même, l'influence de certains paramètres météorologiques pourrait être différente selon l'espèce chimique considérée, par exemple entre l' O_3 et les PM_{10} .
- par les mesures de vitesse de vent qui ne sont disponibles qu'en un seul site situé en aval du site de Marnaz. Ces données, également utilisées pour les sites de Passy et Chamonix, peuvent ne pas être représentatives de conditions spécifiques à ces parties plus encaissées de la Vallée de l'Arve. La direction du vent, étant encore plus influencée par les orientations des vallées, n'a pu être considérée dans la classification, alors qu'elle figure dans la majorité des autres classifications (Philipp et al, 2010).

Ainsi, une amélioration de cette méthodologie pourrait peut-être être effectuée en incluant des paramètres à l'échelle synoptique, ainsi que la direction du vent.

Bibliographie

- Ayomos, G. (2005). *Etude de la fraction carbonée de l'aérosol atmosphérique à Chamonix et St Jean de Maurienne: évolutions saisonnières, sources et caractéristiques chimiques*. Thèse de l'Université Joseph Fourier-Grenoble.
- Aymoz, G., Jaffrezo, J., Jacob, V., Colomb, A., & George, C. (2004). Evolution of organic and inorganic components of aerosol during a Saharan dust episode observed in the French Alps. *Atmospheric Chemistry and Physics*, 4(2499-2512).
- Barnpadinos, I., Hueglin, C., J., et al (2011). Influence of meteorology on PM10 trends and variability in Switzerland from 1991 to 2008. *Atmospheric Chemistry and Physics*, 11(1813-1835).
- Carlsaw, D., Taylor, P. (2009). Analysis of air pollution data at a mixed source location using boosted regression trees. *Atmospheric Environment*, 43(3563-3570).
- Chemel, C., Arduini, G., Staquet, C., Llargeron, Y., Legain, D., Tzanos, D., et al. (2016). Valley heat deficit as a bulk measure of wintertime particulate air pollution in the Arve River Valley. *Atmospheric Environment*, 128(208-215), pp. 128, 208-215.
- Czernecki, B., Polrolniczak, M., Kolendowicz, L., Marosz, M., Kendzierski, S., Pilgaj, N. (2017). Influence of the atmospheric conditions on PM10 concentrations in Poznan, Poland. *Journal of Atmospheric Chemistry*, pp. 74, 115-139.
- Demuzere, M., Triogo, R., Vila-Guerau de Arellano, N. (2009). The impact of weather and atmospheric circulation on O3 and PM10 in mid-latitude site. *Atmospheric Chemistry and Physics*, pp. 9, 2695-2714.
- Fung, W., Lam, K., Hung, W., et al (2006). Impact of urban temperature on energy consumption of Hong Kong. *Energy*, 31(11), 2623-2637).
- Giri, D., Krishna Murthy, V., Adhikary, P. (2008). The influence of meteorological conditions on PM10 concentrations in Kathmandu valley. *International Journal Environment Research*, 2(1), 49-60.
- Grange, S.K., Carlsaw, D.C., Lewis, A.C., Boleti, E., Hueglin, C. (2018). Random forest meteorological normalisation models for Swiss PM10 trend analysis. *Atmos. Chem. Phys. Discuss.*
- Green, M., Judith, C., Watson, J. (2015). Effects of snow cover and atmospheric stability on winter PM2.5 concentrations in western U.S. Valleys. *Journal of Applied Meteorology and Climatology*, 54(1191-1201).
- Huth, R., Beck, C., Philipp, A., Demuzere, M., Ustrnul, Z., Cahynova, M., et al. (2008). Classifications of Atmospheric Circulation patterns: recent advances and applications. *Annals of the New York Academy of Sciences*, 105-152.
- Ionescu, A. (2013). Préviation statistique des concentrations de particules dans l'air: tour d'horizon des principaux outils mathématiques. *Pollution atmosphérique*, 217.
- Jaffrezo, J.L., Chapuis D., Jacob, V., et al (2005). *P.O.V.A. (Pollution des Vallées Alpines)*. 245p: rapport ADEME.
- Kahl, J., Martinez, D., Davidson, C., Kuhns, H., Jaffrezo, J., Harris, J. (1997). Air masses trajectories to Summit, Greenland: a 44 year climatology and some episodic events. *J. Geophys. Res.*, pp. special issue on GISP2-GRIP programs, 102, C12, 26, 861-26, 876.
- Karaca, F., Camci, F. (2010). Distant source contributions to PM10 profile evaluated by SOM based cluster analysis of air mass trajectory sets. *Atmospheric Environment*, pp. 44, 892-899.
- Karagiannidis, A., Poupkou, A., Giannaros, T., et al (2015). The air quality of a mediterranean urban environment area and its relation to major meteorological parameters. *Water Air Soil Pollution*, 2239(226-239).
- Kursa, M., Rudnicki, W. (2010). Feature Selection with the Boruta Package. *Journal of Statistical Software*, 26(11).
- Llargeron, Y., Staquet, C. (2016). Persistent inversion dynamics and wintertime PM10 air pollution in Alpine valleys. *Atmospheric Environment*, 135(92-108).
- Paci, A., Staquet, C., Allard, J., et 21 auteurs (2016). La campagne Passy-2015: dynamique atmosphérique et qualité de l'air dans la vallée de l'Arve. *Pollution Atmosphérique*, 231-232.
- Philipp, A., Bartholy, J., Beck, C., Erpicum, M., Esteban, P., Fettweis, X., et al. (2010). Cost733cat- A database of weather and circulation type classifications. *Physics and Chemistry of the Earth*, pp. 35, 360-373.
- Pleijel, H., Grundstrom, M., Karlsson, G., Karlsson, P. (2016). A method to assess the inter-annual weather-dependent variability in air pollution concentration and deposition based on weather typing. *Atmospheric Environment*, pp. 126, 200-210.
- Rousseeuw, P. (1987). Silhouettes: a graphical aid to the interpretation and validation of cluster analysis. *Journal of Computational and Applied Mathematics*, pp. 20, 53-65.
- Russo, A., Trigo, R., Martins, H., & Mendes, M. (2014). NO₂, PM₁₀, O₃ urban concentrations and its association with circulation weather types in Portugal. *Atmospheric Environment*, pp. 89, 768-785.



- Silcox, G., Kelly, K., Crosman, E., Whiteman, C., Allen, B. L. (2012). Wintertime PM_{2.5} concentrations during persistent, multi-day cold-air pools in a mountain valley. *Atmospheric Environment*, 46(17-24),
- Tai, A., Mickley, L., Jacob, D. (2010). Correlations between fine particulate matter (PM_{2.5}) and meteorological variables in the United States: Implications for the sensitivity of PM_{2.5} to climate change. *Atmospheric Environment*, pp. 44, 3976-3984.
- Triantafyllou, A. (2001). PM10 pollution episodes as a function of synoptic climatology in a mountainous industrial area. *Environmental Pollution*, 112((3), 491-500).
- Vardoulakis, P., Kassemenos, P. (2008). Sources and factors affecting PM₁₀ levels in two European cities: implications for local air quality management. *Atmospheric Environment*, 42((17), 3949-3963).
- Vecchi, R., Marcazzan, G., Valli, G. (2007). A study on nighttime-daytime PM₁₀ concentration and elemental composition in relation to atmospheric dispersion in the urban area of Milan (Italy). *Atmospheric Environment*, 41((10) 2136-2144).
- Wang, W., Chen, K., Wang, S., et al (2009). Modeling atmospheric PM10 concentrations during severe pollution events in southern Taiwan. *Atmospheric Research*, 92((2), 159-171).
- Ward, J. (1963). Hierarchical grouping to optimize an objective function. *Journal of the American Statistical Association*, 58((301), 236-244).
- Whiteman, C., Hoch, S., Horel, J., et al (2014). Relationship between particulate air pollution and meteorological variables in Utah's Salt Lake Valley. *Atmospheric Environment*, 94(742-753).
- Zoras, S., Triantafyllou, A., Deligiorgi, D. (2006). Atmospheric stability and PM10 concentrations at far distance from elevated point sources in complex terrain: worst-case episode study. *Journal of Environmental Management*, 80((4), 295-302).

Annexe 12 : Caractéristiques météorologiques des 4 classes définies

Les Tableaux 1 à 3 récapitulent, pour chacun des 3 sites, les moyennes des 9 variables météorologiques ou « sociales » selon les 4 conditions atmosphériques définies.

Classes	ΔT (°C)	\bar{u} (m/s)	Amp T (°C)	P (hPa)	% jours avec RR ≤ 2 mm	% jours avec snow d. ≥ 2 cm
Dispersion	$-3,4 \pm 0,7$	$2,1 \pm 0,9$	$6,9 \pm 3,4$	1013 ± 9	51 %	10 %
Printanier	$-0,9 \pm 0,9$	$1,2 \pm 0,4$	$18,4 \pm 2,8$	1022 ± 6	96 %	1%
Inversion	$4,0 \pm 1,9$	$0,7 \pm 0,3$	$15,1 \pm 3,6$	1030 ± 5	100 %	11 %
[] forte à J-1	$-2,2 \pm 0,8$	$1,1 \pm 0,4$	$7,3 \pm 2,7$	1020 ± 8	68 %	24 %

Classes	T (°C)	% jours avec RR _{ve} ≤ 2 mm	[BC _{wb}] _{ve} ($\mu\text{g}/\text{m}^3$)	Effectif
Dispersion	$4,3 \pm 2,8$	50 %	$0,9 \pm 0,3$	141
Printanier	$5,8 \pm 2,4$	96 %	$0,9 \pm 0,4$	80
Inversion	$-0,2 \pm 3,5$	100 %	$3,5 \pm 1,5$	64
[] forte à J-1	$0,7 \pm 2,6$	70 %	$2,4 \pm 0,8$	44

Tableau 12-1 : Moyennes et écart-types des variables météorologiques en fonction des 4 classes établis sur le site de Passy en utilisant la concentration de BC_{wb} de la veille et les coefficients d'influence relative associés.

Classes	ΔT (°C)	\bar{u} (m/s)	Amp T (°C)	P (hPa)	% jours avec RR ≤ 2 mm	% jours avec snow d. ≥ 2 cm
Dispersion	$-3,6 \pm 0,8$	$2,3 \pm 0,9$	$5,7 \pm 2,6$	1010 ± 9	38 %	0 %
Printanier	$0,1 \pm 1,6$	$1,1 \pm 0,3$	$15,0 \pm 2,6$	1021 ± 6	95 %	0 %
Inversion	$6,1 \pm 3,3$	$0,6 \pm 0,3$	$10,7 \pm 4,4$	1032 ± 5	100 %	7 %
[] forte à J-1	$-2,2 \pm 1,2$	$1,0 \pm 0,4$	$6,3 \pm 2,7$	1020 ± 9	73 %	24 %

Classes	T (°C)	% jours avec RR _{ve} ≤ 2 mm	[BC _{wb}] _{ve} ($\mu\text{g}/\text{m}^3$)	Effectif
Dispersion	$5,5 \pm 1,8$	38 %	$0,4 \pm 0,2$	52
Printanier	$6,3 \pm 2,3$	97 %	$0,4 \pm 0,2$	61
Inversion	$-1,1 \pm 2,8$	100 %	$1,4 \pm 0,7$	45
[] forte à J-1	$0,4 \pm 1,8$	67 %	$0,8 \pm 0,2$	45

Tableau 12-2 : Moyennes et écart-types des variables météorologiques en fonction des 4 classes établis sur le site de Marnaz en utilisant la concentration de BC_{wb} de la veille et les coefficients d'influence relative associés.

Classes	ΔT (°C)	\bar{u} (m/s)	Amp T (°C)	P (hPa)	% jours avec RR ≤ 2 mm	% jours avec snow d. ≥ 2 cm
Dispersion	$-2,5 \pm 1,0$	$1,7 \pm 0,9$	$6,7 \pm 3,3$	1014 ± 8	56 %	66 %
Printanier	$2,1 \pm 1,2$	$1,1 \pm 0,3$	$16,0 \pm 3,8$	1021 ± 5	96 %	50 %
Inversion	$7,7 \pm 2,3$	$0,8 \pm 0,3$	$12,4 \pm 3,4$	1031 ± 5	97 %	79 %

Classes	T (°C)	% jours avec RR _{ve} ≤ 2 mm	[BC _{wb}] _{ve} ($\mu\text{g}/\text{m}^3$)	% jours hors vacances	Effectif
Dispersion	$1,6 \pm 3,6$	54 %	$0,5 \pm 0,3$	58%	162
Printanier	$2,4 \pm 3,0$	88 %	$0,6 \pm 0,3$	92%	48
Inversion	$-2,8 \pm 3,1$	99 %	$1,9 \pm 0,9$	63%	71

Tableau 12-3 : Moyennes et écart-types des variables météorologiques en fonction des 3 classes établis sur le site de Chamonix en utilisant la concentration de BC_{wb} de la veille et les coefficients d'influence relative associés.

On retiendra que les caractéristiques météorologiques de ces classes de conditions atmosphériques sont très similaires sur les 3 sites, ce qui a participé *in fine* aux critères de sélection de ces classes.

Les limites de cette classification en vue de la comparaison des concentrations au cours des 4 hivers du programme ont été investiguées. Le Tableau 12-4 répertorie les effectifs statistiques selon les hivers en fonction des différentes classes sur les 3 sites. Les variables sélectionnées pour classer les concentrations expliquent environ 70% de la variance des concentrations de BC_{wb} et de PM₁₀ (cf Annexe 11). Une part de la variation des concentrations n'est donc pas expliquée par les variables, nécessitant un effectif relativement robuste pour pouvoir interpréter les résultats de la comparaison des concentrations. La comparaison des journées de type « Printanière » sur le site de Marnaz et Chamonix est ainsi peu interprétable du fait d'un effectif de mesures inférieur à 5, soit lors du 1^{er} hiver soit lors du dernier hiver du programme.

L'homogénéité entre les hivers des valeurs des paramètres les plus influents sur les concentrations de PM₁₀ hivernales (ΔT , concentration à J-1, température journalière, et vitesse moyenne du vent) a été analysée. Ces 4 variables correspondent à plus de 60% de l'influence totale des variables sur les concentrations. La Figure 12-1 représente les écarts de ΔT , concentration à J-1, température journalière, et vitesse du vent moyens hivernaux avec les valeurs moyennes du 1^{er} hiver du programme en fonction des 4 classes sur les 3 sites. Plus les écarts sont proches de 0 pour les 4 variables au cours des hivers au sein d'une classe de conditions atmosphériques, plus les conditions au sein de cette classe ont été qualifiées d'homogènes entre les 4 hivers.

- Sur le site de Marnaz, les journées classées « Inversion » lors du 1^{er} hiver du programme présentent des ΔT supérieurs de 3 à 4°C en moyenne avec celles des 3 autres hivers, la température est, de plus, de 3,5 à 4,4°C inférieure lors de ces journées du 1^{er} hiver par rapport aux autres.
- Sur le site de Chamonix, les journées de la classe « Printanière » présentent de forts écarts de température (jusqu'à 4,6°C avec le 1^{er} hiver) et également de forts écarts du ratio entre les concentrations de BC_{wb} à J-1 et à J avec des ratios relativement plus élevés lors du 4^{ème} hiver. Cela traduit que les concentrations de BC_{wb} à J-1 sont donc plus élevées par rapport aux concentrations de BC_{wb} à J que lors du 1^{er} hiver. Les journées de type « Inversion » lors du 4^{ème} hiver présentent des températures inférieures de 4°C en moyenne avec le 1^{er} hiver.
- Par rapport aux autres, les 4 classes « Dispersion », « Inversion », « Printanière » et « Concentration forte à J-1 » sur le site de Passy présentent de faibles écarts des paramètres moyens sur les 4 hivers. La classe « Dispersion » est celle présentant le moins d'écart entre les hivers pour pouvoir comparer l'évolution des concentrations au cours des hivers sur les 3 sites.

Ainsi, la classification des conditions atmosphériques est limitée pour la comparaison des concentrations au cours des 4 hivers en raison de variations de variables très influentes sur les concentrations au cours des hivers au sein de certaines classes. La classe « Dispersion » est celle présentant des mesures de ΔT , concentration à J-1, vitesse de vent et température journalière les plus homogènes entre les 4 hivers et les moins dispersées au niveau des 3 sites.

Effectif par classe	Marnaz				Passy				Chamonix		
	D	I	Cf	P	D	I	Cf	P	D	I	P
Hiv 13-14	16	15	16	24	26	7	19	13	30	9	2
Hiv 14-15	13	12	17	24	31	15	11	18	39	18	8
Hiv 15-16	17	11	7	10	35	27	5	6	36	29	4
Hiv 16-17	6	7	5	4	13	15	8	16	22	15	15

Tableau 12-4 : Effectif de journées sur les périodes du 15/11 au 15/03 en fonction des classes de conditions atmosphériques : D pour « Dispersion », I pour « Inversion », Cf pour « Concentration forte à J-1 » et P pour « Printanière » sur les 3 sites. Les effectifs inférieurs ou égaux à 5 journées sont indiqués en italique et en gras.

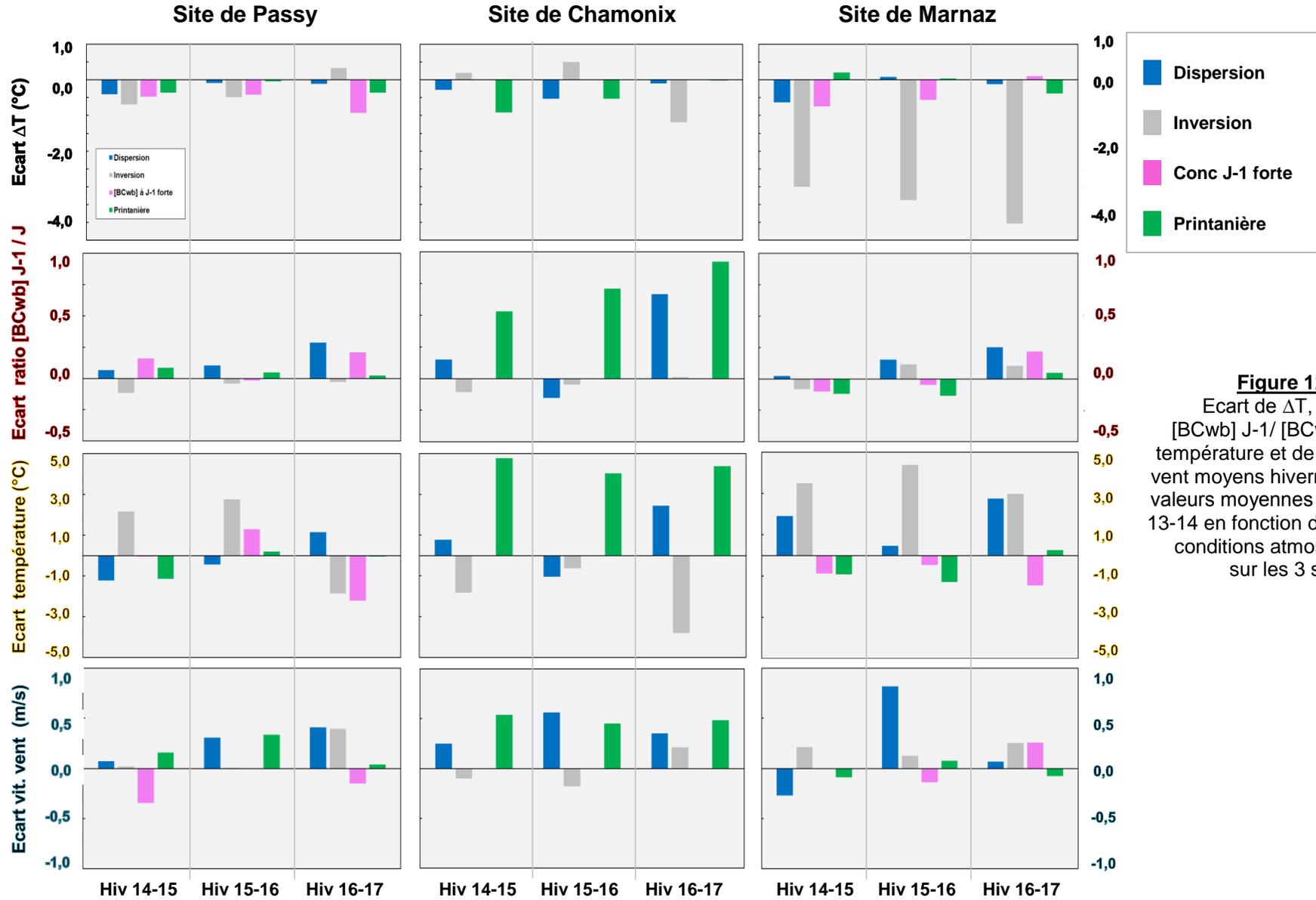


Figure 12-1:
 Ecart de ΔT , du ratio [BCwb] J-1/ [BCwb] J, de la température et de la vitesse du vent moyens hivernaux avec les valeurs moyennes lors de l'hiver 13-14 en fonction des classes de conditions atmosphériques sur les 3 sites.

Annexe 13 : Evolutions des concentrations de traceur de la combustion de la biomasse et des PM_{10wb} selon les 4 classes de conditions atmosphériques, pour les 3 sites

La section 4.2.2 du rapport principal présente les évolutions pour les 4 hivers des concentrations moyennes de PM₁₀, EC, eBC, BC_{wb} et lévoglucosan pour les 3 sites et pour la classe « Dispersion » (figure 30), ainsi que les évolutions pour les 4 hivers des concentrations de PM_{10wb} pour le site de Passy, pour les 4 classes (figure 31). Il a été montré que ce sont les seules comparaisons statistiquement valides qui pouvaient être menées, bien que les conditions des différents hivers de la classe « Inversion » à Passy n'étaient pas rigoureusement semblables. Dans cette annexe 13 sont proposées **à titre indicatif** les évolutions des concentrations moyennes pour chaque hiver et chacune des classes pour les PM_{10wb} et le lévoglucosan, pour chacun des sites (Passy figure 13-1 ; Chamonix figure 13-2, et Marnaz figure 13-3).

Sur le **site de Passy**, les concentrations du lévoglucosan diminuent globalement entre le 1^{er} et la 4^{ème} hiver entre 14 et 36% selon la classe de conditions atmosphériques, tandis que les concentrations de BC_{wb} et PM_{10wb} diminuent entre 21 et 40% entre le 1^{er} et le 4^{ème} hiver à l'exception des conditions atmosphériques dites « printanières ». Ainsi, l'évolution des concentrations au cours des hivers est différente selon l'espèce considérée ainsi que selon les classes de conditions atmosphériques. Plusieurs explications à ces écarts ont été mentionnées dans l'Annexe 12 ainsi que dans le corps du rapport principal. D'une part, la représentativité spatiale des mesures de concentrations qui dépend des conditions de dispersion est très probablement variable entre les classes, les conditions de dispersion étant différentes. Deuxièmement, les conditions atmosphériques (en particulier la température) au sein d'une même classe peuvent être hétérogènes entre les hivers, faussant la comparaison entre les hivers. D'autre part, Bertrand et al (2017) ont montré que le profil chimique des poêles à granulés étaient très différent des profils chimiques des poêles à bûches, avec une prédominance de la matière carbonée élémentaire et une très faible concentration de matière organique, dont le lévoglucosan fait partie. La diminution plus importante des concentrations de lévoglucosan par rapport aux concentrations de BC_{wb} et PM_{10wb} (calculé sur la base de BC_{wb}) pourrait donc être due au remplacement des appareils de chauffage au bois non performants au profit d'appareil à granulés autour des stations. L'évolution des concentrations de PM_{10wb} et de lévoglucosan pour la classe « Printanière » pose question : les concentrations de lévoglucosan montrent bien une diminution tandis que les concentrations de BC_{wb} (et donc de PM_{10wb}) ne diminuent que très faiblement. Ce phénomène n'a pas pu être observé sur les 2 autres sites du fait d'effectif trop restreint. La mesure de BC_{wb} dépendant des mesures de propriétés optiques de l'aérosol, l'hypothèse d'une variation de ces propriétés au cours des hivers et qui serait plus visible pour les conditions printanières a été avancée.

Sur le **site de Chamonix**, une diminution des concentrations BC_{wb} (et donc de PM_{10wb}) de l'ordre de 55% est constatée entre le 1^{er} et le 4^{ème} hiver lors des conditions atmosphériques dites de « Dispersion » (également vue pour la classe « Printanière », mais le 1^{er} hiver ne compte que 2 mesures pour cette classe). Pour les journées de type « Inversion », une diminution plus faible, de -20%, est observée entre le 1^{er} et le 4^{ème} hiver. Les concentrations de lévoglucosan diminuent également entre le 1^{er} et le 4^{ème} hiver pour les 3 types de conditions, bien que plus faiblement que les concentrations de BC_{wb}. L'interprétation de l'écart entre les évolutions des 2 traceurs est cependant restreinte du fait des effectifs très faibles des mesures de lévoglucosan (entre 2 et 7 par hiver). Les concentrations de PM₁₀ présentent quant-à-elles une diminution de l'ordre de 20% entre le 1^{er} et le 4^{ème} hiver pour les classes « Dispersion » et « Printanières », tandis qu'elles sont relativement stables au cours du programme pour les conditions de type « Inversion ».

Sur le **site de Marnaz**, une période plus élargie des mesures (du 01/11 au 31/03) a été considérée permettant de pouvoir considérer quelques mesures de concentrations de lévoglucosan (en raison du dysfonctionnement de l'AE33 durant plus d'un mois lors du 4^{ème} hiver). Les tendances observées des concentrations sont cependant très similaires à celles vues sur la période plus restreinte du 15/11 au 15/03. Pour les classes « Dispersion » et « Inversion », une diminution entre 30 et 40% entre le 1^{er} et le 4^{ème} hiver est observée pour les concentrations de lévoglucosan, PM_{10wb} et PM₁₀. A l'opposé, les concentrations de BC_{wb} et lévoglucosan restent relativement stables lors des conditions « Concentration forte la veille », tandis qu'une augmentation relativement importante est observée pour les concentrations de PM₁₀. Les concentrations ne peuvent pas être pertinemment comparées pour la classe « Printanière » avec un effectif de 3 mesures lors du 4^{ème} hiver.

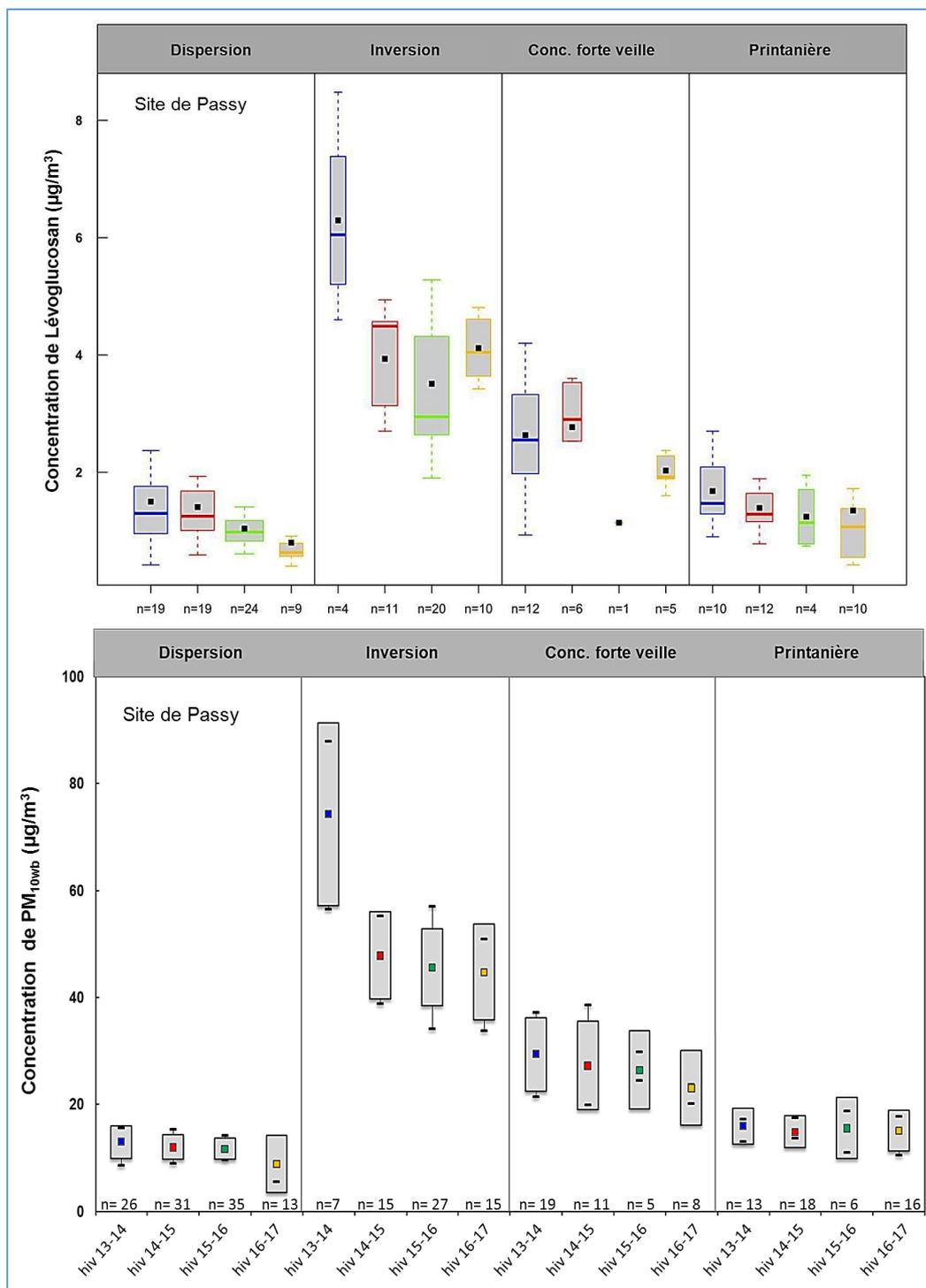


Figure 13-1 : Représentation de type « Boxplot » des concentrations de lévoglucosan et $\text{PM}_{10\text{wb}}$ issues des mesures de BC_{wb} au cours des 4 hivers (15/11 au 15/03) selon les différentes classes de conditions atmosphériques sur le site de **Passy**. Evolutions des concentrations moyennes et de leurs incertitudes avec un intervalle de confiance à 95%.

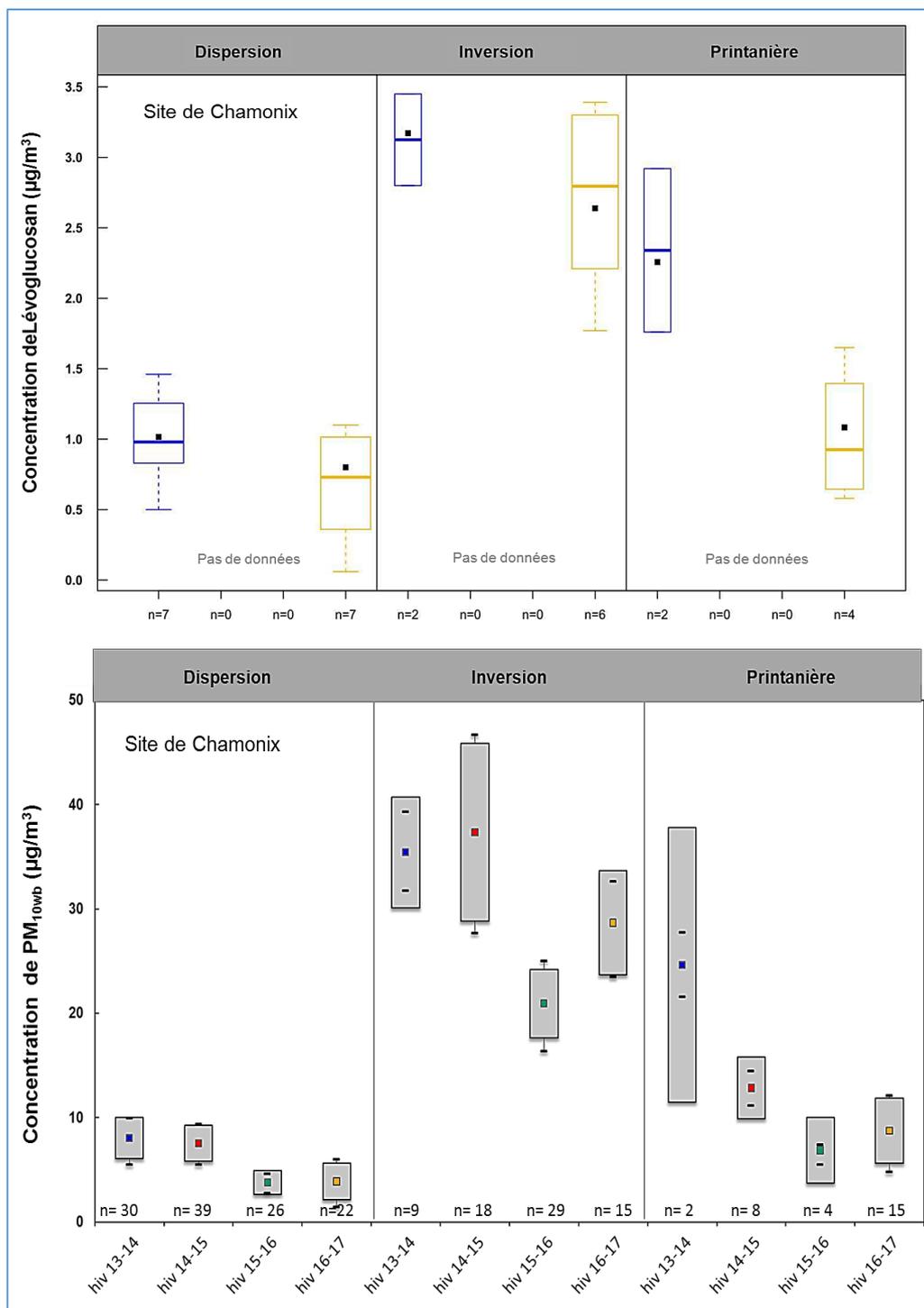


Figure 13-2 : Représentation de type « Boxplot » des concentrations de lévoglucosan et PM_{10wb} issues des mesures de BC_{wb} au cours des 4 hivers (15/11 au 15/03) selon les différentes classes de conditions atmosphériques sur le site de **Chamonix**. Evolutions des concentrations moyennes et de leurs incertitudes avec un intervalle de confiance à 95%.

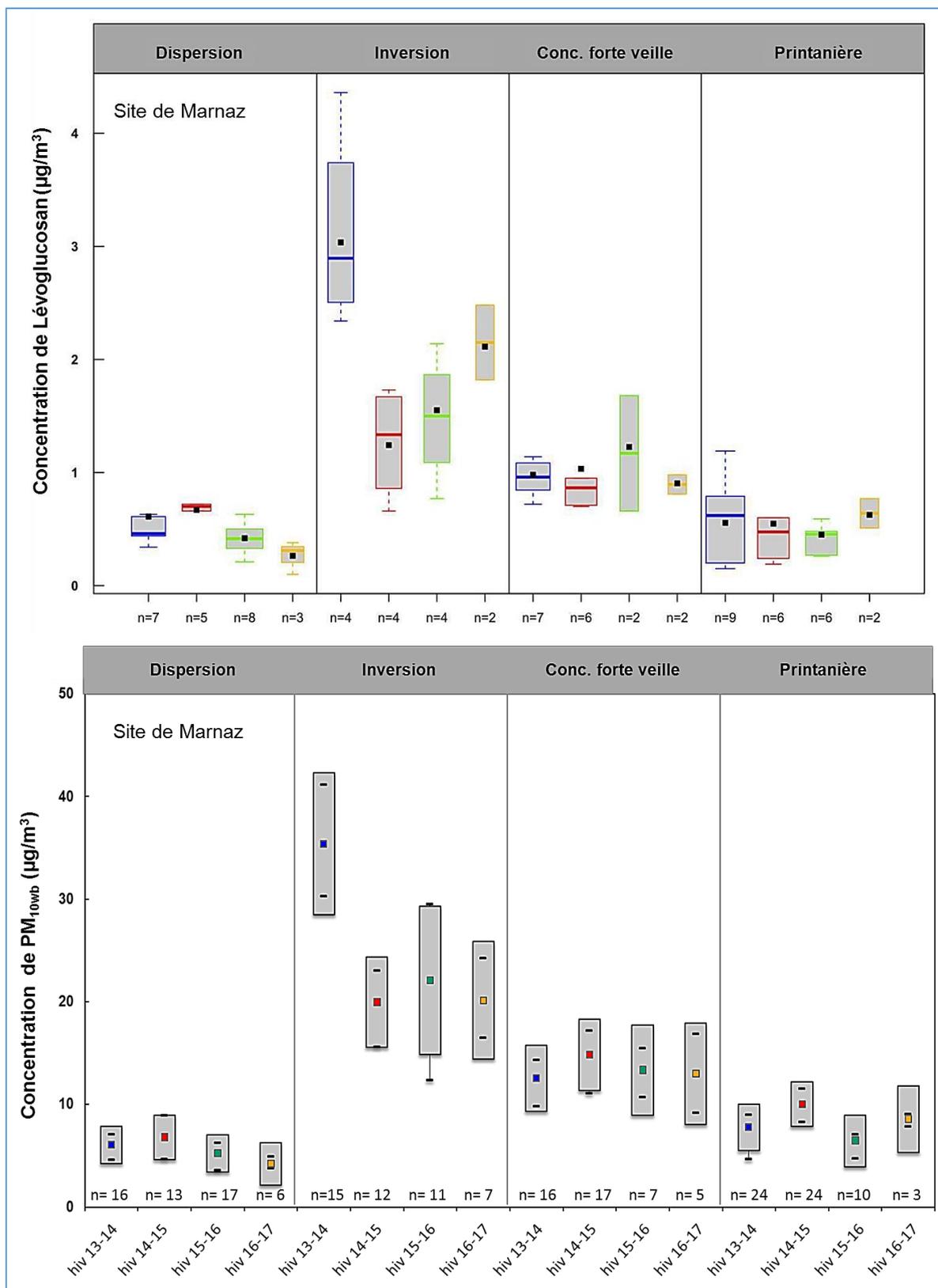


Figure 13-3 : Représentation de type « Boxplot » des concentrations de lévoglucosan et $\text{PM}_{10\text{wb}}$ issues des mesures de BC_{wb} au cours des 4 hivers (15/11 au 15/03) selon les différentes classes de conditions atmosphériques sur le site de **Marnaz**. Evolutions des concentrations moyennes et de leurs incertitudes avec un intervalle de confiance à 95%.

Annexe 14 : Analyse des consommations de bois déclarées dans la vallée de l'Arve

1 - Influence des paramètres environnementaux et comportementaux sur les consommations de bois déclarées

L'enquête « DREAL » est une enquête ménage réalisée par ATMO-AuRA en 2010 afin d'améliorer l'estimation des émissions du secteur résidentiel pour la création du PPA. 322 utilisateurs d'appareil de chauffage au bois ont répondu à cette enquête. Les données de l'enquête DREAL permettent d'investiguer l'influence de paramètres environnementaux mais aussi comportementaux sur les consommations unitaires déclarées.

Les consommations énergétiques font l'objet de nombreuses modélisations autant par les ingénieurs que par les économistes. Les modèles dits « ingénieurs » sont basés sur une représentation simplifiée des lois physiques liant la performance des technologies, leur usage et leur environnement physique aux consommations d'énergie. La méthode de reconstruction des consommations de bois dans l'inventaire ATMO-AuRA peut être vue comme un modèle ingénieur. Les études comparant des consommations énergétiques calculées par un modèle ingénieur et les consommations réelles ont cependant montré d'importants écarts (Allibe, 2009 ; Cayla et al, 2010). Les comportements des ménages, non modélisés dans les modèles dits ingénieur, jouent un rôle essentiel sur la consommation de bois, avec par exemple le niveau de confort thermique, ou encore les pratiques de combustion et d'entretien de l'appareil (Guide pratique Ademe, 2015). Allibe et al (2010) justifient l'écart trouvé entre les consommations énergétiques modélisées et les consommations réelles par la non-correspondance entre le comportement « normal » sur lequel se basent les modèles ingénieurs et le comportement moyen. L'étude QUALICOMB (rapport Ademe, 2016) a quant à elle bien montré l'influence d'autres facteurs, comme la nature du combustible (humidité du bois, essence du bois), sur les émissions et les performances énergétiques.

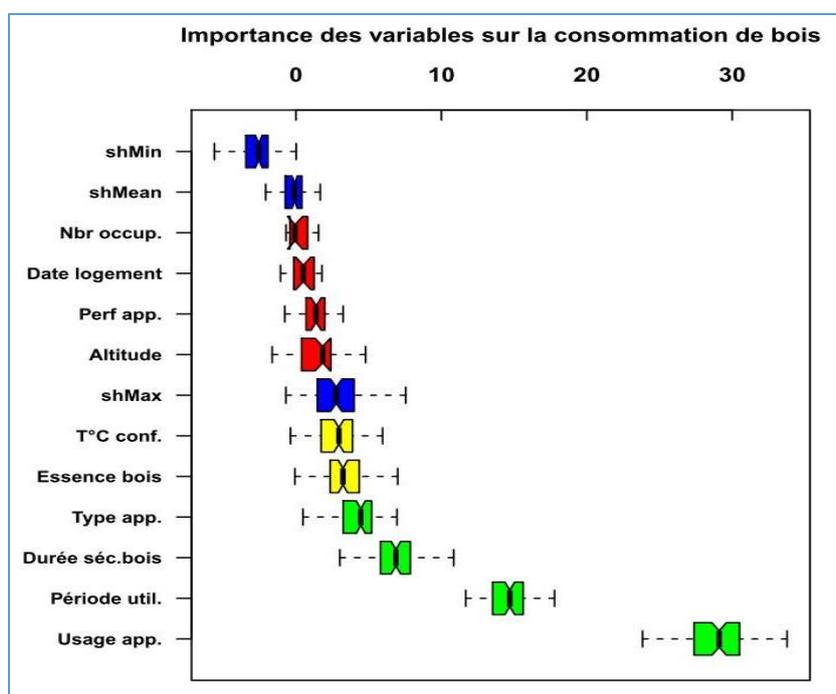


Figure 14-1 : Importance relative des différents paramètres sur les consommations unitaires de l'ensemble des appareils de chauffage (appareils anciens, récents non-performants et performants, enquête DREAL, effectif 131).

Certains de ces paramètres, comme la durée de séchage du bois ou la température de confort, sont renseignés dans l'enquête DREAL, de même que les paramètres utilisés dans la méthode d'estimation des émissions d'ATMO-AuRA. L'algorithme Boruta (Kursa and Rudnicki, 2010) a été appliquée sur les données de cette enquête afin d'évaluer les paramètres influents sur les consommations déclarées de ceux ayant peu voire pas d'influence. Cet algorithme est basé sur la méthode d'apprentissage des forêts aléatoires. La figure 14-1 ci-dessus présente la classification obtenue entre les paramètres influents (en vert) sur la variabilité des consommations, ceux peu influents

(en jaune), ainsi que les paramètres considérés comme non influents (en rouge). Les paramètres bleus correspondent à des termes de randomisation issus de l'algorithme et servent à établir les variables qui sont influentes de celles qui peuvent être considérées comme ne l'étant pas. On montre que l'altitude moyenne de la commune, le nombre d'occupants, ou encore la performance de l'appareil et la période d'achèvement du logement sont considérés non influents sur les consommations unitaires déclarées. A l'inverse, les variables les plus influentes sur les consommations sont le mode d'usage de l'appareil, sa période d'utilisation (intersaisons, jours de grands froids,...), la durée de séchage du bois (qui influe directement sur son humidité), et le type d'appareil.

Ce résultat peut remettre en question l'utilisation de certains paramètres dans la méthode d'estimation des consommations avec des modèles de type ingénieur, comme celle de l'inventaire utilisé par ATMO-AuRA.

2 - Comparaison des consommations de bois déclarées dans les dossiers du Fond Air Bois avec les consommations estimées selon la méthode ATMO-AuRA

La méthode d'estimation des quantités de bois consommée (en kWh.m⁻²), telle que décrite dans un rapport ATMO-AuRA concernant les cadastres (2016), s'obtient par la formule suivante :

(Besoin unitaire * Taux d'utilisation de l'appareil) / (Rendement de l'appareil * Rigueur climatique)

Les besoins énergétiques selon la période d'achèvement du logement proviennent de l'enquête CEREN (2015). Selon la segmentation des appareils prenant en compte la performance et le type d'appareil, un rendement et un taux d'utilisation « moyen » leur est attribué. Le facteur de rigueur climatique correspond au rapport du DJU communal de l'année correspondante par le DJU moyen sur une période de 30 ans. Du fait du nombre très restreint de stations Météo-France, ces DJU communaux sont calculés en utilisant une relation linéaire entre la température et l'altitude moyenne communale (ATMO-AuRA, 2016).

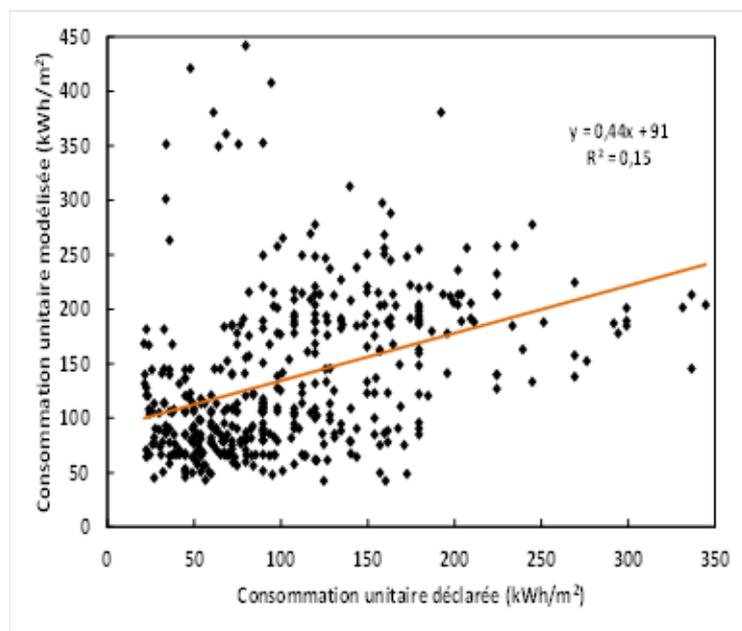


Figure 14-2 : Comparaison entre consommations unitaires modélisées vs déclarées pour l'enquête FAB.

La formule d'estimation des consommations de bois est celle de la Méthodologie d'Inventaire des Emissions utilisé par Air Rhône-Alpes (2016).

La figure 14-2 ci-dessus confronte les consommations déclarées de 677 dossiers du Fond Air Bois (dossiers dont les données sont complètes) avec les consommations reconstruites à partir de la méthode de l'inventaire ATMO-AuRA. La corrélation obtenue est très faible et non significative. Même si la droite de régression est statistiquement non représentative, il est très probable que les consommations calculées sous-estiment largement les consommations déclarées. **A l'échelle d'un logement, la méthode de reconstruction des consommations est donc peu représentative.** Les consommations déclarées du Fond Air Bois, bien qu'imprécises, restent les informations les plus

réalistes disponibles concernant la quantité de bois, d'autant plus que les résultats de différentes enquêtes indépendantes concordent (cf figure 35 du rapport principal).

Ainsi, le modèle « ingénieur » de reconstruction des consommations, incluant entre autres l'utilisation de consommations moyennes par segment pondérées par les DJU communaux, ne permet pas de représenter la variabilité des consommations entre les logements, qui proviendrait en partie d'un aspect comportemental d'utilisation de l'appareil.

3 - Incertitude sur les consommations de bois déclarées : le Pouvoir Calorique Inférieur

La conversion des consommations déclarées (comme celle des consommations moyennes dans la méthode de l'inventaire ATMO-AuRA) en termes de quantité d'énergie est réalisée via le pouvoir calorifique inférieur (PCI) du bois. Ce facteur correspond à la quantité de chaleur dégagée par la combustion complète de l'unité de masse du combustible avec l'eau produite restant à l'état de vapeur. Plusieurs méthodes de détermination standardisées existent, mais elles peuvent cependant présenter des écarts d'un facteur 2 entre elles (Rapport Ademe 2002 ; Rapport Fibra, 2010). D'autres paramètres peuvent influencer le PCI du bois, comme l'humidité, l'essence du bois, la présence d'écorce (Rapport Ademe QUALICOMB, 2016). La nature du combustible étant variable d'un logement à l'autre, les PCI du bois le seront également. Cependant, l'humidité du bois reste le facteur le plus influent sur le PCI, ainsi que de manière moindre, l'essence du bois.

Source	Description	PCI	Facteur (kWh/stère)
Memento 2015 FCBA	Bois avec taux d'humidité 30 %	3360 kWh/tonne	1613 kWh/stère
Rapport Ademe- 2002	Feuillus avec taux d'humidité 30 %	12020 kJ/kg soit 3342 kWh/tonne	1604 kWh/ stère
Rapport Ademe- 2013	Choix d'une convention	0,135 Tep/stère	1570 kWh/stère
Rapport Ademe- 2008	Feuillus avec taux d'humidité 30 %	3296 kWh/tonne	1582 kWh/stère
NF Bois de chauffage -FCBA	Feuillus avec taux d'humidité < 20 %	1600 kWh/stère (bûche 1m, équivalent m ³)	1600 kWh/stère
Référentiel certification FCBA	Plaquettes forestières feuillus 30 % d'humidité	3400 kWh/tonne	1632 kWh/stère
Rapport Ademe- 2001	Résineux avec taux d'humidité 30 %	3522 kWh/tonne	1691 kWh/stère

Tableau 14 - 1: Récapitulatif de mesures de PCI provenant de référentiels ou études ADEME se rapprochant de la nature du bois utilisé majoritairement dans la vallée de l'Arve. Une masse volumique moyenne de 500 kg/m³ a été choisie, celle-ci pouvant aller de 300 kg/m³ pour les bois résineux à 800 kg/m³ pour les feuillus.

L'enquête PRE2A et les dossiers du Fond Air Bois montrent que la majorité des utilisateurs effectue un séchage des bûches de plus de 2 ans (73% pour les dossiers du Fond Air Bois et 76% pour l'enquête PRE2A). Il est estimé qu'un bois vert stocké dans un endroit couvert et aéré devient sec au bout d'environ 1,5 à 2 ans (Référentiel certification NF Biocombustibles solides, 2013). Concernant l'essence du bois, la majorité des utilisateurs n'utilisent qu'exceptionnellement du bois de récupération et utilisent du bois feuillus, seul ou avec des résineux (cas de 70 % des dossiers du FAB et 64% de l'enquête PRE2A). Le tableau ci-dessus répertorie des mesures de PCI pour un bois plutôt de type feuillus et d'humidité d'environ 30%, ce qui représente la situation majoritairement déclarée dans la vallée de l'Arve.

Bien que la mesure de PCI soit impactée par de nombreux paramètres, elle est plutôt homogène pour la nature du bois majoritairement déclarée dans les dossiers du Fond Air Bois avec une moyenne de 1613 kWh/stère (± 40 kWh/stère). Pour l'usage principal, en supprimant les valeurs extrêmes, une consommation énergétique moyenne de 117 kWh/m²/an variant entre 42 et 277 kWh/m²/an est calculée pour les dossiers du Fond en Air Bois, en appliquant cette valeur moyenne de PCI. Ces valeurs correspondent à celles qui sont habituellement rencontrées pour les consommations électriques de chauffage (Chiffres Clés, SOeS, 2015 ; rapport Ecoville, 2012). Ainsi, les consommations déclarées en utilisation de l'appareil renouvelé du Fond Air Bois sont jugées fiables pour pouvoir estimer les émissions, et une incertitude de 15% sur la mesure de PCI sera cependant appliquée pour tenter de prendre en compte l'incertitude concernant l'unité de volume ainsi que la variabilité naturelle du PCI.

4 – Hypothèses sur les consommations avec le nouvel appareil

Les données disponibles pour estimer les consommations avec le nouvel appareil (en kWh/m²/an) dans les dossiers du Fond Air Bois sont le type d'appareil et le mode d'utilisation envisagée. Aucune étude n'a évalué quantitativement ou qualitativement le gain énergétique occasionné par le renouvellement d'appareil de chauffage au bois hormis par l'utilisation de modèles ingénieurs normés, c'est-à-dire à partir uniquement d'éléments techniques, en particulier du rendement énergétique. L'amélioration du rendement énergétique entre l'ancien et le nouvel appareil sur les consommations a été prise en compte par l'application d'un facteur, noté *f_{rdt}*, sur les consommations avec l'ancien appareil. Ce facteur correspond au rapport des rendements énergétiques moyens de l'ancien et du nouvel appareil. L'ADEME et ATMO-aura, pour l'établissement des inventaires, utilisent des rendements énergétiques moyens différents qui ont été appliqués dans les scénarios de calcul selon l'utilisation des facteurs d'émissions (de l'ADEME ou ATMO-aura respectivement, voir Section 5.1.1).

Typologie d'appareil	Source : Ademe	Source : ATMO-aura (Energies Demain, 2011)
Foyer ouvert	0.1	0.1
Foyer fermé < 2002	0.45	0.3 Chaudière : 0.4 Insert : 0.15
Foyer fermé 2002 -2007	0.6	0.4 Chaudière : 0.5 Insert : 0.3
Foyer fermé > 2007	0.75	
Foyer fermé 5* et eq -bûche	0.78	0.6 Chaudière : 0.7 Insert : 0.45
Foyer fermé 5* et eq - granulé	0.88	0.6 Chaudière : 0.8

Tableau 14-2 : Rendements énergétiques moyens par type d'appareil utilisés pour estimer les émissions de chauffage au bois par l'ADEME et ATMO-aura.

Outre les changements de rendement énergétique entre l'ancien et le nouvel appareil, un aspect comportemental est de plus en plus pris en compte dans les évaluations d'efficacité énergétique dit « effet rebond direct ». L'effet rebond direct correspond à l'incitation de consommer plus d'un service lorsque, dans notre cas, la performance énergétique a été améliorée, ce qui entraîne un gain financier sur la quantité de bois. Il a été même observé une consommation supérieure après le changement qu'auparavant dans le cas d'une amélioration énergétique des bâtiments et l'installation du chauffage central à Londres (dénommé backfire) (Labranche, 2015). L'évaluation et l'estimation des effets rebonds

a fait l'objet de nombreuses études sociologiques et économiques, cependant il n'y a aucun consensus ni sur les définitions employées ni sur les méthodologies (Gavankar et al, 2010). Les estimations concernant l'effet rebond direct du chauffage résidentiel ont été effectuées soit par une évaluation avant/après soit par une analyse économétrique, aucune ne concerne cependant le renouvellement d'appareils de chauffage au bois. Les intervalles mentionnés dans les différentes études sont très grands et vont de 5 à 60 %, voire 100 % avec une moyenne de 20 % (Sorell et al, 2008 ; Sorelle et al, 2009, Gavankar et al, 2010). Les facteurs limitant l'effet rebond sont l'atteinte du niveau de saturation (le confort optimal du logement est atteint) et le prix élevé du combustible.

Par ailleurs, comme montré précédemment, le mode d'usage de l'appareil est une variable explicative fondamentale de la variabilité des consommations déclarées par m². Dès lors, il a été fait l'hypothèse que le mode d'usage de l'appareil impactait de la même manière les consommations avec un appareil performant ou non. Ainsi un facteur, nommé *f_{cgt.util.}* a été appliqué aux consommations avec l'ancien appareil lorsque le mode d'usage est différent entre le nouvel et l'ancien appareil. Ce facteur correspond aux rapports des consommations moyennes déclarées par m² entre les 2 modes d'usage des appareils. Le Tableau 14-3 répertorie les différents facteurs utilisés selon les modes d'usage de l'appareil. L'application de ce facteur aux consommations initiales constituent déjà une prise en compte de « l'effet rebond » sur les consommations avec les appareils renouvelés.

Ancien appareil Nouvel appareil	Principale	Appoint	Plaisir
Usage énergie principale	1	1,99	3,37
Usage énergie d'appoint	0,50	1	1,70
Usage de plaisir	0,30	0,60	1

Tableau 14-3 : Facteur de correction de la consommation utilisée en cas de changement de mode d'usage entre l'ancien et le nouvel appareil de chauffage au bois.

Afin d'obtenir un intervalle de confiance de l'effet rebond sur les consommations avec le nouvel appareil, il a été également testé 2 conjonctures :

- Dans le 1^{er} cas, les consommations avec le nouvel appareil ont diminué avec l'amélioration du rendement énergétique (hors cas de changement d'usage entre les 2 appareils), cette conjoncture correspond le plus au calcul théorique des gains énergétiques.
- Dans le 2^{ème} cas, les consommations avec le nouvel appareil sont identiques aux consommations avec l'ancien appareil (hors cas de changement d'usage entre les 2 appareils), cette conjoncture correspond à un fort effet rebond sur les consommations.

Ces 2 conjonctures ont été appliquées selon les différents jeux de données de facteurs d'émissions permettant d'obtenir un intervalle de confiance sur les consommations avec le nouvel appareil.

REFERENCES :

- ADEME, 2015.** Biomasse et qualité de l'air : élaboration d'un plan d'actions pour réduire les émissions de particules liées au chauffage au bois individuel et au brûlage à l'air libre des déchets verts. Etude réalisée par Grenoble Alpes Métropole et l'Institut d'Etudes Politiques de Grenoble- n°1362C0042. 48 p.
- ADEME, 2015.** Suivi du changement d'équipements et de l'évolution des pratiques liées à la combustion de la biomasse dans le cadre du « PPA de l'Arve » : attitudes et facteurs d'adhésion, perception et représentation de la qualité de l'air. Rapport Phase 1. Etude réalisée par SEPIA Santé et SET Transfert-Marché n°1462C0001. 100 p.
- ADEME, 2013.** Analyse sociologique de la consommation d'énergie dans les bâtiments résidentiels. Bilan et perspectives. Etude réalisée par Brisepierre G., Bureau d'études sociologiques GBS, 51 p.
- ADEME. 2008.** Référentiels combustibles bois énergie : définition et exigences. Etude réalisée par FCBA- Marché ADEME n°0601C0005. 124 p.

- ADEME, 2015.** Biomasse et qualité de l'air : élaboration d'un plan d'actions pour réduire les émissions de particules liées au chauffage au bois individuel et au brûlage à l'air libre des déchets verts. Etude réalisée par Grenoble Alpes Métropole et l'Institut d'Etudes Politiques de Grenoble-Marché ADEME n°1362C0042. 48 p.
- ADEME, 2002.** Validation des méthodes de mesures des caractéristiques des combustibles bois déchetés. Etude réalisée par Critt Bois- Fibois. 62 p.
- ATMO-aura., 2016.** Méthode d'élaboration de l'inventaire des émissions atmosphériques en Rhône-Alpes. 40 p.
- Cayla J.M., Allibe B., Laurent M.H., 2010.** From Practices to Behaviors : Estimating the Impact of Household Behavior on Space Heating Energy Consumption. ACEEE Summer Study on Energy Efficiency in Buildings, Pacific Grove, Etats-Unis.
- CEREN, 2015.** Suivi des parcs et des consommations du secteur résidentiel 2013. Disponible sur ceren.fr.
- Ecoville, 2012.** Sources des données: statistiques et cas réels. Ressource pédagogique du jeu Ecoville. Disponible sur ecovillelejeu.com
- Energies Demain, 2011.** Définition prospective des conditions de développement du Bois Energie de la région Rhône-Alpes au regard des enjeux de la qualité de l'air et du changement climatique. 202 p.
- FIBRA, 2010. Les combustibles Bois. Méthodes de caractérisation des produits.** 6 p.
- Gavankar S., Geyer R., 2010.** The Rebound Effect : State of the Debate and Implications for Energy Efficiency Research. Report for Bren School of Environmental Science and Management.
- Labranche S., 2015.** Brève introduction à la sociologie de l'énergie. Article web sur Encyclopédie de l'Energie, encyclopedie-energie.org.
- Memento 2015 FCBA.** Disponible sur fcba.fr.
- NF Bois Chauffage par FCBA.** Exigences. Disponible sur nf-biocombustibles-solides.fr.
- SOeS (Service de l'observation et des statistiques), 2015.** Consommations énergétiques des ménages en 2012. Chiffres&statistiques n°645. Disponible sur statistiques.developpement-durable.gouv.fr
- Sorell S., Dimitropoulos J., 2008.** The rebound effect: microeconomic definitions, limitations and extensions. Ecological Economics 65, 636-649.
- Sorell S., Dimitropoulos J., Sommerville M., 2009.** Empirical estimates of the direct rebound effect: a review. Energy Policy 37, 1356-1371.

Annexe 15 : Variabilité des facteurs d'émissions de PM₁₀ des appareils de chauffage au bois résidentiels

Dans les inventaires d'émissions réglementaires, les facteurs d'émissions des appareils de chauffage au bois sont catégorisés par type de technologie de l'appareil et reposent sur des études scientifiques référencées dans le Guidebook EMEP/EAA 2013 (Section 1.A.4- Small Combustion). Comme le Tableau 15-1 permet de le constater, les facteurs d'émissions (FE) utilisés reposent sur un nombre restreint de références. A l'exception du FE utilisé pour les chaudières anciennes, les facteurs d'émissions utilisés dans l'inventaire des émissions réalisés par ATMO-AuRA sont similaires à ceux du Guide Book EMEP.

Type d'appareil	FE (g/GJ) EAA 2013	Références	FE (g/GJ) ATMO-AuRA
Foyer ouvert	840 (420-1680)	Alves et al, 2011	860
Poêle ancien	760 (380-1520)	Alves et al, 2011 Glasius et al, 2005	738 (poêle avt 1996) 274 (poêle aps 1996)
Chaudière ancienne	480 (240-960)	Winther et al, 2008 Johansson et al, 2003	238
Poêles et chaudières à bois labellisés	95 (19-238)	Johansson et al, 2003 Goncalves et al, 2010 Schmidl et al, 2011	93 (poêle à bois) 33 (chaudière)
Poêles et chaudières à granulés	29 (10-48)	Boman et al, 2011	54 (poêle) 22 (chaudière)

Tableau 15-1 : Facteurs d'émissions de PM₁₀ des différents types d'appareils de chauffage au bois provenant du Guidebook de l'EAA (2013) avec un intervalle de confiance de 95%. Les facteurs d'émissions utilisés dans l'inventaire national et celui de l'inventaire Atmo-AuRA sont également indiqués.

Les mesures de FE servant de référence dans ces inventaires ont été effectuées avec la méthode par tunnel de dilution et sur l'ensemble du cycle de combustion. En effet, deux grands types de méthodes de mesure de FE existent : une par piégeage des particules qui ne prend en compte que la fraction solide des aérosols, généralement à température élevée ; l'autre avec un tunnel de dilution permettant de mesurer une partie de la fraction condensable des particules à température proche de l'ambiante. Un rapport de l'ordre de 2,5 à 10 est estimé entre ces deux méthodes (Nussbaumer et al, 2008 ; Bäfver et al, 2008), la méthode avec tunnel de dilution conduisant à des valeurs plus élevées des FE. Les valeurs de FE sont ainsi difficilement comparables si la méthode de mesure n'est pas analogue.

Même avec une méthode de mesure équivalente, les FE par type d'appareil présentent une variabilité très élevée, comme le montre la figure 15-1 ci-dessous, établie avec une bibliographie de plus 150 études (Besombes et al., 2014). De nombreux paramètres liés à la nature du combustible ainsi qu'aux conditions de combustion peuvent modifier le FE jusqu'à un facteur 3 avec le même appareil (Coulson et al, 2015 ; Collet S., 2016 ; Landreau et Rogaume, 2016). Pour quantifier l'incertitude sur les émissions du chauffage au bois à une échelle fine, il est donc primordial de prendre en compte cette variabilité élevée. Cependant, d'une part, les influences relatives des paramètres d'utilisation et de la nature du combustible ne sont pas encore bien connues et quantifiées, et d'autre part, ces données d'usage et de comportement sont extrêmement difficiles à appréhender dans la réalité.

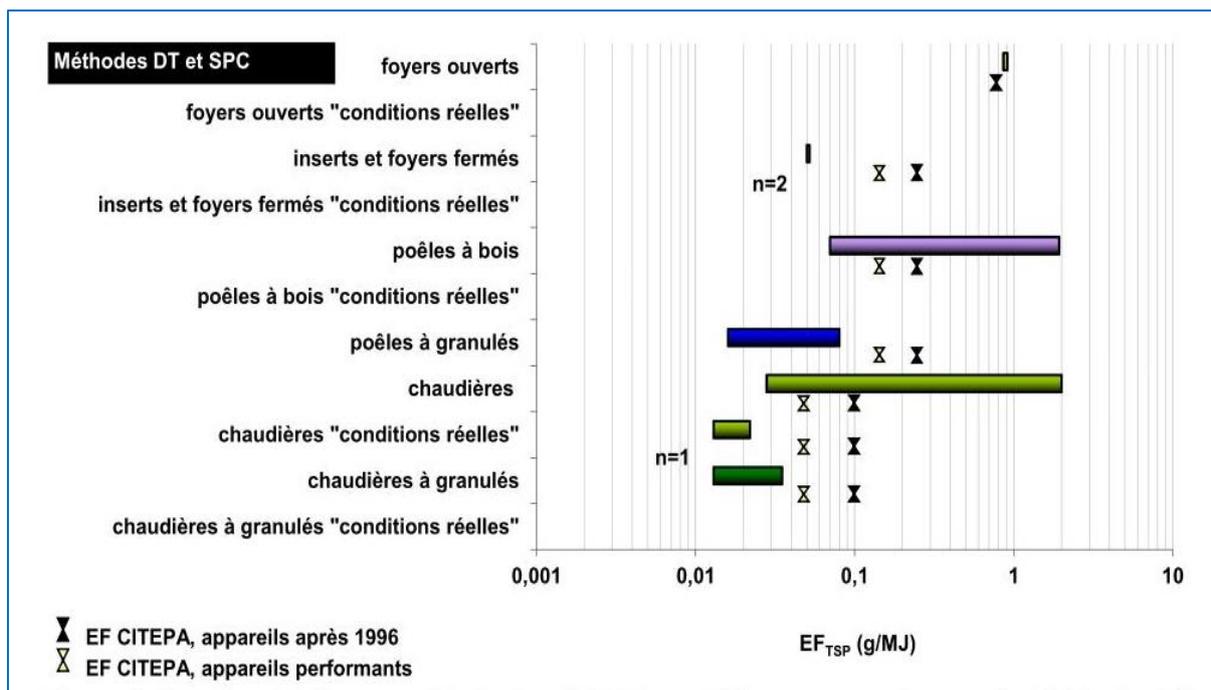


Figure 15-1 : Gamme des facteurs d'émissions de TSP par différents types d'appareils mesurés par tunnel de dilution ou avec un piégeage complémentaire de la fraction condensable des particules (Besombes et al, 2014).

Type d'appareil	Nombre de références	Facteur d'émission (g/GJ)	Références supplémentaires
Foyer Ouvert	4	478 (91-1066)	McDonald et al, 2000 ; Nussbaumer, 2010 ; Fine et al, 2012
Poêle Ancien	7	271 (16-4375)	Nussbaumer et al, 2008 ; Gonçalves et al, 2010 ; Petterson et al, 2011 ; McDonald et al, 2000 ; Peren2bois, 2012
Chaudière ancienne	5	671 (46-2131)	Gaegauf et al, 2001 ; Peren2bois, 2012 ; Nussbaumer et al 2010
Poêle/ Chaudière à granulé	6	38 (12-78)	Boman et al, 2004 ; Peren2bois, 2012 ; Sippula , 2010 ; Nussbaumer, 2010 ; Bertrand et al, 2017
Poêle/ Chaudière labellisé	2	104 (8-213)	Bertrand et al, 2017

Tableau 15-2 : Facteurs d'émissions moyens de PM₁₀ (min et max) selon le type d'appareil établis d'après les études référencées dans le Guidebook de l'EAA 2013 ainsi que d'autres études effectuées avec la méthode de mesure par tunnel de dilution.

Une méthode de Monte-Carlo permet de pouvoir prendre en compte cette variabilité sans avoir connaissance des usages et de la nature du combustible dans l'estimation des incertitudes des émissions du chauffage au bois. Elle permet de sélectionner pour chaque logement un facteur d'émission aléatoirement selon une loi de probabilité, dans la distribution des FE de la catégorie d'appareillage du logement. Les émissions sont ensuite calculées et l'opération est ensuite répétée afin

d'obtenir une distribution des émissions totales. Cette méthode nécessite cependant de connaître les distributions de probabilité des FE. Les mesures des études référencées dans le Guidebook de l'EMEP/EAA 2013 ainsi que les résultats d'études supplémentaires réalisées par tunnel de dilution ont été utilisés afin de déterminer les distributions de probabilités (voir Tableau 15-2). Globalement, les facteurs d'émissions moyens de ces études sont inférieurs à ceux utilisés dans l'inventaire européen pour les appareils de chauffage au bois anciens et faiblement supérieurs aux facteurs d'émissions des appareils de chauffage au bois performants. Les résultats resteraient cependant à améliorer du fait du nombre restreint d'études.

L'étude de Coulson et al (2015) présente un nombre important de mesures réalisées en conditions réelles (51 mesures) et a montré que les facteurs d'émissions se distribuaient selon une loi lognormale. De même, deux autres études qui tentent de quantifier les incertitudes des émissions du chauffage au bois ont utilisé une loi lognormale comme distribution de probabilité des facteurs d'émissions (Rao et al, 2017 ; Karvosenoja et al, 2008). Ainsi, les distributions des mesures de facteurs d'émissions selon le type d'appareil ont été fittées par une loi lognormale, comme le montre la Figure 15-2 ci-dessous. C'est cette méthode qui a permis de générer les distributions de FE utilisées dans l'étude de sensibilité présentée dans la section 5.1.2.

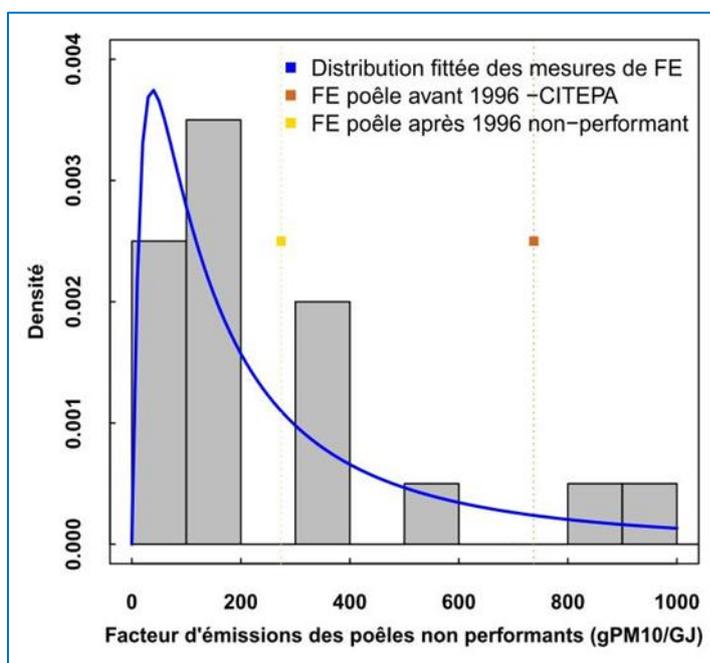


Figure 15-2 : Histogramme des mesures de facteur d'émissions de poêles à bois non performants (anciens) provenant d'études publiées. Les mesures ont été fittées par une loi lognormale.

Références bibliographiques

- Alves, C., Goncalves, C., Fernandes, A., Tarelho, L., Pio, C., 2011. Fireplace and woodstove fine particle emissions from combustion of wester Medeterranean wood types. *Atmospheric Research*, 101.
- Bäfver, L., 2008. Particles from biomass combustion- Characteristics and influence of additives. . *Chalmers University of Technology*.
- Bertrand, A., Stefenelli, G., Bruns, E., Pieber, S., Temime-Roussel, B., Slowik, J. G., et al., 2017. Primary emissions and secondary aerosol production potential from woodstoves for residential heating: Influence of the stove technology and combustion efficiency. *Atmospheric Environment*, 169, 65-79.
- Besombes, J., Carteret, M., Golly, B., Brulfert, G., Collet, S., Rogaume, C., et al., 2014. Evaluation des impacts de la qualité de l'air des actions de modernisation du parc d'appareils de chauffage au bois à Lanslebourg. *Rapport final ADEME*, 149 p.
- Boman, C., Nordin, A., Boström, D., Öhman, M., 2004. Characterization of Inorganic Particulate Matter from Residential Combustion of Pelletized Biomass Fuels. *Energy&Fuels*, 18, 338-348.
- Boman, C., Pettersson, E., Westerholm, R., Boström, D., Nordin, A., 2011. Stove Performance and Emission Characteristics in Residential Wood Log and Pellet Combustion. *Energy&Fuels*, 25.

- Collet, S. (2016). Détermination de facteurs d'émission de polluants des foyers domestiques alimentés au bois. *Rapport final ADEME*, 51 p.
- Coulson, G., Bian, R., Somervell, E. (2015). An Investigation of the Variability of Particulate Emissions from Woodstoves in New Zealand. *Aerosol and Air Quality Research*, 2346-2356.
- Fine, P., Cass, G., Simoneit, B., 2002. Chemical Characterization of Fine Particle Emissions from the Fireplace Combustion of Wood Grown in the Southern United States. *Environ. Sci. Tech.* 36, 7.
- Gaegauf, C., Wieser, U., Macquat, Y., 2001 Field investigation of nanoparticle emissions from various biomass combustion systems. *Aerosols from Biomass Combustion, International Seminar*, 80-86.
- Glasius, M., Vikelsoe, J., Bossi, R., Andersen, H., Holst, J., Johansen, E., et al., 2005. Dioxin, PAH og partikler fra braendeovne. *Danmarks Miljøundersøgelser*.
- Goncalves, C., Alves, C., Evtuygina, M., Mirante, F., Pio, C., Caseiro, A., et al., 2010. Characterisation of PM10 emissions from woodstove combustion of common woods grown in Portugal. *Atmospheric Environment*, 44.
- Johansson, L., Tullin, C., Leckner, B., Sjövall, P., 2003. Particle emissions from biomass combustion in small combusters. *Biomass and Bioenergy*, 2002, 25.
- Landreau, J., & Rogeau, 2016. QUALICOMB Réduction à la source des émissions issues du chauffage domestique au bois par usage de combustible de qualité. *Rapport final ADEME*, 487 p.
- McDonald, J., Zielinska, B., Fujita, E., Sagebiel, J., Chow, J., Watson, J., 2000. Fine particle and gaseous emission rates from residential wood combustion. *Environ. Sci. Technol.*, 34, 2080-2091.
- Nussbaumer, T., 2010. Overview on technologies for biomass combustion and emission levels of particulate matter. *Rapport FOEN*, 78 p.
- Nussbaumer, T., Czasch, C., Klippel, N., Johansson, L., Tullin, C., 2008. Particulate Emissions from Biomass Combustion in IEA Countries: Survey on measurements and Emission Factors. *IAE Report*, 40 p.
- Peren2Bois, action. 1., 2010. Peren2Bois: Evaluation technico-économique des performances énergétiques et environnementales des meilleurs techniques disponibles de réduction des émissions de poussières fines et de composés organiques pour les appareils de combustion domestique. *Phase 1: synthèse des émissions de la combustion du bois* Rapport INERIS, DRC-08-89628-09534A, 47p.
- Petterson, E., Boman, C., Westerholm, R., Boström, D., Nordin, A., 2011. Stove Performance and Emission Characteristics in Residential Wood Log and Pellet Combustion. *Fuels Energy*, 25.
- Sippula, O., 2010. Fine particle formation and emission in biomass combustion. *PhD thesis, University of Eastern Finland, Kuopio*.
- Winther, K. (2008). Vurdering af braendekedlers partikelemission til luft i Danmark. *Arbejdsrapport fra Miljøstyrelsen Nr.6 2008*, pp. <https://www2.mst.dk/udgiv/publikationer/2008/978-87-7052-771-2/pdf/978-87-7052-772-9.pdf>(dernière consultation 12/02/2018).

Annexe 16 : Méthode d'imputation des données manquantes des dossiers du Fond Air Bois

Entre le début du lancement de l'opération (avril 2013) et fin novembre 2016 (date de fin de l'étude concernée par ce rapport), 1932 dossiers de demande de la prime du Fond Air Bois ont été réceptionnés et traités. Ces dossiers représentent les remplacements d'appareil qui ont été effectués au cours des 4 hivers du programme DECOMBIO. Plus de 30% des dossiers présentent au moins une donnée manquante concernant un paramètre utilisé dans les méthodes d'estimation des émissions, ce qui nécessite de remplacer ces données manquantes afin de prendre en compte le plus de dossiers possible.

La méthode la plus courante pour résoudre ce genre de difficulté est de remplacer les valeurs manquantes par la valeur la plus fréquente ; cependant, cette méthode peut briser des relations existantes entre les variables. Par exemple, l'étude Ademe (2015) a montré que le type d'appareil et la période d'achèvement du logement étaient liés, de même que le type d'appareil pouvait conditionner un mode d'utilisation préférentiel. Les relations entre les différents paramètres utilisés dans les méthodes d'estimation des émissions ont été analysées avec le test du Chi-2 appliqué sur les dossiers du Fond Air Bois complets (677 dossiers) et sur ceux des 2 autres enquêtes disponibles dans la vallée de l'Arve, afin de confirmer les relations de dépendance trouvées. La figure 16-1 ci-dessous représente les liens existants entre les différents paramètres tels qu'issus de cette analyse. Les proportions calculées entre les modalités des différents champs sur les 677 dossiers complets ont été considérées comme représentatives des proportions sur l'ensemble des dossiers du Fond Air Bois.

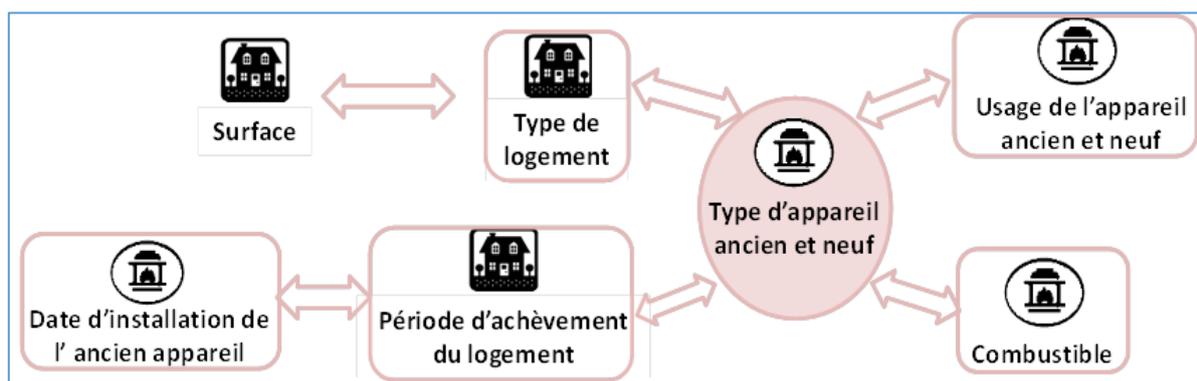


Figure 16-1 : Relations de dépendances mises en avant à l'aide du test du Chi-2 entre les paramètres utilisés dans les méthodes d'estimation des émissions à partir des dossiers du Fond Air Bois et des enquêtes DREAL et PRE2A.

L'objectif de la méthode d'imputation est de respecter les proportions calculées précédemment sur l'ensemble des dossiers après avoir été complétés. De même que pour la prise en compte de la variabilité des facteurs d'émissions, la stratégie de la méthode repose sur des simulations Monte-Carlo. Les champs quantitatifs, « surface » et « consommation de bois avec l'ancien appareil », sont complétées aléatoirement selon des densités de probabilités qui ont été établies à partir des données déclarées. Comme pour les facteurs d'émissions, plusieurs densités de probabilité ont été établies selon le mode d'usage de l'appareil pour les consommations de bois déclarées et selon le type de logement pour la surface.

Pour les champs qualitatifs, une autre démarche a dû être développée. Le champ « type d'appareil » est celui présentant le pourcentage de données manquantes le plus faible et celui présentant le plus de paramètres dépendants. Ce champ a donc été sélectionné afin de permettre de compléter les autres champs : « type de combustible », « usage de l'appareil », « période d'achèvement du logement », « type de logement ». Les 29 dossiers dont le type d'appareil ancien ou nouveau est manquant n'ont pu être complétés et n'ont pas été pris en compte dans le calcul des émissions des appareils du Fond Air Bois. A partir du champ « type d'appareil », un effectif par modalité du paramètre à compléter en fonction du type d'appareil a été calculé. Ces effectifs des différentes modalités sont utilisés à chaque itération du calcul pour compléter aléatoirement les données manquantes. La figure

16-2 illustre la démarche pour obtenir l'effectif du « mode d'usage de l'appareil » à compléter selon le « type d'appareil ». Par exemple, à chaque itération du calcul des émissions, parmi les 54 dossiers ayant déclaré utiliser un poêle mais pas le mode d'usage, 30 seront complétés par le mode d'usage « appoint », 23 par le mode d'usage « principal » et 1 par le mode d'usage « plaisir ».

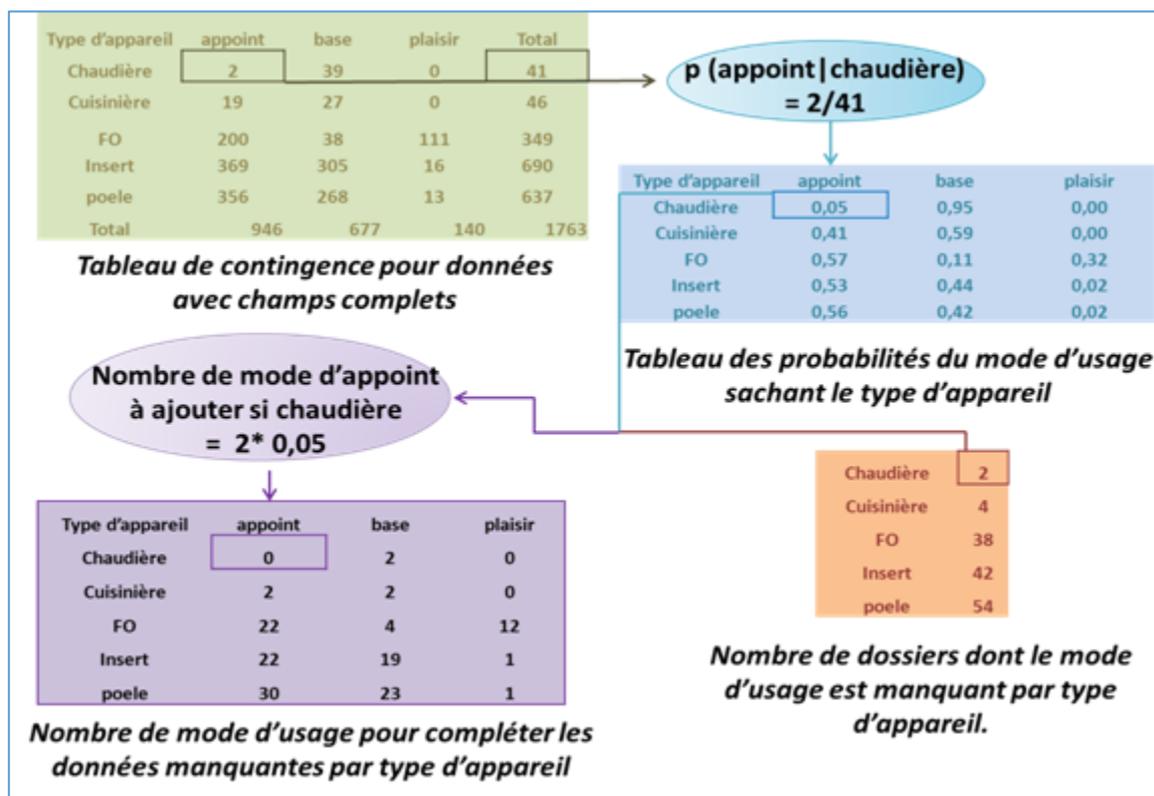


Figure 16-2 : Exemple de la démarche pour obtenir la fréquence des modalités du champ à compléter en fonction du type d'appareil ancien ou nouveau.

Cette méthode d'imputation des données manquantes a été comparée à celle d'imputation par la moyenne en calculant la réduction des émissions sur l'ensemble des dossiers du Fond Air Bois à partir des consommations reconstruites à partir du besoin énergétique et des facteurs d'émissions des inventaires nationaux. La méthode d'imputation n'influence pas de manière significative le résultat à l'échelle de l'ensemble des dossiers (88,9 tonnes de PM_{10} par an avec l'imputation des données par la moyenne contre 87,4 tonnes de PM_{10} par an avec l'imputation multiple développée). Par contre, à l'échelle d'un logement, la différence de réduction des émissions entre les 2 méthodes d'imputation peut atteindre 44kg PM_{10} /an.

Pour analyser les réductions des émissions à une échelle locale (<100 appareils), la méthode d'imputation multiple semble plus pertinente que la méthode d'imputation par la moyenne car elle permet de conserver les relations techniques existant entre le type d'appareil et son usage, par exemple. Elle permet également de quantifier l'incertitude des données manquantes car reposant sur une approche Monte-Carlo.

Annexe 17 : Années DECOMBIO et « climat normal »

On peut faire l'hypothèse que les consommations de bois déclarées pour les dossiers FAB sont basées sur une moyenne estimée sur une rétrospective d'utilisation de l'ancien appareil de quelques années, avec en moyenne une utilisation de plus de 10 ans de ces appareils (Rapport Ademe, 2013). L'estimation des gains d'émissions qui est faite à partir de ces consommations déclarées sera comparée à celle des concentrations réelles de PM_{10wb} mesurées sur les 4 années du programme DECOMBIO. On peut donc se poser la question de l'existence éventuelle d'un biais induit par un climat des hivers DECOMBIO significativement différent du climat moyen des années d'estimation des consommations antérieures.

Ces consommations annuelles déclarées sont donc considérées comme des consommations à climat « moyen » ou « normal ». La Figure 17-1 illustre l'évolution du Degré Jour Unifié moyen à Chamonix calculé sur la période de chauffe du 01/10 au 31/04 de 2002 à 2016 (avec 3 hivers manquants). Cet indicateur de rigueur climatique est utilisé afin de corriger les consommations énergétiques des aléas climatiques (SOeS, 2014).

On observe que les DJU moyens des 4 hivers DECOMBIO sont légèrement inférieurs au DJU moyen déterminé sur les périodes de chauffe de 2002 à 2016, avec une différence inférieure à 1°C. On note cependant que les DJU moyens des 4 hivers du programme ne présentent qu'une variation faible ($\leq 0,44$ DJU) entre eux, comparativement à la variation de 3,18 DJU observé entre les DJU des hivers 2005-2006 et 2006-2007, par exemple.

Les consommations de bois déclarées dans les dossiers du Fond Air Bois peuvent donc être considérées valides pour estimer les gains d'émissions (avant / après changement des appareils selon les modalités décrites dans la section 5.1. tableau 7 du rapport principal) pour les 4 hivers du programme DECOMBIO. Il n'est cependant pas exclu qu'il existe une légère surestimation des consommations sur ces années, compte tenu d'un besoin énergétique légèrement inférieur sur cette période par rapport aux années sur lesquelles se basent très probablement les estimations de consommation.

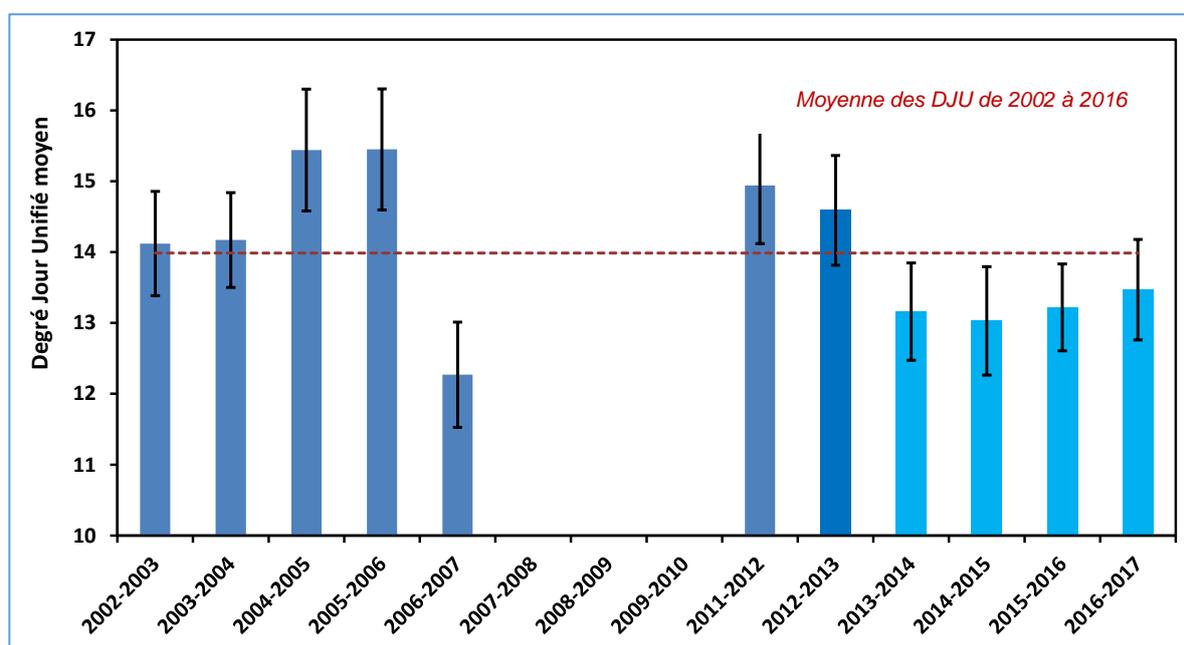


Figure 17-1 : Degré jour unifié moyen à Chamonix sur la période de chauffe (01/10 au 30/4) de 2002 à 2017 avec un intervalle de confiance de 95%. Les mesures de température proviennent de la station du réseau RADOME de MétéoFrance (Source : MétéoFrance et Météociel). Le DJU correspond à la différence entre la température de référence de 17°C, et la moyenne de la température maximale et minimale journalière. Lorsque la moyenne de la température est égale ou supérieur à 17°C, le DJU est égal à 0 (SOeS, 2014).

Annexe 18 : Evolutions des émissions de PM₁₀ issues des appareils de chauffage au bois autour des stations de l'hiver 12-13 à 16-17

Les Tableaux ci-dessous répertorient les parc d'appareils des CC issus de l'enquête BVA et segmentés selon des hypothèses en fonction du type de résidence (principale ou secondaire) et du mode d'usage de l'appareil (principal ou appoint).

CC	Foyers Ouverts	FF < 2000	FF 2000-2007	FF > 2007
Cluses, Arve et Mont.	483	3142	1933	1450
Pays du Mont-Blanc	2102	5886	2942	3783
Vallée de Chamonix	1232	1232	890	890

Tableau 18-1 : Nombre d'appareils de chauffage au bois au sein des CC correspondant aux résidences principales et secondaires en fonction de leur type. Ces parcs d'appareil sont issus de l'enquête BVA sur la vallée de l'Arve (Rapport Ademe, 2013)

Résidence	Usage de l'appareil	FO	FF < 2000	FF 2000-2007	FF > 2007
Principale	Base	52	930	614	450
	Appoint	296	1338	781	596
Secondaire	Base	20	359	237	174
	Appoint	114	516	301	230

Résidence	Usage de l'appareil	FO	FF < 2000	FF 2000-2007	FF > 2007
Principale	Base	142	1090	585	734
	Appoint	807	1568	744	974
Secondaire	Base	173	1324	710	892
	Appoint	980	1905	904	1183

Résidence	Usage de l'appareil	FO	FF < 2000	FF 2000-2007	FF > 2007
Principale	Base	61	167	129	126
	Appoint	345	240	164	167
Secondaire	Base	124	339	263	257
	Appoint	702	487	334	340

Tableau 18-2 : Segmentation des appareils selon le type de résidence et le mode d'usage de l'appareil selon 2 hypothèses : la proportion des appareils de chauffage au bois est homogènement répartie au sein de la CC entre résidences principales et secondaires et les proportions des appareils entre le mode d'usage base et appoint au sien des CC et selon le type de résidences sont identiques à celles déterminées pour le parc d'appareil des résidences principales sur le territoire du PPA. De haut en bas, les tableaux correspondent au parc de la CC de Cluses, Arve et Montagnes, des Pays du Mont-Blanc et de la Vallée de Chamonix.

A partir des parcs des appareils à l'échelle des communautés de communes définies selon le type d'appareil (Tableau 18-1), les appareils ont été ventilés selon le type de logement (résidence ou secondaire) et le mode d'utilisation de l'appareil (Base ou appoint) (Tableaux 18-2) selon certaines d'hypothèses. Les émissions totales de PM_{10wb} liés aux appareils de chauffage au bois hors FAB sont estimées à partir de ces parcs suivant plusieurs étapes :

1. soustraction des nombres d'appareils renouvelés entre le début de l'opération et l'hiver 16-17 sur le territoire des CC dans les parcs correspondants.
2. calcul des émissions selon la méthodologie la plus proche de celle ayant servi à dimensionner le Fond Air Bois : consommations moyennes issues de l'enquête nationale BVA (Rapport Ademe, 2013), valeur de PCI de 1570 kWh/stère et facteurs d'émissions de l'ADEME.
3. désagrégation des émissions selon la densité de population (maille de 100m, couche SIG LCSQA établi à partir de la base de données CORINAIR LAND COVER 2012).
4. extraction des émissions autour des sites de mesures selon l'aire de représentativité considérée (rayon de 500m ou 1km)

Lors de la quantification de la réduction des émissions liées aux renouvellements des appareils du FAB, une méthode de calcul alternative utilisant des facteurs « probabilistes » a été utilisée donnant les résultats d'émissions les plus faibles (cf Annexe 15 et section 5.1.2). Ce scénario de calcul (VI) a également été utilisé pour la comparaison des évolutions de concentrations et des émissions de PM_{10wb} au cours des hivers, afin d'évaluer une partie des incertitudes sur les émissions provenant des appareils du FAB. Les émissions de PM_{10wb} totales issues des appareils hors FAB ont alors été calculées avec les facteurs « probabilistes » moyens obtenus, selon le type d'appareil.

Ainsi estimées, les émissions issues des appareils FAB correspondent, avant remplacement, à 48%, 26% et 25% des émissions totales de PM_{10wb} estimées dans un rayon de 1km autour des stations de Marnaz, Passy et Chamonix respectivement (Figure 18-1). Lorsque l'on considère les émissions estimées à partir des FEs « probabilistes » et du scénario de calcul VI pour les émissions issues des appareils du FAB, ces dernières représentent respectivement 35%, 23% et 23% des émissions totales de PM_{10wb} estimées autour des stations. La Figure 18-1 représente l'évolution des émissions de PM_{10wb} dans un rayon de 1km avant et durant les 4 premiers hivers de l'opération du FAB en considérant les émissions de PM_{10wb} issues des appareils hors FAB comme constantes au cours des hivers. L'estimation de la variation des émissions issues des appareils de chauffage au bois au cours des hivers autour des stations dépend donc fortement des émissions issues des appareils hors FAB et de leur éventuelles évolutions, émissions qui ont été établies à partir de plusieurs hypothèses dont les incertitudes ne sont pas réellement quantifiables.

Certaines hypothèses utilisées sont identiques à celles appliquées pour l'établissement de l'inventaire régional établi par ATMO-AuRA (ATMO-AuRA, 2017), comme la désagrégation des émissions selon la couche population, ou encore l'hypothèse d'une consommation inférieure de 50% pour les appareils dans les résidences secondaires (Energie Demain, 2002). L'établissement des parcs d'appareils en fonction de leur type, leur mode d'utilisation et la catégorie de logement (résidence principale ou secondaire) est réalisée dans l'inventaire ATMO-AuRA par une désagrégation de parcs départementaux prospectifs et un redressement avec les données de l'enquête Logement de l'INSEE. Afin d'évaluer la pertinence des hypothèses utilisées pour segmenter les parcs d'appareils à l'échelle des CC issus de l'enquête BVA, les proportions d'appareils selon le mode d'utilisation et la catégorie de logement entre les parcs d'appareils établis dans cette étude et ceux des CC issus de l'inventaire ATMO-AuRA 2015 ont été comparées. La Figure 18-2 représente la part des appareils utilisés en base dans les résidences principales et secondaires pour les segmentations de cette étude, et celles estimées dans l'inventaire ATMO-AuRA de 2015, tandis que la Figure 18-3 représente le % d'appareils estimés dans les résidences principales dans les 3 CC selon le type d'appareil.

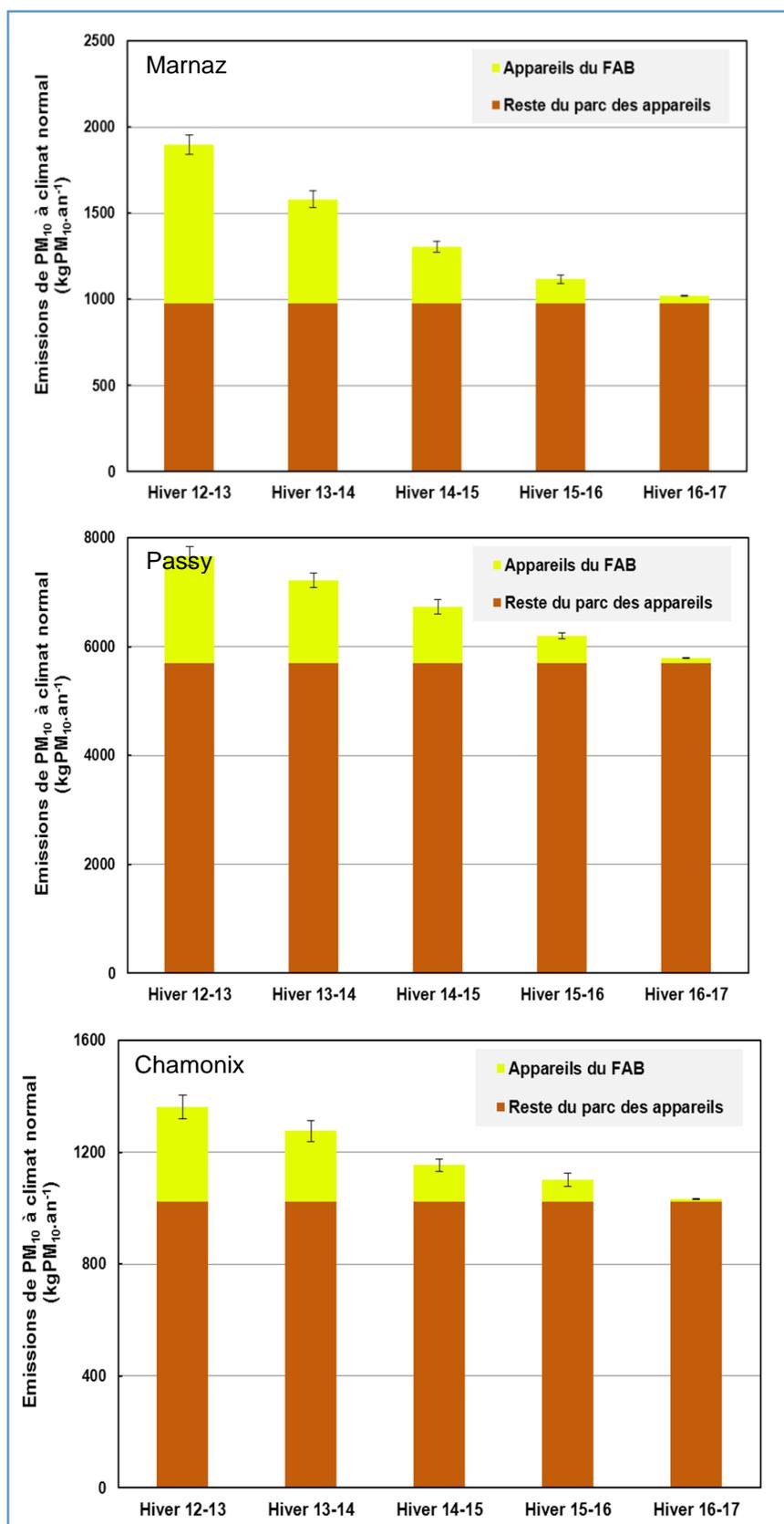


Figure 18-1 : Evolutions des émissions de PM_{10wb} estimées dans un rayon de 1km autour des stations de Marnaz, Passy et Chamonix. Les émissions ont été estimées à partir des facteurs d'émissions de l'Ademe et du scénario du calcul I (cf section 5.1.2) pour les émissions issues des appareils du Fond Air Bois.

Globalement, à l'exception des foyers ouverts dans les résidences secondaires et des appareils performants dans la CC de Cluses, Arve et Montagnes (CAM), un écart de moins de 10% est trouvé entre les parcs d'appareils segmentés selon leur type et leur usage entre les parcs d'appareils estimés et ceux de l'inventaire ATMO-AuRA 2015. Concernant la segmentation des appareils dans les résidences principales et secondaires, une proportion identique a été utilisée pour les parcs d'appareils de notre étude. Dans l'inventaire ATMO-AuRA, les foyers ouverts sont près de 30% plus présents dans les résidences secondaires que ce que nous avons estimé. Pour les autres appareils, un écart moyen de 14% a été trouvé dans la segmentation des résidences principales/secondaires entre l'inventaire ATMO-AuRA et les parcs d'appareils estimés.

Ainsi, les émissions de PM_{10wb} totales ont été estimées à partir des résultats de l'enquête BVA et de plusieurs hypothèses. Parmi ces hypothèses, certaines sont utilisées pour l'établissement de l'inventaire régional ATMO-aura. La segmentation utilisée ici pour les appareils selon leur mode d'utilisation est globalement proche de celle de l'inventaire. La principale différence réside dans la segmentation des appareils selon des résidences principales et secondaires, en particulier le nombre de foyers ouverts dans des résidences secondaires est très sous-estimé par rapport à celui de l'inventaire. A titre de comparaison, les émissions de PM_{10wb} totales seront également estimées à partir des parcs d'appareils communaux de l'inventaire ATMO-aura 2015.

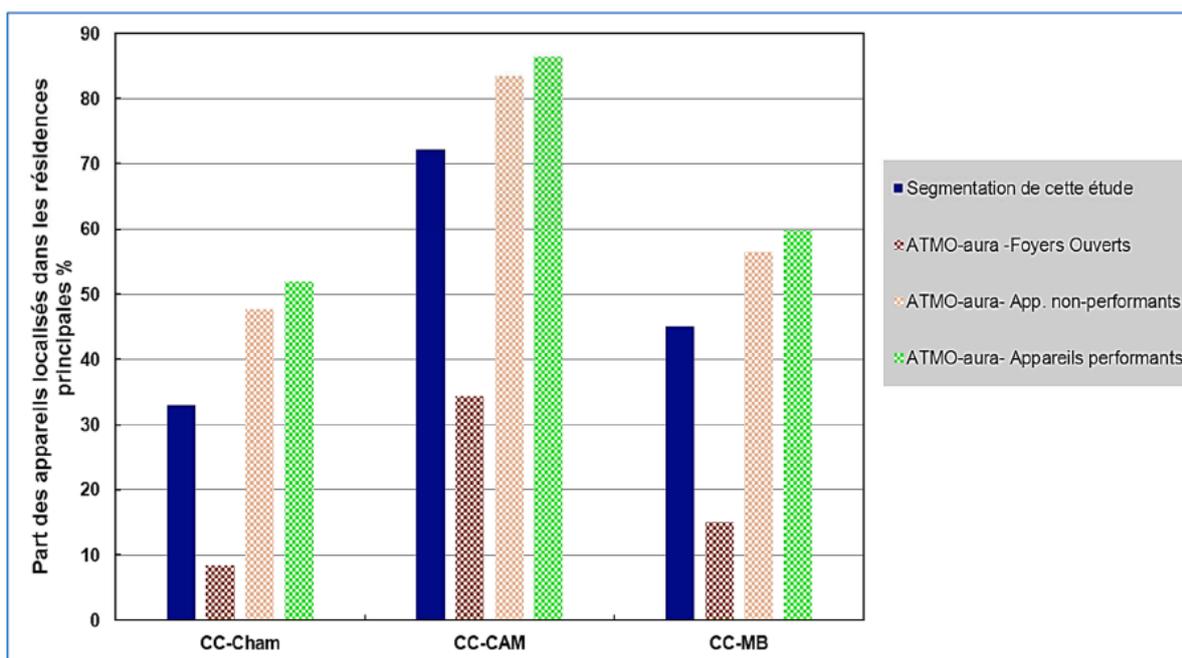


Figure 18-3 : Part des appareils estimés dans les résidences principales selon leur type sur les 3 communautés de communes en fonction des parcs estimés pour cette étude et de ceux issus de la version de l'inventaire ATMO-aura-2015 sans prise en compte du renouvellement des appareils du FAB.

Annexe 19 : Investigation de l'influence de l'aire de représentativité des stations sur les estimations d'émissions de PM_{10wb}

L'aire de représentativité des stations de type fond urbaine est estimée entre 100 m et 2 km (EUROAIRNET, 1998). Du fait de l'encaissement des vallées et de la situation des stations dans la vallée de l'Arve, la comparaison entre les émissions estimées et les concentrations a été réalisée pour une aire de représentativité de 1 km (cf section 5.1.3). L'influence de ce choix sur les émissions estimées a été analysée selon 2 cas :

- 1) **Cas 1 (test de sensibilité)** : les émissions de PM₁₀ issues des appareils de chauffage au bois ont été estimées en fonction d'un *rayon représentatif de 500m ou d'1km*, sur les 3 sites et les 4 hivers selon la méthode d'estimation (FEs de l'Ademe et scénario de calcul I pour les émissions des appareils du FAB).
- 2) **Cas 2 (tentative d'approche de la réalité)** : sur le site de Passy, en fonction des émissions de PM_{10wb} pondérées par un *modèle de dispersion gaussien* prenant en compte l'altitude des logements, la fréquence des directions de vent et des vitesses moyennes associées, ainsi que la distance entre les appareils remplacés et le site de mesure.

En effet, l'aire de représentativité des sites de mesures ne dépend pas que de la distance entre la source d'émission et le site de mesure mais également des conditions atmosphériques et d'autres facteurs pouvant influencer la dispersion des émissions comme l'effet des bâtiments. Les outils permettant de prendre en compte les différents phénomènes de dispersion atmosphérique des émissions sont les modèles de transport et de dispersion atmosphérique. Les données de champs de vent (direction et vitesse) sont généralement des données primordiales nécessaires aux modèles, à une échelle au moins horaire. Or, dans notre étude, les seules mesures de champs de vent conventionnelles et représentatives de la situation au niveau des stations ont été réalisées sur le site de Passy. Le lidar WLS200S d'Atmo-AuRA a fonctionné principalement de 2013 à janvier 2014 et a permis une mesure de la direction et des vecteurs de la vitesse du vent à 40 m de hauteur au-dessus de la station toutes les 10 minutes. Le manque de mesures concernant le vent a cependant conduit à utiliser un modèle avec des hypothèses simplifiées, et décliné selon la classification des conditions atmosphériques précédemment établie (cf annexes 11 et 12).

Cas 1 :

Les évolutions des émissions de PM_{10wb} selon un rayon de représentativité de la station de 500 m ou de 1 km (Figure 18-1) présentent des différences jusqu'à 14% sur les sites de Marnaz et Passy. Les émissions estimées pour les appareils du Fond Air Bois avant renouvellement des appareils représentent 26, 25 et 48% des émissions de PM_{10wb} estimées dans un rayon de 1km autour des stations de Passy, Chamonix et Marnaz respectivement. Ces proportions varient lorsque l'on considère une aire de représentativité de 500 m autour des stations : les émissions issues des appareils du Fond Air Bois représentent alors 43%, 17% et 35% autour des sites de Passy, Chamonix et Marnaz. Ces différences expliquent en grande partie que les évolutions des émissions de PM_{10wb} soient supérieures sur le site de Passy lorsque l'on considère une aire de représentativité de 500m et qu'elles soient inférieures sur les sites de Chamonix et Marnaz par rapport aux variations des émissions estimées dans un rayon de 1 km autour des stations.

Sur le site de Passy, une différence jusqu'à 14% est trouvée entre les estimations des variations entre le 1^{er} et le 4^{ème} hiver selon l'aire de représentativité. La variation des émissions estimées dans un rayon de 500 entre le 1^{er} et le 4^{ème} hiver s'approche le plus de celles estimées pour les concentrations de PM_{10wb} (-34% pour les émissions dans un rayon de 500m, -20% dans un rayon de 1 km et -31% pour les concentrations). A l'opposé, la variation des émissions estimées dans un rayon de 500m entre le 1^{er} et le 3^{ème} hiver est beaucoup plus éloignée de celle des concentrations de PM_{10wb} par rapport à celle des émissions estimées dans un rayon de 1km (-27% pour les émissions estimées dans un rayon de 500m, -14% pour celles estimées dans un rayon de 1km et -10% pour les concentrations de PM_{10wb}. Il n'est donc pas réellement possible de préciser si l'une ou l'autre des aires de représentativité de la station de Passy correspond mieux aux variations des concentrations observées.

Sur le site de Chamonix, les émissions de PM_{10wb} estimées dans un rayon de 500m ont des variations de 7 à 9,2% inférieures à celles déterminées pour les émissions dans un rayon de 1km, s'éloignant davantage des variations déterminées pour les concentrations de PM_{10wb} . Comme pour le site de Passy, les variations des émissions de PM_{10wb} peuvent être différentes jusqu'à 14% sur le site de Marnaz selon l'aire de représentativité sans qu'aucune des 2 estimations ne soient la plus proches des variations de concentrations de PM_{10wb} mesurées pour tous les hivers. Ainsi, les variations des émissions de PM_{10wb} selon une aire de représentativité de rayon 500m et 1km présentent des différences jusqu'à 14% qui s'expliquent par l'écart entre le taux d'émissions de PM_{10wb} issues des appareils du FAB sur celles provenant de tous les appareils entre les 2 estimations. Les variations des émissions de PM_{10wb} selon un rayon 500m autour des stations ne concordent pas de façon plus probante aux variations de concentrations de PM_{10wb} , notamment sur le site de Chamonix.

Nombre d'appareils renouvelés autour des sites de mesure

Passy	Chamonix	Marnaz
34	6	13
81	20	44

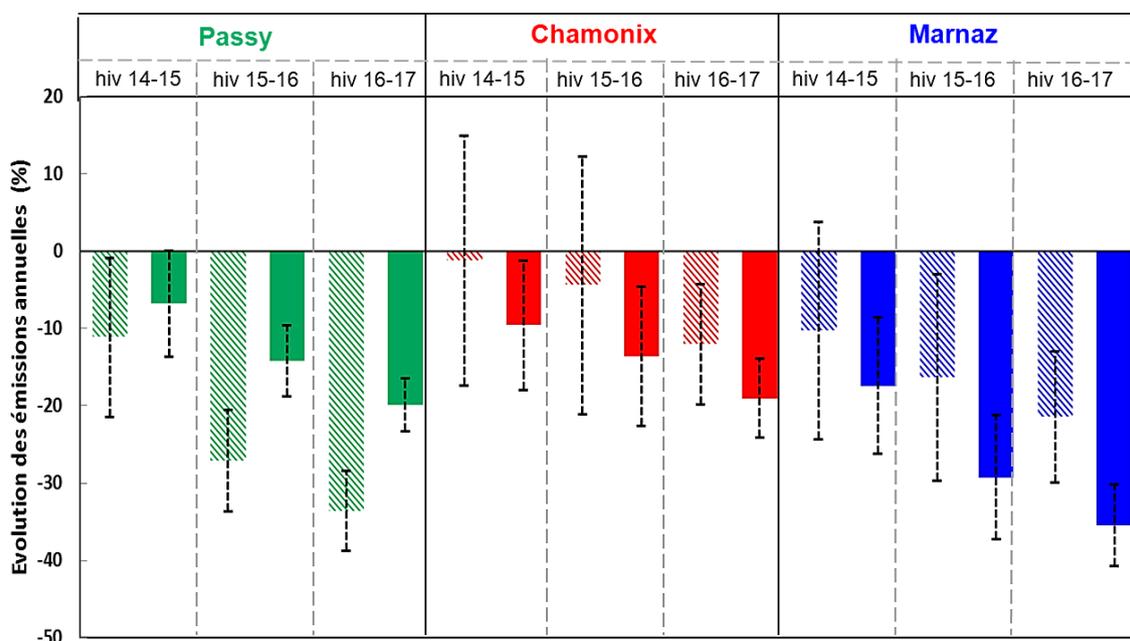
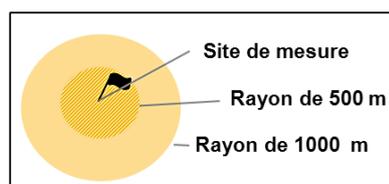


Figure 18-1 : Evolutions des émissions de PM_{10wb} issues des appareils du FAB et des autres appareils dans un rayon de 500m (coloris rayurés) et de 1km (coloris continu) autour des stations. Le nombre d'appareil du Fond Air Bois renouvelés entre le début de l'opération et le 01/11/16 selon les différentes aires est indiqué au-dessus. Les émissions sont estimées à partir des FEs de l'Ademe et du scénario de calcul I (cf – sect 5.1.2). Les barres d'erreurs représentent un intervalle de confiance de 95%, cependant seules les incertitudes provenant de certains éléments des dossiers du FAB ont pu être quantifiées.

Cas 2 :

Outre la distance entre les appareils et la station, les directions préférentielles du vent ainsi que la différence d'altitude entre les logements et la station peuvent également impacter les aires de représentativité des stations. Ces facteurs ont été testés sur le site de Passy par modélisation gaussienne en se basant entre autres sur les mesures de vent effectuées avec le lidar Atmo-AuRA.

Le modèle de dispersion nécessitant le moins d'hypothèse et de paramétrisation correspond au modèle gaussien qui décrit l'étalement d'un nuage de polluants non-réactifs à proximité de la source d'émission. Le principe du modèle consiste à supposer que la dispersion des polluants à partir des différents points d'émission s'effectue à l'intérieur d'un panache dont la répartition des concentrations

est gaussienne par rapport à l'axe du panache (l'ouverture dépendant des conditions météorologiques), comme représentée sur la figure ci-dessous.

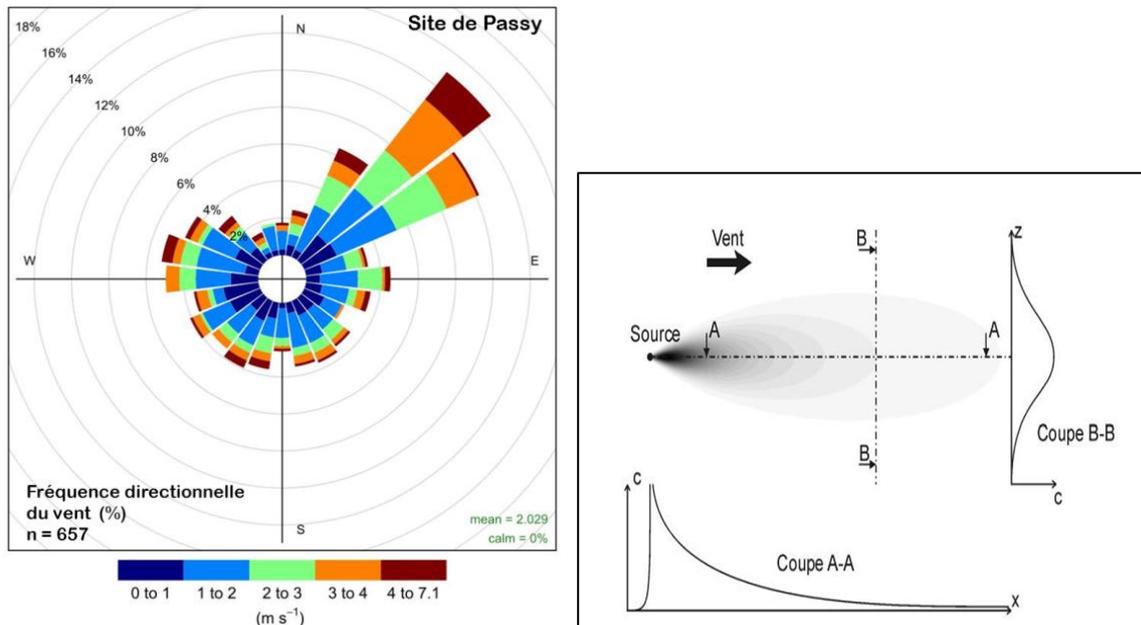


Figure 18-2 : Rose des vents correspondant aux conditions météorologiques de la classe « Dispersion » réalisée à partir des mesures horaires du Lidar WLS200S à 40m au-dessus de la station Passy. Profils de concentration dans un panache gaussien.

La concentration au point (x,y,z) est déterminée par l'équation suivante :

$$C(x, y, z, H) = \frac{Q}{2\pi * u * \sigma_x * \sigma_z} * e^{\left(\frac{-y^2}{2 * \sigma_y^2}\right)} \left\{ e^{\left(\frac{(z-H)^2}{-2 * \sigma_z^2}\right)} + e^{\left(\frac{(z+H)^2}{-2 * \sigma_z^2}\right)} \right\}$$

avec x , l'axe du panache, z , la direction verticale, y , l'axe transverse du panache Q , le débit de la source, u la vitesse du vent, H , la hauteur d'émission et σ_x et σ_z les coefficients de dispersion. Les coefficients de dispersion nécessitent d'être paramétrés. Une paramétrisation selon la classification de Pasquill (1961) a été utilisée, qui décrit des formules empiriques des σ selon la stabilité de l'atmosphère et l'ordre de grandeur de la vitesse du vent. La surélévation moyenne du panache des émissions en sortie de cheminée a été calculée à partir de la formule de Briggs (1979) avec une température des fumées en sortie de cheminée de 110°C, une vitesse de 2 m/s et un diamètre circulaire de cheminée de 20 cm. La hauteur moyenne des bâtiments dans la commune de Passy a été estimée à 11 m, ce qui correspond à la hauteur moyenne d'une maison de 2 étages.

Le modèle a été appliqué uniquement sur le site de Passy pour les conditions atmosphériques de la classe « Dispersion » qui peuvent être approximées en ne paramétrisant que les coefficients de dispersion. La classe C de la classification de Pasquill, caractérisée par une vitesse de vent à 10 m compris entre 2 et 3 m/s, un état instable et un ensoleillement léger, correspond au mieux aux conditions atmosphériques de la classe Dispersion. Les équations empiriques se rapportant à cette classe ont été utilisées afin de quantifier σ_x et σ_z . Les concentrations au niveau de la station provenant d'une émission identique de PM_{10} (717 $\mu g PM_{10}/s$ soit 10kg PM_{10} sur une période de chauffe) des appareils ont été calculées en divisant la rose des vents en 16 secteurs. A chacune de ces 16 directions est associée une fréquence d'occurrence et une vitesse moyenne.

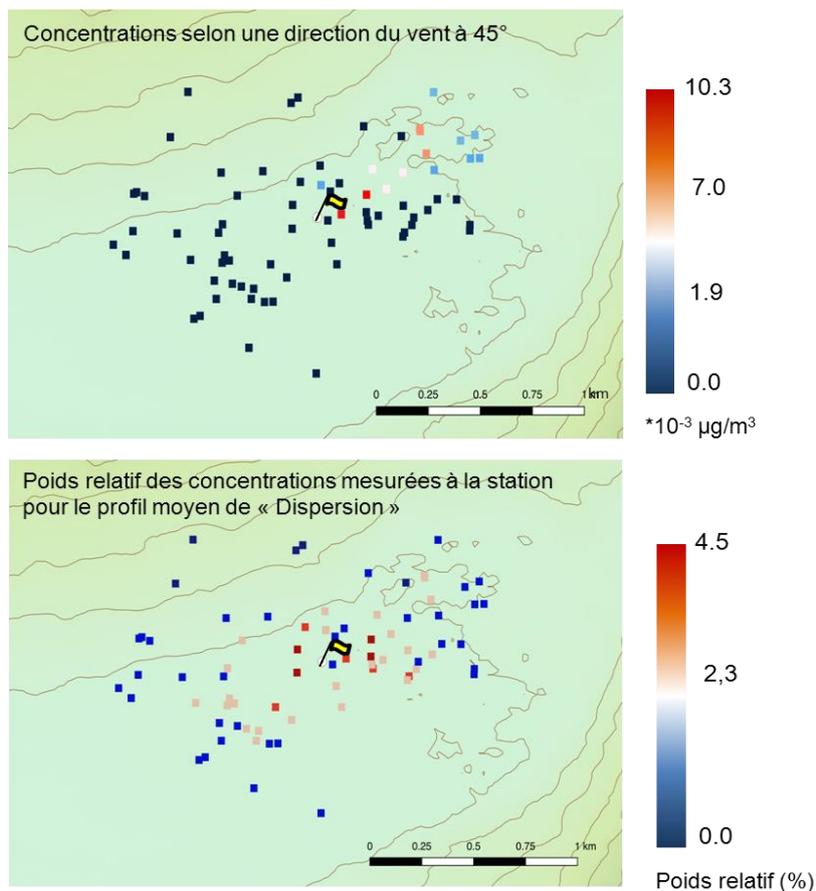


Figure 18-3 : a) Représentation des concentrations estimées au niveau de la station de Passy provenant d'une émission de 717µg/s de PM₁₀ par les logements ayant bénéficié de l'aide du Fond Air Bois dans un périmètre de 1km autour de la station si le type de temps correspond à la classe « Dispersion » avec une direction de vent à 45°.

b) Poids relatif des concentrations mesurées à la station provenant d'une émission identique sur le profil « moyen » de direction et de vitesse de vent en condition de « Dispersion ».

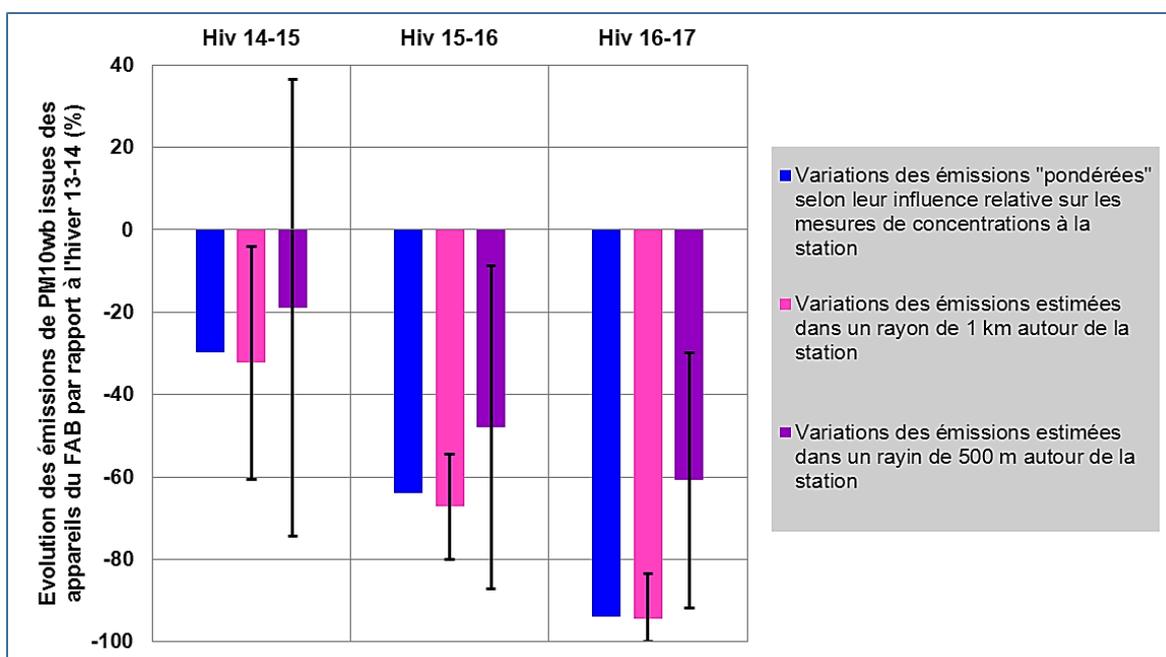


Figure 18-4 : Evolutions des émissions de PM_{10wb} issues des appareils exclusivement du Fond Air Bois au cours des hivers selon différentes aires de représentativité autour de la station Passy. En bleu sont représentées les évolutions des émissions estimées dans un rayon de 1km autour de la station Passy et pondérées par leur influence relative sur les mesures à la station. En rose et violet sont représentées les variations des émissions estimées dans un rayon de 1km et 500m respectivement autour de la station.

Pour déterminer le poids relatif des émissions de chaque appareil de chauffage au bois sur les mesures de concentrations à la station de mesure de Passy, les concentrations au niveau du site de

Passy résultant d'un flux massique de PM₁₀ identique ont été calculées pour chacun des appareils (pour les dossiers du FAB) et selon chaque direction de vent. La vitesse du vent appliquée dans le modèle correspond à la vitesse moyenne selon la direction du vent modélisée. Le poids relatif de l'émission de l'appareil i sur la mesure de concentration a été déterminé comme :

$$i (\%) = \frac{\sum_{0^\circ}^k f_k * C_i^k}{\sum_1^i \sum_{0^\circ}^k f_k * C_i^k} * 100$$

avec k la direction du vent, f_k la fréquence de la direction du vent et C_i^k la concentration calculée au niveau du site de Passy résultant de l'appareil i dans la direction.

La Figure 18-2 illustre les concentrations estimées à la station résultant d'une émission identique de PM₁₀ des appareils situés dans un périmètre d'1km autour de la station (périmètre considéré comme aire maximale de représentativité) pour une direction de vent de 45° pour laquelle la vitesse moyenne du vent est de 2,6 m/s. Une concentration nulle au niveau de la station est bien observée pour tous les appareils situés sous le vent tandis que les concentrations les plus fortes estimées résultent des émissions des appareils les plus proches de la station.

Les concentrations à la station estimées pour les 16 directions de vent et vitesses associées et en prenant en compte la fréquence d'occurrence des directions du vent permettent d'obtenir un poids relatif de l'émission d'un appareil sur les concentrations mesurées à la station. Les poids relatifs des émissions des appareils sont bien distribués comme attendu, selon l'altitude, la distance du logement à la station ainsi que les directions de vent préférentielles. Cependant, une très faible échelle de poids est relevée, variant entre 0 et 4%. Cela peut expliquer qu'aucune réelle différence n'a été observée entre les diminutions des émissions annuelles issues des appareils du FAB en prenant une aire de représentativité de 1km ou en pondérant les émissions par les influences relatives modélisées (voir Figure 18-4).

Cette modélisation présente finalement un intérêt très limité du fait de (i) l'absence de mesures de vent sur les sites de Marnaz et Chamonix, (ii) de la simplicité du modèle qui ne peut approximer relativement bien que les conditions de « Dispersion » et (iii) du fait d'obtenir un résultat de diminution des émissions de PM_{10wb} à Passy au cours des 4 hivers selon la classe « Dispersion » très analogue en pondérant les émissions par cette méthode ou en ne considérant que les émissions des appareils situées dans un périmètre de 1 km autour de la station Passy.

Bibliographie

- Pasquill, F. 1961. The estimation of the dispersion of windborne material. The Meteorological Magazine, 90, 1063:33-49.
- RECORD. 2005. Modélisation de la dispersion des émissions atmosphériques d'un site industriel- Vers un guide de l'utilisateur-Phase1: Etat de l'art. Phase 2: Evaluation des modèles. 795 p, n°03-0805/2A.



Annexe 20 : Caractérisation chimique des aérosols dans la vallée de l'Arve- Thèse de Chevrier F. (2016)

Cette annexe est une synthèse des chapitres 3 et 4 de la thèse de F. Chevrier.

Cette thèse est accessible à <https://tel.archives-ouvertes.fr/tel-01527559>

La composition chimique des particules dépend des sources d'émission des particules et des processus physico-chimiques se réalisant au cours du transport des particules. De novembre 2013 à octobre 2014, a été réalisé des prélèvements de filtres réguliers au niveau des 3 sites DECOMBIO afin de caractériser finement la composition chimique des particules. Cette étude géochimique des particules permet ainsi d'identifier les sources et processus gouvernant la masse des PM₁₀ au sein de la vallée de l'Arve.

La Figure 19-1 illustre les bilans de masses moyens de PM₁₀ et de la matière organique identifiés en périodes hivernale et estivale sur les 3 sites. Dans cette étude, la concentration en matière organique (OM) est obtenue en multipliant la concentration en OC mesurée par un facteur de conversion OM/OC de 1,8. La spéciation organique très détaillée (plus de 100 composés organiques quantifiés) a permis d'identifier entre 11 % (en période estivale) et 21 % (en période hivernale) de la masse de la matière organique, ce qui représente un excellent bilan au regard des données de la littérature internationale.

Les trois sites d'étude de la vallée de l'Arve présentent des contributions moyennes aux PM₁₀ et à la matière organique très semblables les unes des autres sur les périodes hivernale et estivale (19-1). Une des constatations fondamentales sur les profils chimiques est que la matière organique (OM) représente la fraction la plus importante de la masse totale des PM en période hivernale (entre 69 et 74 %) mais également en période estivale (entre 58 et 64 %). Cette proportion importante d'OM en hiver est couramment rencontrée en vallées alpines en raison de l'impact très important de la combustion de la biomasse. La fraction ionique représente la seconde fraction majoritaire pour les trois sites : entre 14 et 18 % l'hiver avec les nitrates comme composés les plus importants, et entre 20 et 24 % l'été où les sulfates sont majoritaires.

La masse des composés organiques identifiés est constituée d'une grande fraction d'HULIS solubles (34 à 64 % de la masse d'OM identifiée), un ensemble d'espèces organiques complexes dont on connaît encore assez mal les sources et les processus de formation (Graber and Rudich, 2006). Les HULIS proviendraient de deux sources majeures : l'une primaire issue des émissions de la combustion de biomasse (processus majoritaire en hiver) (Baduel et al., 2010 ; Feczko et al., 2007 ; Hoffer et al., 2006 ; Mayol-Bracero et al., 2002) et l'autre secondaire issue de divers processus de formation dans la troposphère à partir de précurseurs biogéniques ou anthropiques (Altieri et al., 2006; Gelencsér et al., 2002).

Les concentrations des espèces organiques sont exprimées en mg.g⁻¹OM, ce qui permet d'observer l'influence des sources de ces composés sur la composition de la matière organique particulaire totale et non uniquement la masse d'OM identifiée.

En période hivernale, une large fraction de la matière organique identifiée est également composée de monosaccharides anhydres (49 à 56 %), dont le lévoglucosan, considéré comme traceur de la combustion de la biomasse. Les concentrations moyennes de cette famille de composés peuvent atteindre 111,7 mg.g⁻¹OM à Passy. Les méthoxyphénols, également traceurs de ce type de combustion, représentent également une fraction importante de la matière organique identifiée en hiver (de 5 à 7 %). Les acides organiques et l'oxalate, également quantifiés, représentent environ 6 % de l'OM identifiée. Les hydrocarbures tels que les n-alcane, les hopanes ou les HAP contribuent à moins de 2 % de l'OM identifiée. De plus, en période hivernale, du fait d'une très faible activité biogénique, les polyols ne représentent pas plus de 1 % de l'OM identifiée.

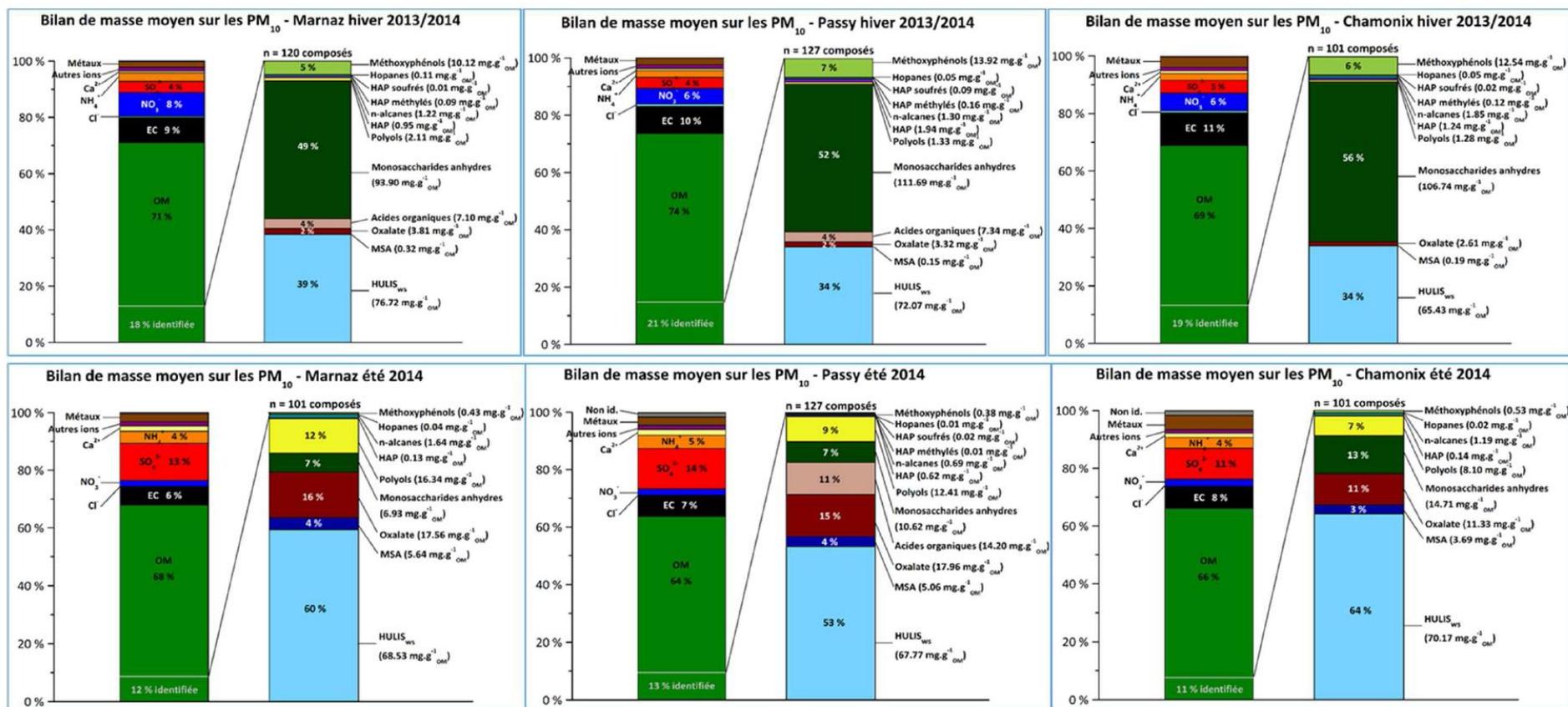


Figure 20-1 : Bilans de masse moyens des PM₁₀ pour les trois sites d'étude de la vallée de l'Arve durant l'hiver 2013/2014 (novembre 2013 à février 2014)



En période estivale, les contributions à la matière organique des espèces oxydées primaires (polyols (Bauer et al., 2008 ; Yttri et al., 2007)) (7 à 12 %) ou secondaires (acides organiques, oxalate (11 à 16 %) ou encore HULIS) augmentent, illustrant le changement de nature de cette composante carbonée de l'aérosol. Une grande partie pourrait être due à des processus de formation via des COV biogéniques (Yu et al., 2005), comme l'indiquent des mesures préliminaires de 14C (Bonvalot et al., 2016). Associé à une large augmentation de la contribution des sulfates (11 à 14 %), ce changement est aussi indicateur d'une influence de sources de PM extérieures à la vallée. De plus, la fraction des monosaccharides anhydres, associés à la combustion de la biomasse, ne représente que 7 à 13 % de l'OM identifiée en période estivale. Les sources de combustion étant moins importantes en été qu'en hiver, les HAP présentent des concentrations nettement plus faibles qu'en période hivernale.

On a montré dans le chapitre 4 que les inversions de température jouaient en hiver un rôle fondamental sur les concentrations en PM₁₀. La 20-2 représente la composition chimique moyenne hivernale lors des jours où une forte inversion thermique a été enregistrée et en condition normale, c'est-à-dire sans la présence d'inversion. Le site de Marnaz ne présente aucune variation majeure de la composition chimique des particules en présence d'inversions. En revanche, les sites de Passy et Chamonix présentent des variations plus marquées dans les contributions d'OC (augmentations respectives de 2 et 4 %) et de NO₃⁻ (diminution de 3 %) à la masse des PM₁₀ et dans les contributions à la masse de matière organique identifiée où une augmentation des monosaccharides anhydres et des méthoxyphénols est visible (4 à 7 %) associée à une diminution des HULIS (3 - 6 %). Les inversions thermiques semblent alors ne pas avoir de conséquences majeures sur la composition des particules atmosphériques sur un site ouvert tandis que pour des sites beaucoup plus fermés l'impact des émissions de la combustion de la biomasse est intensifié.

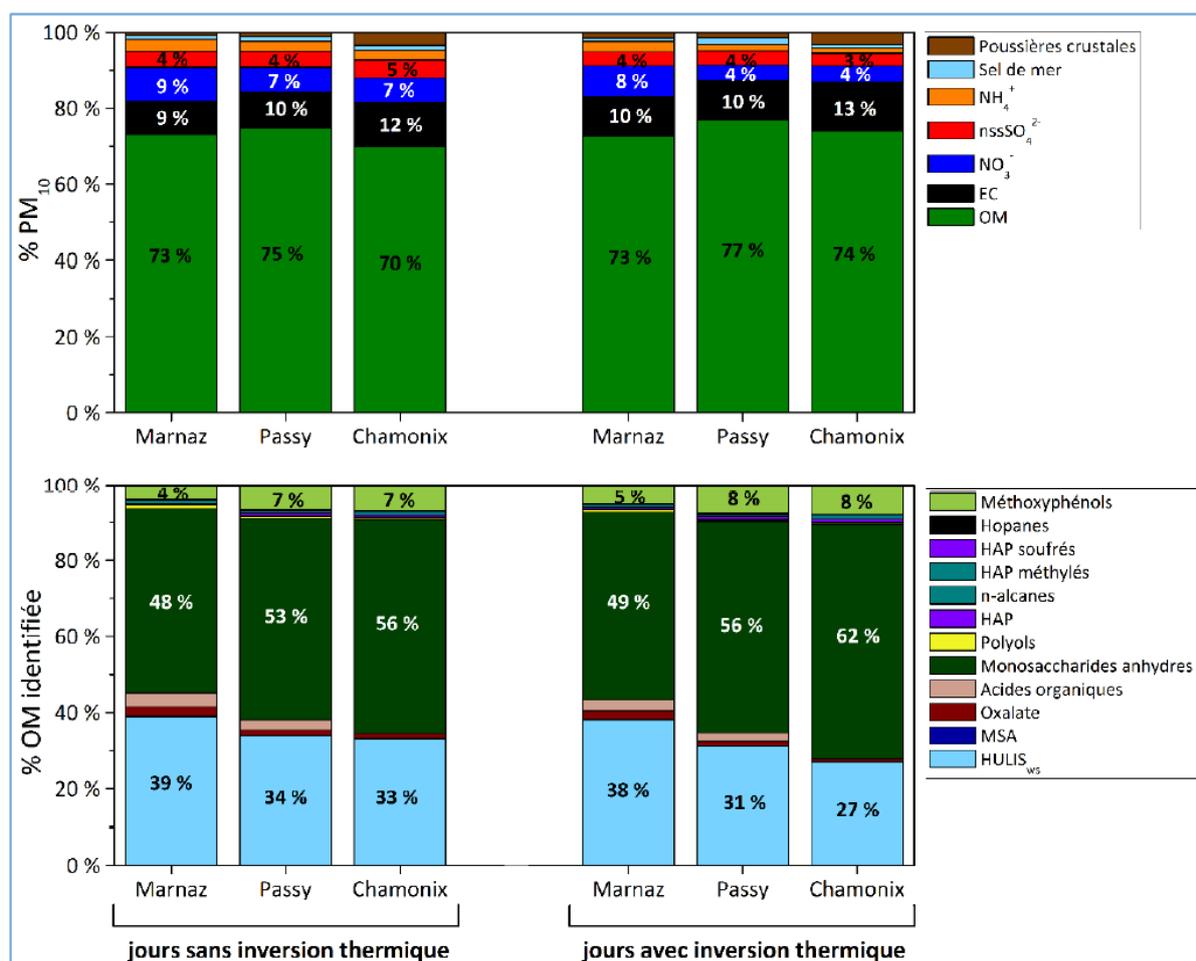


Figure 20-2 : Bilans de masse moyens des PM₁₀ pour les trois sites d'étude de la vallée de l'Arve lors des jours sans inversion thermique et avec la présence d'une inversion, au cours de l'hiver 2013/2014

Ainsi, ces évolutions des contributions aux PM10 ou à la matière organique observées au cours du temps mettent en lumière certains processus qui peuvent, en première approche, être attribués à des échelles régionales (apports exogènes) ou locales (sources internes à la vallée). Les principaux points ressortis sont donc que :

- les trois sites d'étude de la vallée de l'Arve présentent tous des contributions moyennes aux PM10 et à la matière organique très semblables, pour chacune des périodes hivernale et estivale,
- la matière organique (OM) représente la fraction la plus importante de la masse totale des PM en période hivernale (entre 69 et 74 %) mais également en période estivale (entre 58 et 64 %).
- en période hivernale, la matière organique identifiée est principalement constituée de traceurs de la combustion de la biomasse comme les monosaccharides anhydres et les méthoxyphénols. Les HULIS, pour leur part, proviennent majoritairement en hiver de la source de la combustion de la biomasse mais également de processus secondaires dont l'origine des sources est encore mal identifiée.
- en période estivale, la composition de la matière organique identifiée varie avec une augmentation des contributions des espèces oxydées primaires et secondaires dont une grande partie proviendrait de processus de formation à partir de composés volatils biogéniques. Avec l'augmentation de la contribution des sulfates, cela indique une influence de sources de PM extérieures à la vallée.



L'ADEME EN BREF

L'Agence de l'Environnement et de la Maîtrise de l'Energie (ADEME) participe à la mise en œuvre des politiques publiques dans les domaines de l'environnement, de l'énergie et du développement durable. Elle met ses capacités d'expertise et de conseil à disposition de entreprises, des collectivités locales, des pouvoirs publics et du grand public, afin de leur permettre de progresser dans leur démarche environnementale. L'Agence aide en outre au financement de projets, de la recherche à la mise en œuvre et ce, dans les domaines suivants : la gestion des déchets, la préservation des sols, l'efficacité énergétique et les énergies renouvelables, les économies de matières premières, la qualité de l'air, la lutte contre le bruit, la transition vers l'économie circulaire et la lutte contre le gaspillage alimentaire.

L'ADEME est un établissement public sous la tutelle conjointe du ministère de la Transition Ecologique et Solidaire et du ministère de l'Enseignement Supérieur, de la Recherche et de l'Innovation.

<https://www.ademe.fr/>

LES COLLECTIONS DE L'ADEME



ILS L'ONT FAIT

L'ADEME catalyseur : Les acteurs témoignent de leurs expériences et partagent leur savoir-faire.



EXPERTISES

L'ADEME expert : Elle rend compte des résultats de recherches, études et réalisations collectives menées sous un regard.



FAITS ET CHIFFRES

L'ADEME référent : Elle fournit des analyses objectives à partir d'indicateurs chiffrés régulièrement mis à jour.



CLÉS POUR AGIR

L'ADEME facilitateur : Elle élabore des guides pratiques pour aider les acteurs à mettre en œuvre leurs projets de façon méthodique et/ou en conformité avec la réglementation.



HORIZONS

L'ADEME tournée vers l'avenir : Elle propose une vision prospective et réaliste des enjeux de la transition énergétique et écologique, pour un futur désirable à construire.



DECONVOLUTION DE LA CONTRIBUTION DE LA COMBUSTION DE LA BIOMASSE AUX PARTICULES DANS LA VALLEE DE L'ARVE- projet DECOMBIO

Le programme DECOMBIO a accompagné l'évaluation des impacts sur la qualité de l'air de l'opération pilote « Prime Air Bois » de la Vallée de l'Arve, à partir de mesures chimiques et météorologiques de terrain.

La Prime air bois, lancée en avril 2013 dans la vallée de l'Arve, vise à inciter financièrement les résidents du territoire à renouveler leurs appareils de chauffage au bois non-performants afin de réduire les émissions locales provenant de cette source. Entre le début de l'opération et le 1er novembre 2016, 1932 appareils ont été renouvelés sur 11 000 dispositifs non-performants estimés sur le territoire.

DECOMBIO a confirmé la forte contribution de la combustion de la biomasse aux concentrations hivernales de PM10 sur ce territoire et montré l'impact fondamental de la météorologie locale sur les concentrations.

Une diminution progressive des concentrations moyennes de traceurs moléculaires et des concentrations de PM10 issues de cette source a également été observée tout au long de l'opération. La réduction des émissions de PM10 liées aux appareils renouvelés dans la vallée a été évaluée entre 12 et 38 tonnes de PM10 par an à climat normal, soit de 4 à 12% des émissions totales liées au chauffage au bois résidentiel sur l'ensemble de la zone PPA, estimées précédemment par Atmo-AuRA.

L'opération pilote en vallée de l'Arve a été accompagnée d'une diminution progressive des concentrations de PM10 issues de la combustion de la biomasse, tout au long du dispositif.

