

## THÈSE

Pour obtenir le grade de

### **DOCTEUR DE LA COMMUNAUTE UNIVERSITE GRENOBLE ALPES**

Spécialité : Océan, Atmosphère, Hydrologie (CEOAH)

Arrêté ministériel : 25 mai 2016

Présentée par

**Julie ALLARD (PICHEROT)**

Thèse dirigée par **Jean-Luc JAFFREZO**,  
codirigée par **Jean-Luc BESOMBES**,

préparée au sein de l'**Institut des Géosciences de  
l'Environnement**  
dans l'**École Doctorale Terre, Univers, Environnement**

# **Qualité de l'air dans la Vallée de l'Arve : météorologie locale et mesures des réductions des émissions liées au chauffage au bois**

Soutenue publiquement le 27 Septembre 2018

Jury composé de :

**M. Patrice CODDEVILLE**

Professeur, IMT Lille Douai, Rapporteur

**M. Alain CLAPPIER**

Professeur, Université de Strasbourg, Rapporteur

**Mme Sandrine ANQUETIN**

Directrice de recherche CNRS, IGE, Présidente

**Mme Nathalie POISSON**

Ingénieure ADEME, Examinatrice

**Mme Azadeh MARZIN**

Ingénieure ADEME, Invitée

**M. Jean-Luc JAFFREZO**

Directeur de recherche CNRS, IGE, Directeur de thèse

**M. Jean-Luc BESOMBES**

Professeur, Université Savoie Mont Blanc, Co-directeur de thèse





## **Financements**

Les travaux présentés dans cette thèse ont été réalisés dans le cadre du programme PRIMEQUAL DECOMBIO (Projet 1362C0028) subventionné par l'Agence de l'Environnement et de la Maîtrise de l'Energie (ADEME).

Par ailleurs, ces travaux ont bénéficiés d'une allocation doctorale de recherche, également, financée par l'ADEME.





## Résumé

La combustion de la biomasse, en particulier le chauffage au bois résidentiel, constitue une source d'émission fortement contributrice aux concentrations de particules fines,  $PM_{10}$ , en hiver, de façon globale en Europe. Afin de réduire les émissions de cette source, un programme de large envergure de renouvellement d'appareils de chauffage au bois non-performant, le Fonds Air Bois, a été lancé depuis 2013 dans la vallée de l'Arve. Cette action étant amenée à se multiplier en France, l'évaluation de son effet sur les concentrations atmosphériques constitue un enjeu pour les futures politiques de gestion de la qualité de l'air. Le programme PRIMEQUAL DECOMBIO (2013-2018) a été proposé afin de mettre en place des méthodologies permettant d'évaluer l'impact de cette opération sur les concentrations de  $PM_{10}$  à partir de mesures de terrains. Ce programme DECOMBIO, qui a servi de cadre à ce travail de thèse, s'est appuyé sur la confrontation durant 4 hivers des mesures en continu des  $PM_{10}$  issus de la combustion de la biomasse (noté  $PM_{10wb}$ ), des conditions météorologiques, et des variations d'émissions liées au renouvellement des appareils. Pour répondre à cet enjeu, les travaux de cette thèse ont eu pour objectif de développer des méthodes permettant de prendre en compte l'influence des conditions atmosphériques sur les concentrations hivernales de  $PM_{10}$  et d'évaluer les paramètres et facteurs d'incertitudes permettant de comparer les variations estimées d'émissions de  $PM_{10wb}$  avec celles des concentrations mesurées de  $PM_{10wb}$  au cours des 4 hivers.

Ces travaux se sont appuyés sur d'importantes bases de données de mesures chimiques et météorologiques constituées durant 4 hivers (13-14 à 16-17) au niveau de 3 sites dans la vallée de l'Arve. Par ailleurs, les données techniques issues des dossiers de renouvellement des appareils pour bénéficier de l'aide financière du Fonds Air Bois nous ont été communiquées. A partir de ces données, les réductions des émissions de  $PM_{10wb}$  estimées provenant de ces remplacements d'appareils ont été temporalisées et spatialisées. L'état de la stabilité thermique de l'atmosphère, paramètre essentiel pour déterminer les épisodes d'inversions thermiques, a été suivi en continu grâce à un système peu onéreux de capteurs de température sous abris installés le long des pentes. Ces mesures ont permis de montrer que les conditions météorologiques locales dans ces vallées encaissées sont le facteur premier conditionnant les concentrations atmosphériques. Une classification automatique des conditions atmosphériques a été établie, permettant de s'affranchir de cette variabilité et de comparer les concentrations pour des conditions atmosphériques similaires entre les différents hivers. L'innovation de cette approche repose principalement sur la prise en compte du degré d'influence de variables météorologiques et de paramètres liés à l'intensité des émissions sur les concentrations atmosphériques. Une diminution graduelle des concentrations de  $PM_{10wb}$  au cours des hivers a ainsi pu être constatée au niveau des 3 sites pour certaines classes de conditions atmosphériques, résultat consolidé par la diminution concomitante des traceurs de la combustion de la biomasse à la masse des  $PM_{10}$ . Afin de préciser la représentativité de ces résultats, la variation des émissions de  $PM_{10wb}$  résultant du remplacement des appareils a été estimée au niveau des 3 sites de mesures nécessitant de s'intéresser à la large variabilité des consommations de bois et facteurs d'émissions à cette échelle.

Au terme de ce travail et du programme DECOMBIO, nous avons été à même de développer et de valider plusieurs outils méthodologiques applicables dans l'évaluation de futurs fonds air bois (utilisation de capteurs le long des pentes, classification météorologique adaptée à la qualité de l'air, estimation des incertitudes sur les émissions de parc de dispositifs de chauffage au bois). Ces bases solides nous ont permis de mieux comprendre les mesures réalisées sur les PM atmosphériques, et leurs liens avec les estimations des émissions.

### Mots-Clés :

Chauffage au bois résidentiel, évaluation de contrôle des émissions, inversions thermiques, classification de types de temps, inventaire d'émission.

## Abstract

Biomass burning, particularly residential wood burning, is a source of atmospheric particles that contributes significantly to winter  $PM_{10}$  levels globally in Europe. In order to reduce emissions from this source, a large-scale program for the renewal of non-efficient wood-burning appliances, the “Fonds Air Bois” has been launched since 2013 in the Arve Valley. The assessment of its impact on atmospheric concentrations is an issue for future air quality management policies. The research DECOMBIO program (2013-2018) has been proposed to evaluate the impact of this operation on  $PM_{10}$  concentrations from measurements. This DECOMBIO program, which includes these thesis works, was based on the confrontation during 4 winters of continuous measurements of  $PM_{10}$  resulting from biomass burning (noted  $PM_{10wb}$ ), weather conditions, and emissions variations related to appliances renewal. To answer this challenge, the aim of the thesis was to develop methods to take into account the influence of atmospheric conditions on winter  $PM_{10}$  concentrations and to evaluate the parameters and uncertainties that make it possible to compare the estimated  $PM_{10wb}$  emission variations with those of the measured  $PM_{10wb}$  concentrations during the 4 winters.

This work was based on large datasets of chemical and meteorological measurements made during 4 winters (13-14 to 16-17) at 3 sites in the Arve Valley. In addition, the technical data from wood appliances renewal files was provided to us, allowing us to spatially and temporally estimated reductions of  $PM_{10wb}$  emissions from these appliances replacements. The state of atmospheric stability, an essential parameter for determining episodes of temperature inversions, has been continuously monitored thanks to an inexpensive system of sheltered temperature sensors installed along the slopes. These measurements have shown that local weather conditions in these valleys are the primary factor conditioning atmospheric concentrations. An automatic weather types classification has been established, making it possible to overcome this variability and to compare the concentrations for similar atmospheric conditions between the different winters. The innovation of this approach is mainly based on taking into account the degree of influence of meteorological variables and parameters related to the intensity of emissions on atmospheric concentrations. A gradual decrease of  $PM_{10wb}$  concentrations during winters was thus observed at the 3 sites for certain weather types, a result consolidated by the concomitant decrease in tracer biomass combustion at the mass of  $PM_{10}$ . To clarify these results, we were interested in estimating the reduction of  $PM_{10}$  emissions from device replacements at measurement sites and their uncertainties.

At the end of this work and of the DECOMBIO program, we have been able to develop and validate several methodological tools applicable in the evaluation of future “Fonds Air Bois” (use of sensors along the slopes, meteorological classification adapted to air quality, estimation of uncertainties on wood appliances renewable emissions). This solid foundation has allowed us to better understand the measurements made on atmospheric PM, and their relationship to emission estimates.

### Keywords:

Residential wood burning, emission control evaluation, temperature inversions, weather types classification, emission inventories

## Remerciements

Ce document, 437g en format papier et autant de bonnes volontés, a fait appel en coulisses aux compétences multivariées de nombreuses personnes à qui j'adresse, ici, mes plus vifs remerciements.

A un poil de duvet de bébé bouquetin près, l'aventure n'aurait financièrement pas pu débiter. Je tiens donc tout d'abord, à remercier l'Ademe et en particulier Mme Poisson, de m'avoir donné cette opportunité.

Durant 3 ans et même un peu avant, j'ai été encadrée, cadrée et même parfois re-cadrée, par les 2 Jean-Lucs. Je vous remercie, tous les 2, de m'avoir fait confiance et de m'avoir constamment suivi et accordé votre temps et, ce, toujours dans la bonne humeur et jamais très loin de bonnes tablées.

Au terme de ces 3 ans, je remercie les membres du Jury de l'intérêt porté à ce travail, de l'avoir jugé et de vos retours constructifs. Merci, en particulier à M. Coddeville et M. Clappier pour avoir alourdi vos valises estivales 2018 du manuscrit et du rapport à en faire, à Mme Poisson et Mme Marzin d'avoir suivi ce travail dans le cadre du programme DECOMBIO et de l'avoir finalement examiné et à Mme Anquetin d'avoir présidé le jury lors de la soutenance.

La qualité des résultats provient avant tout de celles des données. Mes premiers remerciements vont à F. Chevrier pour m'avoir formée aux protocoles et à son efficace système d'organisation pour continuer à alimenter les différentes bases de données.

Au titre des mesures météorologiques, je tiens à remercier C. Coulaud pour les missions bi-annuelles dans l'Arve sur les capteurs de température et J.P. Laurent pour son expertise sur ces mesures et son aide dans l'acquisition des mesures des stations de Météo-France. Merci également, à A. Paci et T. Sabatier de m'avoir accueillie lors d'un court séjour à Toulouse et de m'avoir sensibilisée à vos recherches et à C. Staquet, pour le suivi de ces travaux.

Dans la catégorie des appareils de chauffage au bois, je remercie Mme Caer et le SM3A ainsi que M. Cassagne de m'avoir transmis leurs données déjà prêtes à l'emploi. Un grand merci à H. Chanut et R. Vidaud de votre aide pour comprendre le fonctionnement des inventaires biomasses, de votre collaboration sur ces derniers et d'avoir toujours répondu présents pour des réunions.

Enfin, dans la catégorie des mesures chimiques, je remercie chaleureusement P. Bernard, O. Lautray et P. Savary pour le transport, pose et dépose des filtres, d'avoir été disponible à chacune de mes demandes et pour la maintenance au quotidien des AE33. Merci à I. Jezek et G. Mocnik pour le suivi depuis Ljubljana de l'état de santé des AE33. Et puis merci aux ingénieurs, techniciens et stagiaires de l'IGE et du LCME qui ont transformé les filtres noirs de particules en tableaux excel à l'air inoffensif.

Je tiens également à remercier G.Brulfert pour le suivi et les encouragements sur mes travaux, ainsi que J.Blanchet pour ses conseils et son aide dans l'analyse de ces données. Merci à D. Voisin de connaître toujours un expert quel que soit nos problématiques, à S. Weber à qui aucune programmation ne résiste et enfin, à l'ensemble des collègues de l'équipe et assimilés, et les stagiaires de passage pour la belle ambiance, les idées et l'entraide qui peuvent y jaillir et les gâteaux.

Je conclurai par remercier toutes les personnes qui m'ont écouté dans mes moments de questionnements, de petits dépits et de contentements, soutenu en faisant tout ce qui ne se fait pas tout seul lorsqu'on est devant un ordinateur dont en premier chef mon mari et ma famille.



# Sommaire général

|   |     |
|---|-----|
| <b>Introduction générale</b> .....  | 2   |
| <b>Chapitre 1 : Etat de l'art et objectifs</b> .....  | 7   |
| 1. Généralités sur les aérosols   |     |
| 2. Influence de la météorologie sur les concentrations  |     |
| 3. Etudes d'impact de mesures locales de réduction d'émissions sur la qualité de l'air  |     |
| 4. Quantifier les émissions de PM <sub>10</sub> du chauffage au bois résidentiel  |     |
| <b>Chapitre 2 : Méthodologie</b> .....  | 43  |
| 1. Sites de mesure  |     |
| 2. Réseau de capteurs le long des pentes  |     |
| 3. Stations de surface Météo-France   |     |
| 4. Mesures et méthodes de la caractérisation chimique de l'aérosol  |     |
| 5. Détermination en continu des PM <sub>10</sub> issues de la combustion de la biomasse   |     |
| 6. Bases de données sur le parc et l'usage des appareils de chauffage au bois dans la vallée de l'Arve  |     |
| <b>Chapitre 3 : Développement d'une classification atmosphérique selon leur influence sur les concentrations</b> .....                            | 65  |
| 1. Enjeu d'une classification des conditions atmosphériques pour l'évaluation du Fonds Air Bois sur la qualité de l'air                           |     |
| 2. Influence des variables météorologiques ou liées aux émissions sur les concentrations hivernales   |     |
| 3. Classification automatique des conditions atmosphériques   |     |
| 4. Conclusion   |     |
| <b>Chapitre 4 : Evolution des concentrations et profil chimiques des PM<sub>10</sub> en fonction des types de conditions atmosphériques</b> ..... | 89  |
| 1. Variabilité des dynamiques et profils chimiques des PM <sub>10</sub> selon les types de conditions atmosphériques                              |     |
| 2. Evolution des concentrations et profils chimiques liées à un changement des émissions de la source de combustion de la biomasse                |     |
| 3. Conclusion   |     |
| <b>Chapitre 5 : Evolution comparée des mesures de concentrations avec l'avancement des remplacements d'appareils</b> .....                        | 107 |
| 1. Réduction des émissions de PM <sub>10</sub> des appareils renouvelés du Fond Air Bois  |     |
| 2. Comparaison des évolutions de réductions d'émissions et de concentrations de PM <sub>10wb</sub> lors de conditions atmosphériques similaires   |     |
| 3. Conclusion   |     |
| <b>Conclusion générale</b> .....  | 125 |
| <b>Références bibliographiques</b> .....  | 129 |
| <b>Annexes</b> .....  | 149 |

## Introduction générale

Avec le développement de ses activités comme l'agriculture dès la période Mésolithique<sup>1</sup>, l'Homme a introduit, de manière directe ou indirecte, des polluants dans l'atmosphère ayant des impacts sur le climat, la biosphère et également sur sa propre santé (Kaplan, et al. 2010, Eisenbud 1978). Les quantités de polluants émises, ainsi que la représentation de la qualité de l'air dans l'esprit des populations ont quant-à-elles très largement évolué au fil du temps, devenant aujourd'hui un enjeu majeur de santé publique. A l'échelle de la planète, une étude récente sur la charge mondiale de morbidité (GBD 2017) a permis d'évaluer que la pollution atmosphérique était responsable de 6,5 millions de décès prématurés (soit 1 personne sur 9 âgée de moins de 65 ans) durant l'année 2015, et représente le 5<sup>ème</sup> facteur de risque pour la santé sur la période 1990-2016 (après la malnutrition, les risques alimentaires, l'hypertension artérielle, et le tabagisme).

La présence d'un « polluant » dans l'atmosphère à un endroit donné peut être due à différentes causes et processus. L'espèce chimique peut avoir été émise directement par une source d'émission naturelle ou anthropique. Elle peut également résulter de processus de formations physico-chimiques à partir d'espèces précurseur dans l'atmosphère. Selon sa durée de vie dans l'atmosphère et la dynamique atmosphérique de son lieu d'émission ou de formation, ce « polluant » peut ensuite avoir été transporté sur quelques mètres ou plusieurs milliers de kilomètres. Parmi les nombreuses espèces chimiques présentes dans l'atmosphère, seules celles ayant un effet délétère avéré sur la santé ou l'environnement sont qualifiées de polluants atmosphériques. Quelques-unes font alors l'objet de réglementation en termes de seuils de concentrations massiques ou de niveaux d'émission à respecter pour telle ou telle activité. Pour réduire les concentrations de ces polluants et ainsi leurs impacts, les politiques en matière de qualité de l'air nécessitent très généralement de reposer sur des actions et des coopérations, de l'échelle mondiale à l'échelle locale (EEA 2017).

Parmi ces polluants réglementés (entre autre au niveau européen par la directive 2008/50/CE) figurent les particules atmosphériques, ou PM (*particulate matter*), pour lesquelles, on distingue les PM<sub>10</sub> et les PM<sub>2,5</sub> (correspondant respectivement aux PM de moins 10 ou 2,5 µm de diamètre aérodynamique). Malgré une baisse de leurs concentrations constatée sur la période 2000-2016 sur le territoire français, résultat d'actions de réduction des émissions primaires anthropiques, certaines zones ne respectent pas encore les normes réglementaires sur les PM<sub>10</sub> (CGDD-SDES 2017). C'est le cas notamment de la vallée de l'Arve. Cette vallée se situe au pied du Mont-Blanc et est caractérisée par une topographie particulièrement encaissée (altitudes allant de 400m à 4810 m) où se concentrent en fond de vallée les activités économiques, industrielles et des axes routiers importants, ainsi que la majeure partie de la population. Comme pour d'autres vallées urbanisées, les dépassements fréquents des seuils réglementaires des PM<sub>10</sub> en fond de vallée en période hivernale sont la conséquence à la fois de la concentration des sources d'émissions locales en fond de vallée et des conditions très défavorables de dispersion des polluants, en lien avec le phénomène de « cold air pool » (Lareau, et al. 2013). Dans l'Arve, des mesures locales de réduction des émissions des particules ont été mises en place dans le cadre d'un Plan de Protection de l'Atmosphère (PPA) adopté en 2012, afin de tenter d'améliorer la qualité de l'air. Une de ces mesures phares porte sur la réduction des émissions liées au chauffage au bois résidentiel, source qui contribue fortement à ces émissions de PM<sub>10</sub> (Bonvalot, et al. 2016 ; Jaffrezo, et al. 2005 ; PPA de la Vallée de l'Arve 2012).

Les problèmes de pollution liés à cette source d'émission ne sont cependant pas propres à la région de la Vallée de l'Arve ou des vallées alpines. De nombreuses publications portant sur

---

<sup>1</sup> L'agriculture ainsi que le pastoralisme sont la conséquence d'une intense déforestation en Europe à partir de l'Holocène moyen (-8000 av JC). Kaplan et al (2010) ont simulé l'impact de cette déforestation de -8000 av JC jusqu'à 1850 ap JC (Révolution Industrielle) sur le cycle du carbone et ont montré que les émissions directes et indirectes issues de cette déforestation seraient responsable d'une concentration de 7 ppm de CO<sub>2</sub> dans l'atmosphère.

l'identification et l'attribution des sources d'émissions aux concentrations de PM ont maintenant démontré que la combustion de la biomasse contribuerait entre 15 et 60% des concentrations de PM<sub>2.5</sub> pour des sites de fond urbains ou ruraux de part le monde. Ces résultats sont compilés dans des études de synthèse récentes (Vincente et Alves 2018 ; Karagulian, et al. 2015; NILU 2011). Pour la France, dans le cadre du programme SOURCES financé par l'Ademe, une étude d'attribution des sources d'émission des PM<sub>10</sub> a été réalisée de manière harmonisée par l'utilisation du modèle récepteur PMF (Positive Matrix Factorization, PMF5.0 EPA) sur 15 sites français (Favez, et al. 2017). Si les vallées alpines (site de Chamonix) montrent les contributions les plus élevées de cette source « combustion de biomasse » en hiver (70% des PM<sub>10</sub> en moyenne saisonnière), la majorité des sites de fond urbain est également impactée (Lyon, Aix-en-Provence, Poitiers, etc) et présente des contributions de l'ordre de 30% en hiver (Figure 1).

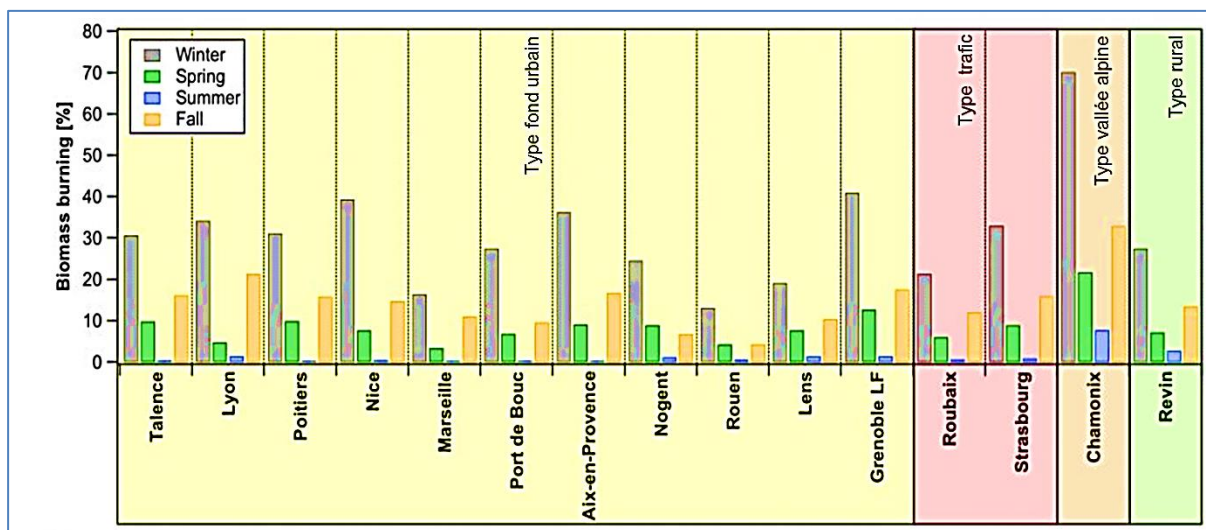


Figure 1 : Variabilités saisonnières des contributions relatives moyenne de la combustion de la biomasse aux PM<sub>10</sub> sur 15 sites français de type fond urbain (couleur de fond jaune), trafic (rose), vallée alpine (orange) et rural (vert), déterminées par l'utilisation du modèle récepteur PMF (Positive Matrix Factorization) de manière harmonisée (Favez, et al. 2017)

Les émissions de combustion de la biomasse en hiver proviennent majoritairement du chauffage au bois résidentiel dans les pays développés (Europe, Amérique du Nord, Australie) et plus spécifiquement des appareils de chauffage au bois anciens et non-performants (Vincente et Alves 2018 ; Besombes et al., 2014). Malgré les nuisances potentielles de ces appareillages anciens, l'utilisation de la biomasse comme combustible domestique n'est cependant pas près d'être abandonnée, puisque l'incitation à l'emploi de cette énergie est inscrite dans les stratégies de réduction des gaz à effet de serre, retrouvée par exemple au Mexique (Berrueta, et al. 2017), au Canada (Smyth, et al. 2017), ou en France dans le cadre du Grenelle de l'Environnement (2012). En effet, le bois-énergie est une énergie renouvelable, disponible localement, et considéré comme quasi-neutre vis-à-vis du changement climatique. C'est également, en France, une filière économique relativement importante, avec un marché estimé à 3,5 milliards d'euros pour 10 000 emplois en 2014 (ADEME 2015). Ainsi, afin de concilier les problématiques de changement climatique, d'amélioration de la qualité de l'air, et de développement économique, une action pilote de large envergure de renouvellement des appareils de chauffage de bois non-performants, le Fond Air Bois, a été lancée en 2013 sur le périmètre du PPA de la vallée de l'Arve.

Cette opération repose, en partie, sur l'incitation financière des résidents permanents de la vallée de l'Arve pour renouveler *in fine* 3 200 dispositifs de chauffage au bois non-performants, sur les 11 000 estimés pour le territoire dans les résidences principales (ADEME 2013). Un premier programme de plus faible envergure (30 appareils renouvelés) a également été mis en place sur la commune de Lanslebourg en Haute-Maurienne (Besombes, et al. 2017). Des actions similaires à ces

Fonds Air Bois pour tenter de réduire les émissions liées au chauffage résidentiel au bois sont amenées à terme à se généraliser sur le territoire national (DGEC 2017), et ont d'ores et déjà été mises en place dans d'autres agglomérations, comme Grenoble ou Annecy. Comme pour les autres actions locales entreprises pour réduire les émissions, l'évaluation de l'efficacité réelle de ces fonds Air Bois pour améliorer la qualité de l'air et réduire l'exposition des populations est devenue un enjeu politique. Ainsi, l'étude de l'impact des Plans de Protection de l'Atmosphère, à l'occasion de leur élaboration, de leur évaluation, et de leur révision fait l'objet d'un arrêté dans le Code de l'Environnement (Arrêté du 19 avril 2017 relatif au dispositif national de surveillance de la qualité de l'air ambiant définie).

Les modèles de Chimie-Transport (CTM) sont les outils d'excellence des évaluations environnementales portant sur la qualité de l'air. Ils sont basés sur la représentation physique des processus de dispersion, de transport, et de chimie atmosphérique que subissent les émissions gazeuses et particulaires dans l'atmosphère. A partir de la quantification et de la spatialisation des émissions en données d'entrée, ces modèles permettent de quantifier l'effet d'une action de réduction des émissions sur la qualité de l'air *a priori* et *a posteriori* (Honoré, et al. 2017). Ces modèles sont cependant sujets à de nombreuses incertitudes. La connaissance des émissions avec une résolution spatiale et temporelle fine est nécessaire, des clés de désagrégation temporelles et spatiales sont utilisées, introduisant souvent de fortes incertitudes (Matthias, et al. 2018). C'est particulièrement le cas des émissions liées au chauffage au bois résidentiel, l'estimation des émissions annuelles à l'échelle de la commune étant déjà sujette à des incertitudes provenant d'un manque de connaissance sur la représentativité des parcs d'appareils (nombre et type d'appareils de chauffage) et leur facteurs d'émissions. Le suivi, avec un CTM, de l'impact d'un programme de renouvellement des appareils de chauffage au bois sur la qualité de l'air à une échelle spatiale fine est donc problématique. De surcoût, pour les vallées de type alpin, les phénomènes d'inversions thermiques persistentes en fond de vallée (« cold air pool ») impactant (très) fortement les niveaux de concentrations sont encore un challenge scientifique tant au niveau de la connaissance des mécanismes atmosphériques que de leur modélisation (Sabatier, et al. 2018 ; Paci, et al. 2016).

Alternativement aux modèles de chimie-transport, les mesures de concentrations en air ambiant peuvent être employées pour évaluer les politiques de gestion de la qualité de l'air, déjà mises en œuvre dans le cadre de plusieurs programmes sur différents continents. Différentes méthodologies ont été développées pour pouvoir distinguer la variabilité des concentrations due aux conditions météorologiques de celle attribuable aux actions de réduction des émissions. Elles ont cependant été appliquées majoritairement dans les analyses des tendances sur une ou plusieurs décennies de mesures, ne permettant pas d'évaluer l'efficacité d'une action de réduction des émissions en particulier (Malherbe et al., 2017). Afin de permettre cette quantification, certaines études récentes ont ciblé des mesures de composés chimiques spécifiques (traceurs), voire de quantification de la contribution de la source d'émission en question, avant et après l'action de réduction des émissions (cf Chapitre 1- section 2.3). Aujourd'hui, les connaissances scientifiques concernant les méthodes d'attribution des sources ont beaucoup évolué avec le développement instrumental permettant de distinguer certaines sources en continu (aethalomètre) ou celui de modèle source-récepteur robuste. Ces connaissances permettent d'envisager de suivre en temps réel les PM issues de la source de combustion biomasse, même sur un terrain aussi complexe que celui d'une vallée urbanisée. Ainsi, une évaluation scientifique de l'opération du Fonds Air Bois à partir de mesures de terrain sur 4 hivers a été financée dans le cadre du programme PRIMEQUAL DECOMBIO (2015-2018) (Jaffrezo, et al. 2018).

La stratégie de l'évaluation de l'impact de l'opération du Fond Air Bois entre les hivers 13-14 à 16-17 dans le programme DECOMBIO, cadre de ce travail, vise à proposer une méthodologie la plus complète possible, à partir de mesures de terrains :

1. en quantifiant de manière continue les contributions des émissions liées à la combustion de la biomasse dans les concentrations de PM<sub>10</sub>,



2. en adoptant une méthodologie permettant de différencier l'impact des conditions météorologiques dans la variabilité des concentrations, notamment celles des inversions thermiques,
3. en confrontant ces mesures avec les données techniques issues des dossiers de demande du Fond Air Bois permettant de localiser et de dater les renouvellements d'appareils.

Le projet DECOMBIO s'est appuyé sur un premier travail (thèse de Florie Chevrier 2016), axé sur la mise en place d'une méthodologie de quantification de la contribution des émissions liées à la combustion de la biomasse aux  $PM_{10}$ . Le travail de thèse présenté dans ce manuscrit s'attache maintenant aux second et 3<sup>ème</sup> objectifs de ce programme, en développant des méthodologies statistiques permettant d'une part d'évaluer l'influence des conditions atmosphériques sur l'évolution des concentrations, notamment les inversions thermiques, et d'autre part de comparer les évolutions d'émissions estimées et de concentrations mesurées au cours de l'avancée des remplacements d'appareils dans le cadre du Fond Air Bois.

Ce manuscrit de thèse se décompose en 5 chapitres. Après une synthèse de l'état de l'art sur les différents domaines couverts par ce travail (Chapitre 1) puis une description des outils et données utilisés (Chapitre 2), le chapitre 3 présentera la méthodologie développée pour établir une classification météorologique robuste. Les résultats des évolutions des concentrations utilisant cette classification seront présentés dans le chapitre 4. Enfin, le chapitre 5 présentera une tentative de comparaison des concentrations mesurées et des estimations de réduction des émissions, après avoir développé les méthodes permettant d'estimer leurs incertitudes respectives.



## Chapitre 1 : Etat de l'art et objectifs

|  |    |
|--|----|
| <b>1. Généralités sur les aérosols</b> .....   | 8  |
| <b>2. Influence de la météorologie sur les concentrations des aérosols</b> .....   | 11 |
| <b>2.1. Tour d'horizon des phénomènes météorologiques impactant les aérosols</b> .....   | 11 |
| 2.1.1. Description des processus physico-chimiques connus.....   | 11 |
| 2.1.2. Relation entre les variables météorologiques et les concentrations de PM <sub>10</sub> .....  | 14 |
| <b>2.2. Stabilité atmosphérique : dynamique, détermination expérimentales et relation avec les concentrations de PM<sub>10</sub> près du sol</b> ..... | 16 |
| 2.2.1. Evolution de la couche limite sur sol plat et homogène.....   | 16 |
| 2.2.2. Détermination expérimentale de la hauteur de la couche limite.....  | 17 |
| 2.2.3. Particularités de la dynamique de la couche limite dans les vallées.....  | 18 |
| 2.2.4. Relation entre la stabilité atmosphérique et les concentrations de PM près du sol.....  | 19 |
| <b>3. Etudes d'impact de mesures locales de réduction d'émissions sur la qualité de l'air</b> .....  | 21 |
| <b>3.1. L'enjeu des cadastres d'émissions dans les études d'impact avec des modèles CTM</b> .....  | 21 |
| <b>3.2. Méthodes pour isoler la part liée aux émissions dans des mesures de concentrations</b> .....   | 23 |
| 3.2.1. Description des méthodes appliquées dans des analyses de tendance de concentrations.....  | 23 |
| 3.2.2. Prise en compte de la météorologie dans des études d'impact d'actions locales.....  | 25 |
| <b>3.3. Attribuer les sources d'émissions dans les mesures de concentrations d'aérosol</b> .....   | 27 |
| 3.3.1. Tour d'horizon des principales méthodes d'attribution des sources.....  | 27 |
| 3.3.2. Utilisation de méthodes d'attribution des sources dans des études d'impact d'actions locales.....   | 32 |
| <b>4. Quantifier les émissions de PM<sub>10</sub> du chauffage au bois résidentiel</b> .....   | 33 |
| <b>4.1. Méthode d'élaboration de l'inventaire des émissions Atmo-AuRA concernant le secteur du chauffage au bois résidentiel</b> .....                 | 33 |
| 4.1.1. Elaboration des parcs d'appareils communaux.....  | 34 |
| 4.1.2. Consommation de bois.....   | 35 |
| 4.1.3. Facteurs d'émissions.....   | 36 |
| <b>4.2. Paramètres d'influence sur les facteurs d'émissions</b> .....  | 36 |
| <b>5. Objectifs et stratégie de cette étude</b> .....  | 39 |

## 1. Généralités sur les aérosols

Sous le terme générique « aérosol atmosphérique » définit comme « une particule solide ou liquide en suspension dans l'air, à l'exception des gouttelettes nuageuses », se cachent des objets avec une incroyable diversité de formes, tailles, et propriétés physico-chimiques (Figure I.1). Encore aujourd'hui, l'ensemble des espèces chimiques constituant ces particules n'est pas identifié. Face à cette hétérogénéité, les aérosols peuvent être catégorisés en fonction de différentes propriétés. Selon leur processus de formation, les aérosols dits « primaires » sont distingués des aérosols dits « secondaires ». Les premiers sont directement émis dans l'atmosphère par érosion éolienne, processus de combustion, remise en suspension de débris divers, processus biologiques, etc. Les aérosols secondaires se forment, par contre, dans l'atmosphère par des processus de transformation et de condensation de composés gazeux, appelés précurseurs d'aérosols.

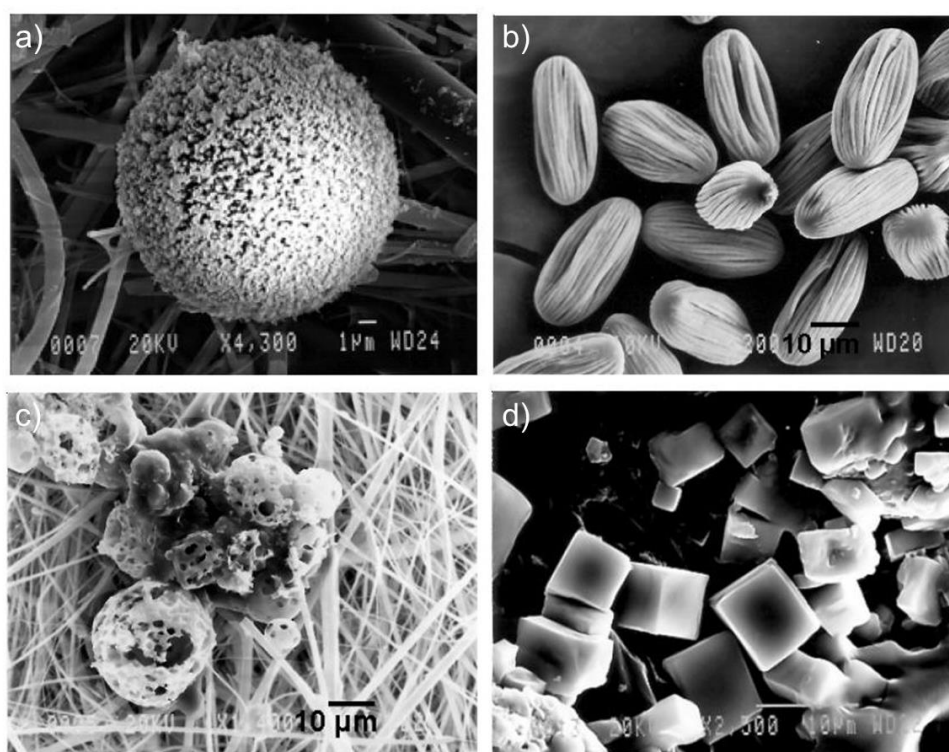


Figure I.1 : Microphotographies par microscope électronique à balayage a) d'une particule provenant d'émissions d'industrie de l'acier, b) de grains de pollens, c) de particules issues d'émissions d'une industrie pétrochimique, d) de cristaux de sels marins (Umbria, et al. 2004)

La taille des particules est un paramètre fondamental en intégrant plusieurs propriétés et caractéristiques de l'aérosol. Elle dépend en effet des mécanismes de formations, des sources d'émissions, des réactions physico-chimiques pouvant se produire pendant le transport, et influence le temps de résidence de ces particules dans l'atmosphère. Elle conditionne également la profondeur de pénétration dans le système respiratoire humain (Guarnieri et Balmes 2015). Pour l'étude de l'aérosol atmosphérique et ses interactions avec l'environnement et la santé, ainsi que pour la réglementation, on se réfère aux diamètres aérodynamiques<sup>2</sup>,  $D_a$  des particules. Trois populations de particules (appelées modes) sont distinguées selon leur taille (Figure I. 2) : les modes d'Aitken, d'accumulation, et le mode grossier. Selon que l'on mesure la concentration massique des particules, la surface spécifique, ou le nombre de particules, les modes de particules ont des distributions extrêmement

<sup>2</sup> Le diamètre aérodynamique est le diamètre de la sphère ayant la même vitesse de sédimentation que la particule et une masse volumique de  $1000 \text{ kg.m}^{-3}$ .

différentes. Le nombre de particules est essentiellement le fait des particules les plus fines tandis que la masse totale est principalement due aux particules les plus grosses (>0.2  $\mu\text{m}$  environ).

La réglementation en matière de la qualité de l'air impose des valeurs limites en termes de concentrations massiques des particules selon leur diamètre :  $\text{PM}_{10}$  et  $\text{PM}_{2.5}$  correspondant aux particules de moins de 10 et 2,5  $\mu\text{m}$  de diamètres respectivement. Les  $\text{PM}_{2.5}$  représentent environ 60 à 70% des  $\text{PM}_{10}$  (Querol, et al. 2004). Les particules les plus fines (< 0,1  $\mu\text{m}$ ) n'entrent pas en ligne de compte pour ces seuils réglementaires, ce sont, cependant, celles qui peuvent pénétrer jusqu'aux alvéoles pulmonaires (Terzano, et al. 2010). Cela n'est donc pas sans poser questions de la pertinence de la réglementation actuelle vis-à-vis des problèmes sanitaires.

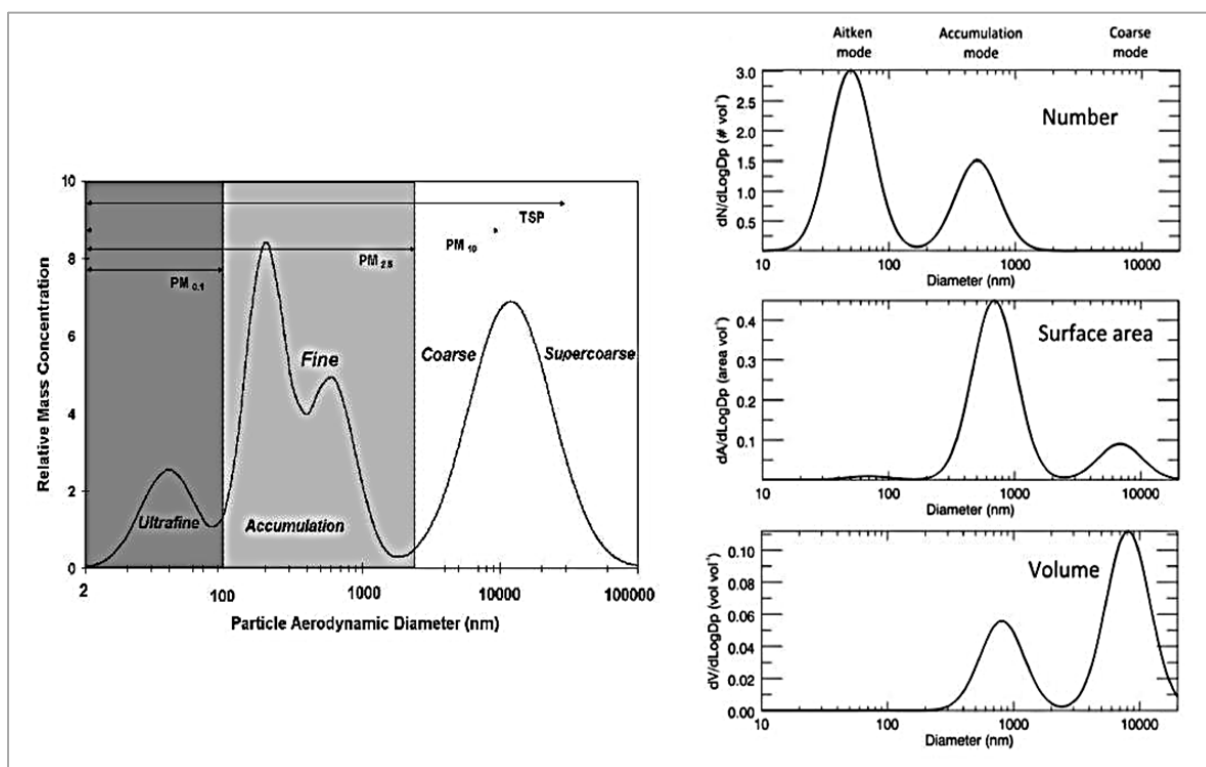


Figure 1.2 : Distribution en masse, en nombre, en surface et en volume des particules atmosphériques selon leur diamètre aérodynamique (Seinfeld et Pandis 2012).

Plusieurs propriétés permettant de caractériser les différents modes de particules répertoriées dans le Tableau I.1. Les particules du mode accumulation (diamètre compris entre 0,1 et 2,5  $\mu\text{m}$ ) ont un temps de résidence de quelques jours pouvant ainsi être transportées sur de longues distances et impacter environnement et population à une échelle régionale. Ces constituants chimiques vont également interagir avec les autres constituants de l'atmosphère modifiant les propriétés physico-chimiques des particules jusqu'à ce qu'elles soient éliminées de l'atmosphère par dépôts secs ou humides (Anastasio et Martin 2001). Les différents modes de particules présentent également des variations de composition chimique. Les aérosols du mode grossier seront davantage constitués d'éléments de la croûte terrestre ou de sels de mer, tels que le calcium et le sodium, tandis que les particules fines ou ultrafines sont constituées de davantage d'ammonium, sulfate et nitrate, et matière organique (Putaud, et al. 2004a, Wall, et al. 1988)

La composition chimique des aérosols varie suivant l'origine de l'aérosol et les processus physico-chimiques pouvant se dérouler dans l'atmosphère. Son étude permet ainsi de pouvoir caractériser les sources d'émissions et les processus contribuant à l'évolution des concentrations mesurées sur un site. Cependant, quel que soit le site, les aérosols sont constitués d'eau, d'une fraction carbonée, d'une fraction inorganique, de minéraux, sels marins et d'éléments traces métalliques (Figure 3).

| Mode  | Mode Aitken ou ultrafin                                       | Mode Accumulation ou mode fin                         | Mode grossier   |
|---|---|---|---|
| <b>Diamètre Da</b>                              | < 0.1 µm  | Entre 0.1 et 2.5 µm                                   | >2.5 µm   |
| <b>Mécanisme de formation</b>                   | Processus de nucléation et de condensation de composés gazeux | Processus de combustion et coagulation des particules | Processus mécaniques (érosions, remise en suspension)   |
| <b>Temps de résidence dans l'atmosphère</b>     | Quelques minutes à heures                                     | Quelques jours  | Quelques heures (sauf transport poussières désertiques) |
| <b>Pénétration dans le système respiratoire</b> | Jusqu'aux alvéoles pulmonaires et système circulatoire        | Jusqu'aux alvéoles pulmonaires                        | Du nasopharynx à la trachée                             |

Tableau I.1 : Caractéristiques en termes de taille, mécanisme de formation, temps de résidence dans l'atmosphère et pénétration dans le système respiratoire des différents modes d'aérosols.

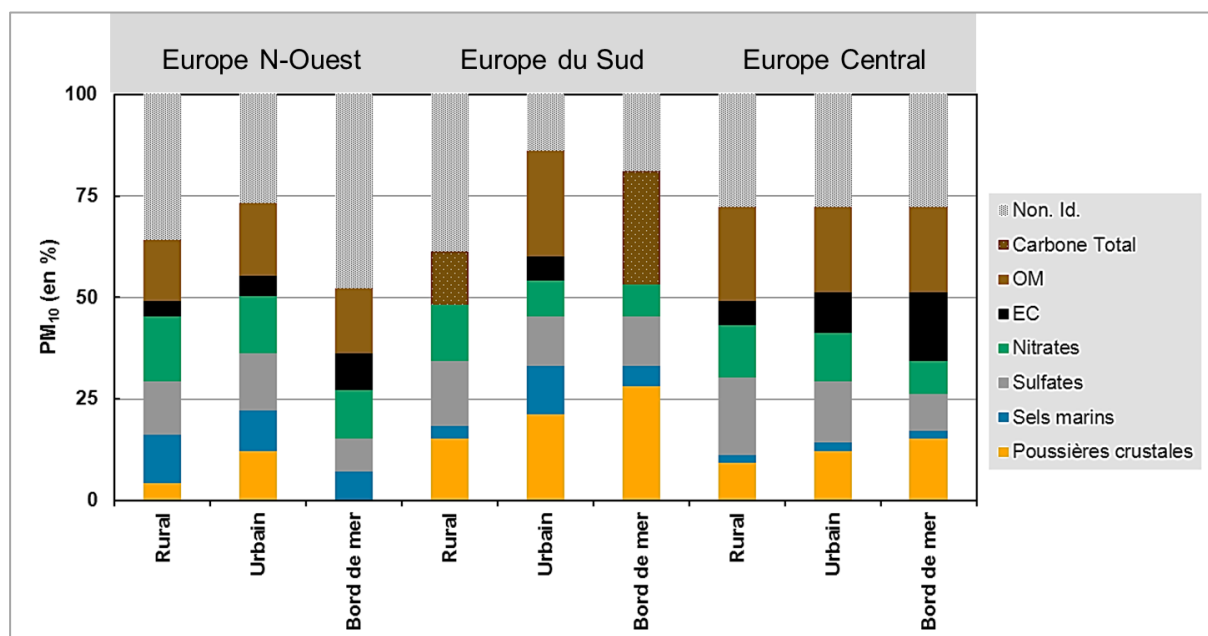


Figure I.3 : Composition chimique relative moyenne des PM<sub>10</sub> réalisée sur 34 sites dans 11 pays en Europe. EC réfère au carbone élémentaire, OM, à la matière organique, le carbone total correspond à la fraction EC et OC. (adapté de Putaud et al, 2010).

La fraction carbonée est constituée de matière organique (OM) et de carbone élémentaire (EC), et représente entre 10 et 70% de la masse totale de l'aérosol (Putaud, et al. 2010, Kanakidou, et al. 2005). Ces deux fractions (EC et OC) n'ont pas de définition chimique précise, leur quantification et terminologie dépendent des propriétés physico-chimiques sur lesquelles repose l'instrumentation utilisée pour les quantifier. Le carbone élémentaire ou black carbon (BC) est constitué d'atomes de carbone peu ou non fonctionnalisés et hautement polymérisés. Il présente des propriétés réfractaires, est inerte et absorbe la lumière aux longueurs d'ondes de l'UV-visible (Bond 2004). Il provient de réaction de combustion à hautes températures d'énergies fossiles ou de biomasse. L'EC correspond au BC analysé par méthode thermo-optique, tandis que l'eBC correspond au BC mesuré à partir de ses propriétés optiques (Petzold, et al. 2013). La matière organique (OM) correspond quant-à-elle au carbone organique (OC) mesuré par méthode thermo-optique associé à l'ensemble des composés organiques fonctionnalisés. Ces composés organiques, de l'ordre de plusieurs milliers dans les échantillons atmosphériques, ne sont pas tous identifiés ni mesurés. Afin de quantifier la matière

organique, on utilise un ratio OM/OC, compris généralement entre 1 et 3, dépendant des sources d'émissions, du site et de la saison (Aiken, et al. 2008). L'OM peut être émise directement dans l'atmosphère ou résulter de processus de formations secondaires.

La fraction inorganique des aérosols regroupe les espèces ioniques, et les métaux et éléments traces. Le sulfate ( $\text{SO}_4^{2-}$ ), le nitrate ( $\text{NO}_3^-$ ) et l'ammonium ( $\text{NH}_4^+$ ) sont les ions principaux et résultent en majorité de processus de formation secondaire par oxydation de précurseurs gazeux dans l'atmosphère (Seinfeld et Pandis 2012). La composante marine est principalement constituée de chlore ( $\text{Cl}^-$ ), sodium ( $\text{Na}^+$ ) et magnésium ( $\text{Mg}^{2+}$ ). Enfin, la composante minérale issue de l'érosion éolienne des sols mais également de sources anthropiques comme les processus industriels, la source véhiculaire (tel que les processus d'abrasion) contient la majorité des métaux.

Par certaines de leurs propriétés, les aérosols atmosphériques ont des conséquences néfastes sur la santé humaine, le climat, et l'environnement. Certains composés sont connus pour leur toxicité comme le plomb, le nickel ou certains hydrocarbures aromatiques polycycliques et font l'objet d'une réglementation spécifique. Selon leur composition chimique, les aérosols sont capables d'absorber ou de rétrodiffuser les radiations solaires agissant ainsi sur le forçage radiatif global, indicateur du changement climatique. En particulier, le BC, en absorbant les rayonnements lumineux, est considéré comme le deuxième acteur le plus important du changement climatique après le  $\text{CO}_2$  (Bond, et al. 2013). Les aérosols influencent également le cycle de vie des nuages en modifiant certaines de leurs propriétés physico-chimiques et leur durée de vie (Seinfeld, et al. 2016). Enfin, les aérosols agissent également sur l'environnement via leurs dépôts sur les sols et les océans (apportant nutriments mais aussi substances toxiques) et aussi sur la végétation, pouvant altérer l'activité photosynthétique des végétaux (Steiner et Chameides 2005). Ces impacts dont beaucoup sont néfastes ont conduit à l'acceptation générale du besoin de réduire les émissions des particules atmosphériques (Protocole de Gothenburg, UNECE 2013) afin de diminuer les niveaux de concentrations, qui sont la mesure objective de la qualité de l'air. Si elles dépendent des émissions, les concentrations atmosphériques des particules découlent également des phénomènes de transport et transformations physico-chimiques dans l'atmosphère, ainsi que des processus de déposition qui sont liées aux conditions météorologiques.

## 2. Influence de la météorologie sur les concentrations des aérosols

Une présentation de l'influence des facteurs météorologiques contrôlant les concentrations ne pourrait se faire sans évoquer les modèles de chimie-transport (CTM pour Chemistry-Transport Model) qui résolvent les équations dites de chimie-diffusion-advection. Les phénomènes météorologiques impactant les concentrations des aérosols sont représentés par ces modèles. Néanmoins, la résolution de ces équations nécessite des paramétrisations telles que celles pour la diffusion verticale des polluants représentant une grande source d'incertitude en terrains complexes (Kim 2011). De plus, certains processus font encore l'objet d'un manque de connaissances, comme les réactions chimiques dans les nuages, et sont donc de ce fait mal ou pas représentés dans les modèles. Dès lors, les mesures ambiantes et la recherche de variables physiques explicatives peuvent être vues comme une approche complémentaire, les mesures ambiantes étant une « illustration de la réalité » (Michelot, et al. 2015).

### 2.1. Tour d'horizon des phénomènes météorologiques impactant les aérosols

#### 2.1.1. Description des processus physico-chimiques connus

Les caractéristiques physiques de l'atmosphère varient fortement avec l'altitude, permettant de distinguer différentes strates dans lesquelles la température est parfois croissante avec l'altitude, parfois décroissante. La troposphère est la strate de l'atmosphère la plus proche du sol dans laquelle se déroulent les phénomènes météorologiques. Dans cette couche, la température diminue avec l'altitude de manière générale. La troposphère est, elle-même, divisée en 2 sous-couches : la Couche

Limite Atmosphérique, CLA, et la troposphère libre, TL. La CLA se définit comme la couche directement influencée par la surface terrestre et répondant aux forçages de la surface avec des constantes de temps de l'ordre d'une heure ou moins (Delmas, et al 2005). Comme indiqué dans la Figure I.4, son épaisseur est de l'ordre de 1 km mais varie dans le temps entre quelques dizaines de mètres et quelques kilomètres. Dans la troposphère libre, les concentrations d'aérosols sont moindres que celles observées au sol, et sont généralement fortement dépendantes du transport à longue distance (de qqes centaines à qqes milliers de km). Si le transport longue distance peut avoir une influence prépondérante sur les concentrations observées au niveau du sol, ce phénomène est négligeable dans le cadre de notre étude sur la vallée de l'Arve en saison hivernale. Ce sont les processus prenant place dans la CLA qui vont nous intéresser.

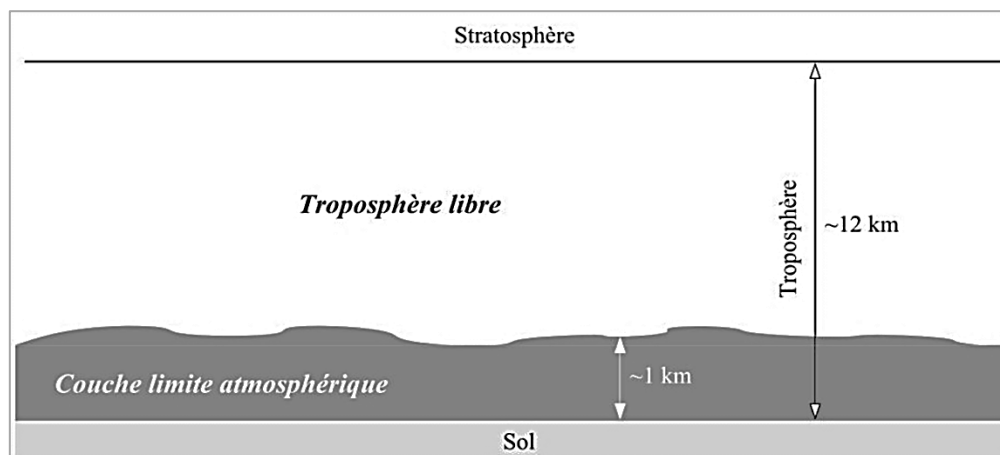


Figure I.4 : Structure de la troposphère (Mallet 2010)

Après leurs émissions dans la CLA, le cycle de vie des particules peut être schématisé en trois processus :

- le transport, pour lequel on distingue le transport dû à la convection thermique, appelé **diffusion** et le transport dû aux vents, dit **advection**.
- Les **transformations physico-chimiques** des particules, comme la condensation, l'évaporation, la coagulation, ou les autres processus de vieillissement des particules.
- Les processus de perte par **dépôt sec, ou humide** sous l'influence des précipitations ou des brouillards.

Dans la CLA, les principales composantes du vent sont horizontales (typiquement de l'ordre de 2 à 10 m.s<sup>-1</sup>), tandis que les vents verticaux sont de l'ordre de quelques millimètres à quelques centimètres par seconde (Stull 1988). La dispersion verticale des particules est ainsi principalement due à la turbulence. L'écoulement du vent dans la CLA dépend fortement de l'écoulement dans l'atmosphère libre, dit vent géostrophique, qui dépend de la force de Coriolis. Cette force est responsable du fait que le vent « s'enroule » autour des zones de haute pression (anticyclone) et des zones de basse pression (cyclone ou dépression).

Les mouvements turbulents peuvent être représentés par des tourbillons dont l'amplitude peut aller jusqu'à la hauteur de la CLA et dont les tailles sont situées dans un large spectre spatial. Les équations de la turbulence contiennent plus d'inconnues que le nombre d'équations, nécessitant la paramétrisation de la diffusion verticale dans les modèles numériques. La diversité des paramétrisations est à l'origine de l'incertitude sur la simulation des mélanges verticaux des polluants (Tang, et al. 2011 ; Roustan, et al. 2010b). La turbulence a pour origine, d'une part le cisaillement du vent au niveau du sol, et d'autre part le gradient vertical de la température qui est influencé par les mécanismes radiatifs (rayonnements solaire, terrestre et atmosphérique). L'état de stabilité thermique de l'atmosphère est décrit à partir du gradient vertical de température potentielle (voir encadré) qui permet de pouvoir comparer la stabilité de masses d'air indépendamment de leur altitude (Whiteman



2000). Lorsque l'atmosphère est stable, les mouvements verticaux sont atténués et la turbulence devient très faible, à l'opposé, en atmosphère instable les niveaux de turbulence sont élevés. L'état de stabilité atmosphérique dépend du flux radiatif arrivant au niveau du sol, sur lesquels les caractéristiques du sol ou la présence de nuage influent (RECORD 2005). A noter, également, que la turbulence mécanique est dépendente de la rugosité du sol ; ainsi, les phénomènes de turbulence vont être augmentés entre un milieu urbain, fortement rugueux, par rapport, à un milieu rural.

#### Détermination de l'état de stabilité de l'atmosphère

Lors de leurs ascendances par convection, les « particules d'air » ont des mouvements trop rapides pour pouvoir échanger de la chaleur avec l'extérieur, on parle de transformations adiabatiques. En considérant l'air comme un gaz parfait sec, la variation de température lors d'une transformation adiabatique peut s'écrire comme :

$$T/T_0 = P/P_0^{(g-1)/g}$$

avec  $g = C_p/C_v$  correspondant au rapport des capacités thermiques d'un gaz parfait (à pression et à volume constant respectivement).  $T_0$  et  $P_0$  correspondent à la température et à la pression de référence ou initiale de la masse d'air.

La température potentielle,  $\theta$ , représente  $T_0$  dans l'équation et représente la température que posséderait la masse d'air si elle était ramenée par transformation adiabatique à un niveau de référence, en général, le niveau de la mer. Le signe du gradient vertical de la température potentielle permet de définir l'état de stabilité atmosphérique : si  $d\theta/dz < 0$ , l'atmosphère est instable,  $d\theta/dz = 0$ , l'atmosphère est neutre, et pour  $d\theta/dz > 0$ , l'atmosphère est stable.

Cependant, la vapeur d'eau contenue dans l'atmosphère fait varier cette grandeur conservative dès lors que se produit de la condensation (ou évaporation) libérant (ou absorbant) de la chaleur. La température pseudo-potentielle du thermomètre mouillé,  $\theta^*_w$ , a été introduite permettant de prendre en compte la teneur en vapeur d'eau. En pratique et en toute rigueur, c'est l'étude des gradient verticaux de  $\theta$  et  $\theta^*_w$  qui permettent de déterminer l'état de stabilité de l'atmosphère à partir de radiosondages (Source : Météo-France- Glossaire).

La température, l'humidité et les flux radiatifs jouent un rôle essentiel dans les nombreuses réactions et transformations chimiques des particules et précurseurs dans l'atmosphère. Les réactions d'oxydation sont très souvent photo-induites (Vione, et al. 2006) ou favorisées par la présence de vapeur d'eau (Vesna, et al. 2008). Les échanges dans la répartition entre gaz et particules, contrôlés par la propriété de volatilité des composés, dépendent de la température. Récemment, il a été mis en évidence que les composés semi-volatiles contribuaient fortement à la formation des aérosols secondaires (Robinson, et al. 2007). Or plusieurs études ont constaté la dépendance du partitionnement gaz-particule au taux d'humidité et à la température (Cheng, et al. 2015 ; Sciare, et al. 2007 ; Charron, et al. 2004). Le brouillard, par exemple, est un milieu propice à la formation des aérosols secondaires (Dall'Osto, et al. 2009) compte tenu de la forte présence d'oxydants en phase liquide. Outre les réactions dans l'atmosphère, la température peut agir également sur certaines sources d'émissions comme les émissions biogéniques (gazeuses ou particulaires) qui croissent avec la température (Pusede, et al. 2014).

Les processus de dépôt permettent d'éliminer de l'atmosphère les aérosols par dépôt humide, mécanisme le plus efficace, ou dépôt sec (Bourcier, et al. 2012). Le dépôt humide correspond à deux mécanismes : coagulation ou nucléation des particules au sein d'un nuage ou d'un brouillard (« rainout ») ou captage des particules par les gouttes de pluie lors de leur chute (« washout »). Le 2<sup>ème</sup> mécanisme représenterait 30% du processus du dépôt humide (Barth, et al. 2001) et ne serait prédominant qu'en début des précipitations (Ouyang, et al. 2015 ; Jaffrezo 1987). Outre les précipitations, les phénomènes de brouillard peuvent également être à l'origine d'un dépôt humide important de particules (Lillis, et al. 1999), appelé dépôt occulte. Selon Seinfeld et Pandis (1998), le

dépôt sec peut se définir comme le dépôt, en l'absence de précipitation, des particules amenées par l'écoulement atmosphérique à proximité de la surface terrestre sous l'action conjuguée de plusieurs mécanismes physiques comme la diffusion brownienne, les phénomènes de thermophorèse, l'interception ou la sédimentation. La vitesse de dépôt (en  $m.s^{-1}$ ) dépend du diamètre des particules, de paramètres turbulents, et de la rugosité du sol. Dans les modèles numériques, la vitesse de dépôt est généralement paramétrisée, représentant une grande source d'incertitude (Yasunari, et al. 2013 ; Kim 2011).

Ainsi, de l'émission à leur disparition de l'atmosphère, le cycle de vie des aérosols est impacté par plusieurs phénomènes météorologiques inter-dépendants, à des échelles spatiales et temporelles différentes, synthétisé sur la Figure I.5.

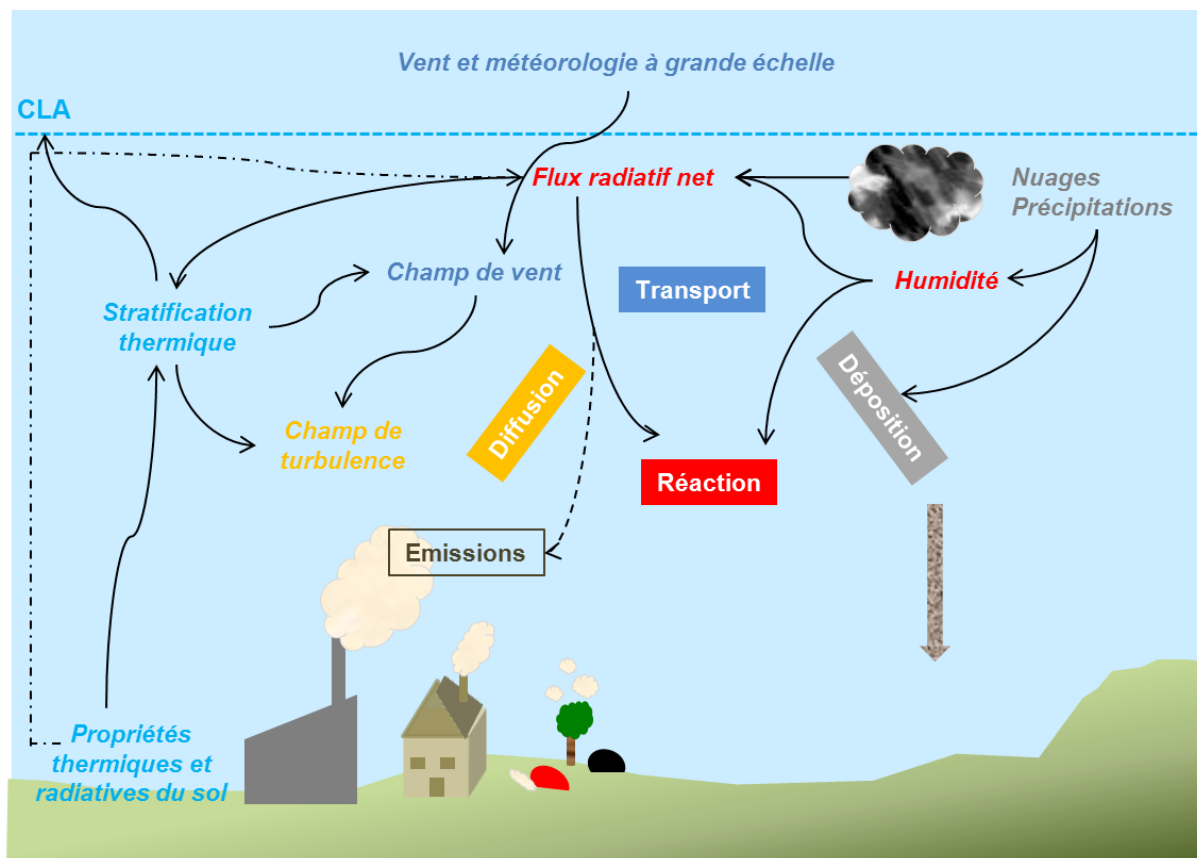


Figure I.5 : Schéma de synthèse des processus météorologiques qui affectent le cycle de vie des aérosols. Les différents processus du cycle de vie sont encadrés tandis que les variables météorologiques sont indiquées en italique (adapté de RECORD 2005).

### 2.1.2. Relation entre les variables météorologiques génériques et les concentrations de $PM_{10}$

La masse d'air atmosphérique est caractérisée par certaines variables mesurées en continu ou modélisées, comme la température, la vitesse et la direction du vent, l'humidité relative, ou encore la pression, pour les plus communes. De nombreuses études ont analysé les corrélations entre des variables météorologiques locales ou synoptiques et des concentrations de  $PM$  mesurées. Il en ressort que même le sens de la corrélation d'une variable avec les concentrations peut différer d'un endroit à un autre, même de distance proche. Ces corrélations sont, en effet, dépendantes de la période et saison considérée et du profil chimique des aérosols lié aux sources d'émissions. L'exemple le plus parlant (et le plus étudié) est la relation entre les concentrations de  $PM$  et la température. Selon la saison considérée, la température journalière peut caractériser des conditions synoptiques opposées : en été, une température élevée est généralement associée à un épisode anticyclonique avec un ciel clair, favorisant la formation des espèces secondaires. A l'opposé, c'est généralement les températures froides en hiver qui caractérisent les situations anticycloniques,

induisant des conditions de stabilité atmosphériques, défavorisant la dispersion des polluants. Ceci explique que plusieurs études ont montré une corrélation positive entre la température et les concentrations des PM en été, mais négative en hiver (Czernecki, et al. 2017 ; Tiwari, et al. 2014 ; Barmpadinos, et al. 2011; Giri, et al. 2008). Par ailleurs, Hussain et al (2016) ont rapporté que la température avait un impact différent sur les molécules d'HAP selon leur propriété de volatilité. Ainsi les corrélations temporelles entre les concentrations des PM et les variables météorologiques peuvent dépendre des saisons considérées, et donc situations météorologiques associées ainsi que par les propriétés physico-chimiques des aérosols liées aux sources d'émissions.

Les épisodes de pollution particulaire sont majoritairement reliés à des situations anticycloniques quelque soit la saison et à travers le globe, en Grèce (Triantafyllou 2001), en Chine (He, et al. 2013 ; Zhang, et al. 2012 ), en Australie (Pearce, et al. 2011), aux US (Whiteman, et al. 2014). Ces périodes sont associées à des vents calmes limitant la dispersion des polluants. LARGERON et STAQUET (2016) ont étudié la relation entre la situation synoptique et les dépassements hivernaux des seuils réglementaires de concentrations de PM<sub>10</sub> de la zone de Grenoble lors de l'hiver 2006-2007. Tous les épisodes étaient associés à des conditions anticycloniques. Si la circulation synoptique est le moteur primaire des conditions météorologiques locales, aucune classification comme celle de Lamb (1972), ou avec des variables comme la hauteur du géopotentiel 850hPa, l'indice NAO<sup>3</sup> ou la pression à la surface n'est suffisante pour expliquer la variabilité journalière des PM (Grange, et al. 2018 ; Fortelli, et al. 2016 ; Barmpadinos, et al. 2011 ; Demuzere, et al. 2009 ; Vardoulakis et Kassemenos 2008).

Les résultats d'analyse de corrélation entre les concentrations de PM<sub>10</sub> et les variables météorologiques les plus communes pour la saison spécifique de l'hiver de 11 études ont été comparées. Le Tableau I.2 synthétise ces résultats et indique les références de ces études réalisées sur 3 types de sites (vallée urbanisée, site urbain de fond et de trafic). Le signe des coefficients de corrélations entre les concentrations de PM<sub>10</sub> et les variables météorologiques est pratiquement retrouvé pour tous les sites. Les concentrations journalières de PM<sub>10</sub> présentent une corrélation négative avec la température, avec un coefficient de l'ordre de 0.30 en moyenne sur toutes les études, relation qui est expliquée par le fait que les températures froides sont associées à une plus grande stabilité atmosphérique, une partition des espèces chimiques semi-volatiles en faveur de la phase particulaire, et des émissions de chauffage plus importantes. Les analyses pour la ville d'Athènes présentent, par contre, une corrélation positive tout au long de l'année, associée à l'importance des processus photochimiques et à la formation de particules secondaires, tandis que les corrélations entre concentration de PM<sub>10</sub> et température ont été trouvées non significatives pour 2 sites en vallée urbanisée (Whiteman, et al. 2014 ; Giri et al. 2008). La vitesse du vent est généralement corrélée négativement aux concentrations de PM traduisant le phénomène de transport et de dispersion des particules. Des corrélations positives ont cependant été trouvées dans plusieurs sites de fond urbain pour des vents de vitesses modérées (> 2 m.s<sup>-1</sup>), qui sont associées à des phénomènes de re-suspension des particules et/ou de transport longue-distance (Lianou, et al. 2013 ; Pateraki, et al. 2010 ; Triantafyllou 2001). La direction du vent à l'échelle journalière est généralement une variable peu influente sur les concentrations sauf dans le cas de source émettrice de forte intensité ; ceci proviendrait de l'échelle temporelle considérée (journée) qui ne serait pas pertinente pour représenter les transports des masses d'air (Grange, et al. 2018). La corrélation entre humidité relative et concentrations de PM est également généralement peu significative. Cela peut s'expliquer par le fait que les humidités fortes favorisant la formation de particules secondaires sont aussi reliées à l'occurrence de précipitations éliminant par déposition les particules de l'atmosphère. Une

---

<sup>3</sup> L'indice NAO (North-Atlantic Oscillation) quantifie les fluctuations de pression entre les Açores (zone anticyclonique) et l'Islande (zone dépressionnaire) permettant de définir deux régimes de temps :

- le régime NOA+ associé à des successions de précipitations et tempêtes entre le Royaume-Uni et la Scandinavie tandis que l'Europe Méditerranéenne bénéficie d'un temps sec. Les hivers sont doux.
- le régime NOA- associé à des hivers plus froids et des étés plus chauds en moyenne pour la France (Cassou 2004).

corrélation positive avec la pression est trouvée, traduisant l'association entre les situations anticycloniques avec des pressions élevées et les épisodes de pollution, tandis que la visibilité est corrélée négativement aux concentrations de PM.

|                  | T | u | d        | HR       | P | RR | Visibilité |
|------------------|---|---|----------|----------|---|----|------------|
| PM <sub>10</sub> | - | - | n. sign. | n. sign. | + | -  | -          |

Tableau I.2 : Signes de corrélations les plus fréquents entre les concentrations hivernales de PM<sub>10</sub> et différentes variables météorologiques (T, température de surface, u et D, vitesse et direction du vent, P, pression au niveau du sol, HR, humidité relative, RR, taux de précipitation et la visibilité). Ces corrélations ont été étudiées pour des **sites de vallées urbanisées** : Etats-Unis (Whiteman, et al. 2014), Népal (Giri, et al. 2008), des **sites urbains de fond** : Pologne (Czernecki, et al. 2017) ; Italie (Fortelli, et al.2016), Grèce (Karagiannidis, et al. 2015 ; Vardoulakis et Kassemenos 2008), Chine (Li, et al. 2015) (He, et al. 2013), Inde (Tiwari, et al. 2014, 2013), Angleterre (Vardoulakis et Kassemenos 2008), un **site de trafic urbain** : Taïwan (Cheng et Li 2010).

La turbulence atmosphérique a un impact prépondérant sur la dispersion des polluants ; elle n'est cependant pas mesurée de manière standardisée. La hauteur de la couche limite est un des paramètres associés aux mouvements de turbulence, et dont la détermination est considérée comme un paramètre majeur pour la qualité de l'air. Cette hauteur est, en effet, conceptualisée comme le volume d'air dans lequel sont émis les polluants (Stull 1988). Cependant la dynamique de la couche limite atmosphérique devient complexe dès lors que le sol n'est plus homogène et plat. De plus, la hauteur de la couche limite peut reposer sur des méthodes de déterminations expérimentales ou de modélisation très différentes, rendant son association avec les niveaux de concentrations près du sol éventuellement complexe (par ex. Amarillo et Carreras 2016 ; Karagiannidis, et al. 2015).

## 2.2. Stabilité atmosphérique : dynamique, détermination expérimentale et relation avec les concentrations de PM près du sol.

### 2.2.1. Evolution de la couche limite sur sol plat et homogène

L'interaction du sol avec le flux solaire va réchauffer ou refroidir la CLA, déterminant son évolution nyctémarale (Figure I.6). On distingue 2 états : lorsque la CLA est instable, ce qui se produit généralement durant la journée, et lorsque la CLA est stable dans les basses couches, phénomène associé à la période nocturne. Ces états conduisent respectivement à une Couche limite Convective (CBL en anglais) et à une Couche Limite Stable (SBL). La CBL est composée, en grande partie, d'une couche convective avec des mouvements de turbulence élevée, appelée aussi couche de mélange. Son épaisseur augmente au cours de la journée. Elle est séparée de l'atmosphère libre par une couche présentant une inversion thermique, souvent dite inversion d'altitude. La SBL présente également une inversion, parfois appelée inversion de basse couche dont l'épaisseur va augmenter régulièrement durant la nuit. La couche résiduelle (RL) située juste au-dessus est neutre ou légèrement stable. Les polluants émis durant la nuit vont généralement se trouver piégés dans la SBL tandis que ceux émis en période convective et n'ayant pas sédimentés peuvent se retrouver dans la RL (Collaud Coen, et al. 2014). Dans les 2 cas, la CLA présente une couche de surface dont l'épaisseur ne dépasse pas le dixième de la hauteur de la couche limite. Les mouvements turbulents dans cette couche ont pour origine les différences de température et la rugosité du sol.

La CBL, si elle est bien mélangée, présente des gradients verticaux nuls pour la température potentielle, la vitesse moyenne du vent, l'humidité, ainsi que des concentrations d'aérosols qui présentent une rupture au niveau de la zone d'entraînement (Figure I.7). La SBL est, quant-à-elle, caractérisée par une inversion de température et généralement par un jet de basses couches. La détermination de sa hauteur diffère selon la définition utilisée. On peut considérer qu'elle correspond à la hauteur de l'inversion de température soit quand la température arrête de croître avec l'altitude

( $dT/dz=0$ ) ou alors lorsque la masse d'air devient neutre ( $d\theta/dz=0$ , voir encadré sur la définition de la stabilité atmosphérique). Ces différentes caractéristiques sont à l'origine de différentes méthodes et instruments pour déterminer la hauteur de la couche limite.

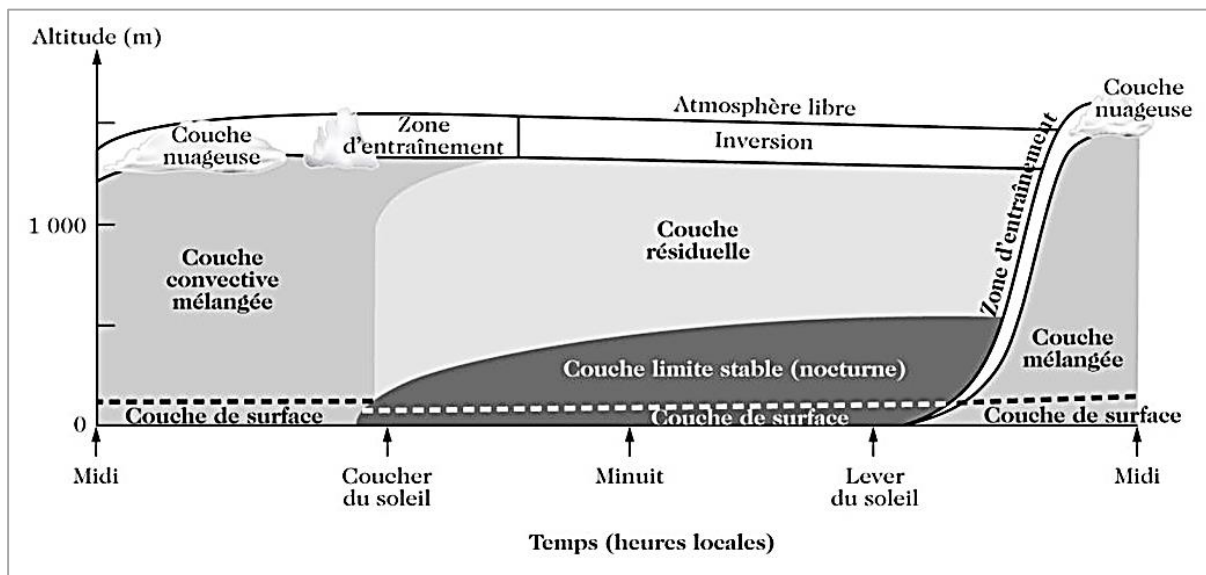


Figure 1. 6 : Evolution temporelle de la couche limite atmosphérique sur un sol plat et homogène (Stull 1988 cité par Delmas, et al 2005)

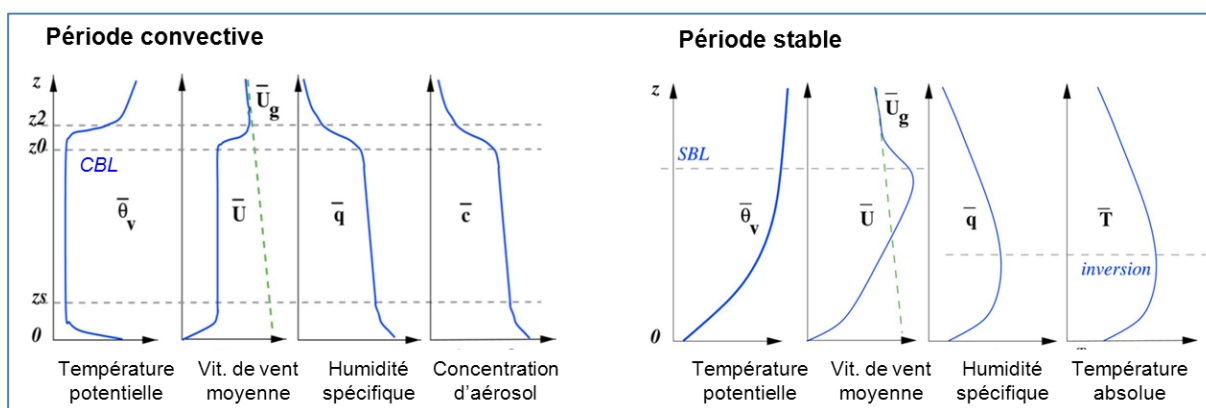


Figure 1. 7 : Profils verticaux de différentes variables thermodynamiques et de concentration d'aérosol lorsque la CLA est instable (durant la journée) et stable (durant la nuit).

### 2.2.2. Détermination expérimentale de la hauteur de la couche limite

L'instrument idéal pour déterminer la hauteur de la couche limite reposerait sur la mesure de paramètres liés physiquement au mélange vertical des polluants sur une portée allant du sol à environ 2-3 km d'altitude, avec une résolution de 1h ou moins, et une résolution spatiale de 10 à 30 m pour avoir une incertitude relative inférieure à 10-20 % sur la hauteur (Seibert, et al. 2000). Si certains instruments récents s'approchent de cette opérationnalité (lidar, sodar), ils présentent, encore, des limites pour déterminer la hauteur de la couche limite de manière continue par tous types de temps. Le Tableau 1.5 récapitule les principaux instruments utilisés et leurs principales limites. A partir des profils obtenus, différentes méthodes existent, comme le calcul du nombre de Richardson, et continuent d'être développées pour extraire automatiquement la hauteur de la couche limite, qu'elle soit stable ou instable (Cimini, et al. 2013).

De bonnes corrélations ont été trouvées entre les hauteurs de couche limite déterminées par différents instruments et/ou méthodes dans des conditions de convection faibles à élevées, avec un écart de 100-300 m. Des différences significatives ont, par contre, été montrées pour des situations

non convectives, correspondant généralement à des conditions nuageuses ou de précipitations (Collaud Coen, et al. 2014 ; Ferrero, et al. 2014 ; Wang et Wang 2014). Par rapport à la couche convective, moins d'instruments et de mesures sont adaptés pour déterminer la hauteur de la couche stable (Seibert, et al. 2000 ). Ce domaine de recherche est en constante évolution, néanmoins les méthodes basées sur les profils de température des radiosondages restent les méthodes de référence (Collaud Coen, et al. 2014 ; Pal, et al. 2013). Ainsi, la détermination de la hauteur de couche limite est fortement liée à l'instrument et la méthode utilisée et ce qui a un impact dans les analyses de corrélations temporelles avec les concentrations des PM au sol.

| Instrument                   | Profils de mesure   | Type de mesure | Principales limites   |
|------------------------------|---|----------------|---|
| <b>Radiosondages</b>         | T, p, RH, vent  | ponctuelle     | N'est réalisée que 2 fois par jour  |
| <b>Lidar<br/>Ceilomètre</b>  | Coefficient de rétrodiffusion des aérosols, RH  | continue       | Pas de données dans le cas de brouillards ou nuages bas dans le cas d'un lidar.   |
| <b>Radiomètre micro-onde</b> | T, RH, vent   | continue       | Faible résolution verticale   |
| <b>Sodar</b>                 | Indice de l'importance de la turbulence : $C_n^2$ (variation de l'indice de réfraction) | continue       | <ul style="list-style-type: none"> <li>• Portée limitée (1000 m max)</li> <li>• Générateur de bruit</li> </ul>                              |
| <b>Profileur de vent</b>     | Vent, $C_n^2$   | continue       | <ul style="list-style-type: none"> <li>• Pas de données dans le cas de précipitation</li> <li>• Pas de mesures à faible altitude</li> </ul> |

Tableau 1.3 : Instruments utilisés et leurs principales limites pour la détermination de la hauteur de la couche limite

### 2.2.3. Particularités de la dynamique de la couche limite dans les vallées

La topographie spécifique des vallées constitue un obstacle pour l'écoulement des vents synoptiques et est à l'origine de contrastes de température à l'intérieur de la zone montagneuse, ainsi qu'entre les zones de montagnes et les plaines adjacentes. Ces deux caractéristiques provoquent des types de vents particuliers. Le Foehn, par exemple, est créé par la canalisation de l'écoulement synoptique par le relief, tandis que les vents de vallées et de pentes sont déterminés par les contrastes thermiques. Ces vents thermiques de vallées et de pentes ont une dynamique journalière. Le jour, le vent de pente *anabatique* remonte le long des pentes du fait du réchauffement du sol tandis que s'organise à l'échelle de vallée, un *vent de vallée montant*. La nuit, du fait du refroidissement du sol, les vents de pente *catabatique* descendent le long des pentes et créent un *vent de vallée descendant* à l'échelle de la vallée.

Ce système de vents thermiques va modifier l'évolution journalière de la couche limite en intensifiant la couche stable nocturne, appelée *cold air pool* dans les vallées, et en la détruisant au cours de la journée à la fois par sa base et par le haut (Figure 1.8, Largeron 2010). Du point de vue de la qualité de l'air, le rôle de ces vents devient particulièrement important lorsque se forme en hiver, un « cold air pool » persistant (PCAP). L'arrivée d'un anticyclone avec une masse d'air de température plus élevée par rapport à la vallée conduit à la formation d'une inversion dont la hauteur correspond à la moyenne des sommets environnants (Largeron et Staquet 2016 ; Whiteman, et al. 1999) et qui va persister sur plusieurs jours. Les polluants émis en fond de vallée vont alors s'accumuler dans la couche d'inversion et conduire à un épisode de pollution. Si l'altitude de la couche d'inversion varie peu au cours de l'épisode, elle présente néanmoins un cycle diurne. La nuit, une couche d'inversion près du sol (150 m ou moins) de forte intensité se forme, surmontée par une couche d'inversion d'intensité plus faible. Le jour, avec le réchauffement du sol, l'inversion des plus basses couches

devient instable du fait du réchauffement du sol, tandis que la couche située au-dessus reste stable (Largeron et Staquet, 2016 ; Banta, et al. 2007). Cette constatation a conduit certains chercheurs à étudier la relation entre les concentrations des PM et un paramètre associé à l'intensité des inversions (par exemple Green, et al. 2015 ; Silcox, et al. 2012).

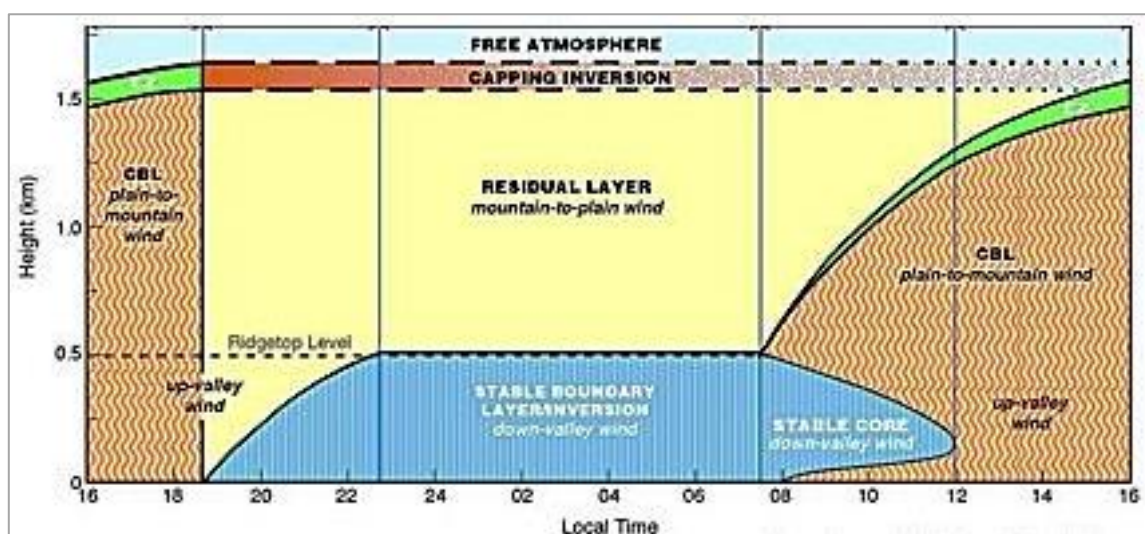


Figure 1.8 : Evolution journalière de la couche limite atmosphérique au sein d'une vallée (Réalisé par Whiteman, 2014)

Lors d'un PCAP, la dynamique de la masse d'air dans la vallée, découplée de l'atmosphère libre, est induite par le système de vents locaux. Sabatier et al. (2018) ont montré qu'ils étaient à l'origine de l'hétérogénéité spatiale des concentrations de PM<sub>10</sub> dans la vallée de l'Arve lors de ces épisodes et impactaient également la dynamique temporelle des concentrations. Malgré leur rôle clé dans les PCAPs, leurs mécanismes complexes faisant intervenir différents paramètres, comme les vents des vallées tributaires, qui ne sont pas parfaitement connus. Ce manque de connaissances sur les mécanismes physiques des épisodes d'inversions persistentes dans les vallées conduit à ce que la prévision, lors de ces épisodes, de la température et des concentrations des polluants soit très entachée d'erreurs (Lareau, et al. 2013 ; Reeves, et al. 2011).

La vallée de l'Arve, notamment au niveau de Passy, a fait l'objet lors de l'hiver 2014-2015 d'une campagne météorologique expérimentale de grande envergure pour comprendre les mécanismes lors d'un épisode d'inversions persistentes, et ainsi améliorer leurs prévisions (Sabatier, et al. 2018 ; Paci, et al. 2016). L'enjeu est particulièrement important pour la qualité de l'air comme nous allons le voir.

#### 2.2.4. Relation entre la stabilité atmosphérique et les concentrations de PM près du sol

Pour quantifier les mouvements de turbulence et la dispersion des polluants dans la couche limite atmosphérique, la variable la plus utilisée est la hauteur de la couche limite en période convective (couche de mélange). Le Tableau 1.4 répertorie les résultats trouvés dans plusieurs analyses de corrélation entre les concentrations de PM<sub>10</sub> journalières et la hauteur maximale ou moyenne de la CLB. Une anti-corrélation statistiquement significative est majoritairement retrouvée quelle que soit la méthode de détermination de la CLB utilisée, hormis pour l'étude de Karagiannidis (et al. 2015) où une corrélation non-significative est rapportée, ce que les auteurs attribuent à une modélisation imparfaite de la CLB. Geiss et al. (2017) ont étudié la relation entre la hauteur de CLB issue des mesures d'un ceilomètre avec les mesures de concentrations de PM<sub>10</sub> provenant de différents types de stations. Des corrélations positives et négatives ont été trouvées, qui ont conduit à la conclusion que les concentrations de PM près du sol sont également déterminées par d'autres facteurs, incluant l'intensité des sources locales, leur distance par rapport au site de mesure, et le champ de vent. A l'exception de l'étude de Rost et al. (2009) (cf Tableau 1.4), la hauteur de la CLB



n'explique qu'environ 30% de la variabilité des concentrations journalières hivernales de PM<sub>10</sub>. Il semble donc très probable que, malgré la conceptualisation de la hauteur de la CLB comme le volume atmosphérique dans lequel sont confinés les polluants, d'autres variables météorologiques mais également les facteurs influençant les sources d'émissions soient nécessaires pour expliquer la variabilité inter-journalière des concentrations de PM<sub>10</sub>.

| Méthode de détermination de la CLB   | Corrélations   | Références   |
|--|--|--|
| <b>Ré-analyses<sup>4</sup> ERA-Interim pour l'Europe, NOAA pour l'Inde</b> | Anti-corrélés<br>r de Pearson : -0.48 à - 0.57                           | Tiwari, et al. 2014 ; 2013 (2 stations, Inde)<br>Czernecki, et al. 2017 (1 station, Pologne) |
| <b>Modélisation avec code MM5 ou WRF-ARW</b>                               | Anti-corrélés (r : -0.33)<br>Non significative (r : -0.03)               | He, et al. 2013 (1 station, Chine)<br>Karagiannidis, et al. 2015 (1 station, Grèce)          |
| <b>Radiosondages ou ballon sondes (profils de température)</b>             | Anti-corrélés : R <sup>2</sup> 0.7- 0.9<br>r : -0.15 (étude sur l'année) | Rost, et al. 2009 (4 stations, Allemagne)<br>Du, et al. 2013 (1 station, Chine)              |
| <b>Ceilomètre</b>  | Corrélés ou anti-corrélés (étude sur l'année)<br>  r   > 0.35            | Geiss, et al. 2017 (11 stations (fond, trafic, périurbain) Allemagne)                        |

Tableau I.4 : Synthèse des corrélations trouvées entre les concentrations journalières de PM<sub>10</sub> et la hauteur de la couche limite convective en fonction de la méthode de détermination, pour des sites de fond urbain. Les périodes d'étude correspondent à la période hivernale (a minima 3 mois) sauf pour les études précisées où les périodes correspondent à une ou plusieurs années sans distinction des saisons.

Un autre paramètre est utilisé dans le cadre des vallées pour quantifier les mouvements de turbulence : le *heat deficit*, défini comme la quantité d'énergie qui serait nécessaire pour que la masse d'air dans la vallée devienne neutre ( $d\theta/dt = 0$ ). Des coefficients de corrélations ( $r^2$ ) entre 0,40 et 0,70 ont été trouvés entre les concentrations de PM<sub>10</sub> journalières hivernales et ce paramètre, dans des vallées aux Etats-Unis (Green, et al. 2015 ; Whiteman, et al. 2014 ; Silcox, et al. 2012) et aussi en France, dans la vallée de Grenoble (Largeron et Staquet, 2016) et dans la vallée de l'Arve (Chemel, et al. 2016).

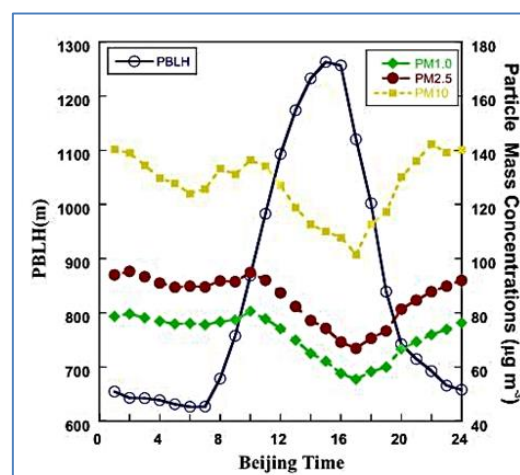


Figure 1. 8 : Evolution diurne des concentrations moyennes de PM<sub>10</sub>, PM<sub>2.5</sub> et PM<sub>1.0</sub> et de la hauteur de la couche limite sur une station de fond de la ville de Xi'an (Chine) sur la période 2007 à 2009. La hauteur de la couche limite a été déterminée à partir de profils de température réalisés par radiosondage (Du, et al. 2013).

Dans ces études, la mesure de ce paramètre a été réalisée pour certaines à partir de profils verticaux de températures provenant de radiosondages et de radiomètres microonde, et pour d'autres à partir de deux stations de température situées dans le fond de la vallée et au niveau moyen des sommets environnants (Largeron et Staquet, 2016 ; Green, et al. 2015 ).

<sup>4</sup> Les réanalyses météorologiques sont des résultats de modèle de prévision de temps numérique dans lequel ont été assimilées les données d'observations historiques (radiosondages, stations de surface, satellites d'observations, etc.).



L'influence de la dynamique de la couche limite sur les concentrations de PM près du sol a également été investiguée à une échelle temporelle plus fine que l'échelle journalière. Tout comme la CLA, les concentrations de PM présentent un cycle diurne pouvant être relativement marqué avec la présence d'un « double pic ». Cette caractéristique est retrouvée autant pour les cycles diurnes de concentrations dans des vallées (Salt Lake Valley, Katmandu, vallée de l'Arve) que dans des villes situées en plaine (New Dehli, Plaine Indo-Gangétique, Xi'an) (Chemel, et al. 2016 ; Whiteman, et al. 2014 ; Du, et al. 2013 ; Tiwari, et al. 2013 ; Panday et Prinn 2009 ; Nair, et al. 2007 ). Toutes ces études s'accordent sur le fait que les concentrations minimales journalières coïncident avec la hauteur maximale de la couche limite (Figure I.8). La décroissance matinale du pic de concentration est unanimement attribuée à la croissance de la couche limite convective (ou rupture de l'inversion nocturne), simultanément à la baisse des émissions (après le pic des émissions matinales liées au transport et aux émissions résidentielles). Le pic de concentration nocturne est, quant-à-lui, attribué à l'augmentation des émissions résidentielles et de trafic en soirée et à la mise en place de la couche limite stable. Le cas de la décroissance nocturne des concentrations fait l'objet de plusieurs hypothèses :

- elle pourrait être due à une répartition des particules qui étaient dans la couche de mélange entre la couche stable et la couche résiduelle (Du, et al. 2013 ; Nair, et al. 2007), ou,
- dans le cas des vallées, les vents de pente (Chemel, et al. 2016 ; Panday et Prinn 2009) et dans le cas des villes, une ventilation nocturne pourraient expliquer la dilution des particules avec la concomitance d'une réduction des émissions à cette période de la journée.

Les impacts respectifs des émissions locales et de la dynamique atmosphérique sur le cycle diurne des concentrations de PM près du sol ne sont donc pas encore parfaitement connus. La comparaison du cycle diurne des concentrations pour différents types de temps et types de jours (jours de travail, week-ends) pourrait permettre de mieux distinguer l'impact due aux émissions locales de celui lié à la dynamique de la CLA sur les concentrations.

### **3. Etudes d'impact de mesures locales de réduction d'émissions sur la qualité de l'air**

Les modèles de Chimie-Transport sont les outils d'excellence des évaluations environnementales permettant de quantifier l'effet d'une action de réduction des émissions sur la qualité de l'air *a priori* et *a posteriori*. L'enjeu de l'évaluation d'impact repose alors sur la quantification et la spatialisation des émissions avant et au cours de l'action de réduction des émissions (Honoré, et al. 2017). L'analyse des tendances des mesures de concentrations des polluants réglementés offre également aujourd'hui la possibilité d'investiguer l'effet des mesures de réduction des émissions sur la qualité de l'air, la mise en place des réseaux de surveillance remontant suffisamment loin dans le temps (Malherbe, et al. 2017). Plusieurs méthodologies sont développées pour pouvoir distinguer la variabilité des concentrations liée aux conditions météorologiques de celle attribuable aux actions de réduction des émissions. L'analyse des tendances ne permet cependant pas d'étudier l'efficacité d'une action en particulier. Afin de permettre cette quantification, certaines études ont effectué des mesures de concentrations d'espèces chimiques spécifique de la source d'émission en question avant, pendant et après l'action de réduction des émissions. Deux autres points sont cruciaux dans ces évaluations : l'impact des conditions météorologiques sur les concentrations, et le choix des sites de mesures.

#### **3.1. L'enjeu des cadastres d'émissions dans les études d'impact avec des modèles CTM**

Les cadastres d'émissions décrivent les quantités d'une espèce chimique donnée émises durant une période et sur une zone géographique définies, et constituent une couche de données

d'entrée essentielle aux modèles CTM. Pour dimensionner ou évaluer une action de réduction des émissions, plusieurs cadastres d'émissions sont établis : un état initial, un état de référence, dit également tendanciel ou « au fil de l'eau », et un cadastre prenant en compte la réduction des émissions due à l'action. Le cadastre tendanciel est défini à partir de l'état initial et de l'évolution naturelle que présenteraient les émissions sans mesures de réduction. Les écarts de concentrations modélisées entre le cadastre tendanciel et le cadastre prenant en compte la mesure de réduction des émissions, toutes choses égales par ailleurs permettent de quantifier l'impact de l'action sur la qualité de l'air (MEEM 2004). Les cadastres d'émissions représenteraient, cependant, la plus grande incertitude dans l'ensemble de la chaîne d'une modélisation CTM (Borge, et al. 2014 ; Viaene, et al. 2013).

Les modèles 3D de Chimie-Transport nécessitent des données d'émissions avec une résolution temporelle très élevée (de l'ordre de l'heure ou moins) et selon le maillage spatial du modèle si ce dernier est de type eulérien (Matthias, et al. 2018). Si les émissions de grandes sources anthropiques ponctuelles (telles que celles des centrales nucléaires ou des usines) sont reportées annuellement, la tâche n'est pas faisable de décrire séparément les émissions pour les sources de petite ou moyenne dimensions, comme les émissions de chaque véhicule ou de chaque habitation. Les émissions sont alors décrites par secteur et sous-secteur d'activités, comme les émissions issues du transport routier, de l'agriculture, ou encore du secteur résidentiel. Les émissions sont déterminées par le produit de l'activité de la source par un facteur d'émission spécifique à la source. Dans les inventaires régionaux, les échelles spatiales et temporelles des données d'activités sont très généralement la commune et l'année (PCIT 2012). En plus des incertitudes propres aux données d'activités et aux facteurs d'émissions (celles concernant le chauffage au bois résidentiel sont discutées dans la section 4), une autre source d'incertitude réside dans la désagrégation de ces émissions établies à l'échelle communale et annuelle afin de pouvoir être utilisées dans les modèles CTM, pour lesquels des échelles kilométriques ou sub-kilométriques et horaires sont généralement nécessaires.

Différentes clés de répartition sont utilisées selon les inventaires pour répartir spatialement les émissions. Trombetti, et al. (2018) ont comparé les émissions désagrégées spatialement selon plusieurs inventaires européens au niveau de plusieurs villes. Ils montrent que les émissions de PM<sub>2.5</sub> issues du chauffage au bois résidentiel présentent des écarts selon la clé de répartition spatiale, en particulier pour les villes de l'Europe de l'Est. Certaines désaggrégations sont effectuées au pro-rata de la densité de population et de la disponibilité de la ressource en bois (par ex. Kuenen, et al. 2014), tandis que d'autres les désaggrègent à l'inverse du pro-rata de la densité de population (par ex. Terrenoire, et al. 2015). D'autres encore s'appuient le degré d'urbanisation ou la différenciation des logements en zone rurale ou zone urbaine (par ex. Trombetti, et al. 2017). Trombetti, et al. (2018) soulignent le besoin de travaux futurs pour définir des proxys adaptés selon le lieu et le secteur d'émission. Outre la répartition spatiale des émissions, la désaggrégation temporelle des émissions est également une source d'incertitude.

Contrairement aux clés de répartition spatiale, ce n'est que récemment que de nouvelles méthodes de désaggrégation des émissions annuelles en émissions horaires se développent. Des profils mensuels, journaliers, et infra-journalier « standardisés » étaient majoritairement employés dans les inventaires (Figure I.9, Denier van Der Gon, et al. 2011) mais n'étaient pas satisfaisants pour représenter les émissions de façon réaliste, notamment celles dépendant des conditions météorologiques. Dans le cas des émissions liées au chauffage résidentiel, les émissions sont maintenant généralement distribuées en fonction d'une demande de chauffage par rapport à la température ambiante (Aulinger, et al. 2011 ; Bieser, et al. 2010). Mues, et al. (2014) ont montré que les modifications des profils temporels d'émission de certaines sources d'émissions, notamment pour le chauffage au bois résidentiel, amélioreraient les corrélations entre concentrations de PM<sub>10</sub> modélisées et mesurées par rapport aux émissions basées sur les profils temporels standards.

Ainsi, si les modèles CTM sont l'outil d'excellence pour les évaluations de politiques de réduction d'émissions, les émissions, même au niveau le plus fin (échelle de la commune et de

l'année), nécessitent d'être désagrégées à une résolution spatiale plus élevée et à une échelle temporelle de l'ordre de l'heure. De même, la prise en compte des processus météorologiques à une échelle locale en particulier dans le cas de relief complexe est encore un point d'achoppement des modèles. Différentes méthodologies existent pour l'amélioration de ces différents points, que peu d'études ont encore évalué. Au final, les résultats des études d'impact de mesure de réduction locale à partir de modèles CTM sont donc incertains, sans qu'il soit possible de quantifier les incertitudes sans analyse de sensibilité. En effet, les mesures d'observation servent généralement à caler le modèle dans la chaîne de modélisation (Atmo-AuRA 2014).

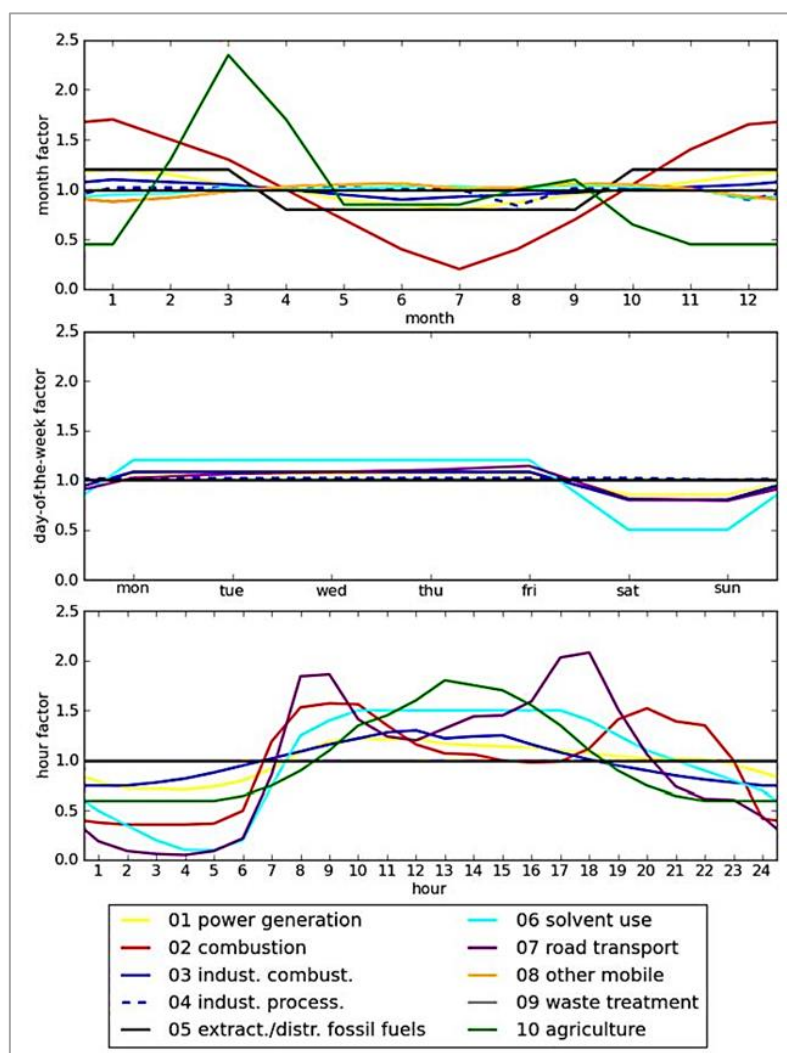


Figure 1.9: Profils temporels mensuels, journaliers et infra-journaliers en fonction des secteurs d'émissions. Ces profils sont utilisés dans la majorité des cadastres européens pour temporaliser les émissions (Denier van Der Gon, et al. 2011)

### 3.2. Méthodes pour isoler la part liée aux émissions dans des mesures de concentrations

#### 3.2.1. Description des méthodes appliquées dans des analyses de tendance de concentrations

Dans les pays développés, les réseaux de mesure de la qualité de l'air fonctionnent depuis au moins plusieurs dizaines d'années. En France, elles ont été structurées avec la Loi sur l'Air de 1996. Une des raisons de la mise en place de cette surveillance à long-terme des concentrations des polluants est l'évaluation de l'efficacité des mesures de gestion en matière de qualité de l'air (Malherbe, et al. 2017). Plusieurs études ont analysé la tendance des moyennes annuelles des

concentrations de PM<sub>10</sub> sur une ou plusieurs décades à partir de ces mesures de réseau et les ont comparées aux tendances des émissions (par exemple Guerreiro, et al. 2014 sur l'Europe ; Querol, et al. 2014 sur l'Espagne). Les concentrations de PM<sub>10</sub> montrent une décroissance ces dernières années (également en France, Malherbe, et al. 2017) mais qui est différente de celle estimée pour les émissions. On explique cette différence en partie par la variabilité des conditions météorologiques, mais aussi par l'import longue-distance de polluants. On peut distinguer trois grands types de démarches pour « décomposer » l'effet due à la météorologie dans les tendances des concentrations :

- Les études modélisant les concentrations avec des outils statistiques ou du « machine learning » à partir, notamment de variables météorologiques. La tendance investiguée correspond aux concentrations résiduelles sans la part modélisée liée aux effets météorologiques (par ex. Grange, et al. 2018 ; Barmpadinos, et al. 2011).
- Les études classifiant préalablement les mesures de concentrations selon différents critères comme les types de temps synoptiques (Pleijel, et al. 2016 ; Nidzgorska-Lencewicz et Czarnecka 2015). Les concentrations de chaque cluster sont ensuite modélisées avant d'être ajustées.
- Les études basées sur des modèles CTM et validées par comparaison avec les mesures d'observation. Sur l'Europe, l'étude EURODELTA-Trends (Colette, et al. 2017) réalisée dans le cadre du programme EMEP de la Convention de Genève sur la pollution transfrontière est la plus grande ayant fait appel à huit équipes européennes de modélisation chimie-transport. Avant d'interpréter les tendances modélisées, la performance des huit modèles a été évaluée par une analyse de sensibilité sur les changements d'émissions, les conditions météorologiques, et les conditions limites.

La Figure I.10 schématise ces trois démarches pour évaluer l'effet des conditions météorologiques dans les tendances des concentrations de PM.

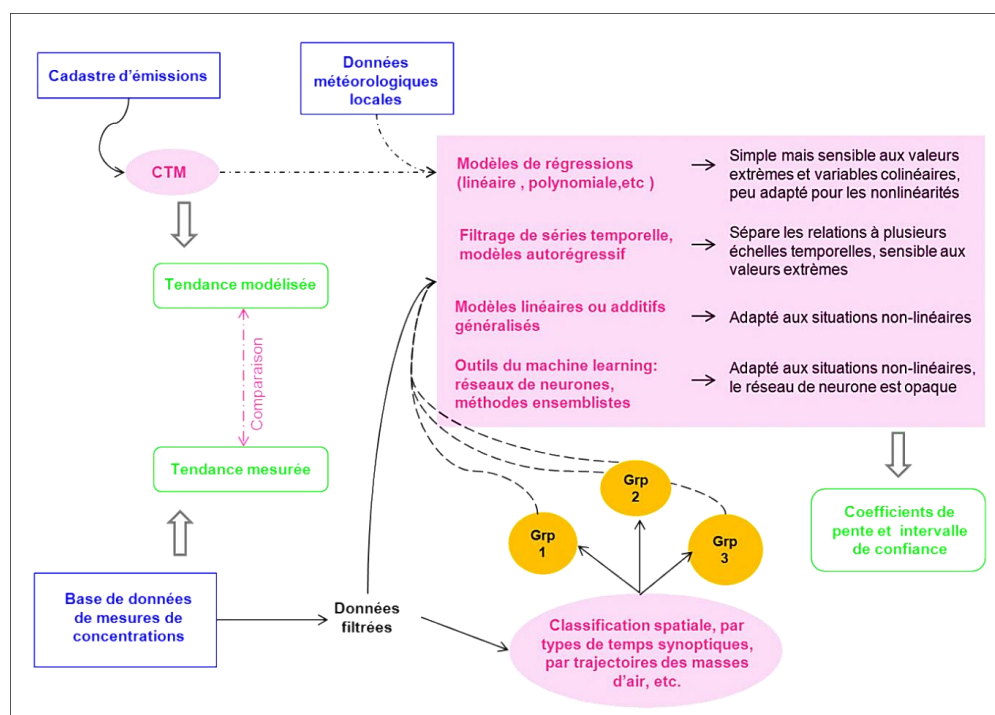


Figure I.10: Schéma des différentes méthodes utilisées pour l'évaluation des tendances des concentrations (adapté de Solberg, et al. 2015)

Comme dans le cas d'évaluation d'actions locales, les incertitudes des évaluations par modèle CTM reposent en grande partie sur les cadastres d'émissions. Les échelles spatiales sont cependant généralement plus grandes (pays, continent) induisant moins d'incertitudes. Concernant les modèles statistiques ou de « machine learning » des concentrations de PM<sub>10</sub>, quelques études ont comparé

leur performance. De nombreuses études reposent sur le modèle de régression linéaire multiple, simple à mettre en place (Amarillo et Carreras 2016 ; Nidzgorska-Lencewicz et Czarnecka 2015 ; Whiteman, et al. 2014 ; Demuzere, et al. 2009 ; Sansone, et al. 2006). Il est cependant celui présentant les moins bons résultats pour la prévision des concentrations dans plusieurs analyses (Sayegh, et al. 2014 ; Kukkonen, et al. 2003 ). On reproche à ce modèle statistique de reposer sur un certain nombre d'hypothèses préalables sur les données, et de ne pas être adapté pour modéliser les processus non-linéaires ce qui est le cas de beaucoup de processus météorologiques impactant les concentrations. Aucune préférence d'emploi n'est, par contre, donnée quant à l'utilisation d'une des autres méthodes présentées. Grange, et al. (2018) et Barmpadinos, et al. (2011) ont, par exemple, utilisé des modèles différents (méthode ensembliste Random Forest et modèle additif généralisé (GAM), respectivement) pour investiguer les tendances des concentrations annuelles en Suisse, en arrivant à des conclusions identiques.

La sélection des variables explicatives est en réalité aussi importante, voire davantage, que le choix du modèle (Thompson, et al. 2001). Les variables météorologiques de température, humidité relative, pression, précipitation, vitesse et direction du vent sont présentes dans pratiquement toutes les modélisations. La hauteur de la couche de mélange ou une autre mesure de la stabilité atmosphérique est un paramètre globalement moins utilisé. Outre ces variables météorologiques, des variables retardées comme les concentrations de la veille ou des variables météorologiques de la veille sont parfois incluses. Ce choix se justifie pleinement, car l'autocorrélation des concentrations journalières de PM<sub>10</sub> est particulièrement élevée, comme l'ont montré Czernecki et al. (2017) dans une étude où les concentrations de PM<sub>10</sub> étaient plus corrélées avec les concentrations de la veille qu'avec n'importe quelle variable météorologique. C'est également la raison pour laquelle les concentrations de PM<sub>10</sub> sont parfois modélisées de façon relativement performante avec un modèle autorégressif (Ionescu 2013). Le taux de précipitation la veille ou un indice de sécheresse ont été plusieurs fois rapportés comme variables significatives pour les concentrations de PM<sub>10</sub> (Fortelli, et al. 2016 ; Belusic, et al. 2015 ; Barmpadinos, et al. 2011 ; Demuzere, et al. 2009). Les indicateurs caractérisant la variabilité des émissions journalières comme le nombre de jour depuis le début de l'année (permettant de prendre en compte les phénomènes saisonniers), le jour de la semaine ou le type de jours (jour ouvré ou de week-end) ont, également une influence significative sur les concentrations (Belusic, et al. 2015 ; Hooyberghs, et al. 2005). Les jours de week-end ont un impact particulièrement significatif sur les espèces traceurs de la source d'émissions liée au trafic comme le NO<sub>2</sub> (Carslaw et Taylor 2009 ; Morawska, et al. 2002).

### 3.2.2. Prise en compte de la météorologie dans des études d'impact d'actions locales

Vingt et une publications portant sur des évaluations d'impact de politiques de réduction locales (à l'échelle d'une agglomération) basées sur des mesures de concentrations atmosphériques et ne faisant pas appel à des modèles de Chimie-Transport ont été recensées dans la littérature scientifique (Figure I.11). La sélection était davantage centrée sur des actions de réduction sur les émissions liées au chauffage (ou cuisine) au bois résidentiel. La liste des publications n'est donc **pas exhaustive**, en particulier sur des actions sur des émissions provenant d'autres sources. Les plus anciennes études trouvées sur l'évaluation des impacts de politique locale d'action de réduction des émissions basées sur des mesures de terrain sont datées d'une vingtaine d'année et sont donc relativement récentes.

A l'exception de l'étude d'impact d'un programme de remplacement d'appareil de chauffage au bois en Nouvelle-Zélande (Scott et Scarrott 2011), toutes les autres études reposent sur des mesures avant et après la mise en place de (ou des) action(s). Sur ces 21 études, 10 ont utilisé un modèle statistique ou du « machine learning » pour estimer l'efficacité de (ou des) action(s) sans l'influence des conditions météorologiques. Trois ont comparé les mesures par types de temps synoptiques selon une classification réalisée soit avec une classification empirique (Wang, et al. 2015 ; Zhang, et al. 2009), soit avec un algorithme de clustering (Wang, et al. 2016). Les autres modèles employés vont de modèles simples comme la régression linéaire (Basagna, et al. 2018) à des

modèles plus complexes tels que des modèles linaires généralisés (Liang, et al. 2017 ; Ward, et al. 2009), un modèle additif couplé à un modèle autorégressif (Scott et Scarrott 2011), des méthodes de « machine learning » avec l'utilisation d'un réseau de neurones (Liu, et al. 2015) et de l'algorithme « random forest » (Johnston, et al. 2016). Les différentes techniques statistiques et de « machine learning » appliquées dans des analyses tendancielle des concentrations sont donc retrouvées dans des études d'impact d'actions locales sur la qualité de l'air, avec une grande partie de ces articles datant des années 2015-2018, soit postérieurs au démarrage du programme DECOMBIO en mi 2013. Dans ces études, la sélection initiale des variables météorologiques est cependant moins approfondie que leur traitement statistique.

A l'exception de l'étude de Liang et al.(2017) sur les mesures de contrôle durant la conférence APEC en 2014 à Pékin, aucune autre étude n'a pris en considération des variables permettant de quantifier la dispersion verticale des polluants, dont l'influence est prépondérante sur les mesures de concentrations (section 2.2.2.). Dans cette étude, le paramètre pris en considération est la hauteur de la couche limite provenant des réanalyses météorologiques NCEP. Dans les autres études, seules les variables météorologiques mesurées en continu dans les réseaux de mesures nationaux sont pris en compte (température, humidité relative, vitesse et direction du vent, et parfois, pression et précipitation).

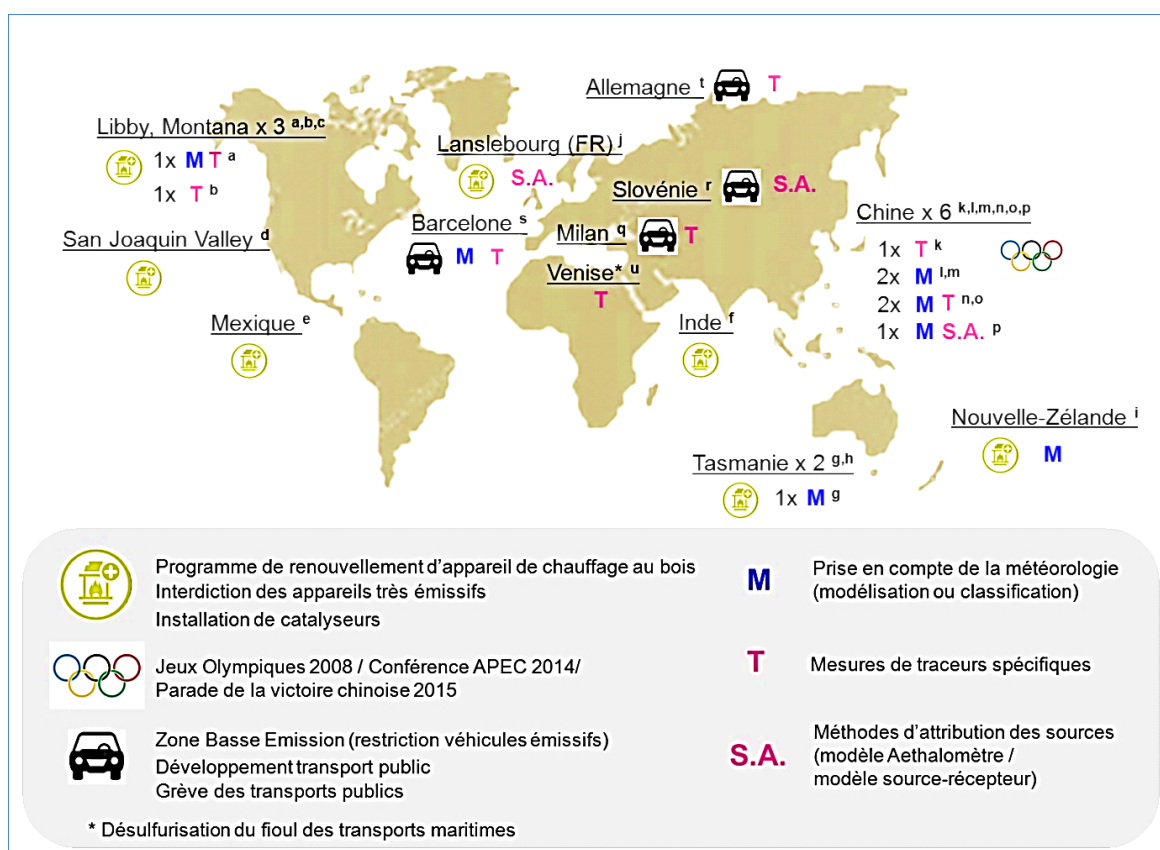


Figure I.11: Spatialisation d'études d'impact réalisées à partir de mesures de terrain avec indication si la méthodologie comprend une prise en compte de la météorologie via modélisation statistique ou classification par types de temps et des mesures chimiques plus spécifiques (traceurs ou méthode d'attribution des sources). a : (Ward, et al. 2009) b : (Bergauff, et al. 2009) c : (Noonan, et al. 2012) d : (Yap et Garcia 2015) e : (Zuk, et al. 2007) f : (Aung, et al. 2016) g : (Johnston, et al. 2016) h : (Johnston, et al. 2013) i : (Scott et Scarrott 2011) j : (Besombes, et al. 2017) k : (Wang, et al. 2009) l : (Liu, et al. 2015) m : (Liang, et al. 2017) n (Zhang, et al. 2009) o : (Wang, et al. 2015) p : (Wang, et al. 2016) q : (Invernizzi, et al. 2011) r : (Titos, et al. 2015) s : (Basagna, et al. 2018) t : (Jiang, et al. 2017) u : (Contini, et al. 2015)

Dans la majorité des autres études n'ayant pas utilisés de modèles statistiques représentant le lien entre les concentrations et des variables météorologiques, la validité de l'étude de l'efficacité

des actions a été justifiée par des conditions météorologiques similaires entre les différentes campagnes de mesures avec plus ou moins de descriptions (Aung, et al. 2016 ;Contini, et al. 2015; Titos, et al. 2015; Yap et Garcia 2015 ; Johnston, et al. 2013 ;Wang, et al. 2009 ; Zuk, et al. 2007). La validité des évaluations d'impact repose, pour d'autres, sur la stratégie d'échantillonnage (Jiang, et al. 2017; Invernizzi, et al. 2011). Ces 2 études portent sur l'analyse de l'efficacité des zones à faible émission (LWZ, Low Emission Zones) en investiguant des mesures à l'intérieur et extérieur des LWZ, provenant de stations de type trafic ou fond urbain (voir encadré).

#### Typologie des stations de mesures de la qualité de l'air

Afin d'assurer une représentativité des impacts de la qualité de l'air sur l'exposition des populations, l'implantation des stations de qualité de l'air fait l'objet de critères réglementaires, en particulier sur la densité de population et les sources d'émissions environnantes au point de mesure (EUROAIRNET 1998). Les stations de mesure répondent à une typologie précise permettant de pouvoir comparer des mesures entre différentes stations du même type (ADEME 2002). Les stations urbaines de fond correspondent par exemple à des stations situées dans une zone de densité supérieure à 3000-4000 habitants/km<sup>2</sup> et suffisamment éloignées de voies de circulation et des sources industrielles. Elles doivent représenter l'exposition moyenne de la population urbaine aux polluants tandis que les stations trafic représentent l'exposition maximale des population en proximité d'une infrastructure routière.

Ainsi, plusieurs approches existent pour attribuer la part de variabilité liée aux conditions météorologiques applicables sur des séries temporelles agrégées à l'année (analyse de tendance des concentrations) ou sur des résolutions temporelles plus fines (jour, heure) dans des évaluations d'impact. De nombreux modèles statistiques ou techniques provenant du « machine learning » sont utilisés, dont la performance dépend notamment des variables explicatives sélectionnées. Peu d'études d'évaluation d'impact prennent en compte de paramètres permettant de quantifier la dispersion verticale des polluants qui est pourtant prépondérante pour les évolutions des concentrations au sol. Par ailleurs, les PM sont issues de sources d'émissions variées qui peuvent faire l'objet de politiques d'actions concomitantes (Directives et conventions européennes, Plan de protection de l'Atmosphère, amélioration de la qualité de l'air en vue d'évènements tels que les JO 2008 à Pékin, etc). Le suivi plus spécifique de la fraction des PM provenant de la source d'émission sur laquelle porte la mesure de réduction à évaluer est plus complexe. Cela est possible par l'investigation de la composition chimique des particules et les techniques d'attribution des sources.

### 3.3. Attribuer les sources d'émissions dans les mesures de concentrations d'aérosol

#### 3.3.1. Tour d'horizon des principales méthodes d'attribution des sources

L'identification et la quantification des contributions des différentes sources d'émissions à la masse des PM reposent sur des mesures provenant d'analyse en laboratoire sur des prélèvements sur filtres ou de données acquises sur site avec des analyseurs en temps réel. Les analyses sur filtres permettent une caractérisation très fine de la chimie, notamment de la matière organique qui est cependant composée de milliers d'espèces moléculaires non encore identifiées (Turpin, et al. 2000). Certaines molécules identifiées sont des traceurs spécifiques d'une ou plusieurs sources d'émissions permettant de quantifier les contributions des sources via des équations empiriques (approche mono-traceurs) ou via des modèles statistiques appelés modèles source-récepteur. L'identification de nouveaux traceurs moléculaires, afin d'améliorer l'attribution des sources par les modèles récepteurs, est encore aujourd'hui un domaine actif de la recherche.

Les techniques de mesures en temps réel permettent d'investiguer les évolutions chimiques rapides, ce qui n'est pas possible avec les mesures par prélèvement sur filtres. La spéciation chimique reste cependant moins fine par rapport aux analyses réalisables en laboratoire. Le



développement d'un instrument capable d'analyser la composition chimique moléculaire de manière fine en temps réel est un enjeu fort actuel. La Figure I.12 récapitule les principales méthodes d'attribution des sources utilisées actuellement. A noter que certaines méthodes ne permettent d'attribuer certaines sources d'émission qu'à la fraction carbonée des aérosols (mesure du radiocarbone, modèle Aethalomètre) et non à leur composition globale.

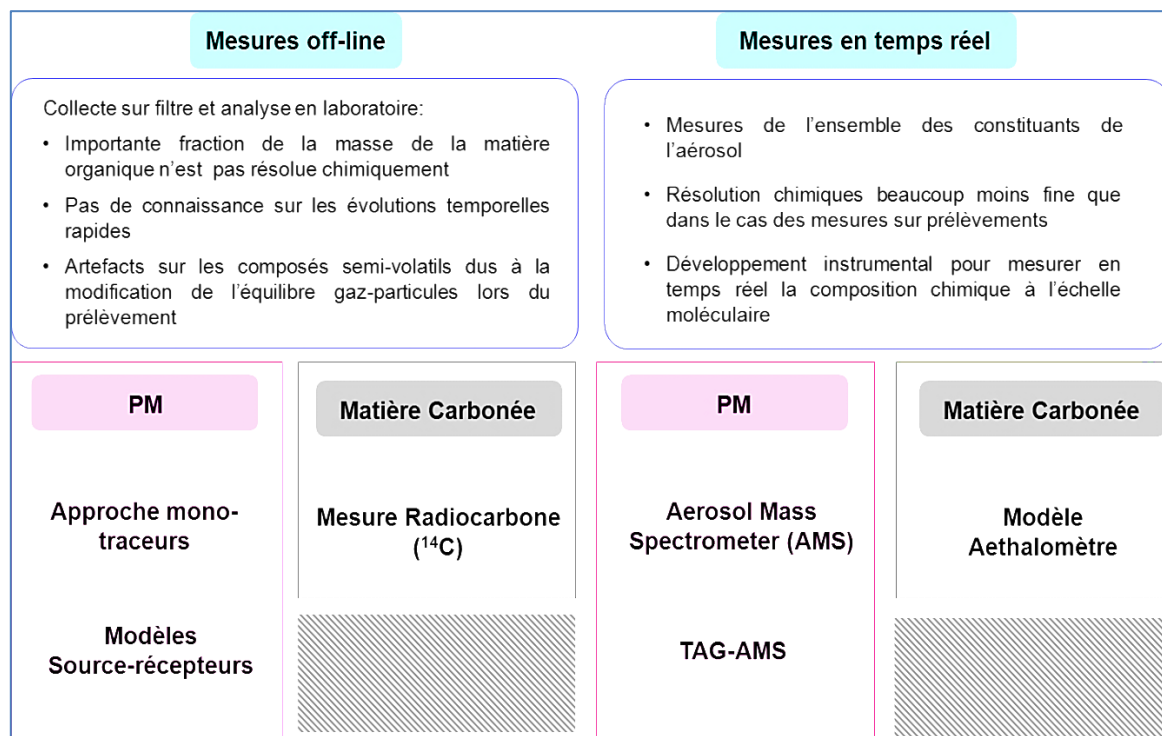


Figure I.12: Méthodes non-exhaustives d'attribution des sources d'émissions sur les PM ou la matière carbonée des aérosols.

Le Tableau I.5 répertorie les différentes sources d'émissions identifiables et leurs traceurs moléculaires correspondant. La majorité de ces traceurs sont des traceurs organiques et parmi eux, certains sont des traceurs de la fraction secondaire de certaines sources d'émissions. Dans le cas des sources d'émission terrigène, saline et de la combustion de la biomasse, les concentrations des traceurs correspondant à la source d'émissions multipliés par des coefficients spécifiques peuvent permettre de quantifier en première approche leurs contributions dans les concentrations de PM. Ces coefficients proviennent de mesures expérimentales réalisées à la source et reposent sur l'hypothèse d'une signature chimique constante entre l'émission et le site de mesure. Malgré les incertitudes, ces équations sont particulièrement utiles pour établir les bilans de masse de PM (Chow, et al. 2015).

Certaines familles de composés indiqués dans le Tableau I.5 ne sont pas spécifiques à une source mais permettent d'apporter des informations qualitatives via les rapports de concentrations entre leur différents membres, tels que les HAPs, les alcanes ou encore les méthoxyphénols. Par exemple, une prédominance de HAPs à faible poids moléculaire indique la prédominance de la source combustion de la biomasse (Piot 2011) tandis que la présence d'HAPs soufrés indique une source d'émissions issues d'activités industrielles (Sylvestre, et al. 2017 ; Golly, et al. 2015). L'analyse de ratios spécifiques entre espèces d'une même famille chimique ou de familles différentes permet également d'apporter des informations sur certaines sources (Robinson, et al. 2006). Le ratio EC/OC est utile pour distinguer la prédominance de sources de combustions fossiles (transport routier, combustion de fioul et gaz naturel) ou de combustion de la biomasse. Un ratio EC/OC proche de 1.9 est caractéristique d'émissions du trafic routier (El Haddad, et al. 2009) tandis que les émissions de la combustion de la biomasse ont des ratios inférieurs à 1 (Schmidl, et al. 2008a ; Fine, et al. 2002). Les émissions de combustion de fioul ont plutôt à un ratio EC/OC de 6 (Rogge, et al. 1997), tandis que



celui des émissions issues de combustion de gaz naturel tend vers 0.079 (Rogge, et al. 1993). Ce ratio repose sur l'hypothèse que le carbone élémentaire est issu uniquement des sources de combustion (fossiles ou biomasse) et que dans le cas de combustion de la biomasse, il va être accompagné d'un grand nombre de composés organiques, ce qui est moins le cas pour les combustions de sources de fossiles. Ces propriétés sont à l'origine du modèle Aethalomètre (Sandradewi, et al. 2008a), méthodologie particulièrement intéressante pour les études d'impact d'actions portant sur les sources de combustion fossile ou de biomasse.

| Source d'émission                                  | Origine   | Traceurs moléculaires   |
|--|---|---|
| <b>Terrigène</b>                                   | Erosion des sols/ sables<br>Remise en suspension par transport routier<br>Volcanisme<br>Emissions des cimenteries                                 | Ions Magnésium et Calcium<br>Eléments traces : cobalt, fer, manganèse, strontium, titane, silicium, aluminium (Alastuey, et al. 2016)                                   |
| <b>Biogénique</b>                                  | <u>Fraction Primaire</u> :<br>activités fongiques, pollens, émissions des plantes, algues marines, etc.   | Sucres, acides gras, polyols (Bauer, et al. 2008 ; Burshtein, et al. 2011)  |
|  | <u>Fraction Secondaire</u><br>Précurseurs émis par les algues marines et les plantes.   | Acide méthylsulfonique (MSA, Y. Zhang, et al. 2014)<br>Acides piniques et pinoniques, 3-MBTCA (Nozière, et al. 2015)  |
| <b>Source saline</b>                               | Sels de mer et de route   | Ions Chlore, Sodium, Magnésium, Sulfates (J. Putaud, et al. 2010)   |
| <b>Combustion de la biomasse</b>                   | <u>Fraction Primaire</u> :<br>Chauffage au bois<br>Feux de forêts<br>Brûlage de déchets verts   | <b>Lévoglucosan</b> et ses 2 isomères (Cesari, et al. 2016) ; Methoxyphénols ; ion Potassium et Hydrocarbures Aromatiques Polycycliques (HAP)                           |
|  | <u>Fraction Secondaire</u>  | <b>Méthyl-nitrocatechols</b> (Bertrand, et al. 2018)  |
| <b>Combustion de combustibles fossiles</b>         | Transport routier (émissions à et hors échappement)<br>Chauffage au fioul et gaz naturel  | <b>Hopanes</b> (El Haddad, et al. 2009)<br>Alcanes, Nitro-HAP et HAP méthylés, métaux (cuivre, fer, antimoine, baryum (Thorpe et Harrison 2008))                        |
| <b>Sources industrielles</b>                       | Emissions issues de procédés variés équipés ou non de divers systèmes de traitement de rejet  | Industries du Carbone et de l'Acier : HAP soufrés (Golly, et al. 2015 ; Sylvestre, et al. 2017)<br>Industries Pétrochimiques : vanadium et nickel (Querol, et al. 2002) |
| <b>Sources d'aérosols inorganiques secondaires</b> | Non-identifiée<br>Les précurseurs peuvent être issus d'engrais agricoles, de sources industrielles, du transport routier, d'émissions biogéniques | Précurseurs : dioxyde de soufre, oxydes d'azote, ammoniac   |

Tableau I.5 : Principaux marqueurs moléculaires des différentes sources d'émissions. La colonne de gauche correspond à la dénomination des sources dans les analyses d'attribution des sources. En gras sont surlignés des traceurs émis exclusivement par la source d'émission en question.

Reposant sur les propriétés d'absorption du black carbon, l'aethalomètre mesure l'atténuation de la lumière à 7 longueurs d'onde (de 370 à 950 nm), par transmission ou réflexion, produite par des

particules impactées sur une bande de filtre de quartz. La détermination des concentrations massiques du black carbon, notée eBC (Petzold, et al. 2013) nécessite de prendre en compte certains artefacts comme l'effet de charge des particules. Les corrections appliquées peuvent être différentes selon le type d'aethalomètre. La Figure I.13 représente l'équation de détermination des concentrations d'eBC pour les AE33 de Magee Scientific. Ces appareillages sont employés dans ce travail mais également sur le territoire national par de nombreuses AASQA (Rapport LCSQA, Amodeo 2018). La conversion de la mesure d'atténuation en concentration repose sur un facteur appelé surface efficace d'absorption (notée  $\sigma_{air}$ ). Sa valeur est prise comme constante, initialement déterminée empiriquement avec des mesures d'EC (correspondant au black carbon mesurée par méthodes thermo-optiques). En réalité, cette valeur n'est pas constante et peut varier de  $\pm 30\%$  selon la composition chimique et l'état de mélange des particules (Zanatta, et al. 2016).

$$eBC = \frac{S * (\Delta ATN / 100)}{\underbrace{F_{out}(1 - \epsilon)}_{\text{Correction facteur de fuite}} * \underbrace{\Delta t}_{\text{Surface efficace d'absorption}} * \underbrace{\sigma_{air}}_{\text{Correction de la lumière diffusée par le filtre}} * \underbrace{C * (1 - k * ATN)}_{\text{Correction effet de charge}}}$$

avec  $\Delta ATN$ , la différence d'atténuation entre 2 mesures réalisées sur un intervalle de temps  $\Delta t$ ,  $F_{out}$  débit mesuré,  $\epsilon$  facteur de fuite,  $C$  coefficient de diffusion,  $k$  coefficient de compensation

Figure I.13: Equation de détermination de la concentration massique eBC à partir des mesures d'atténuation de la lumière par un aethalomètre AE33 (Magee Scientific) (Drinovec, et al. 2015). Les termes en bleu foncé correspondent au coefficient d'absorption  $b_{abs}$ .

Par convention, la concentration massique d'eBC est déterminée à partir des mesures d'atténuation de la lumière à 880 nm. Il est, en effet, admis que dans le domaine du proche infrarouge, seules les particules carbonées purement graphitiques absorbent la lumière. Ces particules proviennent de combustion à hautes températures (typiquement les émissions de combustions fossiles) tandis que les émissions carbonées de combustions de la biomasse formées à plus basses températures contiennent beaucoup plus de noyaux aromatiques qui absorbent dans l'UV. Les mesures d'atténuation de la lumière à plusieurs longueurs d'ondes vont ainsi permettre de distinguer la fraction  $BC_{ff}$  issue des combustions fossiles, de la fraction  $BC_{wb}$  issue des combustions de la biomasse.

Le modèle Aethalomètre repose sur deux hypothèses :

- la dépendance du coefficient d'absorption  $b_{abs}$  en fonction de la longueur d'onde est décrite grâce à un exposant Angstrom  $\alpha$ , et,
- $b_{abs}$  s'exprime comme la somme d'une fraction issue de la combustion de la biomasse et une autre issue de la combustion fossile (Sandradewi, et al. 2008a ; Kirchstetter, et al. 2004)

$$b_{abs}(\lambda) = cst * \lambda^{-\alpha}$$

$$b_{abs}(\lambda) = b_{abs}(\lambda)_{wb} + b_{abs}(\lambda)_{ff}$$

Pour remonter aux contributions de  $PM_{10}$  issues de la combustion de la biomasse ( $PM_{10wb}$ ) ou de la combustion fossile ( $PM_{10ff}$ ), on utilise des coefficients, de façon analogue à l'approche mono-traceur. Ces coefficients sont spécifiques du lieu de mesure comme l'a montré par exemple l'étude

LCSQA-CARA menée dans 10 agglomérations françaises durant l'hiver 14-15. Les coefficients ont été calculés à partir de  $PM_{10wb}$  déterminées à partir des concentrations de lévoglucosan et de mesures de  $BC_{wb}$ . Les ratios  $PM_{10wb}/BC_{wb}$  varient de 8,6 à 17,3, malgré une homogénéité des méthodes analytiques et de traitement des données (Rapport LCSQA-INERIS, Favez, et al. 2016).

De manière plus globale, les modèles mathématiques source-récepteur permettent de résoudre les contributions de chaque source dans les mesures de concentration des  $PM_{10}$ . Le nombre de prélèvements conditionne l'utilisation d'un modèle plutôt qu'un autre. Le modèle PMF (Positive Matrix Factorization de l'US-EPA, Paatero et Tapper 1994) nécessite un nombre conséquent de prélèvements (> 60) mais peu de connaissance a priori sur les sources d'émissions. A l'opposé, le CMB (Chemical Mass Balance de l'US-EPA, Watson 1997) peut reposer sur peu d'échantillons mais implique une bonne connaissance du nombre et des profils chimiques des sources d'émissions (Figure I.14). Ces deux modèles reposent sur l'hypothèse de la conservation de masse de l'aérosol et vont chercher à résoudre l'équation matricielle :  $X = G * F + E$  avec X, la matrice de données, G la matrice des contributions des sources d'émissions (appelés facteurs), F la matrice de composition chimique des sources (profils), et E la matrice des résidus. La matrice de données est composée des séries temporelles des concentrations des traceurs moléculaires des sources d'émissions et des concentrations de  $PM_{10}$  qui est la variable résultante vers lequel la solution du modèle va tendre.

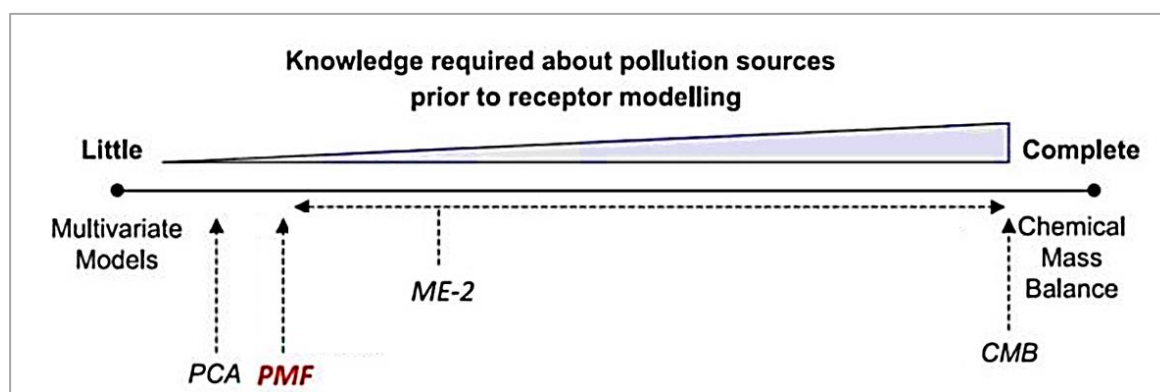


Figure I.14: Principaux modèles récepteurs pour l'étude des contributions des sources d'émissions (Viana, et al. 2008, modifiée)

Ces modèles présentent chacun des limitations et incertitudes. Dans le cas du modèle PMF, la détermination du nombre de sources d'émissions et de leurs profils chimiques respectifs reposent sur la connaissance de l'opérateur concernant le nombre de sources et les corrélations internes entre les concentrations des traceurs. L'analyse de ces corrélations peut ne pas être suffisante pour distinguer les différentes sources d'émissions, notamment lors de dynamiques atmosphériques complexes ou de conditions oxydantes intenses (Chevrier 2016 ; Escrig, et al. 2009). Pour pallier à certaines de ces limitations, une approche hybride des modèles PMF et CMB, le Multi-linear Engine (ME2) a été développée permettant d'implanter des contraintes dans les solutions du modèle, introduites sous diverses formes (ratio, bilan de masse, force de contribution,...) (Chevrier 2016 ; Amato, et al. 2015).

L'attribution des sources d'émissions par ces modèles reste dépendante des traceurs des sources d'émissions introduits. Les premières études pour quantifier les sources ne reposaient que sur les métaux, les éléments traces, les espèces ioniques et l'OC et EC. Les traceurs moléculaires spécifiques sont cependant majoritairement organiques (voir Tableau I.5) et n'ont été introduits dans les modèles PMF que plus récemment (Salameh 2015 ; Waked, et al. 2014). Des premières études ont également introduits des données issues préalablement d'une première méthode d'attribution des sources comme le  $BC_{ff}$  et  $BC_{wb}$  issues du modèle Aethalomètre ou les fractions carbonnées issues des analyses du radiocarbonate (Chevrier 2016 ; Petit, et al. 2014). L'introduction de nouveaux traceurs plus spécifiques d'une source permet d'améliorer l'identification et l'attribution des sources d'émissions, notamment des sources secondaires. L'introduction des concentrations de polyols et

MSA dans les études PMF récentes a, par exemple, permis de quantifier les sources biogéniques et aérosols organiques secondaires d'origine marine (Golly et al., 2018 ; Rapport LCSQA, Favez, et al. 2017).

### 3.3.2. Utilisation de méthodes d'attribution des sources dans des études d'impact d'actions locales

Par comparaison avec l'utilisation de méthodes pour prendre en compte l'influence des conditions météorologiques sur les concentrations, peu d'études d'impact basées sur des mesures de terrain ont employé des méthodes d'attribution des sources. Parmi les études d'impact investiguées (voir Figure I.11), plusieurs études ont analysé, en plus des concentrations de PM, les concentrations d'eBC avec un aethalomètre, traceur des sources de combustion (Basagna, et al. 2018 ; Invernizzi, et al. 2011 ; Wang, et al. 2009 ; Zhang, et al. 2009). L'aethalomètre est un instrument relativement peu onéreux et permet une mesure à haute fréquence en continu de l'eBC ; il a donc un fort potentiel dans le suivi et l'évaluation de politiques portant sur les sources de combustion (Honoré, et al. 2017). Son modèle permettant de déconvoluer la fraction carbonée provenant des sources de combustions fossiles de celle de la biomasse a d'ores-et-déjà été employé dans des études d'impact portant sur les émissions du trafic routier (AirPACA 2017 ; Titos, et al. 2015 ; rapport à paraître sur le projet PRE-QUALIF IZONOGOUD). A notre connaissance, seule l'étude sur Lanslebourg (haute vallée de la Maurienne) (Besombes, et al. 2017) a, par contre, employé cet outil dans le cadre de l'évaluation d'une action portant sur la source de combustion de la biomasse (renouvellement d'appareil de chauffage au bois).

Outre l'eBC, des composés davantage émis par les sources d'émissions liées au transport routier et maritime comme les oxydes d'azote, le monoxyde de carbone, ou le dioxyde de soufre ont été analysés dans plusieurs études d'impact (Jiang, et al. 2017 ; Liang, et al. 2017 ; Contini, et al. 2015). Dans le cas de mesures de réduction portant sur les émissions du chauffage au bois résidentiel, seules les évaluations d'impact des programmes de renouvellement des appareils de chauffage au bois à Libby (Montana, USA) et Lanslebourg ont analysé des paramètres autres que les PM, avec des mesures de concentration pour les traceurs organiques HAPs, méthoxyphénols et monosaccharides anhydres (Besombes, et al. 2017 ; Bergauff, et al. 2009 ; Ward, et al. 2009).

En dehors du modèle Aethalomètre, le modèle PMF a été utilisé dans l'évaluation des actions de réduction des émissions lors de la conférence APEC à Pékin en 2014 (Wang, et al. 2016), sur des campagnes de mesures avant, durant, et après la mise en place des actions. Bien qu'aucun traceur chimique organique n'ait été suivi, cette étude a permis de préciser que les mesures de réductions portant sur les émissions des industries avaient été le plus efficace. Cette étude d'impact est, à ce jour, la plus complète réalisée ayant associée une méthode d'attribution des sources sur les mesures de concentrations de PM avec une comparaison des mesures selon des types de temps synoptiques.

Dans le cas des mesures d'action de renouvellement de dispositifs de chauffage au bois ou de mise en place de catalyseur se pose également la question de la représentativité du site choisi vis-à-vis de l'action. Bien qu'ayant pris en compte l'impact des conditions météorologiques sur les concentrations avec l'algorithme random forest, Johnston, et al. (2016) n'ont constaté aucun impact de l'installation d'un catalyseur dans 78% des logements possédant un appareil de chauffage au bois dans une commune rurale de Tasmanie. Cette région ne présentant pas d'autres source d'émissions locales majeures (ni industrie, ni route à fort trafic routier), l'emplacement du site de mesure, situé près du centre-ville, a été remis en question. La variation des émissions serait trop faible pour pouvoir être détectée au point de mesure. La connaissance de la localisation des dispositifs renouvelés, voir des réductions d'émissions effectives, semble donc indispensable pour mieux appréhender les mesures effectuées. Avec cet objectif, une étude présente les résultats obtenus pour les mesures de concentrations ambiantes confrontées à une modélisation des concentrations par CTM, en utilisant un cadastre d'émissions construit à partir de données exhaustives locales sur les appareils de chauffage au bois (étude de Lanslebourg (Besombes, et al. 2017)). C'est à notre connaissance, l'étude d'impact d'un programme de renouvellement d'appareils de chauffage de bois la plus complète

actuellement réalisée. Néanmoins, malgré la qualité et finesse de données techniques sur les appareils, la quantification des émissions reste incertaine pour des raisons qui sont détaillées dans la section suivante.

#### 4. Quantifier les émissions de PM<sub>10</sub> du chauffage au bois résidentiel

En France, les inventaires d'émissions reposant sur des données pour quantifier les émissions au niveau spatial le plus fin sont les inventaires régionaux réalisés par les AASQA. Ils sont généralement réalisés aux échelles communales et annuelles (ADEME 2015). Si des différences peuvent exister dans les méthodologies d'estimation des émissions entre ces inventaires régionaux, ils doivent cependant être cohérents et comparables entre les territoires et doivent s'appuyer sur les guides méthodologiques européen (Guidebook EMEP/EAA), national (rapport du CITEPA- OMINEA) et régional (guide méthodologique du PCIT). En application du Code de l'Environnement (articles L222-4 à L222-7 et R222-13 à R222-36), ce sont les AASQA qui sont chargées d'élaborer et de réviser les inventaires utilisés pour évaluer les émissions des plans de protection de l'atmosphère. Le PPA de la vallée de l'Arve a ainsi été élaboré et révisé à partir de l'inventaire d'émissions d'Atmo-AuRA (Atmo-AuRA 2017a).

##### 4.1. Méthode d'élaboration de l'inventaire des émissions Atmo-AuRA concernant le secteur de chauffage au bois résidentiel

Les émissions du secteur du chauffage résidentiel au bois sont estimées, comme la majorité des émissions, par le produit d'une quantité consommée (en GJ) par un facteur d'émission (gPM<sub>10</sub>/GJ). De nombreux types d'appareils et de combustibles existent, or la quantité de bois consommée est dépendante du rendement énergétique de l'appareil utilisé, tandis que le facteur d'émission dépend du combustible et de l'efficacité de la combustion. Les estimations des émissions sont ainsi affinées selon une segmentation d'appareil représentant la performance technologique et la nature du combustible utilisée.

Dans la méthodologie actuelle (Atmo-AuRA 2017b), la segmentation des appareils est effectuée selon le type d'appareil (foyer ouvert, insert et foyers fermés, poêle, cuisinière, chaudière), leur âge (ancien (<2002), récent (> 2002), performant (label FV (Flamme Verte)) et le combustible utilisé (bois bûche, granulés ou plaquettes). Un facteur d'émission est affecté à chaque segment d'appareil. Les appareils sont également catégorisés selon leur mode d'usage (principal ou appoint) auxquels sont associés des consommations de bois annuelles à climat normal. La définition de la segmentation des appareils influence donc le résultat des émissions estimées. Or, cette segmentation des appareils est variable selon les inventaires, notamment sur la date servant de proxy de rupture technologique entre les appareils.

L'année 2002 correspond à celle de mise sur le marché des premiers appareils labellisés Flamme Verte. Ce label, est apposé sur les appareils (hors foyer ouvert) respectant les performances énergétiques et les émissions de CO et de particules fines préconisées par les normes européennes (ADEME 2012). Dans l'opération du Fond Air Bois de la Vallée de l'Arve, les appareils non-performants sont également définis comme les appareils antérieurs à 2002 (hors foyers ouverts qui sont considérés comme non-performants quel que soit leur âge). L'inventaire national du CITEPA ou l'inventaire régional d'Air Paris utilisent plutôt l'année 1996 (Honoré, et al. 2017), qui correspondrait à la mise sur le marché d'appareils avec une seconde entrée d'air (double combustion) (ADEME 2015). Dans d'autres inventaires européens, les caractéristiques technologiques de l'appareil telles que la double combustion ou l'année 1990 sont employées pour segmenter les appareils (EEA 2017). Ainsi, aucun proxy temporel ne se justifie pleinement pour caractériser les performances technologiques des appareils. Cependant, le type d'appareil ne représente qu'un paramètre parmi de nombreux autres qui influent sur les facteurs d'émissions, comme on le verra dans la section 4.2. Dans tous les cas, les émissions du chauffage au bois résidentiel des inventaires régionaux ou nationaux européens

reposent sur une segmentation détaillée des appareils de chauffage au bois nécessitant de connaître les parcs d'appareils. Dans les inventaires régionaux, ces parcs d'appareils sont majoritairement établis à l'échelle communale.

#### 4.1.1. Elaboration des parcs d'appareils communaux

En France, aucune enquête nationale ou régionale, réalisée de façon périodique, ne porte sur les parcs d'appareils de chauffage au bois. Pour connaître ces parcs, l'association des résultats de plusieurs enquêtes est nécessaire. Le Tableau I.6 répertorie les différentes enquêtes employées pour élaborer les parcs d'appareils de chauffage au bois détaillés à l'échelle communale et annuelle pour les communes de la région AuRA. Cet exercice est particulièrement complexe, les données établies par les différentes enquêtes ne correspondant pas nécessairement, temporellement, sur les catégories d'appareils, ou encore sur l'échelle spatiale (département ou commune). A l'exception de des parcs d'appareils de l'année 2006 élaboré par Energies Demain et d'enquêtes ménages ponctuelles, les parcs d'appareils correspondant aux autres années reposent sur des hypothèses concernant leur évolution d'années-en-années. Ces hypothèses concernent les installations dans les logements neufs, les changements de système, ou encore le renouvellement des appareils, informations qui ne peuvent être déduites des enquêtes du Tableau I.6.

| Nom de l'enquête                                   | Type d'enquête  | Utilisation  |
|--|---|--|
| <b>Parc Energies Demain (Energies Demain 2011)</b> | Etude ayant établi des parcs départementaux détaillés en 2006 et réalisé des prospectives à 2012 et 2015.   | Le parc de 2006 est le parc d'appareil départemental de références. Les hypothèses posées dans le scénario tendanciel servent pour établir les parcs d'appareils pour les autres années. |
| <b>Enquête Logement de l'INSEE</b>                 | Large enquête ménage (>40000 ménages) réalisée tous les 3-4 ans   | Détermine le nombre de logements en résidences principales par commune utilisant le bois comme combustible d'énergie principale.   |
| <b>Enquête Résidentiel du CEREN</b>                | Enquête ménage (2000 ménages) annuelle employée pour compléter l'enquête Logement, publiée tous les 2-3 ans | Les bilans régionaux des appareils des enquêtes 1992, 2001 et 2006 sont utilisés pour reconstituer les parcs d'appareils avant 2006.   |
| <b>Sit@DEL</b>                                     | Base de données des permis de construire, mis à jour mensuellement  | Permet de connaître le nombre de logements neufs (maison, appartement) par commune   |

*Tableau I.6 : Caractéristiques et type d'utilisation des différentes sources et enquêtes employées pour établir des parcs d'appareils détaillés à l'échelle communale et annuelle.*

Avant la mise en place de l'opération du Fond Air Bois de la Vallée de l'Arve, l'Ademe a fait procéder à l'automne 2012 par l'Institut BVA à une enquête ménage, afin de préciser le parc individuel de chauffage au bois (ADEME 2013) à l'échelle des 41 communes du PPA. Si le nombre total d'appareils diffère assez peu avec le parc d'appareil estimé par Atmo-AuRA en 2012 (de l'ordre de 10%), des différences non négligeables en nombre selon le type d'appareil ont été trouvées (avec des facteurs de différence allant jusqu'à 16 pour les chaudières à granulés) (Atmo-AuRA-aura, 2017a). L'enquête ménage locale était donc nécessaire pour ajuster les parcs d'appareils estimés et elle montre que les données issues d'enquêtes publiques ne sont pas réellement suffisantes pour estimer un parc d'appareil précis à une échelle infra-départementale. A partir de cet ajustement réalisé en 2012, il reste difficile de quantifier la déviation entre le parc d'appareil estimé pour les années suivantes et le parc réel, ainsi que son impact sur le résultat des émissions. Outre cette source

d'incertitude pour les émissions estimées, les consommations de bois et les facteurs d'émissions associés à chaque typologie d'appareil présentent également des facteurs d'incertitudes.

#### 4.1.2. Consommations de bois

De façon analogue aux parcs d'appareils de chauffage au bois, les bilans de bois-énergie consommés indiqués par le service d'observation ministériel (SOeS) ne constituent pas des données suffisantes. En effet, une partie des circuits d'approvisionnement du bois (auto-approvisionnements, circuits courts) échappent aux données observées. Or, ces circuits d'approvisionnement constituent une large proportion de la provenance du bois consommés (par exemple, 46% selon l'enquête BVA sur le territoire de la vallée de l'Arve et 45% selon l'enquête BIOMQA sur l'agglomération de Grenoble, Rapport ADEME 2015). Les consommations de bois déclarées provenant d'enquêtes ménages sont ainsi préférées dans l'inventaire régional Atmo-AuRA par rapport aux bilans nationaux ou régionaux qui sous-estiment assez largement la quantité de bois consommée. Cette constatation a également été faite pour le bois énergie par d'autres inventaires locaux, comme en Norvège (Lopez-Aparicio, et al. 2017) ou en Italie (Pastorello, et al. 2011), de même que dans un inventaire révisé à l'échelle européenne (Denier van der Gon, et al. 2015). Cependant, l'approvisionnement majoritairement personnel et l'absence d'unité standard (ainsi que de facteurs de conversion entre les unités) peuvent conduire à des incertitudes qui n'ont, à notre connaissance, jamais été évaluées.

Antérieurement à la réalisation d'enquêtes ménage sur le chauffage au bois sur la région AuRA, Atmo-AuRA modélisait les consommations de bois à partir d'un modèle de type « ingénieur » comprenant des éléments techniques tel que le niveau d'isolation thermique des logements (Atmo-AuRA 2016). Des différences significatives dans les quantités de bois consommées ont cependant été observées entre ces quantités calculées et les résultats déclaratifs des enquêtes ménage, conduisant Atmo-AuRA à partir de 2017 à l'utilisation des consommations de bois déclarées moyennes plutôt que les consommations modélisées. Pour d'autre type d'énergie comme la consommation de chauffage électrique, d'importants écarts ont aussi été rapportés entre des consommations modélisées par la méthode 3CL-DPE (Diagnostic de Performance Energétique, 60 paramètres d'entrées, Rapport MEDDTL/DGALN/DHUP 2004) et les consommations réelles (Cayla, et al. 2010 ; Allibe 2009). Les comportements des usagers expliqueraient une grande partie de ces différences, que la méthode 3CL-DPE ne prend pas en compte en voulant définir une consommation énergétique conventionnelle. Une étude réalisée sur Grenoble sur des logements homogènes en terme d'isolation, de matériau, de surface et de mode de chauffage (au gaz) a montré également que les pratiques d'usage (température de confort) impactaient aussi fortement les consommations réelles journalières que les conditions météorologiques (température extérieure, ensoleillement) (Destais 2017). Dès lors, la relation très forte établie dans les inventaires entre la consommation journalière de bois et la température extérieure pourrait être remise en question, d'autant plus que le bois-énergie est davantage utilisé comme énergie d'appoint que comme énergie de base (ADEME 2013 ; 2015).

De même, les réductions de consommations d'énergie suite à l'installation d'un appareil plus performant, estimées en principe essentiellement par l'amélioration du rendement énergétique du système, pourraient être sur-estimées en cas d'évolution des comportements d'usage. Un aspect comportemental, dit « effet rebond direct » intéresse notamment de plus en plus lors d'évaluations d'efficacité énergétique. L'effet rebond direct correspond à l'incitation à 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 changement dans le cas d'une amélioration énergétique des bâtiments ou encore l'installation de chauffage central à Londres (dénommé backfire) (Labranche, 2015). L'évaluation et l'estimation des effets rebonds ont 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). Des 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 concernant cependant le renouvellement d'appareils de chauffage au bois. Les intervalles sur la quantification de cet effet rebond mentionnés



dans les différentes études sont très grands et vont de 5 à 60 %, voire 100 % avec une moyenne de 20 % (Gavankar et al, 2010; Sorell et al, 2009; Sorell et Geyer, 2008).

Ainsi, les consommations de bois moyennes par type d'appareil issues d'enquêtes locales et non plus de modèles de consommation « ingénieur » ou des données du SOeS présentent encore quelques facteurs d'incertitudes. Ce ne sont cependant pas la source d'incertitude principale de l'estimation des émissions du chauffage au bois (Rao, et al. 2017 ; Karvosenoja, et al. 2008) qui est attribuée aux facteurs d'émissions.

#### 4.1.3. Facteurs d'émissions

Comme stipulé dans les recommandations européennes, les facteurs d'émissions (FEs) employés dans les différents inventaires régionaux et nationaux sont quasiment identiques. Le Tableau I.7 répertorie ces différents facteurs d'émissions en fonction des différentes catégories d'appareils. Seul le Guidebook EMEP/EAA mentionne la provenance de ces FEs : ils sont en fait issus de quelques études scientifiques réalisées majoritairement en laboratoire avec la même méthode de détermination. En réalité, le nombre de publications portant sur la détermination de FE d'appareils de chauffage au bois est extrêmement large (Vincente et Alves 2018 ; Besombes, et al. 2014). Cependant, de nombreux facteurs rendent complexe la détermination d'un FE « moyen » représentatif, qui sont détaillés dans la section suivante.

| Typologie d'appareil                  | Source : Ademe | Source : ATMO-aura, 2014  | EAA, 2016      | Références                                      |
|---------------------------------------|----------------|---------------------------|----------------|---|
| <b>Foyer ouvert</b>                   | 750            | 860                       | 840 [420-1680] | Alves, et al. 2011                              |
| <b>Foyer fermé &lt; 2002</b>          | 700            | 737,5                     | 760 [380-1520] | Alves, et al. 2011 ; Glasius, et al. 2005       |
|                                       |                | Chaudière : 237,5         | 480 [240-960]  | Winther 2008 ; Johansson, et al. 2003           |
| <b>Foyer fermé 2002 -2007</b>         | 260            | 273,9<br>Chaudière : 95   |                |   |
| <b>Foyer fermé &gt; 2007</b>          | 140            | 147,5<br>Chaudière : 52,3 | 380 [290 -760] |   |
| <b>Foyer fermé 5* et eq -bûche</b>    | 50             | 93<br>Chaudière : 33      | 95 [19-238]    | Johansson, et al. 2003 ; Goncalves, et al. 2010 |
| <b>Foyer fermé 5* et eq - granulé</b> | 50             | 54<br>Chaudière : 22      | 29 [10-48]     | Boman, et al. 2011                              |

Tableau I.7 : Facteurs d'émissions de PM<sub>10</sub> exprimés en g/GJ pour les appareils de chauffage au bois selon la typologie des appareils, préconisée par l'Ademe. Entre certains FE utilisés par l'Ademe (TSP) et ceux utilisés dans l'inventaire ATMO-AURA (PM<sub>10</sub>), un facteur de 95% a été appliqué correspond à la fraction moyenne des PM<sub>10</sub> par rapport aux particules totales. Les références des FE sont issues du Guidebook EMEP/EAA.

#### 4.2. Paramètres d'influence sur les facteurs d'émissions

Les réactions de combustion de la biomasse peuvent être schématisées en 3 étapes formant le cycle de combustion (Van Loo and Koppejan, 2008) :

- une première étape dite *ignition* durant laquelle l'eau contenue dans le combustible s'évapore,
- une deuxième étape dite *flaming* caractérisée par des flammes jaunes, durant laquelle des composés volatils sont émis ou gazéifiés en CO et CO<sub>2</sub> selon la température de combustion. Le charbon est également produit,
- une dernière étape dite *smoldering*, caractérisée par du charbon rougeoyant et l'émission de composés volatils ainsi que d'une forte proportion de CO.



L'utilisateur d'un appareil de chauffage à bûches manuel peut jouer à de nombreux niveaux sur ces réactions de combustion en contrôlant le combustible, la technique d'allumage, l'apport d'air et la maintenance de l'appareil. Des facteurs de différence de 3, voire 8 ont été trouvés entre des facteurs d'émissions déterminés en ne faisant varier qu'un paramètre sur la nature du combustible ou de conditions de combustion (Fachinger, et al. 2017; Collet 2016; Landreau et Rogauze 2016; Coulson, et al. 2015). Comme le montre la Figure I.15, issue d'une bibliographie de plus de 150 publications (Besombes, et al. 2014), les facteurs d'émissions sont ainsi extrêmement variables, même en distinguant le type d'appareil. Si l'influence de l'utilisateur sur les facteurs d'émissions n'est plus à démontrer, l'importance relative des paramètres sur les émissions n'a pas encore été réalisée, ne permettant pas de déterminer un facteur d'émission représentatif des comportements moyens.

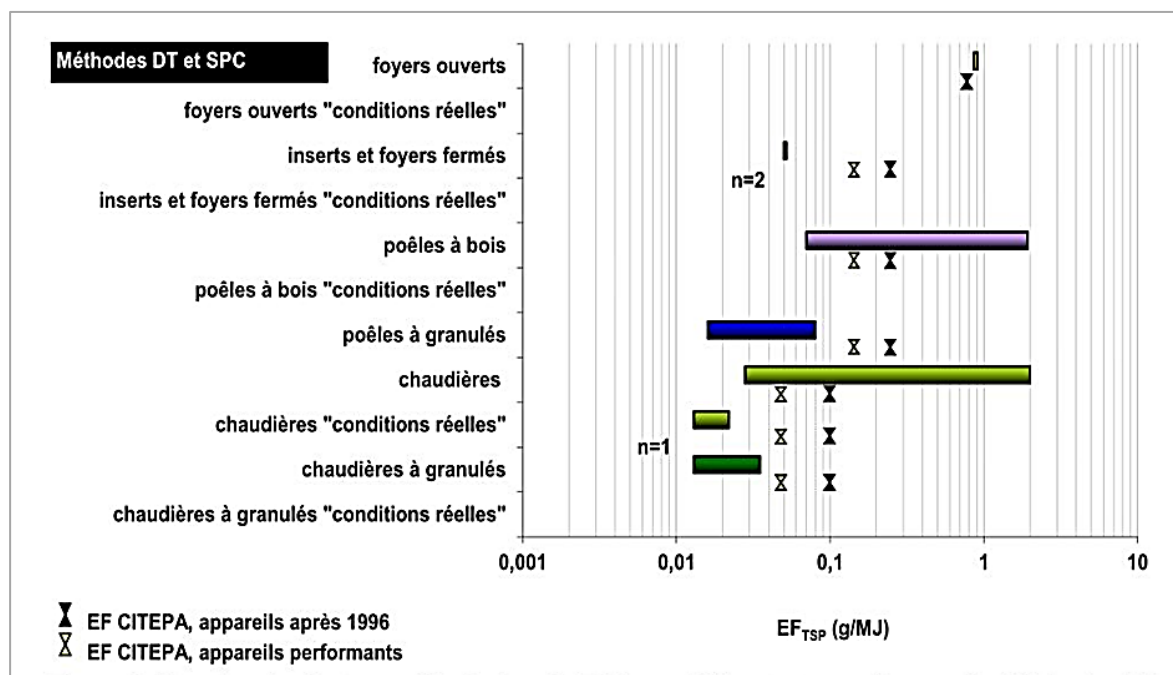


Figure I.15: Facteurs d'émissions en fonction des types d'appareil et des conditions de réalisation (laboratoire, conditions réelles) déterminés dans la littérature en employant une méthode permettant de prendre en compte la fraction condensable des particules (Besombes, et al. 2014)

Un autre facteur de complexité dans la détermination des facteurs d'émissions provient de la méthode de mesure. Deux grands types de méthodes de mesure de FE existent, représentées sur la Figure I.16 :

- Une méthode par filtration à chaud qui ne mesure que les particules dites solides, ou,
- soit par filtration à chaud suivie d'une 2<sup>ème</sup> analyse ou par prélèvement à température ambiante après dilution dans un tunnel, permettant d'analyser la fraction condensable des particules.

La fraction condensable correspond aux espèces chimiques émises sous forme de gaz lors de la combustion mais qui passent en phase solide particulaire lorsque la température diminue. Des facteurs de différence de l'ordre de 2,5 à 10 ont été estimés entre ces deux types de méthodes (Bäfver et al, 2008 ; Nussbaumer et al, 2008), l'analyse de la fraction condensable conduisant bien sûr aux FEs les plus élevés. Une autre difficulté également soulevée pour la mise en œuvre des méthodes de détermination des facteurs d'émissions concerne la période du cycle de combustion durant laquelle sont réalisés les prélèvements si les mesures ne sont pas maintenues en continu. La méthode de réalisation d'essais décrite dans les normes NF EN 13240 et NF EN 13229 relatives aux appareils indépendants ne permettrait ainsi pas d'obtenir des facteurs d'émissions représentatifs. En effet, les tests des appareils sont réalisés lorsque les conditions de combustion sont optimales en

phase *flaming* et ne prennent pas en considération le cycle de combustion dans son ensemble (Collet 2016).

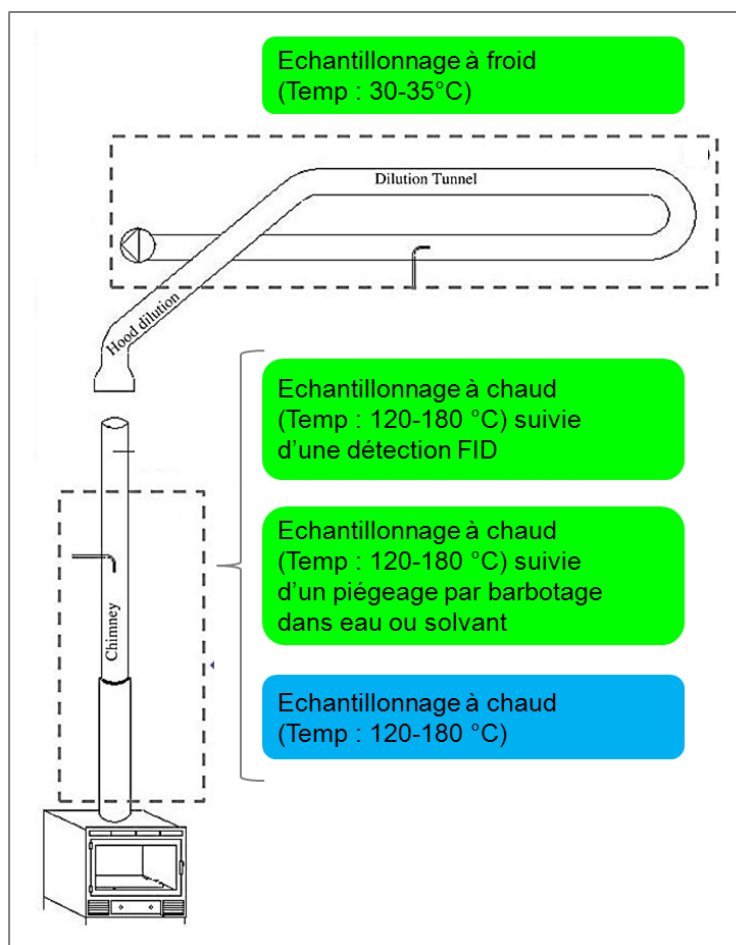


Figure I.16: Description des principales méthodes de détermination des facteurs d'émissions (adapté de Vincente et Alves, 2018). La méthode de filtration à chaud indiquée sur fond bleu ne permet d'analyser que les particules dites solides. Les autres méthodes sur fond vert permettent de prendre en compte également la fraction condensable des particules.

On notera que dans le cadre de la comparaison de mesures de concentrations en air ambiant avec des émissions estimées via des cadastres se pose aussi la question de la production secondaire de  $PM_{10}$  sur des échelles de temps courtes à partir des effluents gazeux (processus différent de la condensation avec la décroissance de la température des émissions). La Figure I.17 montre que cette production peut représenter une fraction prépondérante des PM au bout de quelques heures, ce qui représente une source d'incertitude importante dans ce type d'étude (problématique qui se rencontre aussi pour d'autres types d'émission, comme les émissions véhiculaires, par exemple).

Finalement, bien que des paramètres provenant de l'utilisation ou de la méthode de détermination influencent les facteurs d'émissions, on montre que les appareils performants de type Flamme Verte 5\* ou équivalent sont moins émissifs que les appareils non-performants (Bertrand, et al. 2017 ; Collet 2016). Une différence des profils chimiques des émissions particulaires a également été montrée par Bertrand et al (2017) lors d'essais en chambre expérimentale entre des poêles à bûches et un poêle à granulé. Ce dernier émettrait 10 fois moins de composés organiques primaires que les poêles à bûche, mais davantage de BC (Figure I.17). Ce résultat concorde avec l'augmentation de la mesure d'absorbance observée en air intérieur par Zuk, et al. (2007) lors d'un remplacement de cuisinière par un modèle plus performant. Les études d'impact de programme de renouvellement d'appareils de chauffage au bois ayant caractérisé la matière organique de l'aérosol ont également montré des variations de la composition chimique des aérosols en air ambiant

(Besombes, et al. 2017 ; Bergauff, et al. 2009 ; Ward, et al. 2009). Ainsi, outre le niveau d'émissions de particules et par transition leur concentration dans l'air ambiant, un programme de renouvellement d'appareils de chauffage au bois pourrait donc aussi impacter la composition chimique des PM<sub>10</sub>.

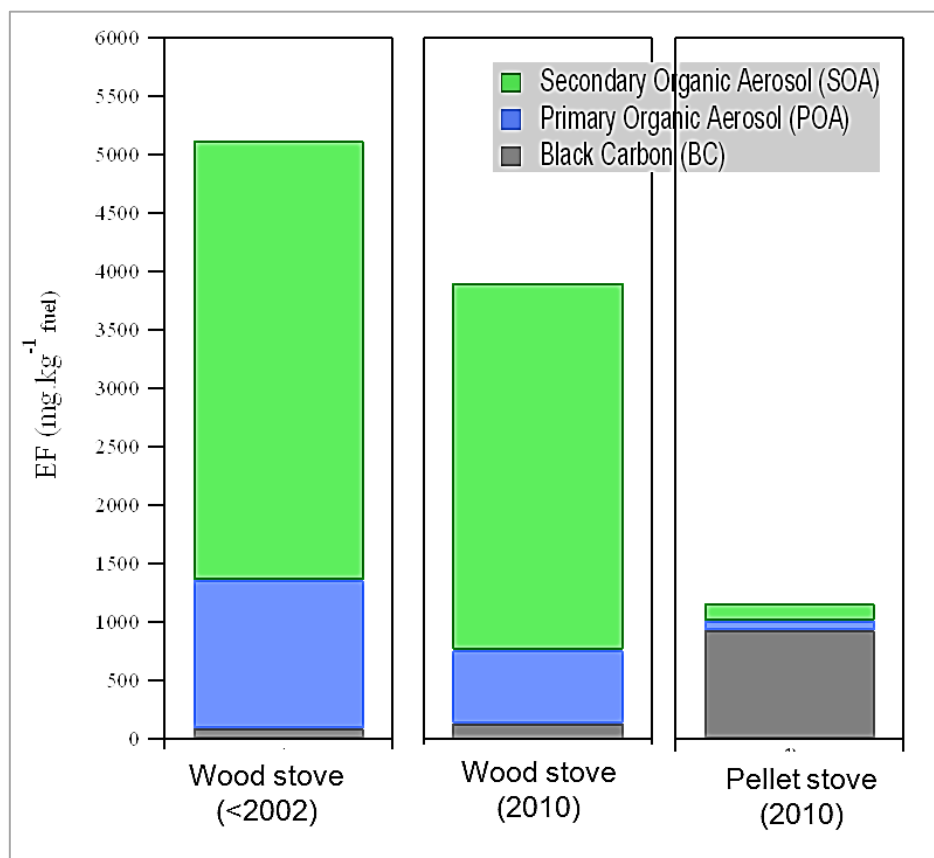


Figure 1.17: Profil chimique et potentiel de formation d'aérosol secondaire des facteurs d'émissions moyens déterminés en chambre expérimental sur 3 poêles de type différents (bûche non-performant, bûche performant, et poêle à granulé performé) avec 4 tests (Bertrand, et al. 2017).

Ainsi, l'absence d'enquête ou de base de donnée spécifique pour les appareils de chauffage au bois et les quantités de bois consommées rendent imprécise l'estimation des émissions de PM<sub>10</sub> pour l'évaluation de programmes locaux sur les dispositifs de chauffage. Les enquêtes ménage sur le territoire en question permettent de s'affranchir en partie de ces sources d'incertitudes. Néanmoins, la diversité d'appareils, de combustibles, et l'existence de nombreux facteurs contrôlant les réactions de combustion sur lesquels peut jouer l'utilisateur rendent complexe l'établissement de facteurs d'émissions représentatifs. De surcroit, les méthodologies de détermination (méthode de mesure, période de prélèvement) peuvent également impacter drastiquement la détermination de ces FEs. L'évaluation d'un programme de renouvellements de chauffage au bois à partir de mesures ambiantes constitue donc une alternative particulièrement intéressante à l'emploi d'inventaire d'émissions.

## 5. Objectifs et stratégie de cette étude

Afin d'améliorer la qualité de l'air sur le territoire du PPA de la vallée de l'Arve, un programme de renouvellement d'appareils de chauffage au bois non-performants a été lancé en 2013. Entre le début de l'opération et novembre 2016, 1932 appareils non-performants ont été renouvelés, représentant environ 17% des appareils non-performants en résidence principale estimés en 2012 (ADEME 2013). L'évaluation de l'impact de cette mesure sur les concentrations ambiantes des PM<sub>10</sub> est nécessaire afin de mieux orienter les politiques futures en matière de gestion de la qualité de l'air. L'évaluation environnementale du Fond Air Bois a déjà été réalisée dans le cadre de la révision du

PPA à partir de modèles Chimie-Transport (Atmo-AURA 2017a). Cependant, l'incertitude des estimations à fine échelle des émissions du secteur du chauffage au bois résidentiel et la difficulté de représentation des phénomènes de « cold air pool » impactant fortement les concentrations au sol (Chemel, et al. 2016) sont à l'origine du projet PRIMEQUAL DECOMBIO (2013-2018). Ce programme (Déconvolution de la COMbustion de la BIOmasse dans la vallée de l'Arve), financé par l'ADEME dans le Programme Primequal, et cadre de cette thèse, vise à développer une méthode alternative pour évaluer l'impact du Fond Air Bois à partir de mesures de concentrations ambiantes. Les objectifs de DECOMBIO sont de :

- i. Mettre en place un dispositif de surveillance d'un traceur de la combustion ( $BC_{wb}$ ) par des mesures continues par Aethalomètre en 3 sites représentatifs du territoire de la vallée de l'Arve et sur toute la durée du projet,
- ii. Valider les méthodologies de mesures des  $PM_{10}$  issues de la combustion de la biomasse ( $PM_{10wb}$ ) à partir des mesures continues, par des mesures de caractérisation chimique réalisées lors de campagnes complémentaires et de méthodologies de détermination des sources de type modèle source-récepteur,
- iii. Mettre en relation des éventuels changements des concentrations, des caractéristiques chimiques des  $PM_{10}$ , et des contributions de la source « combustion de biomasse » avec les avancées du projet de modernisation des dispositifs de chauffage FAB sur 4 ans, tout en prenant en compte la météorologie (et particulièrement les inversions de températures hivernales) comme facteur de confusion.

Un travail de thèse précédent (Chevrier 2016), également conduit dans le cadre du programme DECOMBIO, a permis de valider la quantification des données en continu de  $BC_{wb}$  comme traceur primaire de la combustion de la biomasse, et de modéliser les concentrations de  $PM_{10wb}$  par PMF durant la 1<sup>ère</sup> année du programme (oct. 13 à oct. 14). Les résultats de contribution des sources aux  $PM_{10}$  de ce modèle ont été validés en les confrontant aux résultats d'analyses de la fraction carbonée fossile et non-fossile quantifiée par analyses du  $^{14}C$  (Bonvalot, et al. 2016) ainsi qu'à une modélisation PMF sur des mesures d'AMS réalisées en février 14 à Passy (Jaffrezo, et al. 2018). La bonne concordance entre ces résultats issus de méthodes d'attribution des sources indépendantes permet de déterminer des ratios  $PM_{10wb}/BC_{wb}$  spécifiques à chaque site à partir des concentrations de  $PM_{10wb}$  modélisées et des mesures de  $BC_{wb}$  par aethalomètres lors de l'hiver 13-14. Ces ratios vont être employés afin de quantifier les concentrations de  $PM_{10wb}$  sur les autres hivers à partir des mesures en continu de  $BC_{wb}$ . Les résultats du modèle PMF ont également permis de montrer que les émissions de la combustion de la biomasse représentaient entre 60 et 70% des concentrations hivernales de  $PM_{10}$ . Malgré 3 hivers de mesures depuis les premiers renouvellements d'appareils non-performants, aucun effet significatif n'a pu être mis en avant (Chevrier 2016) sur les niveaux de concentrations et sur la composition chimique des PM, en considérant essentiellement les moyennes hivernales, sans tenir compte des effets météorologiques. On a pu par contre montrer que la météorologie joue cependant un rôle déterminant sur les évolutions de concentration dans le cadre spécifique de cette vallée encaissée.

Comme présenté précédemment (section 3.2), diverses méthodologies issues des statistiques ou du « Machine Learning » existent permettant de distinguer la part de la variabilité des concentrations liée aux changements d'émissions de celle liée aux conditions météorologiques. Très peu d'études ont cependant pris en compte une variable permettant de quantifier la dispersion verticale des polluants, du fait de la diversité de variables physiques possibles et de la complexité expérimentale. Ce paramètre est pourtant essentiel pour une étude sur un terrain complexe comme celui de la vallée de l'Arve. Par ailleurs, il a été montré que les concentrations étaient également impactées par des variations de quantités d'émissions liées au rythme des activités humaines telles que le cycle hebdomadaire avec les jours ouvrés et de week-end. Ces paramètres liés à l'intensité des émissions devraient donc également être pris en compte pour analyser, de manière rigoureuse, l'évolution des concentrations attribuable à des variations interannuelles d'émissions.

La tentative de mise en correspondance d'évolution d'émissions estimées et de mesures de concentrations n'est rencontrée que dans de rares situations (AQEG 2013). Outre la mesure de concentration spécifique à une source et la prise en compte de la variabilité des conditions atmosphériques, la variation des émissions doit être estimée dans l'aire de représentativité des sites de mesures chimiques (rayon de 0.1 à 2 km, EUROAIRNET 1998). L'aire de représentativité d'un site de mesure peut se définir comme l'aire où une variation d'émission peut être observable sur les mesures de concentrations réalisées au niveau du site. A cette échelle, de nombreux facteurs d'incertitudes impactent l'estimation des variations des émissions de  $PM_{10wb}$ , tels que la variabilité des consommations de bois et facteurs d'émissions, ou encore les hypothèses de la méthode d'estimation des émissions. Le suivi temporel et spatial des appareils renouvelés est, de plus, particulièrement nécessaire pour cette étude, puisque aucune campagne de mesure (hors polluants réglementaires) n'a été réalisée avant le début de l'opération.

L'objectif opérationnel de cette thèse correspond au 3<sup>ème</sup> objectif du programme DECOMBIO qui est d'estimer l'impact du Fond Air Bois sur des mesures de profils chimiques et de concentrations des  $PM_{10}$  en prenant en compte l'influence de la météorologie, et en les confrontant avec le suivi temporel et géolocalisé des variations d'émissions de  $PM_{10}$  dues aux renouvellements des appareils. Pour cela, ce travail de thèse a pour objectifs scientifiques de :

- i. développer une méthodologie permettant de comprendre et de prendre en compte l'influence des conditions météorologiques et de paramètres liées à l'intensité des émissions sur les concentrations hivernales de  $PM_{10}$ .
- ii. déterminer les paramètres et facteurs d'incertitudes permettant d'estimer les variations d'émissions de  $PM_{10wb}$  liées à l'opération du Fond Air Bois au niveau des aires de représentativité des sites de mesures chimiques.

Afin d'atteindre ces objectifs, le travail repose sur d'importantes bases de données de différents types (voir Figure I.18) :

- des données météorologiques, provenant de mesures réalisées dans le cadre du projet DECOMBIO, ou effectuées par les stations Météo-France (réseau RADOME) ou lors de la campagne Passy-2015 (Paci, et al. 2016),
- des données de concentration et d'analyses de composés chimiques provenant de mesures continu et analyses off-line réalisées dans le cadre de DECOMBIO et,
- des données techniques et « sociologiques » liées aux appareils de chauffage au bois, issues des dossiers de demande du Fond Air Bois (SM3A) ou d'autres enquêtes ménages réalisées sur le territoire.

Pour évaluer l'efficacité des renouvellements d'appareils non-performants sur les concentrations de  $PM_{10wb}$  au cours des 4 hivers (13-14 à 16-17), l'approche a été de développer une classification de conditions atmosphériques impactant de façon importante les concentrations hivernales dans la vallée de l'Arve. Pour cela, les variables météorologiques ou indicateurs de la dynamique des émissions de la combustion de la biomasse influençant les concentrations particulières et dont les mesures étaient disponibles sur le territoire ainsi que le modèle pertinent ont été recherchées.

A partir des données techniques contenues dans les dossiers du Fond Air Bois, les réductions des émissions de  $PM_{10}$  dues aux renouvellements des appareils ont été quantifiées, spatialisées et temporalisées. Les facteurs d'incertitudes à l'échelle du remplacement d'un appareil sont de nombreux types : données manquantes, choix d'hypothèses, variabilité des facteurs d'émissions, etc. Afin d'évaluer leurs impacts sur les réductions de  $PM_{10}$  estimées, plusieurs calculs ont été réalisés en variant certaines hypothèses. Dans ces calculs, certains facteurs sont introduits sous forme probabiliste tels que l'imputation des données manquantes ou les facteurs d'émissions. Deux étapes ont également été nécessaires avant de comparer les variations d'émissions et de concentrations : la

détermination d'une aire de représentativité des sites de mesures et l'estimation des émissions provenant des appareils de chauffage au bois hors Fond Air Bois autour des sites de mesures. Ces dernières ont été estimées, avec plusieurs hypothèses, à partir du parc d'appareil déterminé par l'institut BVA avant le début de l'opération (ADEME 2013).

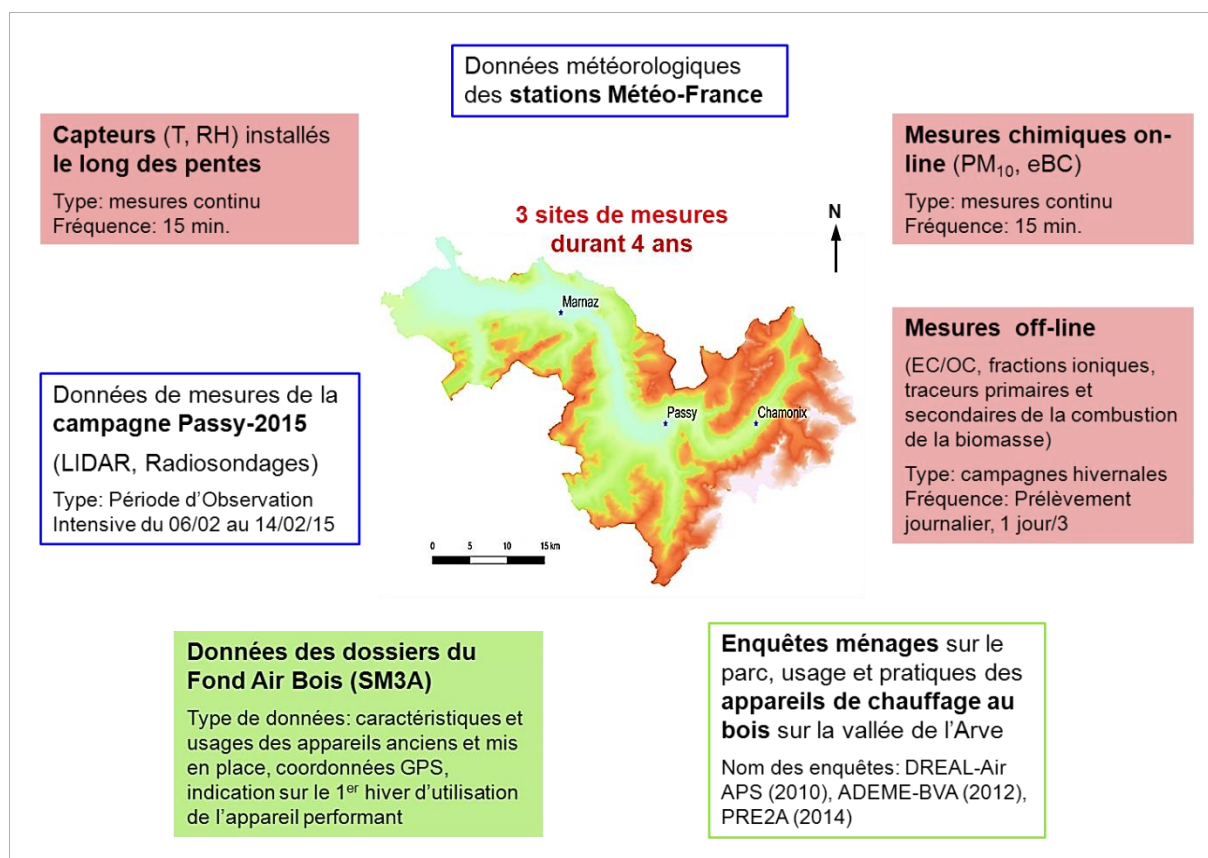


Figure 1.18: Bases de données employées dans le cadre de cette thèse. Les mesures sur fond rose correspondent aux mesures chimiques et météorologiques du programme DECOMBIO effectuées en continu depuis 11/2013 ou lors de campagnes hivernales. Les données du Fond Air Bois, sur fond vert, ont fait l'objet d'une collaboration avec le SM3A (Syndicat Mixte d'Aménagement de l'Arve et ses Abords) dans le cadre du programme DECOMBIO. Les autres données sont issues de la campagne Passy-2015 dans le cadre du projet LEFE codirigé par Météo-France et le Laboratoire du LEGI (UMR 5519). Les données météorologiques obtenues près des sites de mesure et d'intérêt pour cette étude ont également été mise à disposition par Météo-France.

Le chapitre 2 suivant est consacré à une présentation détaillée des outils utilisés pour générer ces bases de données et dans certains cas, les qualifier.

## Chapitre 2 : Méthodologies

|   |    |
|---|----|
| <b>1. Sites de mesure</b> .....   | 44 |
| <b>2. Réseau de capteurs le long des pentes</b> .....   | 46 |
| <b>2.1. Caractéristiques des capteurs et du système capteur-abri Stevenson</b> .....  | 47 |
| <b>2.2. Description des transects des capteurs</b> .....  | 48 |
| <b>2.3. Analyse des éventuels effets de l'environnement sur les mesures</b> .....   | 49 |
| 2.3.1. Comparaison de paramètres thermiques.....  | 49 |
| 2.3.2. Homogénéité relative des séries de mesures.....  | 50 |
| 2.3.3. Comparaison des mesures de températures avec les données<br>radiosondages.....                                       | 51 |
| <b>2.4. Capacité du système de capteurs le long des pentes pour l'investigation des<br/>    inversions thermiques</b> ..... | 53 |
| <b>3. Stations de surface Météo-France</b> .....  | 54 |
| <b>4. Mesures et méthodes de la caractérisation chimique de l'aérosol</b> .....   | 56 |
| 4.1. Moyens de prélèvements.....  | 56 |
| 4.2. Méthodes de caractérisation chimique de l'aérosol.....   | 56 |
| 4.3. Performances analytiques.....  | 57 |
| 4.4. Bilans de prélèvement.....   | 58 |
| <b>5. Détermination en continu des PM<sub>10</sub> issues de la combustion de la biomasse</b> .....                         | 59 |
| 5.1. Mesures en continu par aethalomètres.....  | 59 |
| 5.2. Confrontation des données issues du modèle Aethalomètre avec les données<br>chimiques.....                             | 60 |
| 5.3. Quantification des PM <sub>10wb</sub> à partir des données issues du modèle<br>Aethalomètre.....                       | 61 |
| <b>6. Bases de données sur le parc et l'usage des appareils de chauffage au bois dans la<br/>vallée de l'Arve</b> .....     | 62 |



Sur chacun des trois sites de mesure DECOMBIO, correspondant à des stations urbaines d'Atmo-AuRA, ont été implantés des moyens de mesures supplémentaires en continu (aethalomètre AE33) et discontinues (préleveur DA-80). Nous avons aussi mis en place un dispositif de capteurs de température, avec un réseau installé le long des versants adossés à chacun des 3 sites de mesures. Ces moyens instrumentaux ont pour objectif, d'une part, de suivre l'influence de la source de combustion de la biomasse dans les concentrations et composition chimique des PM et d'autre part, de renseigner sur les inversions thermiques en fond de vallée. Les mesures de certaines variables météorologiques effectuées dans les stations Météo-France proches des trois sites de mesures ont aussi été obtenues.

## 1. Sites de mesure

Les 41 communes du territoire du PPA de la vallée de l'Arve représentent ensemble un milieu sensible à la pollution atmosphérique induit par la topographie fortement encaissée, avec des altitudes moyennes de fonds de vallée entre 500m et 1000m et des sommets jusqu'à 4810 m (Figure II.1). Cette topographie est à l'origine de la concentration des activités humaines en fond de vallée et du développement météorologique du phénomène de « cold air pool » en hiver. Deux verrous géographiques situés à Cluses et Servoz, de moins de 50 m de large et avec un fort dénivelé pour celui de Servoz (200 m sur 4 km) forment des barrières naturelles à la ventilation de l'ensemble du système de vallée. Des situations de pollutions atmosphériques différentes adviennent ainsi entre les différentes sections de la vallée (PPA de la vallée de l'Arve, 2012). Trois sites de mesure ont été implantés, caractérisant les situations atmosphériques de ces différentes zones. Ces sites sont de typologies urbaines ou périurbaines sous influence de fond. Deux de ces sites (Passy et Chamonix) correspondent aux stations fixes d'Atmo-AuRA dans la vallée. Le site de Marnaz n'est pas une station fixe, elle a été spécifiquement implantée au sein de cette commune pour les programmes Part'Aera (2013-2014) et DECOMBIO. Les mesures réalisées dans ces stations représentent l'exposition moyenne de la population et ne sont pas sous la dominance spécifique d'une source d'émissions industrielles ou du trafic (Rapport LCSQA 2017).

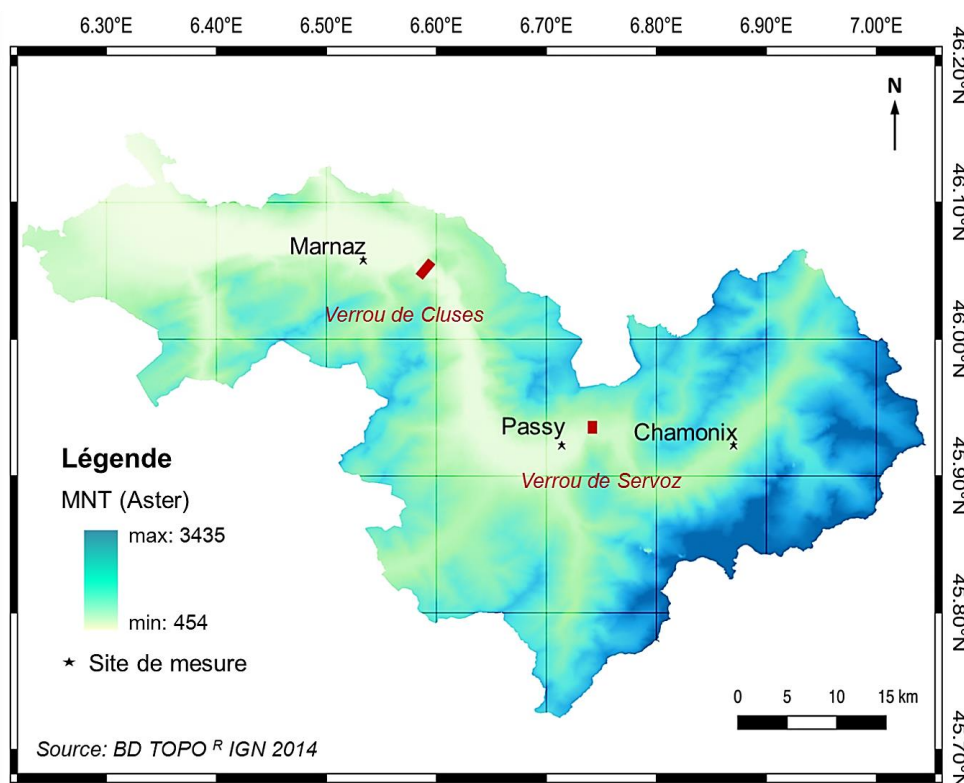


Figure II.1 : Carte des sites de mesures DECOMBIO



Par rapport aux principales sources d'émissions, les différents sites se situent :

- Pour le site de Marnaz : à 1,5 km de l'autoroute à vol d'oiseau et 1,7 km d'une zone industrielle (Valignons). Il est entouré d'un habitat relativement peu dense comparé aux 2 autres sites (Tableau II.1),
- Pour le site de Passy : à 1,2 km à vol d'oiseau de la Z.I. du Haut Chedde où se situe un site industriel important (avec une Unité d'Incinération d'Ordures Ménagères et une usine de production de carbone), et à 1,7 km du viaduc des Egratz, portion de l'autoroute permettant d'accéder à la vallée de Chamonix. La station se situe dans une zone d'habitation dense.
- Aucune grande source industrielle ne se situe dans la vallée de Chamonix. Le site est implanté dans une zone entourée de restaurants du centre-ville et d'immeubles.

| Site            | Altitude | Situation                              | Nombre d'habitants<br>(rayon de 500 m)* | Polluants<br>Réglementaires mesurés   |
|-----------------|----------|--|---|---|
| <b>Marnaz</b>   | 505 m    | Parking de l'Eglise de Marnaz          | 161                                     | PM <sub>10</sub>  |
| <b>Passy</b>    | 583 m    | Parking de l'école maternelle (Chedde) | 400                                     | PM <sub>10</sub> , PM <sub>2.5</sub> , NO, NO <sub>2</sub> , O <sub>3</sub> |
| <b>Chamonix</b> | 1035 m   | Parking du centre-ville                | 91                                      | PM <sub>10</sub> , NO, NO <sub>2</sub> , O <sub>3</sub>                     |

*Tableau II.1 : Principales caractéristiques des 3 sites de mesure de type fond urbain. \* Le nombre d'habitants situé dans un périmètre de 500 m autour des sites de mesures a été déterminé en croisant la couche de densité de population LCSQA-2012 à résolution de 100 m employée dans l'inventaire régional avec les données de l'INSEE (2011).*

Les mesures réglementaires de PM<sub>10</sub> sont réalisées en continu par un TEOM-FDMS<sup>5</sup> 8500 (Thermo-Scientific). Cet instrument automatisé est une méthode qualifiée d'équivalente à la méthode de référence réalisée par gravimétrie sur filtre selon la norme NF EN 12341 (Rapport LCSQA, Mathé 2016). Similairement à la méthode de référence, le TEOM repose sur le principe de gravimétrie : les particules préalablement desséchées (abaissement de l'humidité relative de 20%) vont s'impacter sur un filtre de collecte sur une micro-balance (fonctionnant grâce à la mesure de la fréquence de résonance d'une cloche en verre). La variation de masse du filtre de collecte représente la masse de poussières. Cependant, le TEOM, utilisé seul, sous-estime les concentrations des particules, la part volatile des aérosols n'étant pas prise en compte. Le développement du module FDMS a permis d'améliorer ce dispositif. Avec ce module complémentaire l'air échantillonné est dirigé séquentiellement non pas directement vers le filtre de la microbalance mais vers un filtre refroidi à 4°C permettant de condenser la partie volatile des particules, l'air après refroidissement est ensuite ré-injecté vers la microbalance pour pesée (ECOMESURE, 2014). Les mesures de concentrations massiques sont transmises à un pas de temps de 15 min, et sont ensuite agrégés aux pas de temps horaires et journaliers, selon les normes réglementaires (Rapport LCSQA, Malherbe et Beauchamp 2016).

Si les mesures de concentrations issues de TEOM-FDMS satisfont les exigences réglementaires, elles peuvent, cette fois, surestimées des mesures de concentrations issues de la méthode de référence ou d'autres analyseurs de poussière automatiques. Ceci a été notamment montré dans le cadre du programme Part'Aera mené par Atmo-AuRA à Marnaz au cours de l'année 2014 : les mesures du TEOM-FDMS surestimaient d'environ 23% les mesures de concentrations issues de la méthode de référence et d'un analyseur par rayonnement  $\beta$  (Chevrier 2016).

<sup>5</sup> Tapered Element Oscillating Microbalance with Filter Dynamic Measurement System

## 2. Réseau de capteurs le long des pentes

Afin de mesurer les évolutions de températures et particulièrement les inversions thermiques, 36 dataloggers ont été installés dans la vallée de l'Arve sur 3 pentes différentes. Par le passé, des collectes de données de température le long des pentes en montagne avaient déjà été réalisées mais avec des objectifs différents. Ces mesures étaient employées pour comparer différents microclimats pouvant advenir sur les pentes, ou encore pour déterminer si les températures près du sol étaient représentatives des températures atmosphériques libres dans l'air environnant (par ex. Douguedroit et Santignon 1984 ; Galibert 1960). Ce n'est que récemment que les mesures réalisées à des altitudes différentes sur une pente visent à être utilisées comme proxy des profils verticaux de température en atmosphère libre. L'enjeu est de taille, puisque seuls des instruments onéreux (comparé au coût d'un datalogger ; 164€ HT pour un Tinytag en 2017) permettent de mesurer le profil vertical de température en continu.

Plusieurs études météorologiques et sur la qualité de l'air ont déjà fait usage de mesures le long des pentes comme proxies de profils verticaux de température permettant de détecter les inversions thermiques. Les campagnes météorologiques PCAPS (Persistent Cold Air Pool Study) et VTMX (Vertical Transport and Mixing Experiment) aux Etats-Unis les ont employé en complément d'autres instruments météorologiques (Lareau, et al. 2013 ; Doran, et al. 2002). Concernant la qualité de l'air dans des vallées, la campagne ALPNAP dans les Alpes (de Franceschi et Zardi 2009) mais également des études dans des vallées aux Etats-Unis et à Grenoble (Green, et al. 2015 ; LARGERON et Staquet 2016) se sont également appuyées sur des mesures de températures provenant de stations en surface. On a pu montrer que les évolutions temporelles de certains indicateurs reposant sur la différence de température entre un point en altitude et le fond vallée sont très associées à celle des concentrations de PM mesurées au sol. Cependant, aucune de ces études n'a analysé la représentativité de ces mesures sur les pentes vis-à-vis de mesures de température réalisées à la même altitude en atmosphère libre, ainsi que leur capacité à fournir d'autres indications sur les inversions thermiques, comme leur altitude.

La mesure de la température de l'air correspond, en réalité, à la température du capteur que l'on souhaite identique à la température du milieu. La majorité des erreurs de mesures proviennent de facteurs pouvant impacter l'équilibre thermique entre la température du capteur et celle de l'air, comme le rayonnement, plutôt que d'erreur du capteur lui-même (OMM 2011). Ainsi, l'environnement micro-local et l'exposition des capteurs sont des facteurs d'influence primordiaux sur les mesures de températures, et donc sur les profils de température. Afin de déterminer les capacités des réseaux de capteurs pour investiguer les inversions thermiques, la détermination des caractéristiques des capteurs sous abri en période hivernale est nécessaire. L'influence du micro-environnement local des capteurs sur les mesures de température a de plus été étudiée, notamment avec la comparaison des mesures obtenues par radiosondages lors d'un épisode d'inversion thermique persistante durant la campagne Passy-2015 (Paci, et al. 2016).



Figure II.2 : 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).

## 2.1. Caractéristiques des capteurs et du système capteur – abri Stevenson

Deux types de capteurs ont été employés : 7 sont des sondes Campbell CS215, appartenant à Atmo-AuRA, et 29 sont des Tinytag TGP-4500 de Gemini Data Loggers (Figure II.2). Dans les deux cas, les capteurs ont été installés dans des abris de type Stevenson à ventilation naturelle. Les caractéristiques (précision, temps de réponse) des capteurs avec et sans abri ont été déterminées par plusieurs inter-comparaisons :

- Préalablement à l'installation des Tinytag, comparaison en chambre climatique, avec une sonde CS215 sur une période de 68h sur un domaine de température de -40 à 30°C,
- En atmosphère ambiante, pour un Tinytag sous abri avec une sonde PT100 également sous abri utilisée dans le réseau RADOME de MétéoFrance sur 6 mois (29/01 au 16/06) à Météopole (Toulouse),
- Dans un local non-isolé (local de téléphérique) où 10 capteurs dans leurs abris ont fonctionné durant 3 mois disposés sur une même étagère.

A partir des mesures réalisées en chambre climatique, la précision des Tinytags est mesurée à 0,4°C entre -20 et 40°C et à 0,5 °C entre -20 et 30 °C pour les CS215, conformément aux données des constructeurs (Tableau II.2). Les temps de réponse sont, par contre beaucoup plus importants que ceux indiqués, avec une moyenne de 22 min  $\pm$  4,3 min pour les 2 capteurs. Cela peut s'expliquer par les conditions différentes de détermination : la chambre climatique est totalement isolée sans circulation d'air alors qu'une vitesse de vent minimale est généralement requise pour la détermination par les constructeurs. Un biais important sur les mesures d'humidité relative a été observé dès lors que le capteur sature : à des seuils de températures identiques, les mesures d'HR sont très supérieures (> 20%) s'il y a eu saturation du capteur par rapport aux mesures réalisées avant saturation.

| Paramètres                        | Type de capteur                                | Précision  | Résolution           | Temps de réponse                        |
|-----------------------------------|--|--|----------------------|---|
| <b>Température Tinytag</b>        | Thermistance                                   | $\pm 0,4$ à $0,7^\circ\text{C}$<br>de $-20$ à $40^\circ\text{C}$ | $0,01^\circ\text{C}$ | 25 min (90 %) avec<br>un vent de 1 m/s  |
| <b>Température Campbell CS215</b> | Sensirion (détecteur de bande interdite du Si) | $\pm 0,9^\circ\text{C}$<br>de $-40$ à $70^\circ\text{C}$         | $0,01^\circ\text{C}$ | < 2 min (63 %) avec<br>un vent de 1 m/s |
| <b>Humidité R. Tinytag</b>        | Condensateur                                   | $\pm 3\%$ RH<br>à $25^\circ\text{C}$                             | < $0,3\%$ RH         | 40 s (90 %) sans<br>vent                |
| <b>Humidité R. Campbell CS215</b> | Sensirion (sonde à capacité)                   | $\pm 4\%$ RH de 0<br>à $100\%$ RH                                | $0,3\%$ RH           | < 20 s (63 %) sans<br>vent.             |

Tableau II.2 : Caractéristiques des capteurs indiquées par les fabricants (Gemini pour les Tinytag- 4500 et Campbell Scientific pour les CS215)

Les mesures des 10 Tinytags dans leurs abris en période estivale dans un local non chauffé non isolé et sans ventilation ont été exploitées afin d'investiguer les écarts maximaux entre 2 capteurs. Du fait du nombre relativement conséquent de capteurs, ces écarts de température ont été assimilés à la précision des capteurs dans leurs abris. Les valeurs se situent entre 0,2 et 4°C avec une moyenne de 0,9°C. La majorité des valeurs est située entre 0,5 et 0,9°C. Une modélisation des écarts-maximaux a permis de déduire que les écarts extrêmes (jusqu'à 4,1°C) correspondaient aux mesures lors du lever du jour, moment de la journée où la température varie le plus, et ceci pour les journées présentant une forte amplitude thermique ainsi que des températures moyennes élevées. En période hivernale, les températures et temps d'ensoleillement sont plus faibles qu'en période estivale, et une circulation d'air minimale existe toujours en conditions réelles. La précision des capteurs dans les abris est donc estimée à 0,9°C en période hivernale, qui correspond également à l'erreur indiquée par les capteurs sous abris du réseau RADOME de Météo-France (Leroy 2002).

La comparaison entre les mesures du Tinytag et d'une sonde PT100 sous abri pendant 6 mois a montré une excellente concordance entre ces systèmes capteurs + abris (cf Annexe 3). Des écarts importants entre 1 et 2°C ont été retrouvés dans des cas spécifiques de vents extrêmement faibles et de fort rayonnement. Le biais de la sonde d'humidité du Tinytag a également été observé lors de cette campagne. Finalement, les résultats de ces trois inter-comparaisons ont permis de déterminer une précision du système capteur + abri de 0,9°C en période hivernale avec un temps de réponse de l'ordre de 20 min. 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. Les mesures d'humidité relative ont, quant-à-elles, été jugées peu fiables.

## 2.2. 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 chimiques (stations Atmo AuRA). Le choix des versants a été fait sur la base de plusieurs critères : dans le cas des zones très encaissées (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. De plus, 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 de capteurs devait être, dans la mesure du possible, le plus vertical possible ainsi que le plus régulier avec l'altitude, tout en restant accessible pour les opérations de maintenance (Figures II.3a et b).

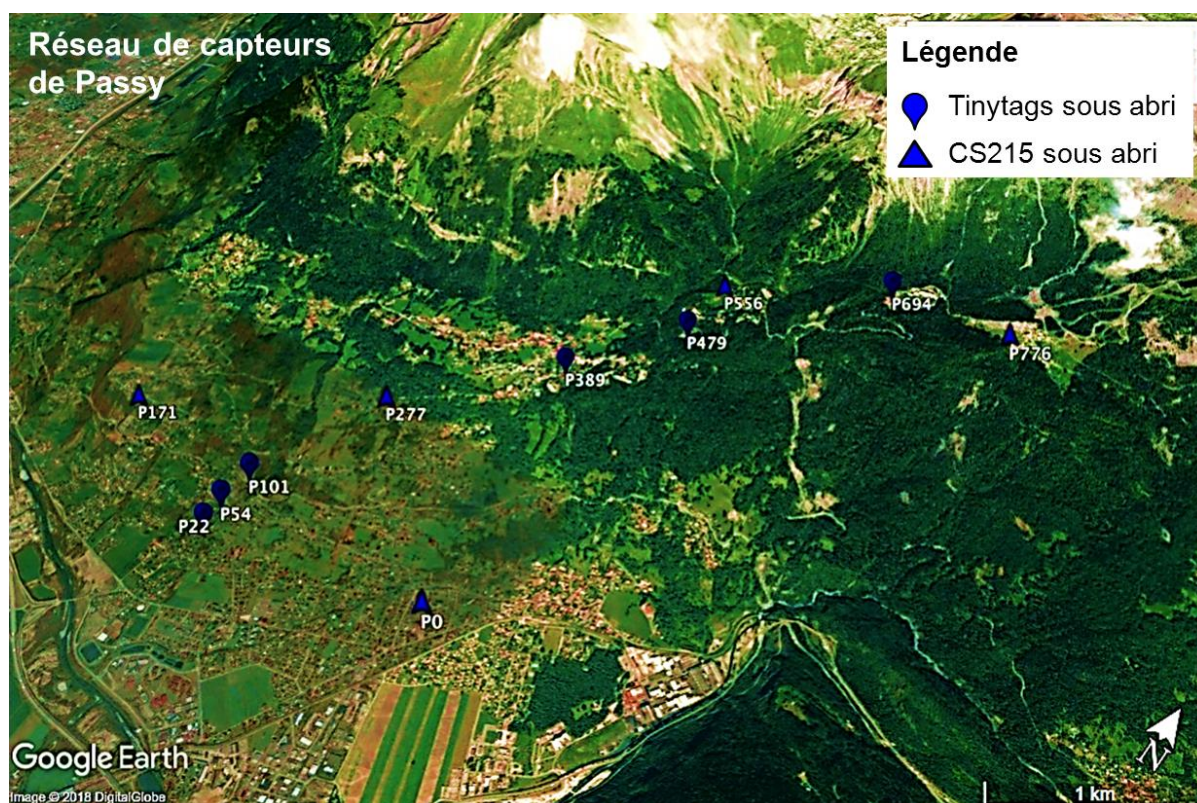


Figure II.3a : Localisation des capteurs du réseau de Passy

Les capteurs Tinytags dans leurs abris ont été accrochés à environ 3 m du sol sur des piliers en béton, en métal, en bois, ou encore sur des arbres. Les Campbell CS215 d'Atmo AuRA sont situés soit à 1 m de hauteur du toit des stations de mesures chimiques pour les capteurs les plus bas des trois réseaux, soit 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 au dysfonctionnement des capteurs situés au niveau des stations de mesures chimiques (en avril 2015). L'autonomie des dataloggers est de 181 jours avec une fréquence de mesures de 15 min, tandis que les capteurs d'Atmo-AuRA sont équipés d'un système de télétransmission en temps réel. Globalement, la période de fonctionnement des capteurs depuis octobre 2013 à un pas de temps de 15 minutes est supérieure à 86 %.

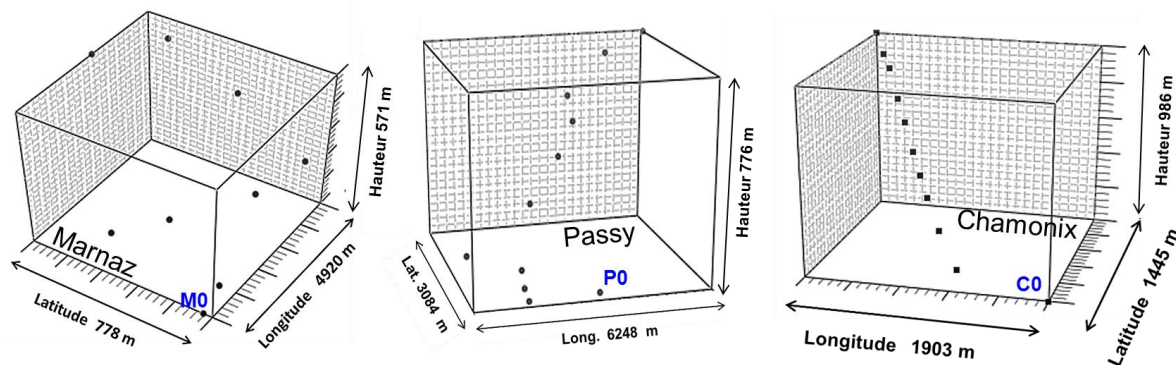


Figure II.3b : Dimensions (longitude, latitude et hauteur) des trois transects. Les capteurs sont identifiés par la 1<sup>ère</sup> lettre du nom du site de mesure (M, P ou C) suivie de l'altitude du capteur par rapport à celui de la station qui est noté 0.

Malgré le soin apporté, les environnements locaux des capteurs présentent des facteurs différents pouvant influencer les mesures de températures et d'humidité relative: présence d'obstacles comme une couverture forestière ou des bâtiments, de sources de chaleur comme des structures métalliques ou des routes, etc. Le transect de Chamonix est une exception, car hormis les capteurs situés dans le fond de la vallée, les capteurs ont été installés sur les structures du téléphérique de Plan-Pratz dans le cadre d'une collaboration avec la Compagnie du Mont-Blanc. Ces facteurs environnementaux peuvent donc s'éloigner des conditions idéales de mesures de température sans impact de microclimats, c'est-à-dire sur un versant à découvert avec une surface homogène (Whiteman, et al. 2004). Les éventuels impacts de l'environnement des capteurs sur les mesures ont été analysés de manière indirecte en comparant certains paramètres thermiques avec ceux qui ont été mesurés dans les Alpes du Nord. L'homogénéité relative des températures entre les capteurs a également été testée.

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

#### 2.3.1. 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 Choisnel (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 en utilisant des moyennes mobiles.

La méthode utilisée pour tester l'homogénéité relative des températures est la méthode des doubles cumuls (OMM 2011 ; Lamarque et Jourdain 1994) correspondant au tracé du cumul des mesures de températures d'un capteur en fonction de celui provenant d'un autre capteur (cf Annexe 1). Des séries homogènes, se traduisent par 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 par des facteurs

connus liés terrain. Ainsi, les mesures de température 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.

### 2.3.2. Comparaison de paramètres thermiques

Les gradients thermiques annuels et saisonniers ont été étudiés dans les Alpes du Nord, pour comparaison avec celles de nos capteurs le long des pentes. Le gradient altimétrique moyen annuel dans les Alpes a été déterminé par plusieurs études : il varie de  $-0,47$  à  $-0,58^{\circ}\text{C}/100\text{m}$  (Dumas et Rome 2009),  $-0,55^{\circ}\text{C}$  à  $-0,60^{\circ}\text{C}$  (Gottardi, 2009 ; Lhotellier, 2005). 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  $R^2$  de 0,96 en été et 0,87 en hiver (Figure II.4), 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, correspondant aux valeurs extrêmes maximales et minimales mentionnées précédemment.

Cependant, si l'observation d'une inversion thermique en période hivernale est une situation très courante en fond de vallée, la persistance des inversions en période estivale n'a jamais été montrée, Hors ce phénomène est observé dans nos mesures sur les sites de Passy et Chamonix (Figure II.4). Lors de l'arrêt des capteurs des sites de mesures sur l'année 2015 sur les 3 sites, des capteurs sous abri ont été installés cette fois-ci à 3 m du sol. La position sur le toit des 1<sup>ers</sup> 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 pour le point le plus bas provient de la position de ces capteurs sur le toit des stations (cf Annexe 2). L'installation de la 2<sup>ème</sup> série de capteurs a par contre entraîné une inhomogénéité dans les séries temporelles de températures. Dans le cadre de l'analyse météorologique sur les 4 hivers (Chapitres 3 et 4), ce sont les mesures provenant des stations Météo-France proche des sites de mesures qui ont été employées.

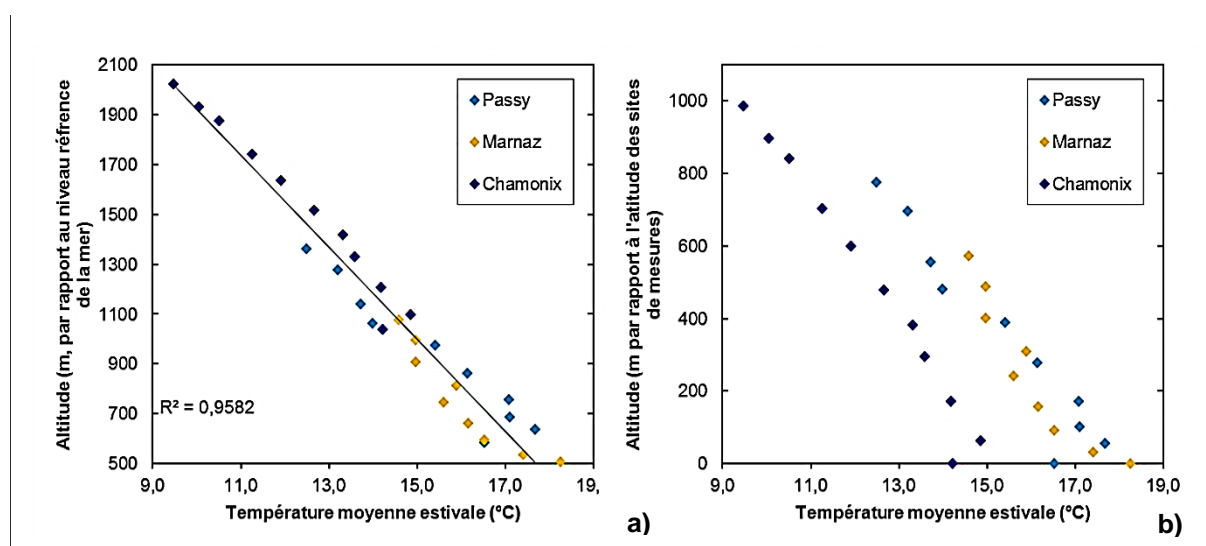


Figure II.4 : Evolution de la température moyenne estivale (15/06/2014 au 15/09/2014) en fonction (a) de l'altitude absolue et (b) de celle rapportée à l'altitude des sites de mesures chimiques correspondant ( $z_0$  correspond à 505 m pour le réseau de Marnaz, 583 m pour le réseau de Passy et 1035 m pour le réseau de Chamonix).

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, obtenu avec des capteurs de mesure fixés sur les pylônes du téléphérique à l'exception du 1<sup>er</sup>. L'étude du décalage horaire des mesures le long d'un versant à partir des heures correspondant aux températures minimales et

maximales journalières a aussi permis de mettre 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).

Au final, on montre que l'effet de l'altitude sur les mesures des capteurs a été retrouvé dans sa globalité mais que des effets de l'environnement sont observables. Une analyse complémentaire sur de l'homogénéité relative des mesures des capteurs a donc été conduite.

### 2.3.3. Comparaison des mesures de températures avec les données 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 fines échelles temporelles et spatiales. Des études, peu nombreuses, ont réalisé ce type de comparaison entre mesures températures en atmosphère libre et mesures provenant de capteurs le long des pentes. Cependant, dans chacune de ces études, les capteurs ont pu être installés sur des pentes à la végétation rase et homogène sans présence ni de forêt, ni de constructions humaines (routes, habitations, etc).

Whiteman, et al. (2004) et Steinacker, et al. (2007) ont comparé des mesures de températures issues de 3 réseaux de capteurs disposés sur des pentes d'orientation différentes d'un gouffre avec des mesures par ballon-sonde sur deux jours en été. Les caractéristiques des capteurs (HOBO) avaient préalablement été étudiées en laboratoire (précision, temps de réponse, etc) (Whiteman, et al. 2000). Les températures provenant des capteurs sur les pentes présentent un biais froid durant la nuit et un biais chaud durant le jour par rapport aux mesures en atmosphère libre. Ces résultats ont été confirmés lors de la comparaison du même dispositif dans la vallée, beaucoup plus large, de Salt Lake (Utah) avec des mesures de radiosondages bi-journaliers (à 00h et 12h UTC) sur des périodes plus longues (Whiteman et Hoch 2014).

Lors de la campagne Passy-2015, 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

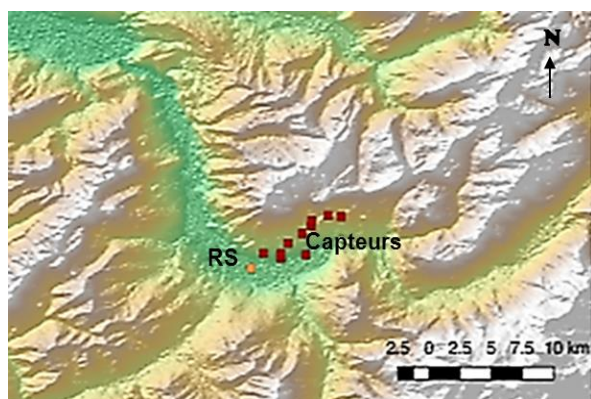


Figure 11.5: Localisation des lancers des radiosondages lors de la campagne Passy-2015 par rapport aux capteurs DECOMBIO

sondages ont été effectués à un pas de temps tri-horaire. Du fait de conditions synoptiques anticycloniques 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. Par rapport à l'étude de Whiteman et Hoch (2014), l'intercomparaison de ces mesures de température avec celles provenant de capteurs le long des pentes permet d'investiguer le cycle diurne des températures ainsi que le cas de capteurs exposés et influencés par différents facteurs micro-environnementaux.

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, déjà 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.

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

pentons peuvent atteindre jusqu'à 4°C au moment des heures les plus chaudes et les plus froides de la journée (Figure II.6). Lors des comparaisons de mesures de capteurs et de ballon-sonde de ou radiosondages bi-journalier dans un gouffre en Autriche ou dans la vallée de Salt Lake, des écarts jusqu'à 3°C avaient été également observés aux mêmes périodes du cycle nyctéméral (Whiteman, et al. 2004; Steinacker, et al. 2007 ; Whiteman et Hoch, 2014). Ce biais de température issu des valeurs froides durant la nuit et chaudes durant la journée mesurées sur les pentons s'explique par la dynamique de la couche limite dans les vallées. Durant la nuit, l'air situé au-dessus du sol se refroidit conduisant à la formation d'un vent de pente descendant entraînant une masse d'air froid au niveau des pentons. Le jour, le phénomène inverse se produit, un vent ascendant entraîne une masse d'air chaud remontant les pentons (Zardi et Whiteman 2013). Ce phénomène est observable dans notre cas en analysant les amplitudes thermiques des mesures des capteurs et du radiosondages. Celles-ci, à l'altitude du 1<sup>er</sup> capteur, sont de l'ordre de 10°C. Avec l'altitude, les amplitudes thermiques des mesures de radiosondages décroissent exponentiellement alors qu'aucune tendance n'est observée dans les amplitudes thermiques provenant des capteurs.

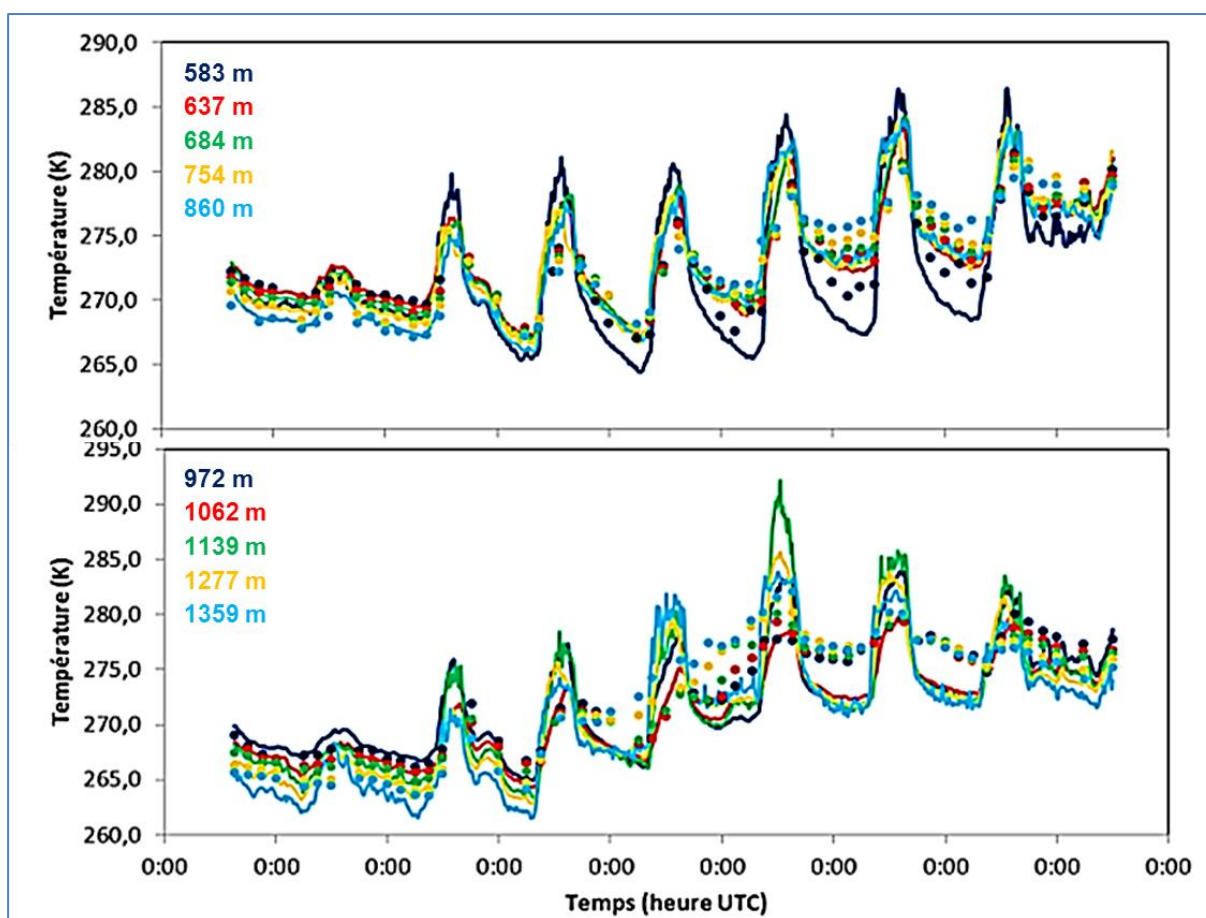


Figure II.6: Evolution de la température du 06/02/2015 15 :00 UTC au 14/02/2015 12 :00 UTC provenant des capteurs du transect Passy (CS215 et Tinytag) et des mesures de radiosondage prises à la même altitude, représentées par les points.

Entre les amplitudes thermiques issues des mesures de capteurs, une certaine variabilité est observée pour certains capteurs. Le capteur situé en pleine forêt montre une amplitude thermique inférieure de 4°C par rapport à l'amplitude thermique moyenne des capteurs du réseau tandis que le 1<sup>er</sup> capteur situé à 1 m du toit des stations présente une amplitude supérieure de 5°C. Ceci confirme que les mesures de certains capteurs sont influencées de manière visible par des facteurs du microenvironnement local. Au regard des résultats des comparaisons des mesures de température des capteurs avec des paramètres thermiques, entre eux et avec des mesures de radiosondages, il apparaît que les profils dits pseudo-verticaux de la température ne peuvent permettre de déduire



directement des informations pertinentes sur les inversions thermiques. En effet, ces mesures sont impactées par « l'effet du sol » mais également par des facteurs des microenvironnements locaux par rapport à des mesures de température libres. Néanmoins, ces effets peuvent en grande partie être éliminés en analysant les différences de température  $\Delta T$  provenant de capteurs situés à différentes altitudes.

#### 2.4. Capacité du système de capteurs le long des pentes pour l'investigation des inversions thermiques

Les réseaux de capteurs étant composés de 10 à 13 capteurs, il est possible de calculer de nombreux  $\Delta T$ , qui ne sont cependant pas tous représentatifs. A l'exception des  $\Delta T$  entre les sites de mesures chimiques et le 1<sup>er</sup> capteur situé au-dessus, tous les  $\Delta T$  issues de capteurs dont la différence d'altitude est inférieure à 100-150m présentent des valeurs inférieures à la précision des capteurs sous abri (0,9°C). La Figure II.7 a) représente les coefficients de corrélation entre les différents  $\Delta T$  calculables à partir du réseau de Passy et ceux issus des mesures de radiosondages de la Campagne Passy-2015. Les  $\Delta T$  les plus corrélés à des  $\Delta T$  issus des données Lidar de profils verticaux de température correspondent à ceux issus de capteurs dont la différence d'altitude est relativement élevée et dont le capteur le plus bas est situé en fond de vallée. De précédentes études ont montré que cette mesure de  $\Delta T$  présentait la même évolution que le heat deficit, permettant de quantifier la quantité d'énergie nécessaire pour que l'atmosphère dans la vallée soit adiabatique (Green, et al. 2015 ; LARGERON et Staquet 2016).

La Figure II.7 b) le confirme pour la mesure de  $\Delta T$  issues de capteurs de Passy avec un proxy de la hauteur de la couche aérosol (portée du Lidar WLS200S- MétéoFrance, maintenu pendant la campagne Passy 2015 (Paci et al., 2016).

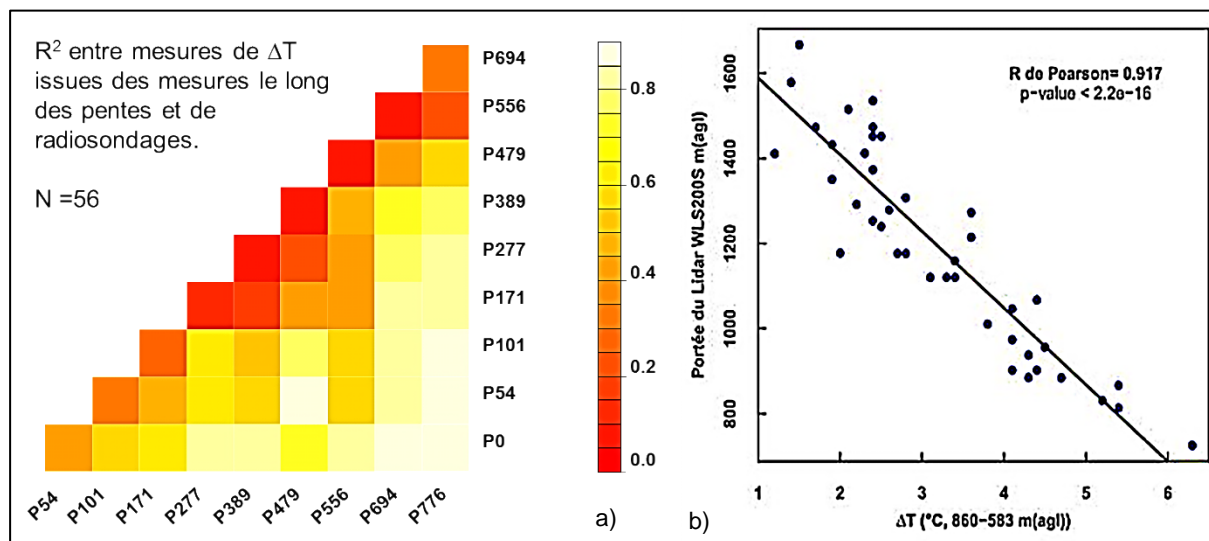


Figure II.7: a) Coefficients de corrélation entre les  $\Delta T$  mesurables à partir des différents capteurs situés le long des pentes du site de Passy et ceux issus des mesures de radiosondages réalisées aux mêmes altitudes ( $\pm 5$  m) sur la période du 06/02 au 14/02/2015. Un carré situé entre P54 et P776 correspond au coefficient de corrélation des  $\Delta T$  mesurées entre 776 et 54 m au-dessus de la station dont l'altitude sert de référence (capteur P0). b) Différences de températures en fonction de la portée du lidar WLS200S (hauteur d'extinction du signal de rétrodiffusion des particules) à l'échelle horaire sur les périodes nocturnes du 8 au 12/02/13 à Passy.

Ainsi, les mesures de température réalisées le long des pentes ne permettent pas d'obtenir des pseudo-profil verticaux de la température totalement représentatifs de mesures réalisées en atmosphère libre en raison de l'influence du bilan radiatif du sol à l'origine des vents de pentes ainsi que de facteurs du microenvironnement local. La hauteur (ou épaisseur) des inversions thermiques ne peut donc être investiguée avec ce système. Néanmoins, les différences de mesures de températures entre les capteurs donnent accès à une information sur la stabilité atmosphérique (et l'intensité

d'inversion) qui peut être suivie en continu. De plus, la comparaison avec la portée du LIDAR WLS200S sur les périodes nocturnes avec les mesures de  $\Delta T$  obtenues avec un des capteurs en fond de vallée indique qu'il existerait bien un lien entre la hauteur de la couche aérosol et ces mesures de  $\Delta T$  lors de périodes très stables.

### 3. Stations de surface Météo-France

D'autres paramètres météorologiques que l'état de stabilité atmosphérique, bien qu'en partie reliés, influencent les concentrations de PM mesurées au sol, comme la pression ou la température (cf Section 2 du Chapitre 1). Les mesures des stations d'observation de Météo-France proche des sites DECOMBIO ont été obtenues à une échelle journalière sur les périodes hivernales (de novembre à mars) de notre programme. Les différentes stations n'ont cependant pas la même qualité de mesure et ne possèdent pas certains instruments, notamment concernant les stations les plus proches des sites DECOMBIO (stations de type bénévole) (Tableau II.3).

Les précipitations, comme la température et la couverture neigeuse, sont très impactées par l'altitude. La fiabilité des mesures de précipitations ainsi que celles de l'épaisseur de la couverture neigeuse des stations les plus proches des sites DECOMBIO a été vérifiée par analyse de corrélation des mesures issues des différentes stations (Figure II.9). Pour ces 3 variables, les coefficients de corrélation les plus forts ont bien été trouvés entre les stations situées à la même altitude et dans la même vallée alors que les coefficients les plus faibles sont obtenus lorsque les stations étaient à des altitudes différentes et de vallées différentes (exemple : entre les précipitations de Ayze et de Chamonix).

Concernant la vitesse moyenne du vent, seules les mesures de la station de Chamonix et de Bonneville sont disponibles. Elles sont de faible qualité pour la station de Chamonix en raison de la présence d'un obstacle. Les vitesses de vent de Chamonix sont faibles, avec une vitesse moyenne qui dépasse rarement  $1 \text{ m}\cdot\text{s}^{-1}$  (3,6 km/h) par rapport aux mesures réalisées à la station de Bonneville. Bien que dans les deux cas, nous retrouvons la relation d'une baisse des concentrations en fonction de la vitesse moyenne du vent, les vitesses mesurées à la station de Chamonix ont été jugées trop faibles pour pouvoir observer une influence de la vitesse du vent sur les concentrations. Par ailleurs, les concentrations d'eBC mesurées à Chamonix montrent également une diminution avec la vitesse moyenne du vent mesurée sur site de Bonneville (Figure II.8). Les mesures de vitesse du vent de la station MF de Chamonix ont été écartées dans la suite du travail.

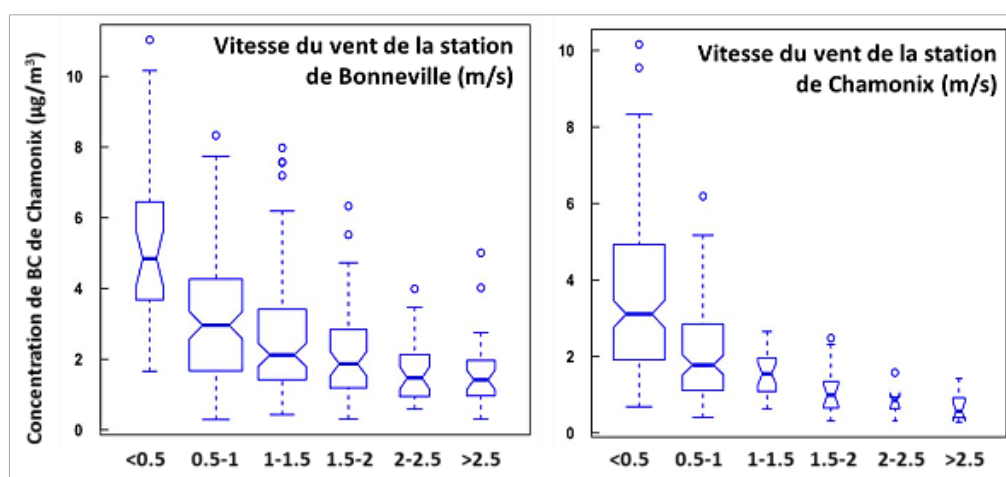


Figure II.8 : Concentrations journalières d'eBC à Chamonix selon des classes de la vitesse journalière de vent mesurée à la station de Bonneville (à gauche) ou de Chamonix (à droite) (n=465 mesures). La largeur des « boîtes » est proportionnelle à l'effectif des mesures.

| Nom             | Altitude | Classification MF | Paramètres mesurés <sup>6</sup> |
|-----------------|----------|-------------------|---------------------------------|
| Annecy          | 458 m    | Type 0            | PMERM                           |
| Ayze            | 449 m    | Type 4            | RR, TN, TX, TM, NEIGETOTX       |
| Bonneville      | 450 m    | Type 0            | RR, TN, TX, TM, FFM             |
| Chamonix        | 1042 m   | Type 1            | RR, TN, TX, TM, FFM, NEIGETOTX  |
| Cluses          | 500 m    | Type 3            | RR                              |
| Le Reposoir     | 965 m    | Type 4            | RR, NEIGETOTX                   |
| Les Carroz      | 1160 m   | Type 4            | RR, TN, TX, TM, NEIGETOTX       |
| Sallanches      | 541 m    | Type 4            | RR, TN, TX, TM, NEIGETOTX       |
| Saint-Sigismond | 1020 m   | Type 4            | RR, TN, TX, TM, NEIGETOTX       |

Tableau II.3 : Caractéristiques des différentes stations Météo-France situées près des sites DECOMBIO. La classification des sites de Météo-France a été établie pour évaluer la représentativité des sites liée à leur environnement. Les sites de type 0, appelés stations synoptiques, respectent les règles de dégagement de l'OMM sur un terrain plat tandis que les sites de type 4 correspondent à des sites en présence d'obstacle ou dont les incertitudes n'ont pas été évaluées (Leroy et Lèches, 2014)

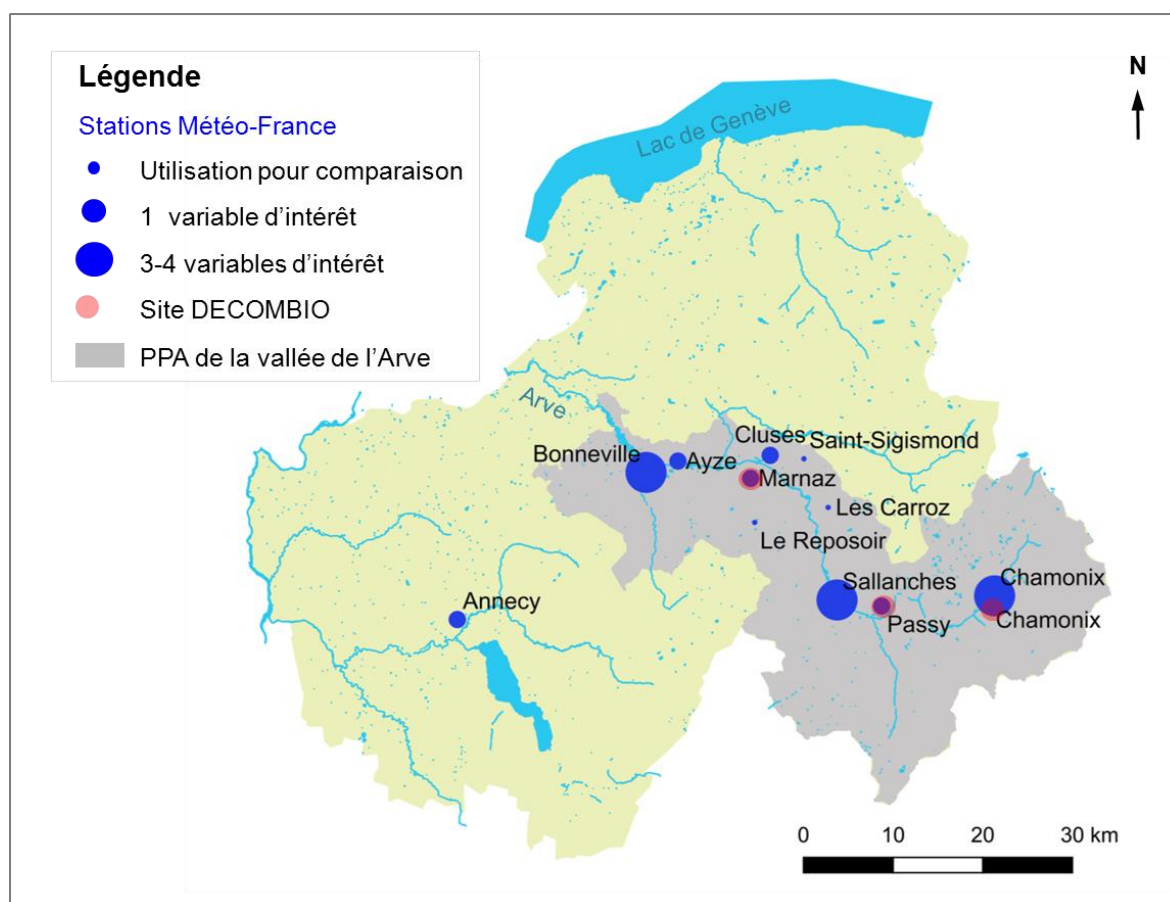


Figure II.9 : Localisation des différentes stations Météo-France situées près des sites DECOMBIO et dont les mesures de certaines variables météorologiques ont été employées pour analyser l'impact des conditions atmosphériques sur les concentrations mesurées au niveau des sites DECOMBIO.

<sup>6</sup> PMERM= Pression mer moyenne quotidienne (hPa) RR=hauteur des précipitations quotidiennes (mm) TN=température minimale sous abri quotidienne (°C) TX=température maximale sous abri quotidienne (°C) TM=température moyenne sous abri quotidienne (°C) FFM=moyenne jour des vitesses du vent à 10 m (m/s) NEIGETOTX=maximum quotidien des épaisseurs de neige totale horaire (cm)

## 4. Mesures et méthodes de la caractérisation chimique de l'aérosol

### 4.1. Moyens de prélèvement

Les particules atmosphériques ont été collectées sur des filtres en quartz (modèle Pall Tissu Quartz, diamètre de 150 mm et surface de collecte effective de 153,94 cm<sup>2</sup>) avec un pas de temps d'échantillonnage de 24 heures à un débit de 30 m<sup>3</sup>.h<sup>-1</sup>. Les préleveurs employés sont des DA-80 de Digital équipés d'une tête de prélèvement pour la collecte des PM<sub>10</sub>. Ce type de préleveur est conforme à la méthode de référence de gravimétrie sur filtre (Mathé 2016). Grâce à un passeur automatique, les filtres sont échantillonnés de manière continue, stockés avant et après prélèvement dans un compartiment réfrigéré de l'appareil (température de consigne : 15°C). Un relevé hebdomadaire des filtres a été effectué durant les campagnes des 3 premiers hivers puis toutes les 2 semaines lors de la campagne hivernale de 2016-2017. Ce temps de stockage peut être à l'origine d'artefacts de prélèvements dont la volatilisation de composés organiques semi-volatiles ou l'adsorption d'espèces gazeuses à la surface du filtre (Turpin, et al 2000). Plusieurs moyens, précautions, et méthodes de correction ont été mis en place afin d'éviter autant que possible ces artefacts :

- Avant prélèvement, les filtres ont été calcinés à 500 °C durant 8h avant d'être placés sous hotte à flux laminaire dans des porte-filtres, préalablement nettoyés à l'eau ultra-pure. Les portes-filtres sont ensuite enveloppés dans du papier aluminium, et mis dans des sachets de congélation individuels à fermeture zip.
- Le transport d'installation et de récupération des porte-filtres dans leurs sachets fermés individuels a été assuré par le service Technique d'ATMO-AuRA.
- Les filtres déchargés du porte-filtre sont ensuite emballés dans du papier aluminium, remis dans leur sachet congélation et stockés en chambre froide ou congélateur à -25°C.
- Un filtre blanc est placé dans le préleveur mais sans contact avec la ligne de prélèvement durant la même période que les filtres impactés (1 ou 2 semaines). 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.

### 4.2. Méthodes de caractérisation chimique de l'aérosol

Les filtres prélevés ont été fractionnés en différents poinçons de surface de 0,20 à 11,34 cm<sup>2</sup> permettant de caractériser de façon détaillée la composition chimique et notamment organique de l'aérosol. Certaines analyses font l'objet d'autres travaux comme la mesure du Potentiel Oxydant (Calas, et al. 2017 ; Weber, et al. 2018) ou la mesure isotopique du carbone (Bonvalot, et al. 2016). Lors de la 1<sup>ère</sup> année du programme DECOMBIO (du 01/10/2013 au 30/09/2014), les prélèvements ont été réalisés en continu sur l'année (1 jour sur 3) avec des analyses très détaillées (analyses des métaux, éléments traces et nombreux composés organiques) permettant la réalisation d'une analyse PMF (Chevrier 2016 ; Jaffrezo, et al. 2018). Pour l'évaluation de l'impact du programme de renouvellement d'appareils de chauffage au bois, l'intérêt a spécifiquement été porté sur la composition globale et les traceurs de la combustion de la biomasse mesurés à minima lors de l'hiver 13-14 et 16-17 (matière carbonée, monosaccharides anhydres, HAP, méthoxyphénols, nitrocatéchols, K+). Le Tableau II.4 récapitule les nombreuses méthodes d'analyse employées pour caractériser les différentes fractions de l'aérosol après les étapes éventuelles d'extraction.

Le carbone élémentaire (EC) possède des propriétés réfractaires par rapport au carbone organique (OC) en se volatilisant à des températures plus hautes (> 500 °C) alors que l'OC peut se volatiliser dès 200°C. C'est sur cette propriété que repose le fonctionnement des analyseurs OC/EC Sunset pour quantifier ces 2 fractions. La quantification de chaque part de carbone est donc dépendante du protocole thermique définissant, entre autres, les paliers de température et leur durée auxquels est soumis l'échantillon. Le protocole EUSAAR-2 (Cavalli, et al. 2010) est le protocole de référence le plus récent ayant amélioré la différenciation des fractions OC et EC. Malgré le suivi d'un même protocole, la quantification de l'EC peut cependant encore être incertaine : une déviation de

l'ordre de 20% a été observée lors d'une intercomparaison entre différents laboratoires avec l'emploi du protocole EUSAAR 2 (Zanatta 2016 ; EUSAAR, 2010). Les différences les plus importantes ont été observées pour des aérosols fortement influencés par la source de combustion de la biomasse, l'émission de particules de brown carbon rendant complexe la différenciation entre EC et OC (Karanasiou, et al. 2015). Afin de vérifier la qualité des analyses de ces 2 composés, l'IGE participe annuellement à des inter-comparaisons entre différents laboratoires dans le cadre du programme européen ACTRIS (Aerosols, Clouds and Trace gases Research Infrastructure).

| Fraction  | Méthode d'analyse   |
|---|---|
| <b>Matière carbonée (EC et OC)</b>  | Analyseur EC/OC (Sunset Lab ; Birch et Cary 1996)<br>Protocole EUSAAR 2 (Cavalli, et al. 2010)  |
| <b>Monosaccharides anhydres<br/>Polyols<br/>Glucose</b>   | HPLC à 3 colonnes de type Metrosep<br>couplé à un détecteur ampérométrique pulsé (PAD)<br>Eluant : soude de concentration 70 mM   |
| <b>HAP (16 composés)</b>  | HPLC avec un détecteur de fluorescence de type Perkin-Elmer<br>Colonne de type phase inverse C18 (NUCLEOSIL)-<br>Eluant : mélange méthanol/eau                                      |
| <b>Composés organiques<br/>apolaires :<br/>HAP méthylés et HAP soufrés</b>  | GC-MS de type Perkin-Elmer – colonne Optima 5 MS<br>Protocole du spectromètre de masse de Golly (2014)<br>Solutions de quantification : tétacosane-d50<br>et benzo(a)anthracène-d12 |
| <b>Composés organiques polaires :<br/>Méthoxyphénols, Cholestérol,<br/>nitrocatéchols et dérivés<br/>méthylés</b> | GC-MS de type Agilent Technologies- colonne Optima 5 MS<br>Prétraitement des échantillons pour sililer les groupements –<br>OH<br>Quantification par étalon interne : guaiacol-d4   |
| <b>Fraction ionique</b>   | Chromatographe ionique de type DIONEX (ICS300)<br>Eluant pour les anions : hydroxyde de potassium<br>Eluant pour les cations : acide méthanesulfonique (27mM)                       |

Tableau II.4 : Méthodes d'analyses de la composition chimique des aérosols réalisées après extractions.

Le protocole d'extraction des composés organiques (HAP, espèces polaires et apolaires) réalisé avec un Accelerated Solvent Extractor (ASE de marque Dionex) est décrit en Annexe 4. Les programmes de températures employés pour l'analyse des composés organiques polaires et apolaires (GC-MS) y sont présentés plus en détail dans les travaux de Chevrier (2016). Grâce à ces différentes méthodes, 16 HAP, 8 HAPs méthylés, 5 HAP soufrés, 13 composés méthoxyphénols et 7 composés nitrocatéchols ont pu être quantifiés. Parmi les nitrocatéchols mesurés, les composés 4-nitrocatéchol, 3-méthyl-5-nitrocatéchol et 4-méthyl-5-nitrocatéchol sont considérés comme des composés secondaires dans les émissions de poêles à bois et à granulés et sont retrouvés en assez large proportion (4 à 5% de la fraction organique de l'aérosol) (Bertrand, et al. 2018).

#### 4.3. Performances analytiques

Les différents indicateurs utilisés pour vérifier la performance analytique des différentes méthodes employées sont les limites de détection et de quantification, et leur reproductibilité. La limite de détection correspond à la concentration la plus basse que l'appareil est capable de détecter, déterminée par des dilutions successives d'une solution standard. La limite de quantification est quant-à-elle estimée à partir des blancs de terrains. Afin de définir la reproductibilité des méthodes analyses, le coefficient de variation de plusieurs analyses d'une même solution standard a été calculé. Le Tableau II.5 répertorie ces différents indicateurs de performances analytiques selon les composés.

S'il en existe des variations entre les familles de composés et entre les sites, les coefficients de variation les plus élevés sont globalement rencontrés sur les 3 sites pour les espèces ioniques et

les HAPs soufrés ou méthylés. Ces valeurs restent cependant relativement faibles (variabilité < 15%). Tout comme les composés EC et OC, les mesures de certains composés font, également, régulièrement l'objet de travaux d'intercomparaison (par ex. Alastuey, et al. 2016).

| Famille de composés      | LD moy. (ng.m <sup>-3</sup> ) | LQ moy. (ng.m <sup>-3</sup> ) | CV moy. (%) |
|--------------------------|-------------------------------|-------------------------------|-------------|
| OC                       | 8,00                          | 144,28                        | 2,5         |
| EC                       | 3,00                          | 4,47                          | 2,5         |
| Espèces ioniques         | 0,23                          | 1,03                          | 13,3        |
| Polyols                  | 0,69                          | 0,24                          | 3,9         |
| Monosaccharides anhydres | 0,30                          | 1,62                          | 4,1         |
| HAP                      | 0,00011                       | 0,44                          | 5,0         |
| HAP méthylés             | 0,012                         | 0,014                         | 11,8        |
| HAP soufrés              | 0,007                         | 0,020                         | 11,6        |
| Méthoxyphénols           | 0,28                          | 2,0                           | 7,4         |

Tableau II.5 : Limites de détections (LD), quantifications (LQ) et coefficients de variations (CV) moyens pour les différentes familles de composés analysés.

#### 4.4. Bilans de prélèvement

Après la première année du programme et pour les 3 hivers suivants, les prélèvements sur filtres, réalisés grâce aux instruments mis à disposition par ATMO-aura, ont été réalisés 1 jour sur 3 sur les sites de Marnaz et Chamonix et 2 jours sur 3 sur le site de Passy (complémentarité sur ce site avec les prélèvements de HAP réglementaires). Les campagnes hivernales ont débuté entre le 15 octobre et début novembre pour finir entre le 31 mars et le 15 avril. Le début et fin des campagnes a été défini pour prendre en compte les périodes les plus froides. Aucun prélèvement n'a été réalisé sur le site de Chamonix lors des hivers 14-15 et 16-17. Le Tableau II.6 présente le bilan de filtres et blancs de terrains prélevés lors des 4 campagnes hivernales. Ce bilan est donc très largement supérieur à ce qui était initialement prévu dans DECOMBIO, puisque ces campagnes hivernales n'étaient prévues que pour le site de Passy.

| Site  | Nombre de filtres prélevés | Nombre de blancs | % blancs / nbre d'éch. |
|---|----------------------------|------------------|------------------------|
| <b>Hiver 2013-2014 (02/11/13- 15/04/14)</b> |                            |                  |                        |
| Marnaz                                      | 56                         | 8                | 14,3 %                 |
| Passy                                       | 115                        | 16               | 13,9 %                 |
| Chamonix                                    | 56                         | 8                | 14,3 %                 |
| <b>Hiver 2014-2015 (01/11/14- 05/04/15)</b> |                            |                  |                        |
| Marnaz                                      | 52                         | 8                | 15,4 %                 |
| Passy                                       | 102                        | 15               | 14,7 %                 |
| <b>Hiver 2015-2016 (15/10/15- 15/04/16)</b> |                            |                  |                        |
| Marnaz                                      | 60                         | 12               | 20 %                   |
| Passy                                       | 122                        | 14               | 11,5 %                 |
| <b>Hiver 2016-2017 (01/11/16- 31/03/17)</b> |                            |                  |                        |
| Marnaz                                      | 51                         | 11               | 21,6 %                 |
| Passy                                       | 102                        | 11               | 10,9 %                 |
| Chamonix                                    | 51                         | 11               | 21,6 %                 |

Tableau II.6: Synthèse des prélèvements sur les hivers 2013-2014 à 2016-2017 réalisés sur les sites DECOMBIO



La matière carbonée, la fraction ionique et les sucres ont été analysés sur tous les prélèvements réalisés, tandis que les composés organiques spécifiques (HAP, méthoxyphénols et nitrocatechols) n'ont été quantifiés que pour les prélèvements de la 1<sup>ère</sup> et 4<sup>ème</sup> campagne hivernale.

## 5. Détermination en continu des PM<sub>10</sub> issues de la combustion de la biomasse

La méthode de quantification en continu des PM<sub>10</sub> issues de la source de combustion de la biomasse (les PM<sub>10wb</sub>) repose sur les mesures et l'utilisation du modèle Aethalomètre permettant d'évaluer la part de carbone suie provenant des combustions fossiles (BC<sub>ff</sub>) de celle provenant de la combustion de la biomasse (BC<sub>wb</sub>) (Sandradewi, et al. 2008a). Cette méthode ne constitue cependant pas encore une méthode standard et a peu été utilisée dans des zones de vallées urbanisées encaissées où la présence de nombreuses sources d'émissions et l'occurrence d'épisodes d'inversions persistantes pourraient être source d'erreur. Une validation des mesures de BC<sub>wb</sub> comme traceur pertinent de la source de combustion de la biomasse dans ces conditions a donc été nécessaire et a été effectuée par comparaison avec des mesures chimiques réalisées par prélèvements sur filtres. Un coefficient spécifique est ensuite nécessaire afin d'estimer les concentrations de PM<sub>10wb</sub>. à partir des mesures de BC<sub>wb</sub>. Dans le cas de l'étude menée dans la vallée de l'Arve, ce coefficient a été déterminé à partir des résultats de déconvolution des sources par approche PMF à partir des échantillons prélevés durant la 1<sup>ère</sup> année (11/13 au 10/14) sur chacun des trois sites DECOMBIO (Chevrier 2016).

### 5.1. Mesures en continu par aethalomètres

Des aethalomètres de type AE33 (Magee Scientific, fournis par Aerosol d.o.o, partenaire de DECOMBIO) ont été déployés sur les trois sites DECOMBIO à partir de 11/2013 permettant de quantifier en continu les concentrations d'eBC (cf Section 3.3.1 du Chapitre 1). Les particules collectés sont les PM<sub>2.5</sub> et non les PM<sub>10</sub>, cependant plus de 90% du BC est localisé dans la fraction PM<sub>2.5</sub> (Jaffrezo, et al. 2005). La caractéristique de ce type d'aethalomètre provient de la technologie « Dual Spot » permettant de corriger en temps réel l'artefact lié à l'effet de charge des particules sur le filtre (Drinovec, et al. 2015). La résolution temporelle de l'appareil est de 1 min. Le taux de mesures effectives est supérieur à 95% entre novembre 2013 et avril 2017 (Figure II.9) avec cependant une interruption des données lors de l'hiver 16-17 sur le site de Marnaz. Des sondes de dioxydes de carbone (CO<sub>2</sub>) de type Vaisala ont également été connectées aux AE33 au cours du programme (cf Figure II.10).

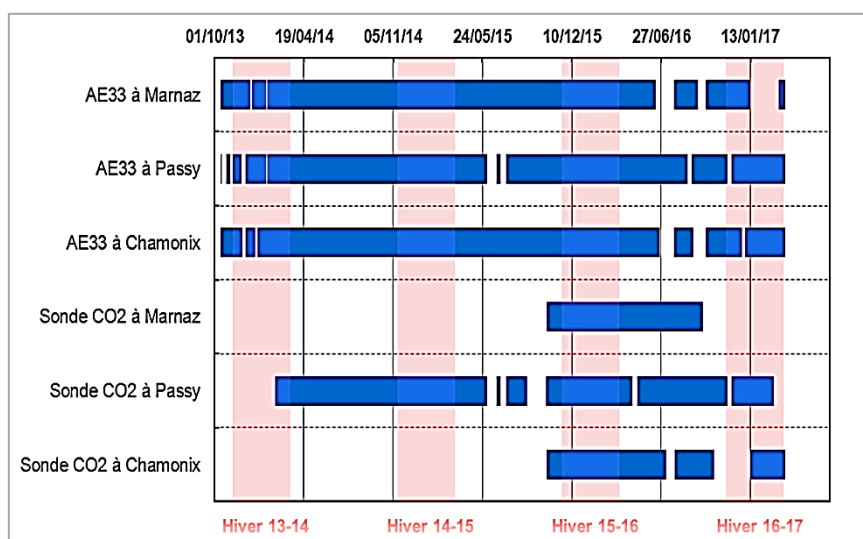


Figure II.10 : Bilan des mesures des mesures d'eBC et de CO<sub>2</sub> sur les 3 sites au cours des 4 années du programme DECOMBIO.

Le modèle aethalomètre utilise un exposant d'Angström,  $\alpha$ , prédéfini pour discriminer les contributions des sources ( $BC_{ff}$  et  $BC_{wb}$ ). L'exposant Angström relié au carbone suie issu de la combustion fossile,  $\alpha_{ff}$ , varie majoritairement entre 0.8 et 1.1 (Schneider, et al. 2008) tandis que celui relié au BC issu de la combustion biomasse est compris entre 1.9 et 2.5 (Favez, et al. 2010 ; Sandradewi, et al. 2008a). Différentes combinaisons de  $\alpha_{ff}$  et  $\alpha_{wb}$  ont été testées sur les 3 sites DECOMBIO en comparant les concentrations journalières de  $BC_{wb}$  estimées à partir des exposants et les mesures journalières de lévoglucosan provenant des prélèvements sur filtres. Cette méthode a également été employée par Fuller et al (2014). La combinaison la plus pertinente est  $\alpha_{ff} = 1$  et  $\alpha_{wb} = 2$ , convenant aux mesures des trois sites mais également utilisée conventionnellement par le réseau des AASQA (Rapport LCSQA, Amodeo 2018). En considérant  $\alpha_{ff} = 1$  et  $\alpha_{wb} = 2$  et leur intervalle de confiance de 10% ( $0,9 < \alpha_{ff} < 1,1$  et  $1,8 < \alpha_{wb} < 2,2$ ), l'incertitude sur le  $BC_{wb}$  moyen est de moins de 25% (Bizjak 2016).

## 5.2. Confrontation des données issues du modèle Aethalomètre avec les données chimiques

Parmi les espèces mesurées sur les prélèvements sur filtre (cf Figure II.11), 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 (Cesari, et al. 2016 ; Amato et al, 2015). 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.

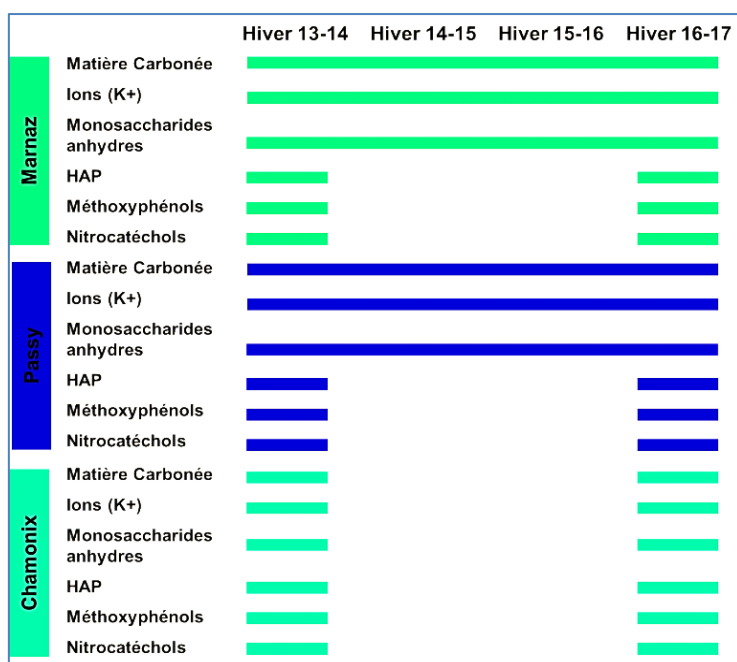


Figure II.11 : Bilan des mesures de traceurs de la combustion de la biomasse sur les 4 campagnes hivernales.

Les coefficients de Pearson ( $r$ ) obtenus entre les mesures journalières d'eBC et EC sont élevés, variant entre 0,85 et 0,94 selon le site, en prenant en compte tous les hivers. Certaines valeurs très élevées de concentrations d'EC mesurées sur le site de Passy ont été écartées lors de ce travail de comparaison, les limites de l'analyseur EC/OC (Sunset Lab) ayant été atteintes et conduisant à une mauvaise distinction de l'OC et l'EC. 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 en fonction des hivers, comme le montre la Figure II.11 représentant les ratios eBC/EC et  $BC_{wb}$ /Lévoglucosan selon les hivers. 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 (Park et al, 2006 ; Watson et al, 2005). 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  $BC_{wb}/\text{lévoglucosan}$  sont analogues à celles des ratios eBC/EC entre les hivers.

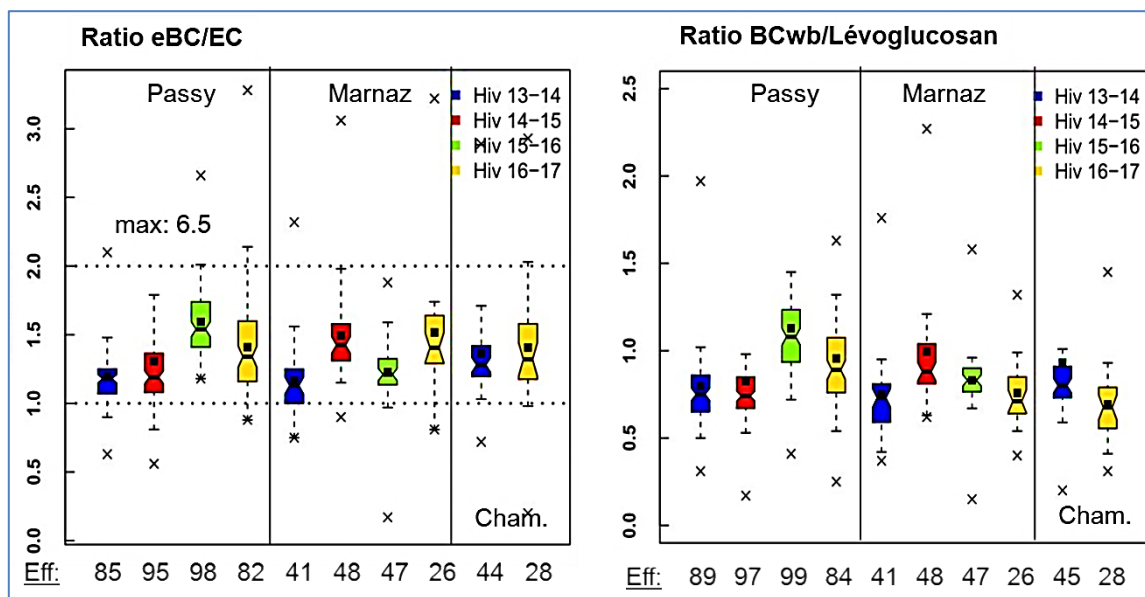


Figure II.12 : Evolutions inter-hivernales (01/11 au 31/03) des ratios eBC/EC et  $BC_{wb}/\text{lévoglucosan}$  pour les 3 sites. Représentation de type Boxplot avec valeur moyenne (carré noir), médiane (barre horizontale), valeurs min et max (croix). 50% des valeurs se situe dans l'amplitude délimitée par la boîte et 95% des valeurs dans l'amplitude des barres verticales. Les lignes horizontales représentent l'intervalle du ratio eBC/EC communément déterminé (Watson, et al. 2005).

Les variations des ratios eBC/EC et  $BC_{wb}/\text{lévoglucosan}$  observées entre les hivers sont difficilement explicables, d'une part en raison de l'existence d'incertitudes différentes portant sur les mesures et d'autre part, du fait du peu d'études existantes d'intercomparaison interannuelle d'eBC et EC. A notre connaissance, l'étude de Lanslebourg est la seule autre étude ayant réalisée des mesures sur filtres et en continu avec un aethalomètre sur le même site lors de campagnes effectuées sur des années différentes (Besombes, et al. 2017). Des variations de ratios eBC/EC ont également été mises en avant, le nombre de mesures est cependant plus faible que dans le cadre de DECOMBIO (effectif de 15 par campagne). Néanmoins, ces variations de ratios restent dans les gammes de variations de la surface efficace d'absorption 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 (Zanatta, et al. 2016 ; Hervo 2013 ; Subramanian, et al. 2010) 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.

### 5.3. Quantification des $PM_{10wb}$ à partir des données issues du modèle Aethalomètre

Les travaux de Chevrier (2016) ont permis d'évaluer les concentrations de  $PM_{10wb}$  durant la 1<sup>ère</sup> année du programme DECOMBIO (du 11/2013 au 10/2014) à partir d'un modèle PMF optimisé

pour le contexte de la vallée. Des composés organiques spécifiques de certaines sources d'émissions ainsi que des données issues d'une première méthode d'attribution des sources (mesures du  $^{14}\text{C}$  et du modèle Aethalomètre) ont été utilisés. Les résultats de contribution des sources obtenus concordent avec les résultats provenant de 2 autres méthodes d'attribution des sources (Jaffrezo, et al. 2018). Les mesures de  $\text{BC}_{\text{wb}}$  pouvant être employées comme traceur de la source de combustion de la biomasse, il est envisageable de pouvoir estimer les concentrations de  $\text{PM}_{10\text{wb}}$  sur les 4 hivers du programme à partir des mesures de  $\text{BC}_{\text{wb}}$  et du facteur multiplicatif spécifique correspondant au rapport  $\text{PM}_{10\text{wb}}/\text{BC}_{\text{wb}}$ . Cependant, l'utilisation d'un coefficient constant sur les 4 hivers à partir des mesures de  $\text{BC}_{\text{wb}}$  est sujette à des incertitudes car elle s'appuie sur l'hypothèse d'une composition chimique de l'aérosol à l'émission stable sur cette période de temps. Les analyses chimiques fines réalisées sur les différents hivers permettront d'évaluer si des modifications du profil chimique des  $\text{PM}_{10}$  sont visibles au cours des hivers avec l'avancée du programme de renouvellement des appareils de chauffage au bois.

Les ratios  $\text{PM}_{10\text{wb}}/\text{BC}_{\text{wb}}$  ont été déterminés à partir des concentrations journalières de  $\text{PM}_{10\text{wb}}$  modélisées par PMF et des mesures de  $\text{BC}_{\text{wb}}$  issues des AE33 sur la période du 15/11/13 au 15/03/14 pour les 3 sites (Tableau II.7). A partir du 15/03/14, le facteur de la source de combustion de la biomasse du modèle PMF est moins bien construit (des écarts de plus de 50% entre les valeurs de concentrations journalières mesurées et modélisées de  $\text{BC}_{\text{wb}}$  ont été trouvés). Les ratios  $\text{PM}_{10\text{wb}}/\text{BC}_{\text{wb}}$  déterminés sont très différents entre les sites de Passy et Chamonix (respectivement de 13,3 et 13,7) et celui de Marnaz qui présente un ratio de 17,0. Ce phénomène pourrait s'expliquer par l'influence de masses d'air polluées extérieures ou un mélange de facteurs dans le modèle PMF sur le site de Marnaz ayant conduit à des valeurs de  $\text{PM}_{10\text{wb}}$  plus élevées relativement aux concentrations de  $\text{BC}_{\text{wb}}$  mesurées par rapport aux 2 autres sites. Les valeurs des 3 coefficients sont, néanmoins, dans le domaine de variation des coefficients (entre 8,6 et 17,3) déterminés dans le programme CARA sur 10 agglomérations françaises (Rapport LCSQA-INERIS, Favez, et al. 2016). Cependant, dans cette dernière étude, les concentrations de  $\text{PM}_{10\text{wb}}$  ont été estimées avec une méthodologie différente (approche mono-traceur à partir de mesures de lévoglucosan sur filtres). Dans la littérature, l'étude ayant la méthodologie la plus semblable à celle proposée dans le cadre du programme DECOMBIO 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  $\text{PM}_{10}$  ont été estimées à environ 15 % (de février à mars 2012) grâce à une méthode combinant données ACSM et analyse PMF. Un ratio  $\text{PM}_{10\text{wb}}/\text{BC}_{\text{wb}}$  d'environ 12,4 a été estimé ce qui est relativement proche des coefficients obtenus en hiver pour les sites de Passy et Chamonix.

| Site  | Passy                   | Chamonix                | Marnaz                  |
|---|-------------------------|-------------------------|-------------------------|
| <b>Effectif pour la détermination de <math>\alpha</math></b>  | 29                      | 26                      | 30                      |
| <b>Coefficients <math>\alpha</math></b>   | $13.3 \pm 1.7$<br>(13%) | $13.7 \pm 2.1$<br>(15%) | $17.0 \pm 3.0$<br>(18%) |
| <b>Incertitude relative des concentrations journalières de <math>\text{PM}_{10\text{wb}}</math> (<math>\alpha * [\text{BC}_{\text{wb}}]</math>)</b> | 38%                     | 40%                     | 43%                     |

Tableau II.7: Coefficients  $\alpha$  des 3 sites déterminés à partir des concentrations  $\text{PM}_{10\text{wb}}$  de la PMF et des mesures AE33 de  $\text{BC}_{\text{wb}}$  (moyenne  $\pm$  écart-type). Incertitude relative résultant des concentrations journalières  $\text{PM}_{10\text{wb}}$ .

## 6. Bases de données sur le parc et l'usage des appareils de chauffage au bois dans la vallée de l'Arve

Plusieurs sources de données ont été employées dans ces travaux de thèse afin de mettre en regard l'évolution éventuelle des mesures de concentrations avec l'avancée des remplacements des

appareils (Tableau II.8). Les résultats issus de l'enquête de ménage ADEME-BVA ont permis d'établir le parc d'appareils de chauffage au bois sur le territoire des 41 communes du PPA de la vallée de l'Arve en 2012. C'est sur ce parc qu'a été dimensionnée l'opération du Fond Air Bois. Le nombre d'appareils des logements en résidence principales et secondaires établis en fonction du type d'appareil et des communautés de communes a été employé pour quantifier les émissions de PM<sub>10</sub> issues des appareils hors Fond Air Bois autour des sites de mesures. Les enquêtes ménages PRE2A et DREAL réalisées respectivement avant et au début de l'opération du Fond Air Bois permettent d'obtenir des données supplémentaires de consommations de bois déclarées, de manière indépendante et sur le même territoire. Les caractéristiques de l'appareil et son usage ont également été récoltées lors de ces enquêtes, permettant d'évaluer l'incertitude des consommations déclarées dans les dossiers de demande d'aide du Fond Air Bois. Les informations récoltées dans ces dossiers par le Syndicat Mixte d'Aménagement de l'Arve et ses Abords (SM3A) constituent cependant la base de données majeure de ce travail.

| Enquête                                 | Période de réalisation                 | Méthode d'échantillonnage   | Effectif   |
|---|--|---|--|
| <b>ADEME-BVA</b><br>(ADEME 2013)        | Septembre 2012                         | Echantillonnage réparti sur 2 zones de la vallée (haute et basse), représentatif de la population en termes de sexe, âge, catégorie socio-professionnelle du chef de ménage, statut et type de logement, et nombre de personnes dans le foyer (Enquête Insee)         | 473 utilisateurs d'appareils de chauffage au bois  |
| <b>Dossiers du FAB</b><br>(SM3A)        | A partir de mai 2013 – au fil de l'eau |   | 1932 dossiers de renouvellements entre 2013 et nov. 2016   |
| <b>PRE2A</b><br>(Cassagne, et al. 2015) | Décembre 2014                          | Objectif de 970 utilisateurs d'appareils de chauffage au bois répartis sur 6 zones de la vallée de l'Arve (haute-rurale, haute-urbaine, etc.) selon le nombre total de ménages dont le mode de chauffage principal est « autre combustible » (Enquête Logement-Insee) | 961 utilisateurs dont 437 possèdent un appareil non-performant et ont déclaré une consommation de bois |
| <b>DREAL</b><br>(Atmo-AuRA 2011)        | Hiver 2010-2011                        | Mode de sélection des interrogés non précisée. L'enquête concerne l'ensemble des modes de chauffage résidentiel du territoire de la vallée de l'Arve.   | 322 utilisateurs d'appareils de chauffage au bois dont 142 ont un appareil non-performant.             |

*Tableau II.8: Description des différentes sources de données concernant les types et usages d'appareils de chauffage au bois dans la vallée de l'Arve employés dans le cadre de cette thèse.*

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 notamment les caractéristiques des appareils anciens et renouvelés, leur usage ainsi que des caractéristiques sur le logement permettent d'estimer les émissions en adaptant les méthodes d'estimation des inventaires d'émissions. Ces variables permettent de quantifier la consommation de bois de l'ancien appareil et d'assigner un facteur d'émissions à l'ancien et au nouvel appareil. Les coordonnées GPS (système WGS84) sont issues d'un géocodage des adresses d'habitation par le SM3A avec Google Maps. 9 coordonnées ont été

définies comme erronées, se situant hors du territoire du PPA de la vallée de l'Arve. 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 de 2 mois auparavant (communication SM3A). Pour les autres dossiers, nous avons fait l'hypothèse que pour tous les dossiers ayant été réceptionnés avant le 1er novembre de l'année X, le nouvel appareil a pu être installé pour une première utilisation lors de l'hiver X - X+1. Comme répertorié dans le Tableau II.9, certaines variables ont un taux de données manquantes élevé, notamment la consommation de bois déclarée avec l'ancien appareil. Afin de pouvoir quantifier la réduction des émissions du plus grand nombre de remplacement des appareils et d'estimer l'incertitude des données manquantes sur les émissions, une méthode d'imputation dite multiple a été développée.

| Utilisation des variables dans l'estimation des émissions     | Champ des variables   | % de données manquantes |
|---|---|-------------------------|
| <b>Quantifier la consommation de bois</b>                     | Consommation de bois déclarée avec l'ancien appareil                      | 18,8                    |
|   | Surface du logement   | 23,7                    |
| <b>Assigner un facteur d'émission pour l'ancien appareil</b>  | Type d'appareil   | 1,2                     |
|   | Mode d'usage de l'appareil (chauffage principal, en appoint ou en loisir) | 8,3                     |
|   | Combustible (bûches ou granulés)  | 1,2                     |
| <b>Assigner un facteur d'émission pour le nouvel appareil</b> | Type d'appareil   | 1,2                     |
|   | Mode d'usage de l'appareil  | 3,7                     |
|   | Combustible   | 3,1                     |
| <b>Spatialiser les réductions d'émissions</b>                 | Coordonnées GPS   | 1,7                     |
| <b>Temporaliser les réductions d'émissions</b>                | Date d'envoi de l'aide financière   | 35                      |
|   | Date de réception du dossier  | 0                       |

Tableau II.9: Synthèse des champs des variables et de leurs taux de données manquantes, utilisés pour l'estimation de la réduction des émissions des 1932 appareils remplacés entre 2013 et novembre 2016 dans le cadre de l'opération du Fond Air Bois.

Ainsi, les travaux de cette thèse reposent sur des mesures et données de différents types sur 4 hivers, sur le territoire du PPA de la vallée de l'Arve ou pour 3 sites de mesures chimiques sélectionnées pour évaluer l'impact du Fond Air Bois sur les concentrations atmosphériques mesurées. Les mesures météorologiques ont été essentiellement employées afin de développer une classification des conditions atmosphériques (Chapitre 3) permettant de comparer les mesures de concentrations des traceurs et de PM<sub>10</sub> issues de la biomasse dans des conditions météorologiques similaires (Chapitre 4). Les analyses chimiques réalisées durant les campagnes hivernales permettent également d'évaluer l'impact du changement des émissions de la combustion de la biomasse sur la composition chimique des PM<sub>10</sub>. L'évolution et facteurs d'incertitudes des émissions des PM<sub>10wb</sub> liée aux remplacements de certains appareils (Fond Air Bois) ont ensuite été estimées en bonne connaissance des conditions de dispersion atmosphériques (Chapitre 5).

## Chapitre 3 : Développement d'une classification des conditions atmosphériques selon leur influence sur les concentrations

|   |            |
|---|------------|
| <b>1. Enjeu d'une classification des conditions atmosphériques pour l'évaluation du Fonds Air Bois sur la qualité de l'air.....</b> | <b>66</b>  |
| <b>2. Influence des variables météorologiques ou liées aux émissions sur les concentrations hivernales.....</b>                     | <b>68</b>  |
| <b>2.1. Variables impactant les concentrations particulières en période hivernale.....</b>  | <b>68</b>  |
| 2.1.1. Relation entre l'état de stabilité atmosphérique et les concentrations de PM <sub>10</sub> .....                             | 69         |
| 2.1.2. Sélection des variables influentes sur les concentrations de BC <sub>wb</sub> .....  | 71         |
| <b>2.2 Quantifier l'influence relative des variables météorologiques ou liées aux émissions sur les concentrations.....</b>         | <b>74</b>  |
| <b>3. Classification automatique des conditions atmosphériques.....</b>   | <b>78</b>  |
| <b>3.1. Etapes du processus de classification.....</b>  | <b>78</b>  |
| <b>3.2. Caractéristiques des différentes classes de conditions atmosphériques.....</b>  | <b>79</b>  |
| <b>3.3. Concentrations selon les différentes classes de conditions atmosphériques.....</b>  | <b>82</b>  |
| <b>3.4. Apport et limites de cette classification vis-à-vis de l'évaluation d'impact du Fonds Air Bois.....</b>                     | <b>82</b>  |
| 3.3.1. Un facteur limitant : inhomogénéité des conditions atmosphériques entre les hivers.....                                      | 82         |
| 3.3.2. Pertinence et incertitudes de la classification établie.....   | 85         |
| <b>4. Conclusion.....</b>   | <b>105</b> |

La variabilité journalière et interannuelle des concentrations atmosphériques dépend à la fois des émissions et de processus liés aux conditions atmosphériques. Afin d'expliquer et « d'éliminer » l'influence des conditions atmosphériques sur les concentrations, une approche consiste à estimer les concentrations atmosphériques selon des conditions atmosphériques identiques (AQEG 2013). Pour cela, on peut chercher à classifier les conditions atmosphériques afin de comparer les mesures de concentrations selon des conditions similaires. La classification de types de temps est une technique historique de recherche en météorologie et en climatologie, dont le champ d'application s'élargit actuellement avec le développement de méthodes automatiques (Huth, et al. 2008). Dans les études sur la qualité de l'air, les applications concernent principalement l'analyse de la relation entre les circulations synoptiques ou les rétro-trajectoires et les concentrations atmosphériques (Zhang, et al. 2016 ; Valverde, et al. 2015 ; Russo, et al. 2014 ; Karaca et Camci 2010 ; Demuzere, et al. 2009 Kahl, et al. 1997). Récemment, Pleijel, et al. (2016) ont utilisé une classification de circulation atmosphérique pour une application différente, en distinguant la tendance des concentrations annuelles de différents polluants liée à la variabilité climatique à l'échelle synoptique inter-annuelle, de celle pouvant provenir des mesures de réduction des émissions.

Les méthodes de classification sont très nombreuses et ont fait l'objet d'une Action COST (Coopération européenne en science et technologie) afin d'évaluer et d'harmoniser les classifications de conditions atmosphériques sur l'Europe (COST 2005). Les méthodes de clustering sont les méthodes automatiques les plus fréquemment utilisées et sont les plus performantes, comme il a été montré par des études de comparaison avec d'autres méthodes de classifications automatiques (Valverde, et al. 2015 ; Philipp, et al. 2010 ; Huth, et al. 2008). Les variables, fréquemment issues de données de réanalyses météorologiques, sont généralement considérées de poids équivalent dans le processus en entrée de classification. Or, les variables météorologiques n'ont pas toutes la même influence sur les concentrations atmosphériques des espèces chimiques. De nombreuses études d'analyse de corrélation entre des variables météorologiques et les concentrations de PM<sub>10</sub> ou PM<sub>2.5</sub> ont en effet montré que les concentrations étaient plus corrélées à certaines variables, telle que la hauteur de la couche limite, qu'à d'autres (par ex. Czernecki, et al. 2017 ; Tiwari, et al. 2014 ; Tai, et al. 2010 ; Vardoulakis et Kassemenos 2008). De plus, certains facteurs « sociaux » influent sur l'intensité des émissions, comme la distinction entre les jours de semaine et de week-end qui est un paramètre influent sur les concentrations (Carslaw et Taylor 2009 ; Morawska, et al. 2002).

Ainsi, afin de s'affranchir de la variabilité des conditions atmosphériques sur l'évolution des concentrations mesurées au cours des hivers dans le cadre de notre étude, une classification des conditions atmosphériques journalières a été développée, prenant en considération l'influence relative des variables météorologiques et celles liées à l'intensité des émissions. Ce chapitre est dédié à la présentation des différentes étapes ayant permis d'établir cette classification des conditions atmosphériques.

## **1. Enjeu d'une classification des conditions atmosphériques pour l'évaluation du Fond Air Bois sur la qualité de l'air**

Une étude préalable de l'évolution des concentrations de PM<sub>10</sub> pendant les hivers 2013 à 2016 sur les 3 sites de mesures de DECOMBIO permet d'apporter des informations sur l'influence des conditions atmosphériques sur cette évolution.

Depuis 2012, année de mise en place du PPA de la vallée de l'Arve, des actions de mesures progressives de réduction des émissions de PM<sub>10</sub> sont conduites sur différentes sources notamment sur le chauffage au bois résidentiel (ATMO-aura 2017a). On observe cependant que les concentrations hivernales moyennes des PM<sub>10</sub> entre 2013 et 2016 ne présentent pas de diminution sur les 3 sites (Figure III.1). De façon générale, ces concentrations journalières moyennes de PM<sub>10</sub> diminuent entre les hivers 13-14 et 15-16, puis ré-augmentent lors de l'hiver 16-17 avec des concentrations supérieures ou égales à celles mesurées lors de l'hiver 13-14.

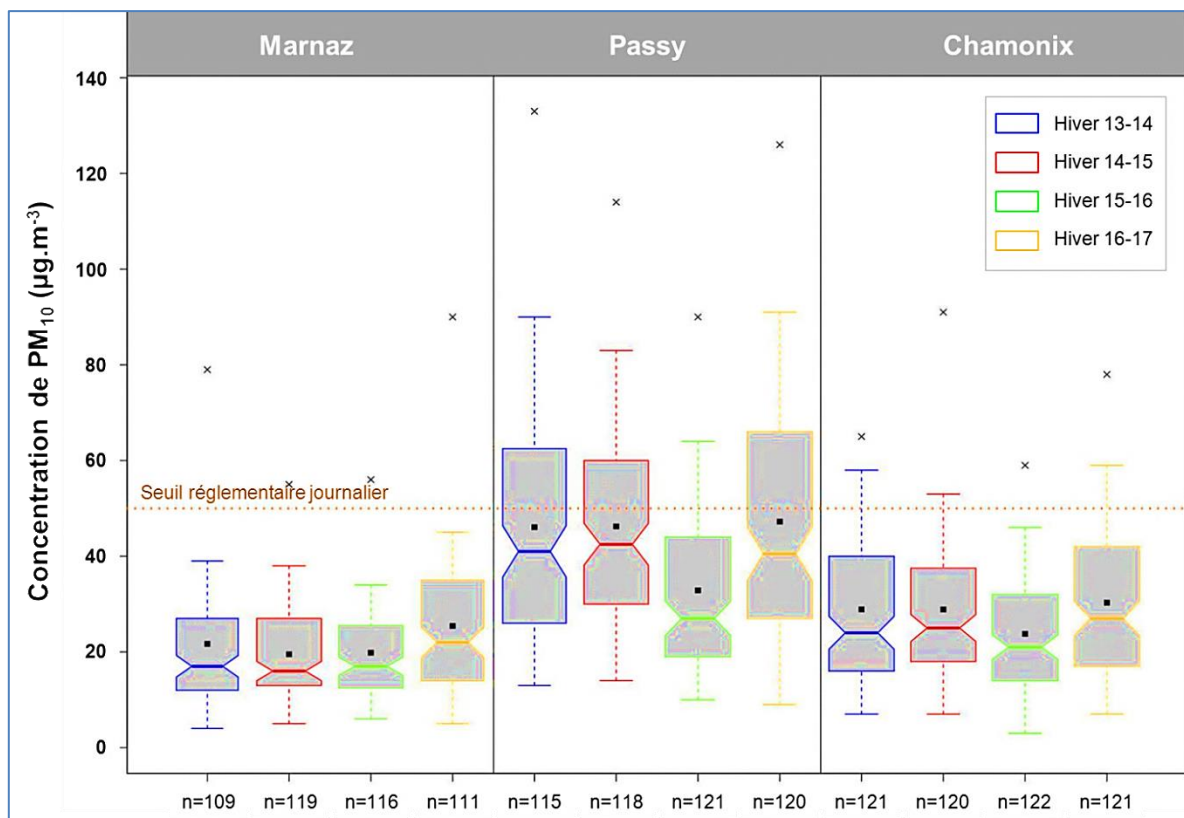


Figure III.1 : Evolution des concentrations journalières de  $PM_{10}$  durant les périodes hivernales de 2013-2014 à 2016-2017 (du 15/11 au 15/03) sur les 3 sites DECOMBIO. Représentation de type Boxplot : 50% des valeurs sont comprises dans l'aire grisée où la médiane est indiquée par la barre colorée tandis que l'intervalle vertical comprend 90% des valeurs. La valeur moyenne est représentée par le carré noir et la valeur maximale par la croix.

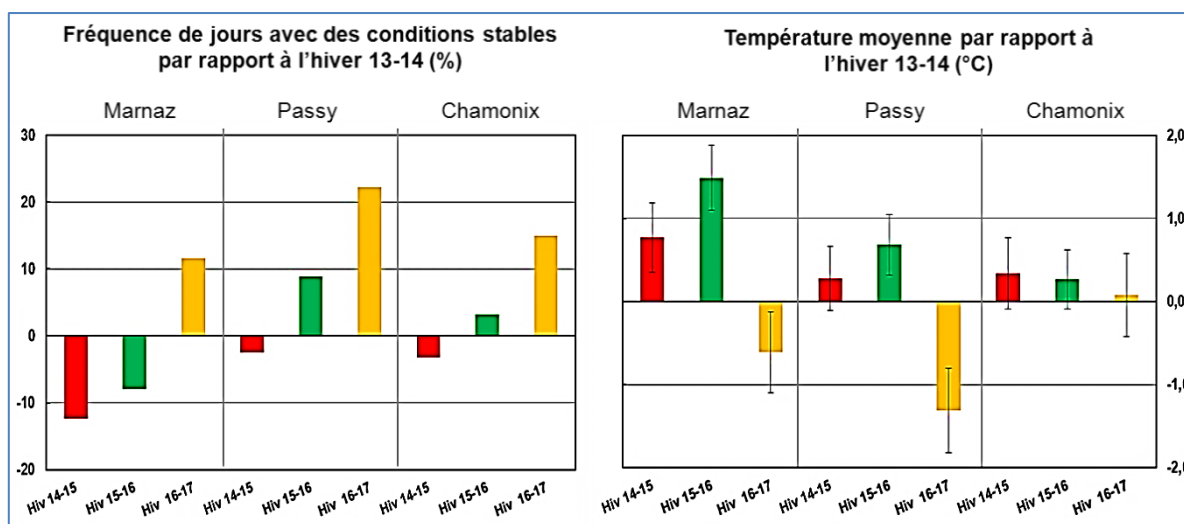


Figure III.2 : Fréquences de jours présentant des conditions stables (définies comme les journées présentant une différence de température,  $\Delta T$ , supérieure à  $0^{\circ}C$  sur les 600 premiers m d'altitude) sur les périodes du 15/11 au 15/03 par rapport à la fréquence de journées stables lors 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.

En première approche, ces évolutions de concentrations peuvent s'expliquer par la différence de fréquence des journées présentant des conditions stables, ainsi que par les différences entre températures moyennes selon les hivers (Figure III.2). Les 2<sup>ème</sup> et 3<sup>ème</sup> hivers de mesures présentent des températures moyennes supérieures (de 0.3 à 1.5°C selon le site et l'hiver) par rapport aux

températures moyennes lors du 1<sup>er</sup> hiver (2013-14). La fréquence de journées avec des conditions stables est également inférieure lors du 2<sup>ème</sup> hiver par rapport à l'hiver 13-14 sur les 3 sites. A l'opposé, lors de l'hiver 16-17, la fréquence de jours avec des conditions stables est supérieure par rapport au 1<sup>er</sup> hiver (12 à 22% selon le site) et les températures moyennes sont inférieures de 0,6 et 1,3°C sur les sites de Marnaz et Passy, respectivement. Ainsi, les quatre hivers de mesures présentent des conditions atmosphériques différentes qui semblent impacter l'évolution des concentrations de PM<sub>10</sub> moyennes hivernales.

Outre la variabilité inter-annuelle des concentrations de PM<sub>10</sub>, le site de Passy présente des concentrations hivernales de PM<sub>10</sub> supérieures d'un facteur 1,4 à 2,4 par rapport aux concentrations mesurées sur les sites de Chamonix et Marnaz. Vis-à-vis de la réglementation européenne (Directive 2008/50/CE), le site de Passy ne respecte pas les valeurs réglementaires avec plus de 35 jours par an présentant des concentrations supérieures à 50 µg.m<sup>-3</sup> pour beaucoup des dernières années. Sur la période du 15/11 au 15/03, le site de Passy présente, respectivement sur les 4 hivers, 44, 44, 20, et 47 jours avec des concentrations moyennes journalières supérieures à 50 µg.m<sup>-3</sup>, voire à 100 µg.m<sup>-3</sup>. Les valeurs de concentrations de PM<sub>10</sub> retrouvées sur ce site sont élevées par comparaison aux concentrations mesurées dans des sites de vallées avec une source d'émissions prédominante de combustion de la biomasse (Larsen, et al. 2012 ; Chevrier 2016). A contrario, les concentrations moyennes hivernales de PM<sub>10</sub> des sites de Marnaz et Chamonix présentent des valeurs analogues à celles rencontrées sur d'autres sites de fond comme à Lanslebourg (moyenne hivernale de 25 µg.m<sup>-3</sup>, Chevrier 2016) ou Grenoble (moyenne hivernale de 2016-2017 de 30 µg.m<sup>-3</sup>). Cette distinction entre les concentrations mesurées à Passy et les 2 autres sites de la vallée de l'Arve s'expliquerait en partie par la topographie (vallée encaissée avec des vallées tributaires) et par la dynamique atmosphérique qui s'y crée en période de stabilité hivernale (Sabatier, et al. 2018).

Ainsi, les conditions météorologiques influençant les concentrations de PM<sub>10</sub> diffèrent spatialement au sein de la vallée de l'Arve et au cours des 4 périodes hivernales de mesures. Afin de s'affranchir de cette variabilité, on a cherché à regrouper les conditions atmosphériques selon une influence homogène sur les concentrations à partir de variables météorologiques locales spécifiques aux sites.

## 2. Influence des variables météorologiques ou liées aux émissions sur les concentrations hivernales

La classification des conditions atmosphériques proposée repose sur la quantification de l'importance relative des variables sur les concentrations. De nombreuses études ont déjà mis en avant des corrélations ou dépendances significatives entre plusieurs paramètres météorologiques et les niveaux de concentrations d'espèces chimiques atmosphériques (cf Chapitre 1.2.2). L'influence de ces variables sur les concentrations dans la vallée de l'Arve a été vérifiée, selon le type de variable, par analyse de corrélation ou par le test du X<sup>2</sup>, ce qui a également permis d'établir une sélection des variables trop fortement co-linéaires pour limiter ce facteur, auquel les méthodes de clustering sont très sensibles (Eder, et al. 1994). L'importance relative des variables a ensuite été quantifiée avec un algorithme de Random Forest (Breiman 2001), méthode provenant du « Machine Learning » et qui est robuste aux phénomènes de non-linéarités.

### 2.1. Variables impactant les concentrations particulières en période hivernale

Les nombreuses études précédentes portant sur l'analyse statistique des concentrations de PM<sub>10</sub> ou PM<sub>2.5</sub> avec des variables météorologiques ou à « caractère social » ont permis de répertorier les variables pouvant avoir un impact sur les concentrations hivernales dans la vallée de l'Arve (Tableau III.1). La direction du vent à l'échelle journalière, souvent citée dans des études d'analyse des concentrations, est non disponible pour cette étude. Néanmoins, cette variable à l'échelle journalière dans des vallées peut être considérée comme peu informative en raison de la dynamique des vents thermiques en montagne avec des renversements de direction (Zardi et Whiteman 2013, cf



section 2.2.3 du chapitre 1). Les précisions des mesures de température issues des capteurs installés le long des pentes ont pu être analysées en détail tandis que celles provenant des mesures des stations Météo-France ont été évaluées par Météo-France ou par comparaison avec des mesures provenant d'autres stations (cf Chapitre 2- Section 2 et 3).

| Variables  | Processus d'influence sur les concentrations   | Corrélation  |
|--|--|--------------|
| <b>Stratification thermique (<math>\Delta T</math>)</b>  | En cas d'inversion et de stabilité thermique, les mouvements de turbulence verticaux deviennent faibles, voire inexistants, limitant la dispersion verticale des polluants.  | +            |
| <b>Température moyenne (<math>T_m</math>)</b>            | En hiver, une température faible est indicatrice de conditions stables et d'inversion thermique, favorisant la condensation de certaines espèces sous forme particulaire. Elle conduit aussi à un besoin de chauffage accru. | -            |
| <b>Vitesse du vent (<math>u</math>)</b>                  | Une vitesse de vent élevée favorise la dispersion et le transport des polluants. Elle peut également être source de resuspension.  | -            |
| <b>Précipitation à J et J-1 (RR et RR<sub>J-1</sub>)</b> | Les précipitations sont à l'origine du dépôt humide des PM, mécanisme dominant de déposition.  | -            |
| <b>Humidité (HR)</b>                                     | Une forte humidité favorise les réactions de formation secondaire de PM et peut également indiquer la présence de précipitations.  | n. signifi.. |
| <b>Pression (P)</b>                                      | Les pressions élevées indiquent la présence de conditions anticycloniques correspondant à des situations d'atmosphère stable voire d'inversion thermique persistante.  | +            |
| <b>Amplitude thermique (DTR)</b>                         | L'amplitude thermique peut servir de proxy pour le rayonnement. Un fort rayonnement caractérise une journée ensoleillée avec des températures plus élevées.  | -            |
| <b>Épaisseur de neige (snow)</b>                         | La présence de neige au sol intensifie le phénomène d'inversion thermique.   | +            |
| <b>Concentration moyenne à J-1</b>                       | Les séries temporelles de concentration sont des processus autorégressifs: la concentration du jour J dépend de la concentration de J-1. (Ionescu 2013)  | +            |
| <b>Type de jours</b>                                     | Les concentrations, notamment celles de traceurs du trafic routier sont plus élevées en jours de semaine que de week-end (Morawska, et al. 2002 ; Carslaw et Taylor 2009)  | (-)          |

Tableau III.1 : Variables météorologiques et facteur social impactant les concentrations hivernales et dont les mesures locales sont disponibles sur le territoire de la vallée de l'Arve. Les signes de corrélations indiqués sont correspondent aux signes les plus fréquents retrouvés entre les concentrations hivernales de  $PM_{10}$  et les différentes variables (cf Tableau I.2).

### 2.1.1. Relation entre l'état de stabilité atmosphérique et les concentrations de $PM_{10}$

L'état de stabilité atmosphérique, caractérisant la dispersion verticale des polluants, est une mesure relativement peu prise en compte dans les études de qualité de l'air du fait de l'absence de mesures standard et en routine par les services météorologiques. Des capteurs installés le long des pentes en région de montagne constituent un moyen non-conventionnel et peu onéreux d'accéder à cette information via la mesure d'une différence de température, noté  $\Delta T$ , entre des capteurs situés à différentes altitudes. Pour DECOMBIO, l'installation d'une série de capteurs sur les versants près des 3 sites permet d'analyser la variabilité temporelle et d'altitude de ces différences de température,  $\Delta T$ .

Deux questions peuvent se poser : (i) est-ce que des différences de ces  $\Delta T$  sont observables entre les 3 sites, et (ii) entre quels capteurs, la mesure de  $\Delta T$  permet-elle le plus de mettre en évidence l'impact de l'état de stabilité atmosphérique sur les mesures de concentrations de  $PM_{10}$ .

A l'échelle des moyennes journalières, une corrélation très forte entre les concentrations de  $PM_{10}$  et les  $\Delta T$  est observable sur l'ensemble de la période hivernale, comme l'illustre la Figure III.3 pour l'hiver 2016-2017 à Passy. En considérant le  $\Delta T$  issu des capteurs entre le fond de la vallée et 600 m au-dessus pour chacun des 3 sites, les coefficients de Pearson entre  $\Delta T$  et les concentrations de  $PM_{10}$  varient entre 0.61 et 0.87 à Chamonix, 0.71 et 0.85 à Passy et 0.17 à 0.70 à Marnaz, en fonction des hivers (15/11 au 15/03 ;  $n=95$  en moyenne). Ces coefficients de corrélation sont comparables, à l'exception de ceux établis pour le site de Marnaz, avec ceux déterminés dans plusieurs études de vallées entre les concentrations de  $PM_{10}$  journalières et la mesure du « heat deficit » correspondant à la quantité d'énergie nécessaire au sein d'une vallée pour que l'état de l'atmosphère soit neutre. Les coefficients de corrélation indiqués dans ces études varient entre 0.65 et 0.83 dans des vallées aux Etats-Unis (Whiteman, et al. 2014 ; Green, et al. 2015 ; Silcox, et al. 2012) mais aussi en France, dans la vallée de Grenoble (Largeron et Staquet, 2016) et dans la vallée de l'Arve (Chemel, et al. 2016). Les coefficients de corrélation entre les concentrations de  $PM_{10}$  et  $\Delta T$  sont plus faibles sur le site de Marnaz par rapport aux 2 autres sites DECOMBIO, pouvant traduire un lien plus faible entre les 2 variables. Néanmoins, du fait de valeurs extrêmes pour certains hivers, l'analyse de corrélation ne peut réellement mettre en avant de lien causal, ce qui peut en revanche s'étudier avec une approche probabiliste (Figure III.4).

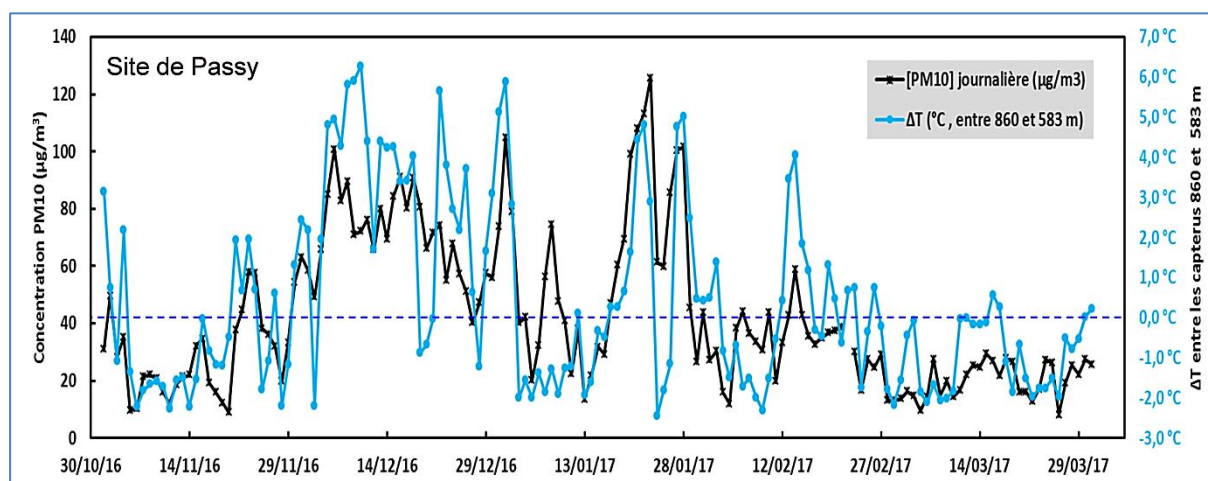


Figure III.3 : Evolution journalière des concentrations de  $PM_{10}$  et de la différence de température  $\Delta T$  mesurée entre la station située à l'altitude de 583 m et un capteur situé 277m au-dessus à Passy durant l'hiver 2016-2017.

Les probabilités que la mesure de  $\Delta T$  soit élevée lorsque la concentration journalière de  $PM_{10}$  est élevée ont été calculées. Les valeurs élevées de  $PM_{10}$  correspondent aux 30% des valeurs les plus élevées de  $\Delta T$  sur la période hivernale, représentant un effectif de l'ordre de 35 valeurs par hiver. La Figure III.4 illustre les résultats obtenus sur les 3 sites et les 4 hivers. Une probabilité d'occurrence de 0.3 signifie que lors de valeurs élevées de concentrations, les  $\Delta T$  ont des valeurs indépendantes tandis qu'une probabilité proche de 1 signifie que lorsque les valeurs de concentrations sont élevées, les valeurs de  $\Delta T$  sont également élevées, et que les deux variables sont donc liées. Les probabilités sur le site de Marnaz sont toujours inférieures à 0.6 quel que soit l'hiver contrairement aux 2 autres sites. Les concentrations de  $PM_{10}$  sur le site de Marnaz occurrent ainsi moins les jours de grande stabilité ou inversions thermique que dans les cas des 2 autres sites.

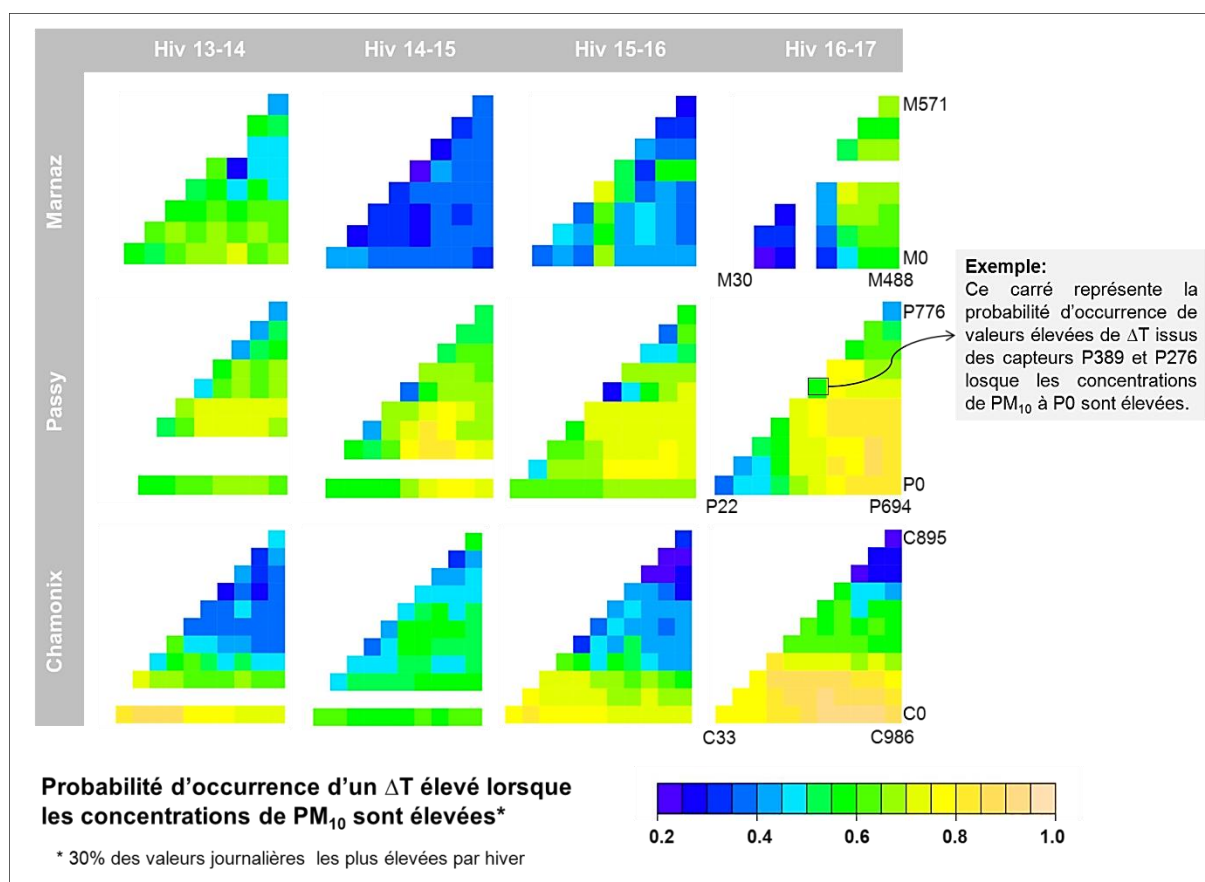


Figure III.4 : Probabilités d'occurrence de valeurs journalières de  $\Delta T$  élevées lorsque les concentrations de  $PM_{10}$  mesurées en fond de vallée sont élevées, sur les 4 hivers (15/11 au 15/03) et les 3 sites DECOMBIO. Les valeurs journalières de  $\Delta T$  ou de concentrations de  $PM_{10}$  sont considérées élevées lorsqu'elles appartiennent aux 30% des valeurs les plus élevées durant l'hiver correspondant. (cf Annexe x pour les descriptions des réseaux de capteurs). Le nombre de journées prises en compte varie de 83 à 90 selon les sites et les hivers.

Au final, et pour caractériser le lien entre l'état de stabilité atmosphérique et les concentrations journalières, la mesure d'un seul  $\Delta T$  a été jugée suffisante pour chacun des 3 sites. Afin d'être le plus homogène possible entre les sites, les capteurs de fond de vallée des stations RADOME de Météo-France les plus proches du site de mesure ont été sélectionnés ; le capteur d'altitude choisi pour chaque site est celui approximativement à 600 m au-dessus du site de mesure.

#### 2.1.2. Sélection des variables influentes sur les concentrations de $BC_{wb}$

Parmi les variables préalablement répertoriées, l'amplitude thermique et l'humidité relative issue du capteur à l'altitude la plus faible sur les 3 sites sont très corrélées ( $r^2 > 0.60$ ). La variable la moins corrélée aux concentrations de  $PM_{10}$ , eBC,  $BC_{ff}$  et  $BC_{wb}$ , l'humidité relative, a été éliminée afin d'éviter une redondance d'information dans les analyses suivantes. Les autres variables météorologiques et la concentration moyenne à J-1 présentent des corrélations cohérentes avec les résultats des études précédentes (Figure III.5). Les coefficients de corrélation sont par ailleurs très semblables entre les différentes espèces. La vitesse du vent, la température, la hauteur de pluie sont bien anti-corrélées avec les concentrations tandis que ces dernières sont corrélées avec la pression,  $\Delta T$  et les concentrations journalières de la veille.

Les coefficients de corrélation avec la température sont plus élevés pour les concentrations de  $BC_{wb}$  que pour les autres espèces atmosphériques sur les 3 sites, traduisant une plus forte liaison avec la source de chauffage au bois. Les variables les mieux corrélées avec les concentrations, quelle que soit l'espèce, sont les concentrations à J-1 ainsi que  $\Delta T$  pour les sites de Passy et Chamonix. La concentration à J-1 du  $BC_{wb}$  a ainsi été sélectionnée pour établir la classification,  $BC_{wb}$  étant un

traceur de la source d'émissions de la combustion de la biomasse quantifié en continu, pour la source qui nous intéresse au premier chef dans le cadre de ce travail.

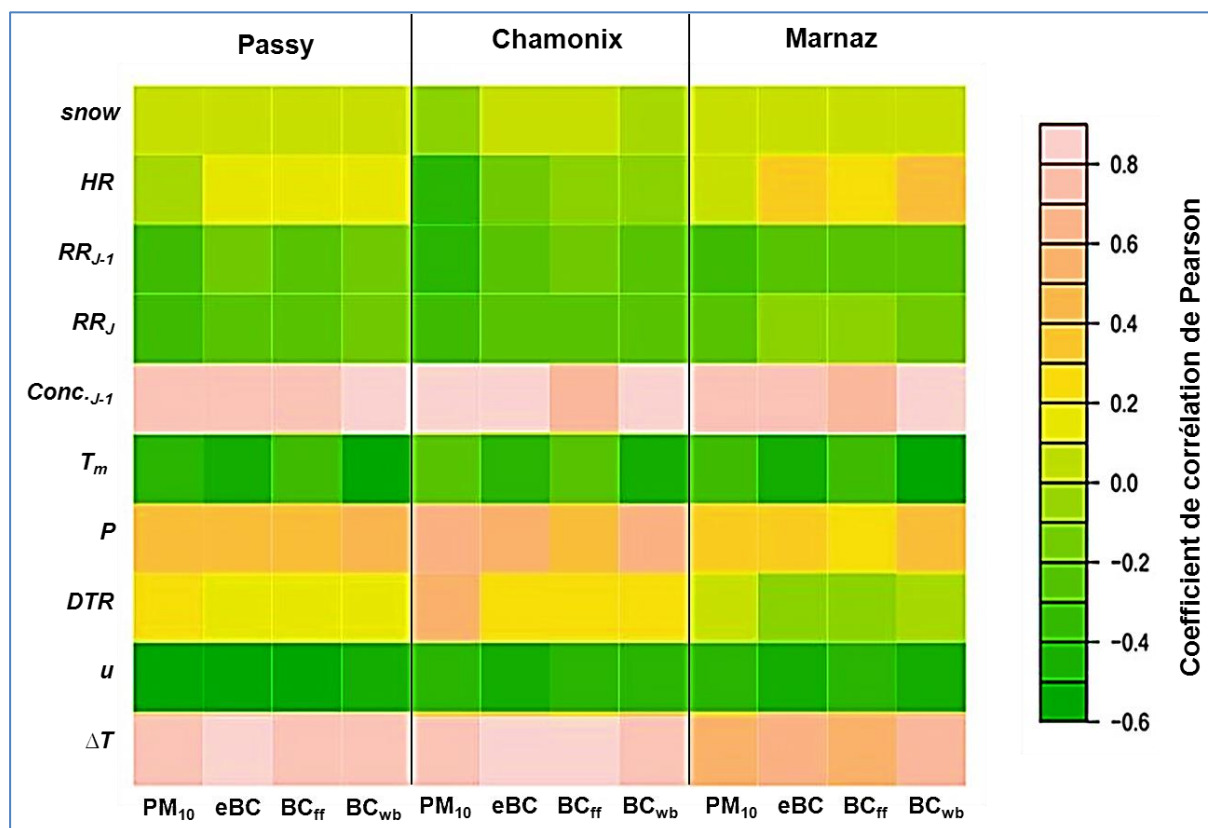


Figure III.5 : Matrice de corrélation des concentrations journalières de  $PM_{10}$ , eBC, BCff et BCwb avec les variables météorologiques répertoriées comme impactant les concentrations hivernales. Les coefficients de Pearson ont été déterminés à partir des mesures du 01/11 au 31/03 des 4 hivers 2013 à 2016 sur les 3 sites.

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 weekends. L'ensemble de 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 BCff et BCwb a été appréhendée sur les 3 sites (Figure III.6). Les périodes de vacances correspondent aux jours fériés et vacances scolaires (2 semaines fin décembre et 4 semaines sur février et début mars) tandis que les jours de week-end correspondent aux samedis et dimanche hors vacances. Les concentrations de BCwb ne sont pas impactées par la distinction de ces types de jours sur les sites de Passy et de 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. Les concentrations de BCff y sont inférieures les jours de week-end par rapport aux jours ouvrés, comme dans l'étude POVA. Sur les sites de Passy et Chamonix, les concentrations de BCff 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). Au final, pour établir nos classifications dont l'application vise l'estimation de l'impact du Fond Air Bois, seule la distinction entre périodes de vacances et hors-vacances a été sélectionnée et ce, essentiellement pour le site de Chamonix. Au final, 9 à 10 variables selon le site ont été sélectionnées :

- (1) la pression atmosphérique réduite au niveau de la mer, P
- (2) la concentration de BCwb à J-1,  $[X]_{J-1}$
- (3) la hauteur de pluie, RR

- (4) la hauteur de pluie à J-1,  $RR_{J-1}$
- (5) la vitesse du vent,  $u$
- (6) l'épaisseur de neige,  $snw$
- (7) la température moyenne de la journée,  $T_m$
- (8) l'amplitude thermique au cours de la journée,  $DTR$
- (9)  $\Delta T$  entre le fond de vallée et environ 600 m au-dessus du site de mesure
- (10) la distinction des périodes vacances/hors-vacances sur le site de Chamonix.

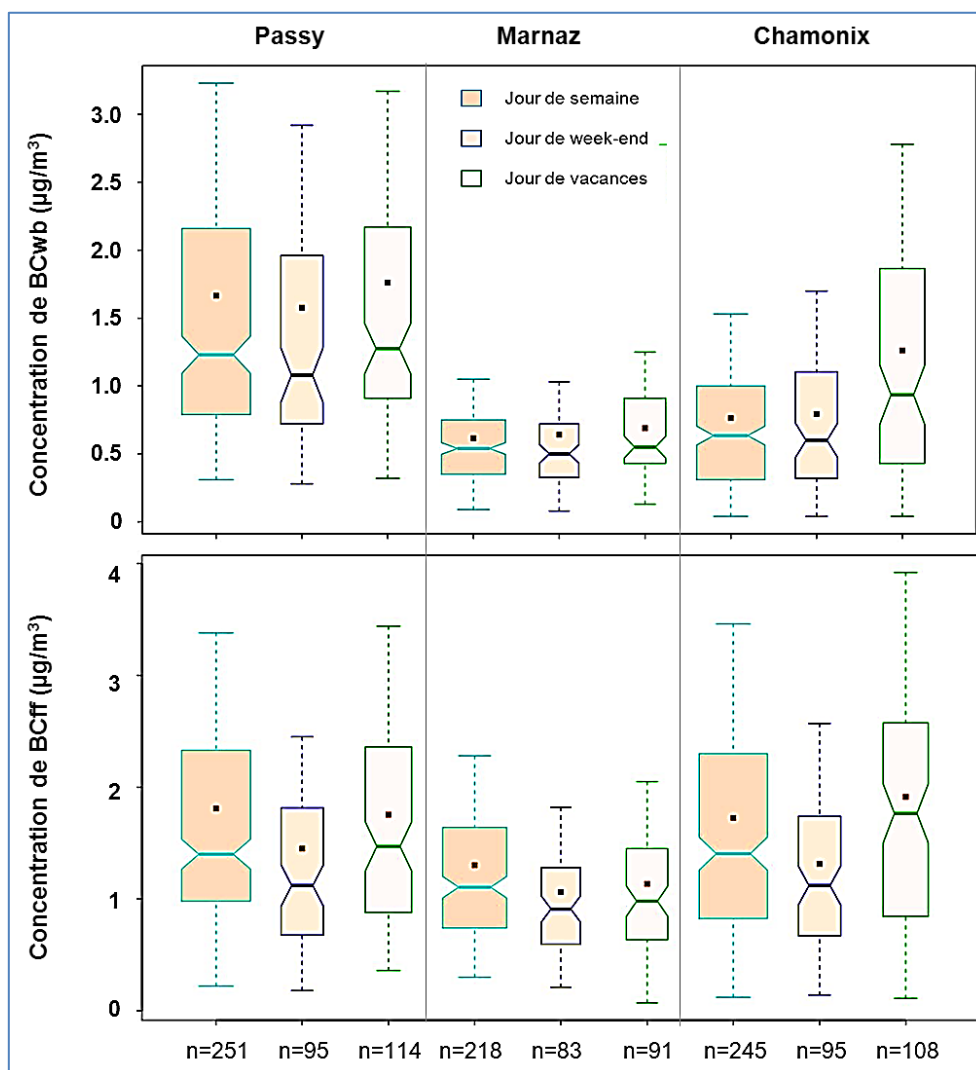


Figure III.6 : Distributions des concentrations de  $BC_{wb}$  et  $BC_{ff}$  lors des périodes hivernales (01/11 au 31/03) en fonction des périodes de vacances, jours ouvrés et week-ends à Passy, Marnaz, et Chamonix.

Les mesures de concentrations proviennent des aethalomètres installés au niveau des sites de mesures. Pour le site de Marnaz, les stations Météo-France les plus proches sont situées entre 5 et 11km à vol d'oiseau du site de mesure et sont à des altitudes inférieures de 20 à 30m (Figure III.6) à celle du site DECOMBIO. La station Météo-France de Sallanches est située à 7 km à vol d'oiseau et à une altitude inférieure de 22 m par rapport au site de Passy. La station Météo-France de Chamonix est quand-à-elle située à 750 m et à une différence d'altitude de 7 m du site DECOMBIO. Du fait d'un changement de position de capteur à partir de l'hiver 15-16 pour les sites de mesure de fond de vallée (voir Annexe 2), les séries temporelles de températures sont inhomogènes sur les 4 périodes hivernales. Bien que les sites puissent être relativement éloignés, les séries temporelles journalières de température des capteurs des stations Météo-France les plus proches et des capteurs de nos sites de mesures de fond de vallée sont très corrélées ( $r^2 > 0.987$ ), permettant d'employer les premières



pour les variables DTR,  $T_m$  et  $\Delta T$ . Cette corrélation élevée entre des températures mesurées à des points relativement éloignés mais d'altitudes semblables a également été mise en avant dans une étude dans la vallée de Grenoble (Largeron et Staquet 2016).

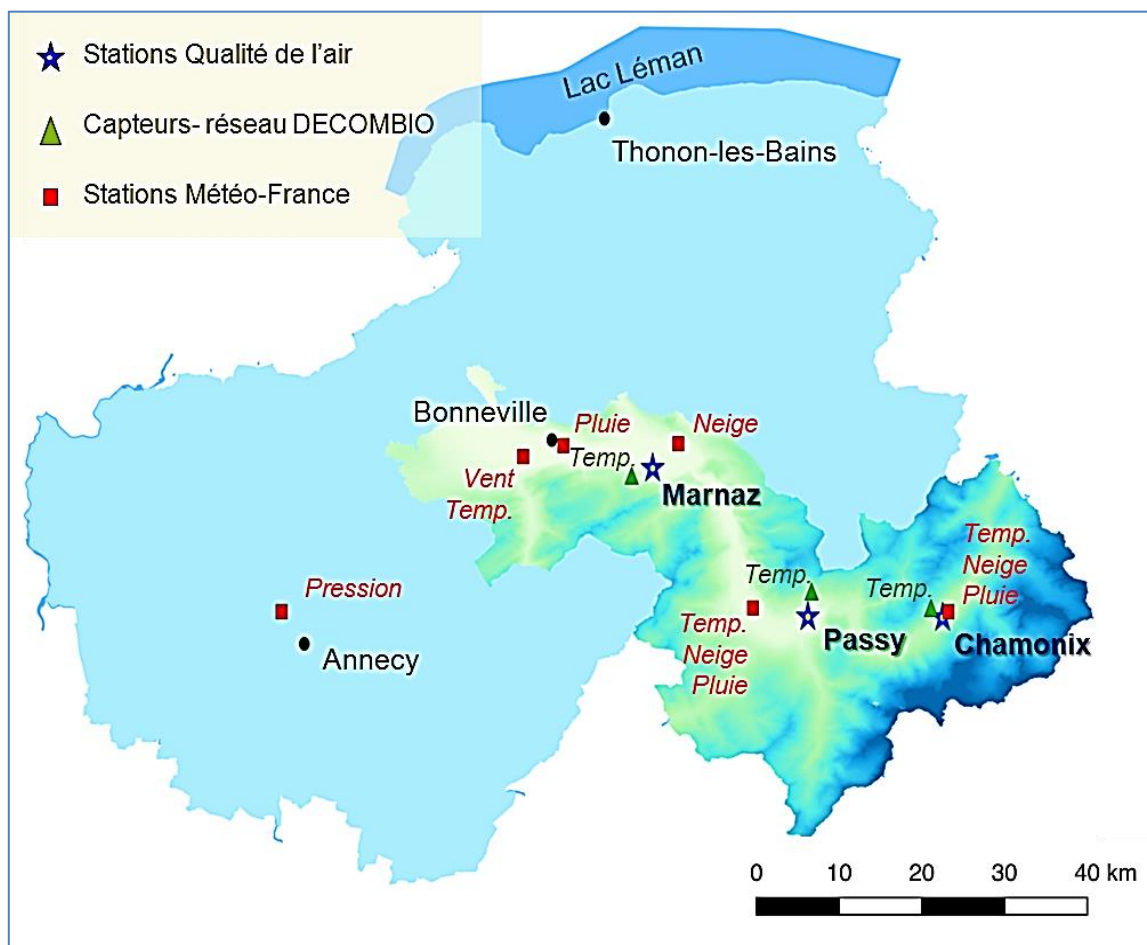


Figure III.7 : Localisation des différentes origines des variables météorologiques par rapport aux sites de mesures pour le développement de la classification des conditions atmosphériques sur chacun des 3 sites.

## 2.2. Quantifier l'influence relative des variables influentes sur les concentrations de $BC_{wb}$ et de $PM_{10}$

Parmi les modèles statistiques ou du « Machine Learning » qui auraient pu être employés pour quantifier l'importance relative des variables sur les concentrations, un des plus utilisés est l'algorithme « Random Forest » (Breiman 2001, package randomForest du logiciel R). Cette approche est non paramétrique, pouvant être utilisée avec des variables qualitatives et quantitatives, et ne nécessite aucune hypothèse préalable sur les données d'entrée, contrairement aux modèles de régression classiques comme les régressions multiples (Immitzer, et al 2012). Ce modèle présente également l'intérêt de ne pas être une « boîte noire » et de permettre l'analyse des relations entre les variables explicatives et la variable recherchée, via les graphiques de dépendance partielle ou via une quantification de l'importance des variables (Jones et Linder 2015 ; Tong, et al. 2003). Dans notre cas, il a été appliqué pour la reconstruction des valeurs de  $BC_{wb}$ , dans l'optique d'une utilisation dans le cadre de la compréhension des évolutions de la source combustion de biomasse. Mais il a aussi été appliqué à la reconstruction des  $PM_{10}$  pour Passy en hiver, afin de comparer nos résultats avec une étude analysant l'influence de la météorologie sur les concentrations de  $PM_{10}$  en Suisse avec ce même modèle « Random Forest » (Grange, et al. 2018).

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 III.7 représente le logigramme de l'algorithme « Random Forest » qui a été appliqué sur le modèle suivant :

$$[BC_{wb}] = \Delta T + Tm + DTR + u + P + RR + RR_{J-1} + snow + BC_{wb\ J-1} (+ Holidays)$$

Pour évaluer la robustesse des résultats, une validation croisée, dite « 5-fold », a été appliquée à l'échelle de l'ensemble des données : les séries temporelles des concentrations ont été divisées en 5 blocs identiques d'environ 90 données chacun. Chacune des combinaisons de 4 blocs de la série a été modélisée puis le modèle de reconstruction est testé avec le 5<sup>ème</sup> bloc de données n'ayant pas été utilisées pour la construction du modèle.

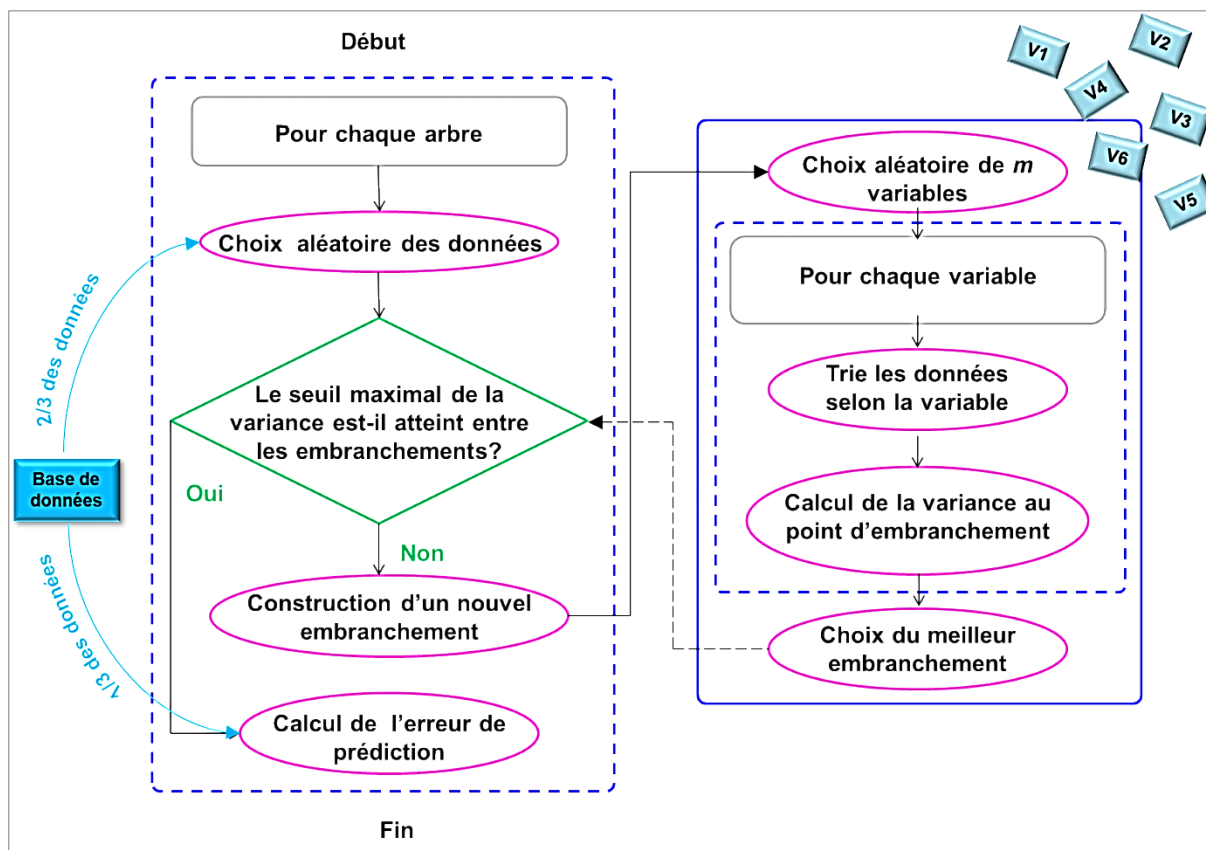


Figure III.8 : Schéma de la procédure « Random Forest » appliquée pour modéliser les concentrations hivernales sur les 4 hivers. Chaque modèle correspond à la construction de 500 arbres avec un choix aléatoire de  $m=3$  variables à chaque construction de nouvel embranchement (adapté de Al-Hawamdah 2012).

| Série temporelle                    | R <sup>2</sup>     | RMSE (µg/m <sup>3</sup> ) | Concentration moyenne sur l'ensemble des 4 hivers |
|-------------------------------------|--------------------|---------------------------|---|
| BC <sub>wb</sub> - site de Marnaz   | 0.65 (0.57 – 0.77) | 0.27 ± 0.11               | 0.68 µg/m <sup>3</sup>                            |
| BC <sub>wb</sub> - site de Passy    | 0.72 (0.57 – 0.82) | 0.65 ± 0.15               | 0.88 µg/m <sup>3</sup>                            |
| BC <sub>wb</sub> - site de Chamonix | 0.79 (0.73 – 0.83) | 0.43 ± 0.17               | 1,80 µg/m <sup>3</sup>                            |
| PM <sub>10</sub> - site de Passy    | 0.67 (0.46- 0.79)  | 12.6 ± 2.6                | 39,9 µg/m <sup>3</sup>                            |

Tableau III.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.



Nos résultats (Tableau III.2.) montrent que le modèle « Random Forest » permet de relativement bien prédire les concentrations de  $BC_{wb}$  sur les 3 sites, ainsi que les concentrations de  $PM_{10}$  sur le site de Passy. L'erreur résiduelle sur les concentrations de  $PM_{10}$  de  $12,5 \mu\text{g}\cdot\text{m}^{-3}$  est équivalente à celle trouvée par Grange et al (2018) pour les concentrations de  $PM_{10}$  sur certains sites urbains en Suisse. Les variables sélectionnées expliquent environ 70% de la variabilité des concentrations de  $BC_{wb}$  sur les 3 sites.

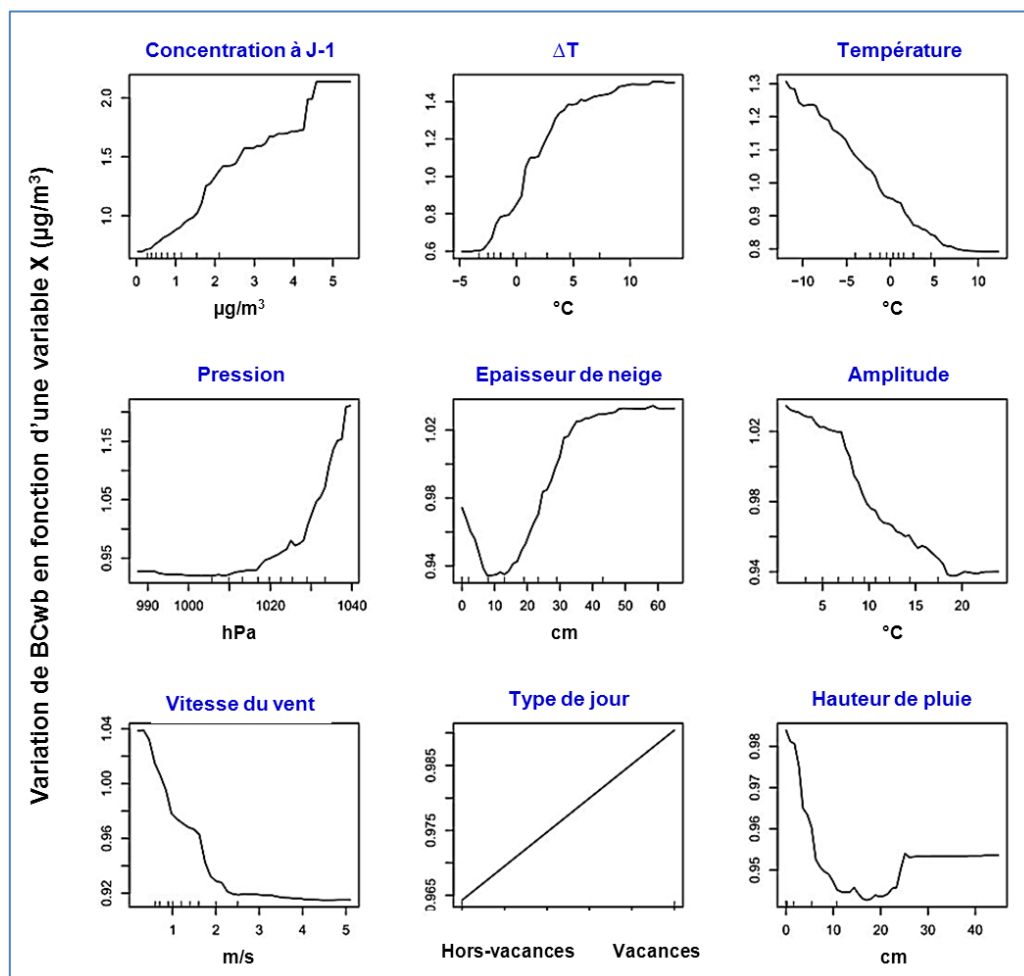


Figure III.9 : Variation de la concentration hivernale  $BC_{wb}$  modélisée sur le site de Chamonix en fonction de chacune des variables météorologiques ou liées aux émissions, les autres variables étant fixées à leur valeur moyenne pour chacun des graphiques (nommés partial plot, cf Friedman 2001).

La Figure III.9 représente, sur le site de Chamonix, les relations entre chacune des variables météorologiques ou liées aux émissions et les concentrations de  $BC_{wb}$  obtenues avec le modèle pour chacune des autres variables fixées à leur valeur moyenne. Cette étape permet de vérifier la concordance des évolutions des variables et des concentrations par rapport aux études précédentes, notamment celles basées sur des analyses de corrélation. Une relation quasi-linéaire est retrouvée entre les concentrations et le  $\Delta T$  pour les valeurs de  $\Delta T$  comprises entre  $-3$  et  $4^\circ\text{C}$  sur les 600 premiers mètres. Chemel et al (2016) ont montré également une relation linéaire entre les concentrations de  $PM_{10}$  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 III.1 sont également retrouvées: une diminution des concentrations avec l'augmentation de la vitesse du vent, de la température et de la hauteur de pluie, 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.

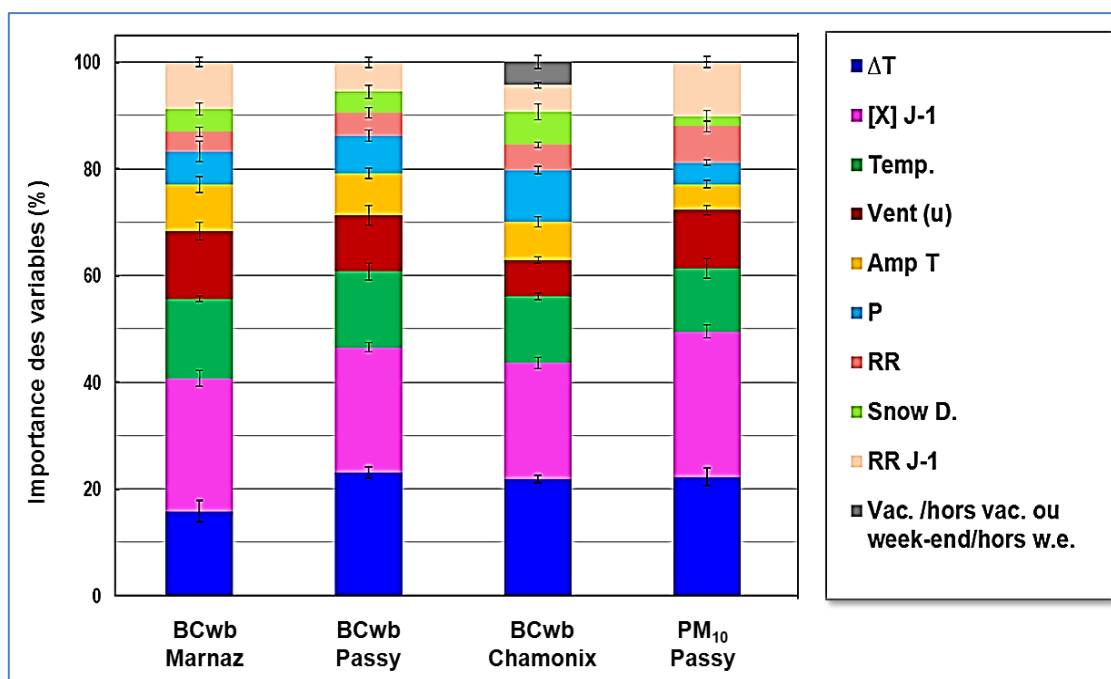


Figure III.10 : Influence relative des variables météorologiques ou « sociales » sur les concentrations de BC<sub>wb</sub> sur les 3 sites et PM<sub>10</sub> sur le site de Passy. La mesure d'importance correspond au score Z calculé par l'algorithme Boruta (Kursa and Rudnicki, 2010).

L'importance relative des variables a été quantifiée par la mesure du « score-Z » de l'algorithme Boruta (Kursa and Rudnicki, 2010), correspondant à l'impact de la permutation des variables au niveau des embranchements des arbres, pondéré sur l'ensemble des arbres. Cet algorithme basé sur celui de « Random Forest » permet également de tester l'importance des variables sur les concentrations. Cette méthode de sélection de variables a par exemple été utilisée pour des analyses d'expression génomique (Deng et Runger 2013) ou d'imageries de télédétection (Duro, et al. 2012). Comme pour la modélisation par « Random Forest », les mesures d'importance ont été évaluées sur différents sous-groupes de la base de donnée de BC<sub>wb</sub> et avec la comparaison des mesures obtenues pour les PM<sub>10</sub> sur le site de Passy. Ces dernières présentent en effet des valeurs élevées lors de conditions météorologiques qui peuvent être très différentes des conditions hivernales. Notamment, les pics de pollution ayant lieu fin mars (qui sont généralement dus au nitrate d'ammonium) ont lieu lors de journées présentant des conditions atmosphériques différentes par rapport aux épisodes d'inversions persistantes typiquement au cœur de l'hiver, et il est de ce fait intéressant de tester la pertinence des critères de la classification sur ces cas.

On montre que les valeurs d'importance des variables sont très robustes entre les différents tests de validation croisée, et également entre les sites et les espèces considérées (Figure III.10). Quatre variables sont prépondérantes pour déterminer les concentrations hivernales:  $\Delta T$ , 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 ceux d'autres études (Czernecki et al, 2017; Grange et al, 2018). On retrouve également le résultat mis en avant dans l'analyse du lien entre les mesures de  $\Delta T$  et les concentrations de PM<sub>10</sub> par probabilités : l'influence relative des mesures de  $\Delta T$  sur les concentrations est inférieure sur le site de Marnaz par rapport aux sites de Passy et Chamonix. Son influence est de 23% sur les concentrations de BC<sub>wb</sub> et PM<sub>10</sub> à Passy et Chamonix, tandis qu'elle n'est que de 15% sur les concentrations de BC<sub>wb</sub> à Marnaz.

La quantification des influences relatives des variables météorologiques et liées aux émissions sur les concentrations de BC<sub>wb</sub> ou de PM<sub>10</sub> montre qu'il existe une hiérarchie d'influences entre les variables, mais qu'elle peut varier faiblement, même entre des sites proches. Ces mesures

d'importance spécifiques à chaque site ont donc été employées afin de pondérer les variables pour établir une classification des conditions atmosphériques vis-à-vis de leur influence sur les traceurs de la combustion de la biomasse, comme présenté dans la section 3. suivante.

### 3. Classification automatique des conditions atmosphériques

#### 3.1. Etapes du processus de classification

Deux méthodes de clustering sont employées successivement :

- la première correspond à la *classification hiérarchique de Ward*, CAH, (Ward, 1963), méthode de classification hiérarchique la plus courante, permettant de définir le nombre de cluster,
- la deuxième est un algorithme de « *fuzzy clustering* » (Kaufman and Rousseeuw, 1990, package cluster du logiciel R) utilisant le nombre de classes précédemment défini et permettant de définir le degré d'appartenance de chaque condition atmosphérique journalière à chaque cluster.

| Critère ou Indicateur  | Principe d'application  |
|--|---|
| <b>Distance de Gower<br/>(Gower, 1971)</b>   | <p>Métrique de dissimilarité choisie qui peut prendre en compte des variables qualitatives (type de jour) et quantitatives.</p> <p>Sa formulation mathématique s'écrit sous la forme :</p> $d(i, j) = \frac{\sum_{k=1}^p w_k \delta_{ij}^{(k)} d_{ij}^{(k)}}{\sum_{k=1}^p w_k \delta_{ij}^{(k)}}$ <p>avec <math>d(i, j)</math>, la distance entre les conditions atmosphériques du jour <math>i</math> avec le jour <math>j</math>; <math>w_k</math>, le poids de la variable <math>k</math> parmi <math>p</math> variables; <math>d_{ij}</math> représentent les contributions des variables <math>k</math> à la distance totale. Lorsque <math>k</math> est de type qualitatif ou nominal, cette contribution devient binaire ou nominale. <math>\delta_{ij}^{(k)}</math> est un facteur qui prend la valeur de 0 en présence de données manquantes.</p>  |
| <b>Méthode de Ward<br/>(Ward, 1963)</b>  | <p>Cette méthode consiste à agréger les 2 observations qui font baisser le moins l'inertie interclasse (Saporta 2006).</p>  |
| <b>Appartenance des journées à une classe<br/>(membership)<br/>(Kaufman and Rousseeuw, 1990)</b> | <p>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. L'algorithme cherche à minimiser la fonction suivante :</p> $\sum_{v=1}^k \frac{\sum_{i=1}^n \sum_{j=1}^n u_{iv}^r u_{jv}^r d(i, j)}{2 \sum_{j=1}^n u_{jv}}$ <p>avec <math>u_{iv}</math>, l'appartenance des conditions atmosphériques de la journée <math>i</math> au cluster <math>v</math>; <math>d(i, j)</math>, la distance (de Gower) entre les conditions atmosphériques des journées <math>i</math> et <math>j</math>; <math>r</math>, le degré de « flou » (fuzzifier) à choisir dans un intervalle entre 1 et 2. Lorsque <math>r</math> est égal à 1, l'algorithme correspond approximativement à celui du <math>k</math>-means avec un seul cluster affilié pour chaque observation, tandis qu'un <math>r</math> égal 2 peut conduire à ce que les observations aient la même probabilité d'être affiliées dans tous les clusters. Pour cette étude, un <math>r</math> de 1.1 a été employé.</p> |

Tableau III.3 : Présentation des différents critères ou indicateurs utilisés dans la classification automatique.

La donnée d'entrée de ces algorithmes est une matrice de distance des observations (dans notre cas, les conditions atmosphériques journalières) calculées à partir d'une métrique de distance, qu'il faut préalablement choisir, et des valeurs des variables. Ces données d'entrée correspondent aux variables météorologiques et liées aux émissions à l'échelle journalière sur la période du 01/11 au 31/03 pour chacun des 4 hivers 13-14 à 16-17, dont les valeurs manquantes ont été supprimées. Les effectifs des journées d'observation restent cependant relativement important (> 420 au total pour les 4 hivers). Au début de la CAH de Ward, chaque condition atmosphérique journalière correspond à une classe, puis deux classes sont agrégées selon un critère d'agrégation (de Ward) permettant par itération d'obtenir à la fin une seule classe. Cette méthode fait partie des méthodes dites de « hard clustering » en affiliant une journée à un groupe uniquement. Au contraire, les méthodes de « soft clustering » considèrent les individus (journées) comme un continuum et affilient une probabilité ou degré d'appartenance d'un individu à tous les clusters. Parmi les modèles de « soft-clustering », les modèles de mélange représentent une technique courante, robuste, et performante pour les problèmes de classification (Biernacki 2009 ; Pernin, et al. 2016). Du fait de la complexité d'introduire l'importance relative des variables sur les concentrations, l'agorithme « fuzzy » de Kaufman et Rousseuw (très proche de l'algorithme « fuzzy c-means ») a été employé dans ce travail et a déjà montré également de bonnes performances dans différents processus de classification (Baid, et al. 2017 ; Krishnapuram, et al. 2002).

Les éléments centraux des méthodes de clustering résident dans le choix de la métrique de distance permettant d'établir la matrice de similarités ou encore le tableau de distance, ainsi que dans la validation des classes (nombre et affiliation des individus dans les différents clusters) (Saxena, et al. 2017). Les différents critères statistiques les plus employés dans la littérature sont répertoriés dans le Tableau III.3. En plus de ces critères, nous avons également basé la validation de la classification obtenue sur (i) l'interprétation météorologique, (ii) la concordance des classes sur les 3 sites et (iii) sur la cohérence des résultats obtenus sur Passy avec l'utilisation des concentrations à J-1, ainsi que des  $PM_{10}$  et de  $BC_{wb}$ .

### 3.2. Caractéristiques des différentes classes de conditions atmosphériques

Des dendrogrammes sont obtenus à l'issus de la classification hiérarchique de Ward, représentant les liaisons entre les classes mais également leur niveau de proximité, premier indicateur pouvant permettre de déterminer le nombre de classe.

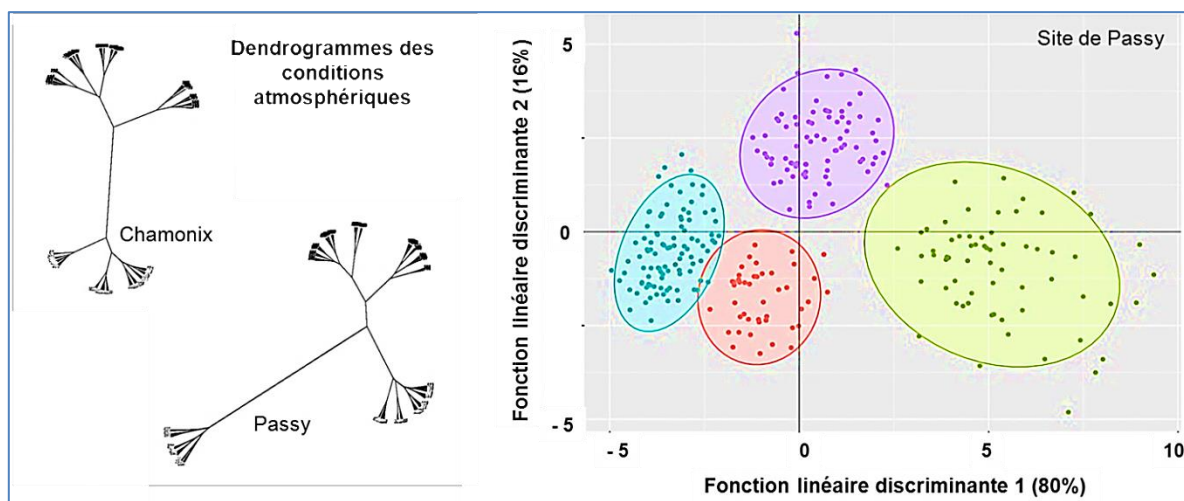


Figure III.11 : Dendrogrammes issus de l'algorithme de Ward présentés sous forme d'arbre phylogénétique réalisés à partir des données des sites de Passy et Chamonix, avec les concentrations à J-1 de  $BC_{wb}$ . Scatterplot des conditions atmosphériques journalières du site de Passy en fonction des deux premières fonctions discriminantes, après élimination des journées présentant un degré d'appartenance <0.98 à un des clusters.

La Figure III.11 présente les dendrogrammes obtenus sur les sites de Passy et Chamonix. On observe une répartition relativement distincte de 4 classes sur les sites de Passy et Marnaz (non

montré) et de 3 classes seulement sur le site de Chamonix. 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 et des classes distinctes, comme le montre la Figure III.10 pour les 4 classes du site de Passy.

Les 4 classes présentent des caractéristiques météorologiques significativement différentes entre elles, dont les distributions sont répertoriées en Annexe 5. Les mêmes caractéristiques météorologiques entre les différentes classes ont été retrouvées sur les 3 sites, mais aussi en employant les concentrations à J-1 soit des  $PM_{10}$  soit de  $BC_{wb}$  sur le site de Passy. Ceci nous conforte dans leur robustesse. Un nom a été attribué à chacune des classes selon ses caractéristiques météorologiques (Figure III.12) :

- **les journées de type « Inversion »**, sont caractérisées par des  $\Delta T$ , concentration de la veille, pression et amplitude élevées, des températures froides, et une absence de précipitation,
- **les journées de type « Concentration forte la veille »** se caractérisent par des conditions de dispersion ( $\Delta T$  faible, vitesse de vent moyen, précipitations moyennes, faible amplitude). Elles surviennent à la suite des journées d'inversion,
- **les journées de type « Dispersion »** correspondent à des conditions avec une vitesse de vent  $< 2,5$  m.s-1, des précipitations, une épaisseur de neige significatives, et un  $\Delta T$  et une concentration de la veille faibles,
- **les journées de type « conditions Printanières »** se caractérisent par une température, une amplitude et une pression élevées et une absence de précipitation.

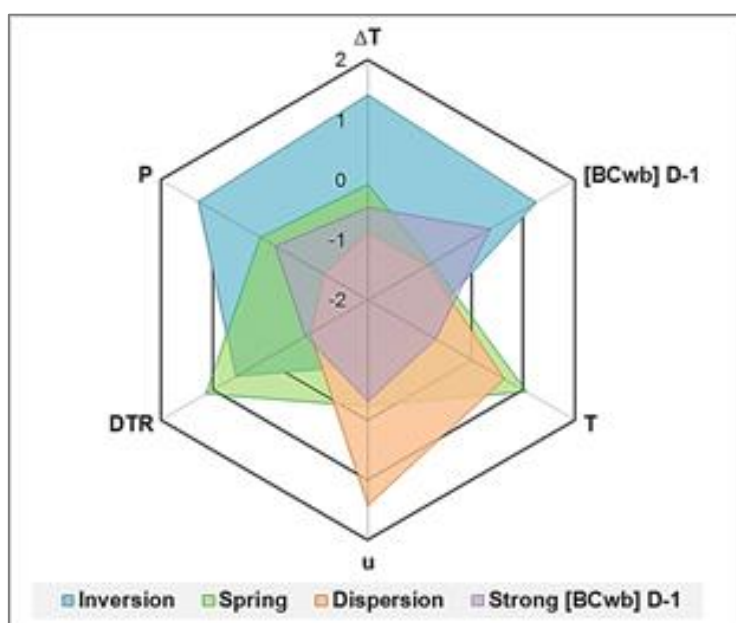


Figure III.12 : Moyennes standardisées des variables les plus prépondérantes sur les concentrations selon la classe de conditions atmosphériques établies à partir des données du site de Passy.

Plus le degré d'appartenance obtenu à partir de l'algorithme « fuzzy clustering » est proche de 1, plus la condition atmosphérique journalière présente des caractéristiques communes au cluster défini. Cet indicateur a été utilisé comme un seuil permettant de définir les journées bien classées de celles mal classées. Préalablement à son emploi, sa capacité à effectivement établir des classes de journées aux conditions atmosphériques plus homogènes a été vérifiée et est présentée en Annexe 5. Le seuil le plus approprié pour définir les journées « bien classées » a été déterminé sur la base des effectifs en gardant un nombre suffisant de journées par classe et par hiver pour permettre les analyses futures. Ce seuil, suivant les configurations faites de l'algorithme a été établi à 0.98. Les

jours bien classés représentent 305 sur 460, 281 sur 472 et 203 sur 419 jours au total sur le site de Passy, Chamonix et Marnaz respectivement.

L'analyse de la concordance temporelle des types de conditions atmosphériques selon les différentes classifications permet de valider encore une fois la détermination des 4 types de conditions atmosphériques. C'est la classe « Concentration forte à J-1 » qui n'est pas retrouvée sur le site de Chamonix. La Figure III.13 représente les concordances des classes 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 différents, notamment entre Marnaz et les 2 autres sites.



Figure III.13 : Concordances temporelles des types de conditions atmosphériques selon les différentes classifications effectuées. Seules sont considérées les classes pour les journées définies comme bien classées avec une appartenance établie par le clustering fuzzy  $\geq 0.98$ . L'aire des rectangles est proportionnelle à l'effectif et colorée selon le type de conditions atmosphériques.

Les journées classées dans le 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. Cette classe correspond météorologiquement aux conditions des journées de type « Dispersion » avec la caractéristique supplémentaire d'une concentration forte la veille. 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 soient 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  $PM_{10}$ . 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 particulaire 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.

### 3.3. Concentrations selon les différentes classes de conditions atmosphériques

Les niveaux de concentrations de PM<sub>10</sub> se distinguent entre les différentes classes de conditions atmosphériques selon des relations attendues (Figure III.14). La classe « Inversion » présente des concentrations moyennes sur les 4 hivers de 72, 43 et 35 µg.m<sup>-3</sup> sur Passy, Chamonix et Marnaz respectivement et regroupent ainsi les journées avec les concentrations de PM<sub>10</sub> les plus élevées par rapport aux autres classes de conditions atmosphériques. Certaines de ces journées, notamment sur les sites de Passy et Chamonix, présentent des dépassements du seuil réglementaire de concentration PM<sub>10</sub> journalières. A l'opposé, les concentrations moyennes de la classe « Dispersion » sur les 3 sites sont les plus faibles et sont de 23, 16 et 10 µg.m<sup>-3</sup> à Passy, Chamonix, et Marnaz, respectivement. Les concentrations de PM<sub>10</sub> des journées de type « Printanière » et « Concentration forte à J-1 » ont des concentrations situées entre celles des classes « Dispersion » et « Inversion » avec des moyennes respectives de 20 et 21 µg.m<sup>-3</sup> sur le site de Marnaz, 36 et 51 µg.m<sup>-3</sup> sur le site de Passy et une moyenne de 39 µg.m<sup>-3</sup> pour les journées de type « Printanier » sur le site de Chamonix.

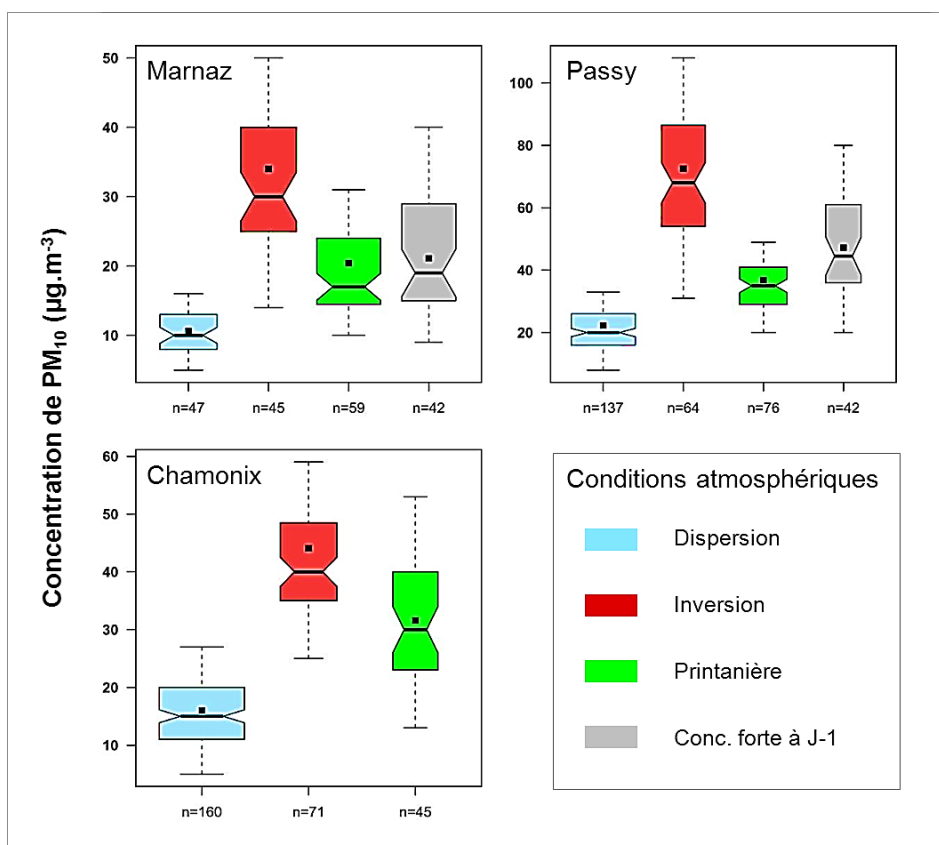


Figure III.14 : Concentrations de PM<sub>10</sub> journalières, mesurées sur 4 hivers (du 01/11 au 31/03), en fonction des classes de conditions atmosphériques « Dispersion », « Inversion », « Printanière » et « Concentration forte à J-1 » sur les 3 sites.

### 3.4. Apport et limites de cette classification vis-à-vis de l'évaluation d'impact du Fond Air Bois

#### 3.4.1. Un facteur limitant : inhomogénéité des conditions atmosphériques entre les hivers



L'objectif recherché de la classification des conditions atmosphériques était d'obtenir des journées permettant de comparer les niveaux de concentrations et profils chimiques des aérosols en s'affranchissant de l'influence des conditions atmosphériques sur les 4 périodes hivernales de 2013 à 2016. Différents aspects viennent moduler nos résultats. D'une part, les conditions atmosphériques au sein d'une même classe varient cependant plus ou moins fortement entre les hivers, diminuant la fiabilité de la comparaison des mesures chimiques entre les hivers pour une même classe. D'autre part, les variables météorologiques et liées aux émissions n'expliquent pas entièrement la variabilité journalière des concentrations (de l'ordre de 70% de la variance expliquée) nécessitant un effectif relativement robuste par hiver (>10) afin de bien interpréter les tendances des mesures chimiques. Ce n'est pas le cas pour certaines classes selon le site et les hivers.

L'homogénéité entre les hivers des valeurs des paramètres les plus influents sur les concentrations de PM<sub>10</sub> hivernales ( $\Delta T$ , 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. Le ratio entre les concentrations de BC<sub>wb</sub> à J-1 et J a été utilisé au lieu de la concentration de BC<sub>wb</sub> à J-1 pour pouvoir 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<sub>wb</sub> à J-1 devraient donc varier, alors que les rapports entre les concentrations à J-1 et J devraient être plus stables.

Parmi ces 4 variables prépondérantes, la température moyenne et  $\Delta T$  présentent les plus grandes variabilités entre les hivers. La Figure III.13 représente les écarts des valeurs moyennes hivernales de ces deux variables avec les valeurs moyennes du 1<sup>er</sup> hiver du programme, en fonction des 4 classes et sur les 3 sites. Les écarts des valeurs moyennes de vitesse du vent et du ratio [BC<sub>wb</sub>] J-1/ [BC<sub>wb</sub>] J selon les classes et les sites sont représentés en Annexe 5. Plus les écarts sont proches de 0, plus les conditions de cette classe sont qualifiées d'homogènes entre les hivers. Le Tableau III.4 répertorie ces différents critères pour évaluer la pertinence de la comparaison des concentrations au cours des hivers.

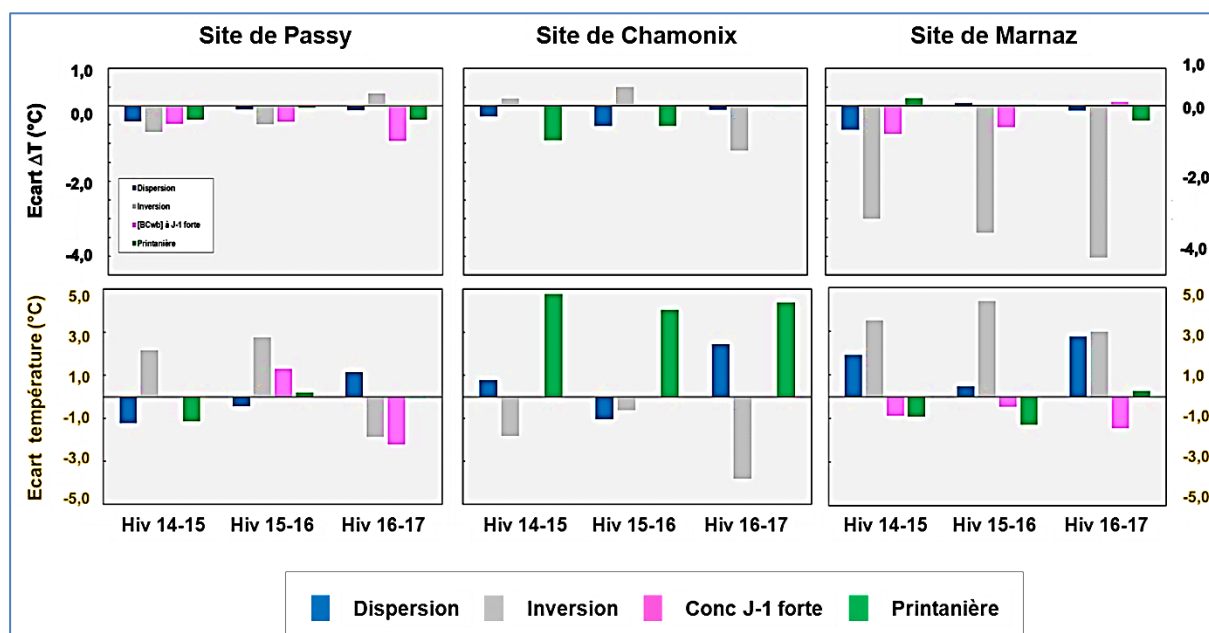


Figure III.15 : Ecart de  $\Delta T$  et de la température moyenne hivernale avec les valeurs moyennes mesurées lors de l'hiver 13-14 en fonction des classes de conditions atmosphériques sur les 3 sites.

La classe « Inversion » présente les conditions atmosphériques liées aux épisodes de pollution. La comparaison des concentrations est cependant limitée par des variations relativement importantes au cours des hivers du  $\Delta T$  moyen sur le site de Marnaz et de la température moyenne sur

les 3 sites. Sur le site de Marnaz, les  $\Delta T$  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<sup>er</sup> hiver. Sur les sites de Passy et Chamonix, les  $\Delta T$  sont homogènes entre les hivers, par contre le 4<sup>ème</sup> hiver présente une température journalière plus faible de -1,8 et -3,6°C en moyenne, respectivement, par rapport à la température du 1<sup>er</sup> 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<sup>er</sup> 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 journées 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 classe 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 cependant rendue un peu complexe avec un effectif très restreint lors du 4<sup>ème</sup> hiver à Marnaz (4 journées).

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

Tableau III.4 : Critères d'évaluation des classes de conditions atmosphériques pour la comparaison des concentrations au cours des 4 hivers.

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 jours correspondent à ce type de condition lors du 4<sup>ème</sup> hiver du programme. La comparaison des concentrations selon cette classe est également limitée sur le site de Chamonix du fait d'effectifs statistiquement trop faibles, ainsi que de variations importantes de la température et du ratio entre les concentrations de BC<sub>wb</sub> 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 et sur les 3 sites, ainsi que des 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 tenter de quantifier l'effectivité de l'opération « Fond Air Bois » ne sont réellement statistiquement interprétables que pour la classe « Dispersion » sur les 3 sites au cours des 4 hivers, ainsi que pour les classes « Conc. Forte à J-1 » et « Printanière » sur le site de Passy.

### 3.4.2. Pertinence et incertitudes de la classification établie

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 montré qu'elles pouvaient être influentes sur les concentrations (Demuzere, et al. 2009 ; Papanastasiou, et al. 2007). 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 PM<sub>10</sub> dans la ville de Poznan en Pologne, devant la hauteur de la couche limite.

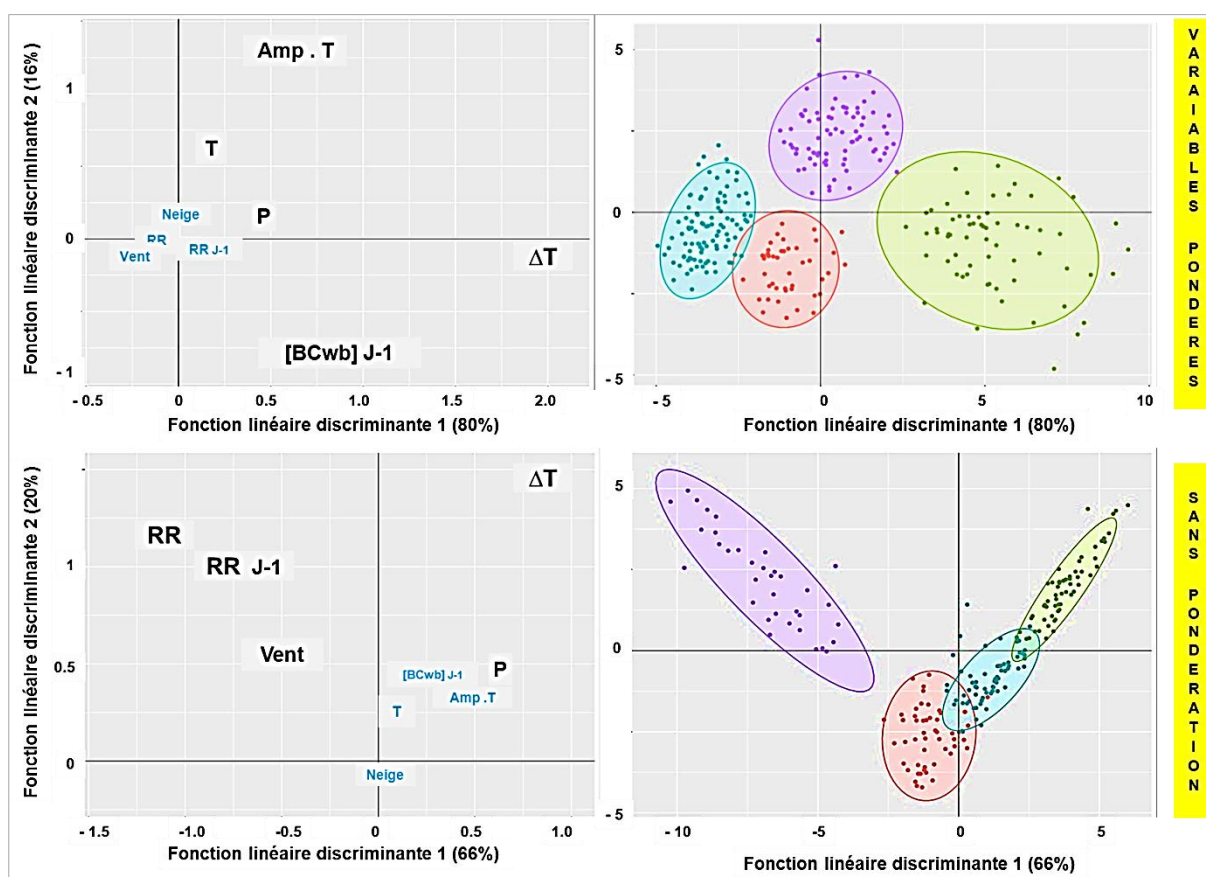


Figure III.16: Variables et conditions atmosphériques journalières présentées en fonction des deux premières fonctions discriminantes à partir de la classification en 4 classes des variables pondérées (en haut) et non pondérées (en bas) selon les facteurs d'importance relative sur les concentrations de BC<sub>wb</sub> sur le site de Passy.

Outre l'utilisation de variables influentes sur les concentrations qui ne sont généralement pas prises en compte, un autre apport de la méthode provient de la considération que les variables météorologiques ou liées aux émissions n'ont pas le même « poids » sur la variabilité des concentrations. Pour évaluer cet effet, une comparaison a été effectuée entre des classifications sur le site de Passy avec les concentrations de BC<sub>wb</sub> à J-1, avec et sans pondération des variables à l'aide

d'une analyse discriminante linéaire. Cette dernière analyse permet de déterminer, à partir des classes établies, quelles variables sont discriminantes entre les classes (Keckhut, et al. 2006). En considérant 4 classes, la classification à partir des variables non pondérées présente des classes météorologiquement différentes de celles obtenues avec pondération, (notamment, la classe « Concentration à J-1 » qui n'est pas reconnue, et la classe « Printanière » qui est météorologiquement plus proche de la classe « Dispersion »). Ce ne sont pas, en effet, les mêmes variables qui ont permis de déterminer les clusters dans les 2 cas, comme le montre la Figure III.16. Dans la classification avec les variables pondérées, ce sont les variables  $\Delta T$ ,  $[BC_{wb}]$  à J-1, amplitude thermique, et température, qui permettent de discriminer les 4 groupes, tandis que ce sont principalement la hauteur de pluie, le vent, et  $\Delta T$  pour l'établissement des clusters sans pondération des variables. Ainsi, la pondération des variables permet d'établir une classification des conditions atmosphériques beaucoup plus orientées sur les variables très influentes sur les concentrations hivernales.

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 peut être limitée

- par l'existence d'une variabilité des conditions météorologiques inter-hivers au sein des classes,
- 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 établies dans des environnements géographiques moins contraints (Philipp, et al. 2010).

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

#### 4. Conclusion

Les conditions atmosphériques des 4 hivers de mesures (2013 à 2016) ont été particulièrement différentes, introduisant un biais météorologique important pour la comparaison des mesures de concentrations entre hivers. Une classification des conditions atmosphériques a alors été établie, présentant la spécificité de prendre en compte l'influence sur les concentrations de variables météorologiques mais également celle liées à certains paramètres contrôlant les émissions.

Une des variables les plus influentes sur les concentrations hivernales est l'état de stratification thermique de l'atmosphère, qui peut être suivi grâce aux mesures de différences de températures entre le fond de la vallée et une altitude d'au moins 200m au-dessus, noté  $\Delta T$ . Par rapport aux sites de Chamonix et Passy, le site de Marnaz présente des concentrations journalières de  $PM_{10}$  moins impactées par la présence d'inversions thermiques ou de conditions stables. Les mesures des variables météorologiques et liées aux émissions telles que la distinction des périodes de vacances et hors-vacances (dont un impact a été clairement montré sur les concentrations hivernales dans des études précédentes) ont été collectées au plus proche des 3 sites DECOMBIO. Les concentrations de  $PM_{10}$  et  $BC_{wb}$  ont été modélisées par l'algorithme « Random Forest » à partir de

9 à 10 variables selon le site, permettant de confirmer et de quantifier leurs influences relatives sur les concentrations. Ces variables sont  $\Delta T$ , la température moyenne, l'amplitude thermique, la pression, la vitesse du vent, la hauteur de pluie à J et J-1, la concentration à J-1, et la distinction vacances/ hors-vacances sur le site de Chamonix seulement. Les variables sélectionnées permettent d'expliquer au moins 70% de la variabilité des concentrations dans les cas de  $PM_{10}$  et  $BC_{wb}$ . Les 4 variables  $\Delta T$ , concentration à J-1, vitesse du vent, et température moyenne sont les plus influentes et représentent plus 60% de l'influence totale des variables sur les concentrations. De faibles différences dans ces mesures d'importance relative existent entre les 3 sites, et une classification spécifique des conditions atmosphériques a donc été réalisée sur chacun des 3 sites.

Deux algorithmes de clustering ont ensuite été employés : la classification hiérarchique de Ward, méthode de classification très courante, qui permet d'apporter des informations sur le nombre de classes et l'algorithme de « fuzzy clustering » de Kaufman et Rousseeuw, qui permet d'évaluer le degré d'appartenance des journées à chaque cluster. L'interprétation physique des clusters et la concordance temporelle des classes entre les sites ont permis de valider la classification. Quatre classes (trois seulement sur le site de Chamonix) ont été établies sur les journées hivernales, présentant des caractéristiques météorologiques très différentes : classes « Inversion », « Dispersion », « Printanière », et « Concentration forte la veille ». Cette dernière classe n'est pas retrouvée sur le site de Chamonix. Par rapport à une classification qui aurait été établie avec les mêmes variables, la pondération des variables selon leur importance relative sur les concentrations permet bien de regrouper les journées à partir des variables le plus prépondérantes sur les concentrations. Cette méthode permet donc d'établir des classes directement reliées à la variable d'intérêt, c'est-à-dire les mesures de concentrations. Néanmoins, certains facteurs peuvent limiter son utilisation vis-à-vis de l'évaluation de l'impact du programme de renouvellement d'appareils de chauffage au bois sur les concentrations. Les moyennes des mesures de température et de  $\Delta T$  sont parfois variables entre les hivers pour une même classe, tandis que certaines classes présentent des effectifs  $< 5$  sur certains hivers ; ces deux facteurs limitent la comparaison statistique des mesures de concentrations entre les hivers. La classe « Dispersion », correspondant aux situations de dispersion des particules les plus favorables et donc aux concentrations journalières les plus faibles, est la classe la plus homogène sur les 3 sites. Les classes « Printanière » et « Concentration forte à J-1 » peuvent également être utilisées sur le site de Passy pour des comparaisons entre les hivers.

Ainsi, cette classification des conditions atmosphériques selon leur influence sur les concentrations va pouvoir servir à analyser l'évolution des concentrations des traceurs et  $PM_{10}$  issues de la source de combustion de la biomasse sur les 4 hivers en s'affranchissant de la variabilité des conditions atmosphériques.



## Chapitre 4 : Evolution des concentrations et profil chimiques des PM<sub>10</sub> en fonction des types de conditions atmosphériques

|  |     |
|--|-----|
| <b>1. Evolution du profil chimique des PM<sub>10</sub> au cours des 4 hivers</b> .....   | 90  |
| <b>1.1. Composition chimique globale des PM<sub>10</sub></b> .....   | 90  |
| <b>1.2. Composition chimique des traceurs organiques</b> .....   | 92  |
| <b>2. Comparaison des profils chimiques des PM<sub>10</sub> en fonction des hivers et des types de conditions atmosphériques</b> ..... | 94  |
| <b>2.1. Méthodologie</b> .....   | 94  |
| <b>2.2 Comparaison des profils chimiques selon les conditions atmosphériques</b> .....   | 95  |
| <b>2.3. Comparaison des profils chimiques selon les 4 hivers</b> .....   | 96  |
| <b>3. Evolution des concentrations des traceurs et PM<sub>10wb</sub> au cours des 4 hivers</b> .....                                   | 99  |
| <b>3.1. Comparaison en fonction des conditions atmosphériques sur le site de Passy</b> .....   | 99  |
| <b>3.2 Comparaison sur les 3 sites pour les conditions de « Dispersion »</b> .....   | 102 |
| <b>4. Conclusion</b> .....   | 105 |



L'influence des conditions atmosphériques est prépondérante sur les concentrations de  $PM_{10}$  hivernales dans la vallée de l'Arve. La réalisation d'une classification de conditions atmosphériques selon leur influence sur les concentrations va permettre de pouvoir analyser l'évolution des concentrations et profils chimiques lors de conditions météorologiques analogues, pendant la durée du Fond Air Bois. Néanmoins, des limites ont été mises en avant même avec cette approche, en particulier le fait que les conditions atmosphériques, pourtant au sein d'une classe, peuvent varier au cours des 4 hivers de mesures (Chapitre 3). Par ailleurs, la quantification des  $PM_{10}$  issues de la combustion de la biomasse à partir des données du modèle Aethalomètre est également sujette à des incertitudes. Outre les incertitudes liées aux mesures de  $BC_{wb}$ , l'utilisation d'un ratio constant  $PM_{10wb}/BC_{wb}$  au cours des hivers, déterminé à partir d'une analyse PMF au cours de la 1<sup>ère</sup> année du programme (Chevrier, 2016), peut poser question dans le contexte d'un programme renouvellement d'appareils de chauffage au bois. Ce ratio unique  $PM_{10wb}/BC_{wb}$  suppose en effet que les profils chimiques des  $PM_{10wb}$  sont constants entre les hivers, alors que le profil chimique d'émission peut varier assez largement, par exemple entre un appareil performant à granulé et un appareil ancien à bûches (Bertrand, et al. 2018). Si ces incertitudes ne sont pas directement quantifiables avec nos moyens, les mesures chimiques réalisées sur filtres peuvent permettre d'améliorer l'interprétation de l'évolution des concentrations des traceurs et de  $PM_{10wb}$  au cours des 4 hivers, selon les types de conditions atmosphériques.

Les profils chimiques des  $PM_{10}$  peuvent éventuellement varier au cours des hivers en raison des remplacements d'appareils, mais ils pourraient également varier selon les types de conditions atmosphériques déterminés dans le Chapitre 3 (Dispersion, Inversion, Printanière, Concentration forte à J-1). En effet, les quantités d'émissions liées au chauffage peuvent varier, de même que l'aire de représentativité des sites de mesures (Piersanti, et al. 2015). Cette dernière se définit communément comme l'aire où les concentrations restent dans un intervalle donné par rapport à celles observées au site de mesure (Martin, et al. 2015 ; Bobbia, et al. 2008). Du fait des conditions atmosphériques différentes, l'influence des sources d'émissions locales sur les concentrations mesurées au niveau des sites de mesures chimiques pourrait ainsi varier en fonction des types de conditions atmosphériques.

Après avoir donné un aperçu des évolutions entre hiver de la composition globale des  $PM_{10}$  selon les sites, les différences éventuelles entre les profils chimiques des  $PM_{10}$  entre les hivers en prenant en compte les types de conditions atmosphériques seront investiguées dans la seconde partie de ce chapitre. La partie suivante est dédiée à l'analyse proprement dite de l'évolution des concentrations des traceurs et de  $PM_{10wb}$  au cours des 4 hivers, d'une part selon les 4 types de conditions atmosphériques sur le site de Passy, d'autre part pour les conditions de « dispersion » sur les 3 sites. Nous tenterons d'asseoir ces observations avec différents paramètres géochimiques mesurés sur les prélèvements sur filtres.

## 1. Evolution du profil chimique des $PM_{10}$ au cours des 4 hivers

### 1.1. Composition chimique globale des $PM_{10}$

La contribution des principales espèces à la masse reconstruite des  $PM_{10}$  est tout d'abord considérée sur les 4 périodes hivernales (chacune du 01/12 au 28/02), sans prendre en compte la variabilité des conditions atmosphériques. La période choisie (de décembre à février) permet de limiter le nombre de journées présentant des conditions atmosphériques « Printanières », dont on a vu auparavant qu'elles pouvaient être influencées (en particulier à Marnaz) par des épisodes de fortes concentrations de nitrate d'ammonium.

Pour exprimer les masses relatives (ou pourcentage) de ces espèces principales contribuant au bilan de masse, les concentrations des espèces en  $\mu g.m^{-3}$  ont été rapportées aux masses de  $PM_{10}$  reconstruites à partir de la caractérisation réalisée sur filtre. Les concentrations de  $PM_{10}$  reconstruites

sont estimées à partir de facteurs empiriques provenant d'études et dont le choix est détaillé dans la Section 2 du Chapitre 3 de la thèse de Chevrier (2016) :

$$[PM_{10}] = 1,8 * [OC] + [EC] + [NO_3^-] + [NH_4^+] + [nssSO_4^{2-}] + [sea\ salt] + [min.dust]$$

avec :

- $[nssSO_4^{2-}] = [SO_4^{2-}] - [Na^+] * 0,252$  (Seinfeld et Pandis 2006)
- $[sea\ salt] = [Cl^-] + [Na^+] * 1,47$  (Putaud, et al. 2010),
- $[min.dust] = 5,6 * ([Ca^{2+}] - [Na^+] * 0,038)$  (Putaud, et al. 2004a)
- $[OM] = 1,8 * [OC]$ , facteur issu de mesures AMS et filtres à Passy en février 14 (Jaffrezo et al. 2018 ; Chevrier 2016)

Ces masses reconstruites ont été utilisées au lieu des mesures de  $PM_{10}$  (fractions semi-volatiles et particulaires) réalisées avec les TEOM-FDMS en raison de différences pouvant être importantes (jusqu'à 40%) pour certains jours, entre la somme totale des concentrations des composés mesurés et les mesures de  $PM_{10}$  par TEOM-FDMS. Ces jours correspondent à des journées (principalement en « période chaude ») avec des températures relativement élevées ( $>10^\circ C$ ) tandis que les journées avec des températures basses ( $<2^\circ C$ ) présentent des différences de moins de 10% (principalement en « période froide », qui nous intéresse essentiellement). Malgré les écarts entre les 2 types de concentrations, les valeurs journalières sont corrélés ( $r^2 = 0.81$ ,  $p\text{-value} < 2.10^{-16}$ ), ne modifiant pas les résultats de comparaison des profils chimiques entre les classes de conditions atmosphériques, particulièrement pour la période hivernale.

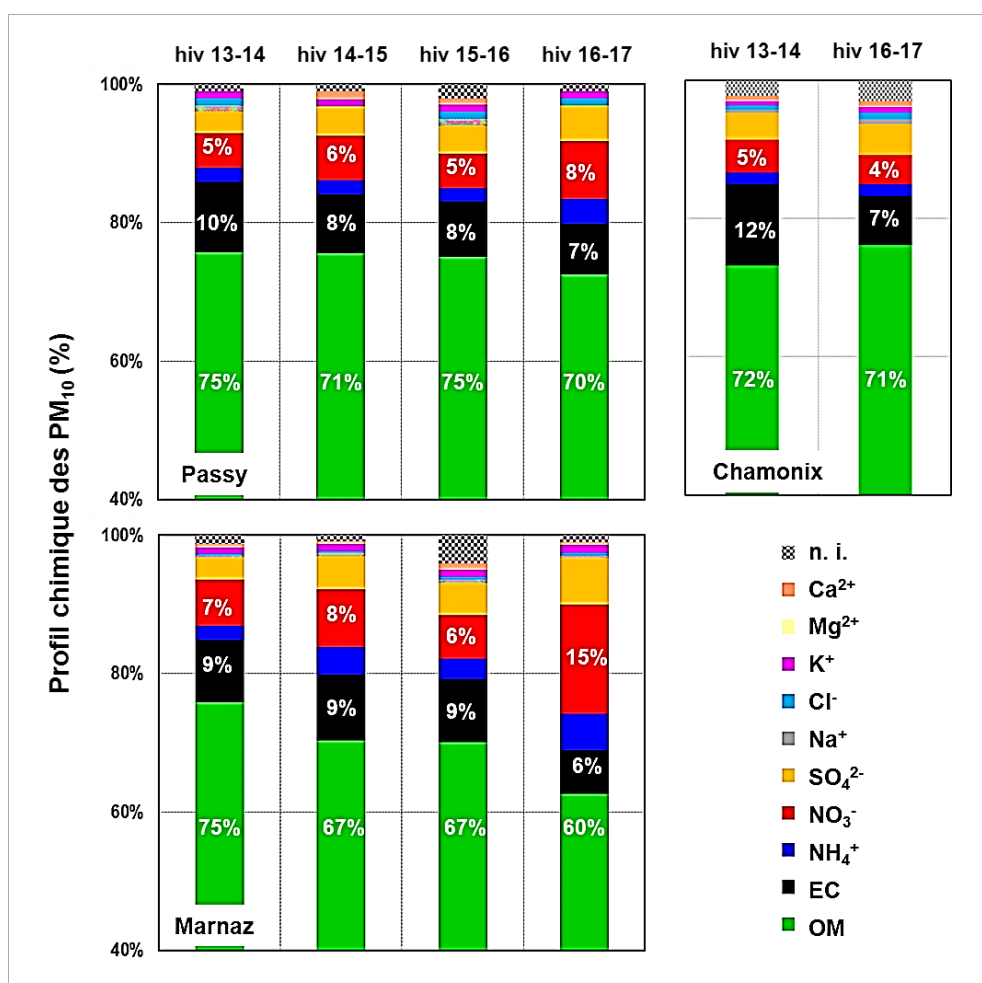


Figure IV.1: Profils chimiques des  $PM_{10}$  en fonction des hivers (chacun sur la période du 01/12 au 28/02) sur les 3 sites. Les effectifs varient entre 57 et 65 observations journalières par hiver sur le site de Passy et 27 à 30 par hiver sur les sites de Marnaz et Chamonix.

La Figure IV.1 présente les évolutions de la composition globale des PM<sub>10</sub> à Marnaz, Passy, et Chamonix. Comme dans la majorité des sites de vallées alpines impactées par la source de combustion de la biomasse (Besombes, et al. 2017; Golly 2014 ; Piot 2011 ; Chevrier 2016), la composition chimique des aérosols est dominée par la matière organique (OM) sur les 4 hivers (entre 60 et 74%). Une diminution significative est cependant observable sur les sites de Marnaz et Passy, où cette fraction a diminué de 15,1% et 5,0% respectivement entre le 1<sup>er</sup> et le 4<sup>ème</sup> hiver (test KW, p-value < 9.10<sup>-6</sup>), tandis qu'elle reste constante à Chamonix (test KW, p-value= 0.79). Lors du 4<sup>ème</sup> hiver, les contributions de l'OM aux concentrations de PM<sub>10</sub> reconstruites sont de 70% et 71% sur les sites de Passy et Chamonix, mais ne sont plus que de 60% sur le site de Marnaz. Ces valeurs restent dans l'ordre de grandeur de celles mesurées lors des campagnes hivernales sur le site de Lanslebourg, site alpin fortement impacté par la combustion de la biomasse (entre 62 et 80% selon l'hiver, Besombes, et al. 2017). Le carbone élémentaire présente également une diminution significative entre le 1<sup>er</sup> et le 4<sup>ème</sup> hiver de 3,0% sur les sites de Passy et Marnaz et de 11,6% sur le site de Chamonix. Ces diminutions de contributions aux PM<sub>10</sub> se font au bénéfice de la fraction ionique, notamment celle des nitrates, dont les contributions relatives augmentent jusqu'à 15% sur le site de Marnaz lors du 4<sup>ème</sup> hiver

## 1.2. . Composition chimique des traceurs organiques

Au – delà de l'évolution observée pour la matière organique, l'observation des rapports entre différents traceurs de la combustion biomasse et cette matière organique permet d'évaluer une éventuelle évolution du profil moyen de ces émissions avec le renouvellement des appareils de chauffage au bois non-performants. Le lévoglucosan ainsi que les méthoxyphénols sont des traceurs primaires de la combustion de la biomasse, qui est également très émettrice d'HAPs. Le ratio OC/lévoglucosan est particulièrement utilisé dans la littérature afin d'évaluer les contributions de la source de la biomasse. Selon l'essence du bois, les ratios OC/lévoglucosan à l'émission varient entre 4.0 et 12.5 (Schmidl, et al. 2008a). Sur des sites alpins impactés par la source de la combustion de la biomasse, Herich et al. (2014) ont montré que les ratios OC<sub>wb</sub>/lévoglucosan variaient de 6.4 à 10.

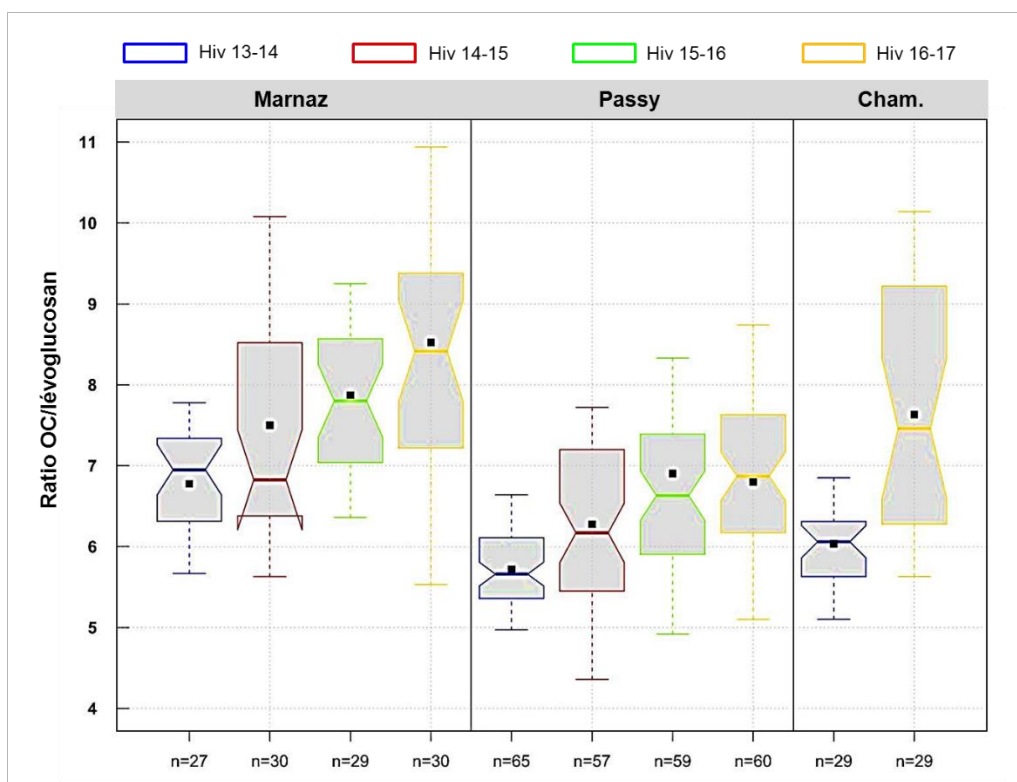


Figure IV.2: Evolution des ratios OC/lévoglucosan au cours des 4 hivers sur les sites de Marnaz, Passy et Chamonix. Représentation de type Boxplot.

La Figure IV.2 présente l'évolution de ce ratio sur les 4 hivers et les 3 sites. Une augmentation graduelle est observée entre le 1er et le 4ème hiver du programme, sur les 3 sites. Lors du 1er hiver, les ratios OC/lévoglucosan étaient de 6,8, 5,7 et 6,1 sur les sites de Marnaz, Passy et Chamonix respectivement, tandis qu'ils sont de 8,6, 6,7 et 7,8 respectivement lors de l'hiver 16-17. Malgré cette évolution graduelle, ces ratios restent donc comparables à ceux mesurés dans des sites fortement impactés par la source de combustion de la biomasse. Les ratios  $PM_{10}$ /lévoglucosan présentant une augmentation similaire à celle des ratios OC/lévoglucosan sur les 4 hivers (figure non montrée) indiquent que cette évolution est due à la diminution des contributions de lévoglucosan.

Le caractère graduel de cette évolution semble ainsi fortement attribuable à un impact sur le lévoglucosan du programme de renouvellement d'appareils de chauffage au bois, avec de meilleures conditions de combustion. Ce type d'évolution est retrouvé dans les résultats de l'évaluation avant, durant, et après du programme « Libby woodstove changeout » où une diminution de la contribution du lévoglucosan aux  $PM_{2,5}$  de 12 à 4% a été mesurée (Bergauff, et al. 2009). Durant ce programme, 1147 appareils ont été renouvelés sur la commune, représentant 76% de l'ensemble des appareils. Dans le cadre de l'étude de Lanslebourg concernant le renouvellement de 30 appareils représentant 30% de l'ensemble des appareils sur la commune, une faible augmentation du ratio OC/lévoglucosan est observée durant les campagnes hivernales (Besombes, et al. 2017).

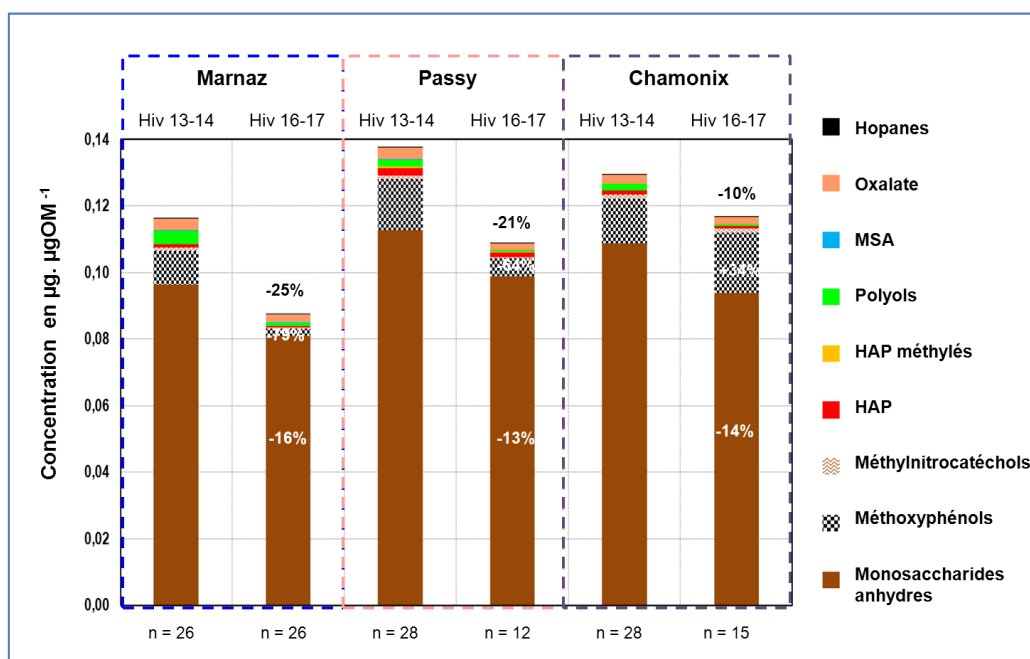


Figure IV.3: Comparaison de la distribution des différentes familles mesurées au sein de la fraction d'OM identifiée au cours de l'hiver 13-14 et 16-17 sur les 3 sites DECOMBIO.

Les contributions à l'OM des familles des méthoxyphénols et des HAP diminuent également sur les 3 sites DECOMBIO (Figure IV.3.). Entre le 1er et le 4ème hiver, les ratios  $\Sigma$ méthoxyphénols/OM ont diminué de 79%, 64%, mais augmenté de 34%, en moyenne, à Marnaz, Passy, et Chamonix, respectivement ; les ratios  $\Sigma$ HAP/OM ont, eux, diminué de 29%, 35% et 31%, respectivement, sur ces sites. Ces valeurs sont dans les mêmes gammes que les diminutions de contribution des HAPs et acides phénoliques aux  $PM_{2,5}$ , de l'ordre de 55%, mesurées avant et après le renouvellement des appareils à Libby, Montana (Ward, et al. 2009). Pour cette dernière étude, la contribution des méthoxyphénols ne présente cependant aucune tendance significative, observation qui a été attribuée à une influence des essences de bois utilisées (Bergauff, et al. 2009). Ces diminutions importantes (mais non systématiques pour les méthoxyphénols) des contributions à l'OM des traceurs mineurs dans notre étude pourraient là aussi être associées à un changement du profil de combustion moyen, tel que mis en avant par exemple par Bertrand et al (2017) entre des poêles à bûche et des poêles à granulés.

Ainsi, différents indicateurs donnent une tendance indiquant une évolution des profils chimiques hivernaux moyens selon au cours des hivers, différente selon les sites, mais qui va en général bien dans le sens de ce qui est attendu pour une amélioration des conditions de combustion. Il est cependant nécessaire d'aller au-delà de cette constatation visuelle d'une situation moyenne pour tenter d'établir plus fermement cette observation. Il est ainsi possible d'une part d'essayer d'utiliser des outils de quantification de différences de profils chimiques prenant en compte l'ensemble de leur caractéristiques, et d'autre part de les considérer selon les types de conditions météorologiques.

## 2. Comparaison des profils chimiques des PM<sub>10</sub> en fonction des hivers et des types de conditions atmosphériques

### 2.1. Méthodologie

Cette problématique d'évaluer la similarité des profils chimiques de PM<sub>10</sub> rejoint exactement celle posée actuellement pour l'évaluation des profils chimiques de sources obtenus avec les méthodes d'attribution dans les modèles sources-récepteur. Dans ce dernier domaine, il est en effet très intéressant (voire indispensable pour certaines utilisations) de valider que les profils de source obtenus par méthodes PMF par exemple sont similaires pour des résultats obtenus par différentes études ou sur différents sites. C'est un des axes de travail du « Working Group 3 » du programme européen Fairmode coordonné par le JRC-Ispra, (<http://fairmode.jrc.ec.europa.eu/wg3.html>), auquel l'IGE participe

Une méthode novatrice a été développée dans ce cadre (outil « Delta Tool »), permettant de définir si des profils sont similaires ou peuvent être qualifiés de différents (Pernigotti et Belis, 2018; Salameh et al. 2018). De façon analogue aux matrices de distance utilisées en données d'entrée des algorithmes de clustering, une distance est calculée entre les profils chimiques à comparer et un profil chimique dit de « référence ». Deux métriques de distance sont utilisées, la distance de Pearson (PD), et la distance d'identité standardisée (SID). Pour deux profils chimiques (les espèces sont exprimées en masse relative) A et B avec j=1 à m espèces communes, ces distances sont calculées selon :

$$PD = \sqrt{1 - r(A, B)} \quad \text{et} \quad SID = \frac{\sqrt{2}}{m} \sum_{j=1}^m \frac{|A_j - B_j|}{(A_j + B_j)}$$

Des seuils permettant de définir les limites au-delà desquelles des profils chimiques présentent de réelles différences ont été établis avec l'analyse de l'ensemble des profils chimiques déposés dans la base de données SPECIEUROPE, et sont fixés à  $PD \geq 0.4$  et  $SID \geq 1$  (Belis, et al. 2015). On retiendra que la distance de Pearson est sensible aux valeurs élevées des masses relatives (très généralement l'OC, l'EC, et les ions majeurs), tandis que la distance SID est robuste aux variations d'échelles entre les masses relatives des différentes espèces, ce qui est particulièrement intéressant pour des sources avec des traceurs chimiques ne représentant qu'une fraction massique faible dans un profil chimique.

Dans notre cas, les profils chimiques des PM<sub>10</sub> totales ont été considérés. Nous ne pouvons en effet pas établir le profil chimique de la fraction PM<sub>10wb</sub> pour chaque hiver et chaque site (ce qui demanderait une étude PMF pour chacun de ces cas), mais en sachant que la biomasse représente une fraction très prédominante de ces PM<sub>10</sub>, on peut déjà avec cette analyse évaluer le domaine de variabilité de la chimie globale des PM. Une première étape est de comparer ces profils entre les différents types de temps sur chaque période hivernale et chaque site, pour estimer si la classification induit une ségrégation. Une seconde étape est de comparer les profils des différents hivers pour une même classe et un même site, pour évaluer s'il existe une évolution notable qui pourrait éventuellement être imputée aux changements des dispositifs de chauffage avec le temps. Certains ratios entre traceurs spécifiques des émissions de la combustion de la biomasse sont aussi considérés, pour approcher au plus près de ces évolutions de profils chimiques.

Les espèces prises en compte dans les profils chimiques des PM<sub>10</sub> pour la première étape sont l'OC, le BC<sub>wb</sub> et le BC<sub>ff</sub>, les différentes espèces constituant la fraction ionique, ainsi que les

monosaccharides anhydres et les polyols. Les métaux et éléments traces n'ont pas été pris en compte, n'ayant été mesurés que durant la 1<sup>ère</sup> année du programme DECOMBIO. Ils ne présentent cependant qu'une très faible fraction de la masse des particules (Chevrier, 2016). A l'exception de la campagne hivernale 14-15 pour laquelle ces mesures n'ont pas été réalisées, des espèces organiques spécifiques de la combustion de biomasse ont été inclus : la famille des méthoxyphénols (13 espèces), et des méthyls-nitrocatechols (3 espèces). Des traceurs organiques d'autres sources ont également été inclus : des HAPs (16 espèces dont le B(a)P qui est réglementé), la famille des hopanes (10 espèces) traceur de la source d'émission véhiculaire, et le HAP soufré BNT(2,1) établi par Golly et al. (2015, 2018) comme traceur de l'industrie du carbone dans le contexte de vallée alpine.

Si la représentation des profils chimiques à comparer selon les distances PD et SID permet de déterminer si les profils présentent des différences ou non, cette méthode ne permet pas de savoir sur quelle(s) espèce(s) apportent ces éventuelles différences. Pour cela, le test non-paramétrique de Kruskal-Wallis a été employé (Kruskal et Wallis, 1952) permettant de tester si les distributions de contributions relatives d'une espèce aux PM<sub>10</sub> sont significativement différentes selon les hivers ou les conditions atmosphériques. Comme pour l'ensemble des tests statistiques, la démarche de ce test repose sur le rejet ou non de l'hypothèse dite nulle qui est l'absence de différences entre les distributions. La valeur de p (p-value) représente la probabilité de rejeter l'hypothèse nulle si elle est vraie, ainsi une p-value faible (< 5.0 10<sup>-2</sup> généralement) permet de considérer que les distributions de contributions relatives d'une espèce aux PM<sub>10</sub> présentent des différences.

## 2.2. Comparaison des profils chimiques selon les conditions atmosphériques

Les profils chimiques des PM<sub>10</sub> des journées de type « Dispersion » des 4 hivers du programme DECOMBIO (pris comme référence) ont été comparés aux profils chimiques des autres types de conditions atmosphériques pour chacun des 4 hivers et sur les 3 sites. La Figure IV.4 représente ces résultats.

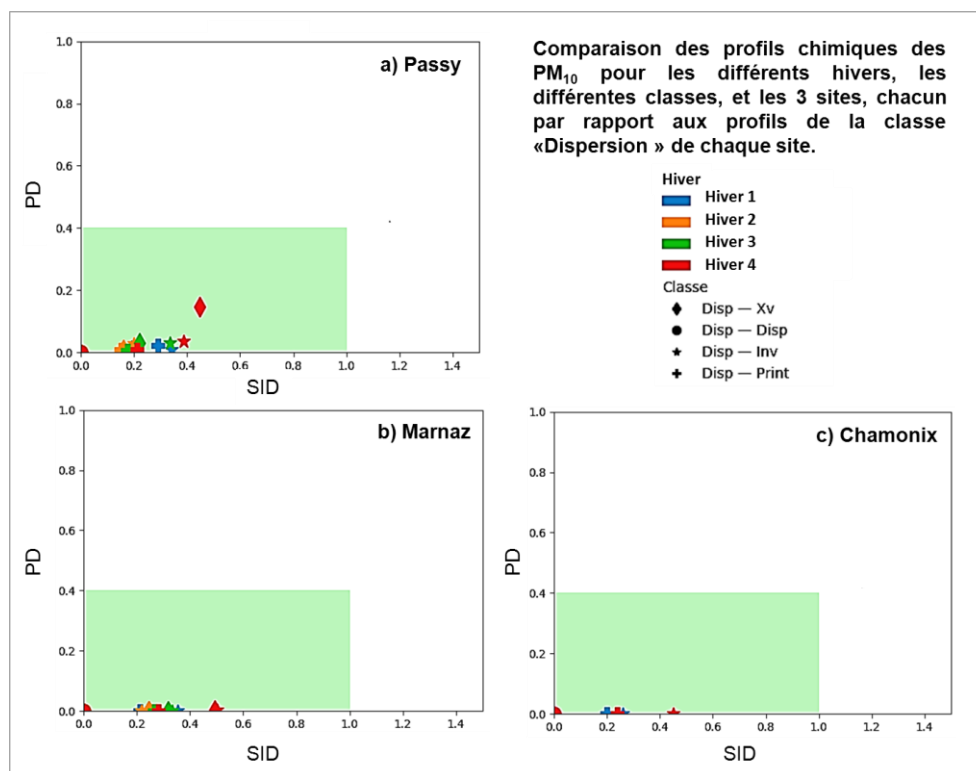


Figure IV.4: Comparaison des profils chimiques des PM<sub>10</sub> pour les différents hivers, les différentes classes, et les 3 sites, chacun par rapport au profil de la classe "Dispersion" du site considéré et de l'hiver. Nomenclature des classe : « Dispersion » (Disp) ; « Inversion » (Inv) ; « Printanière » (Print) ; « Concentration forte à J-1 » (Xv). Le nombre de jours par classe et hiver varie de 5 à 35 selon les sites.

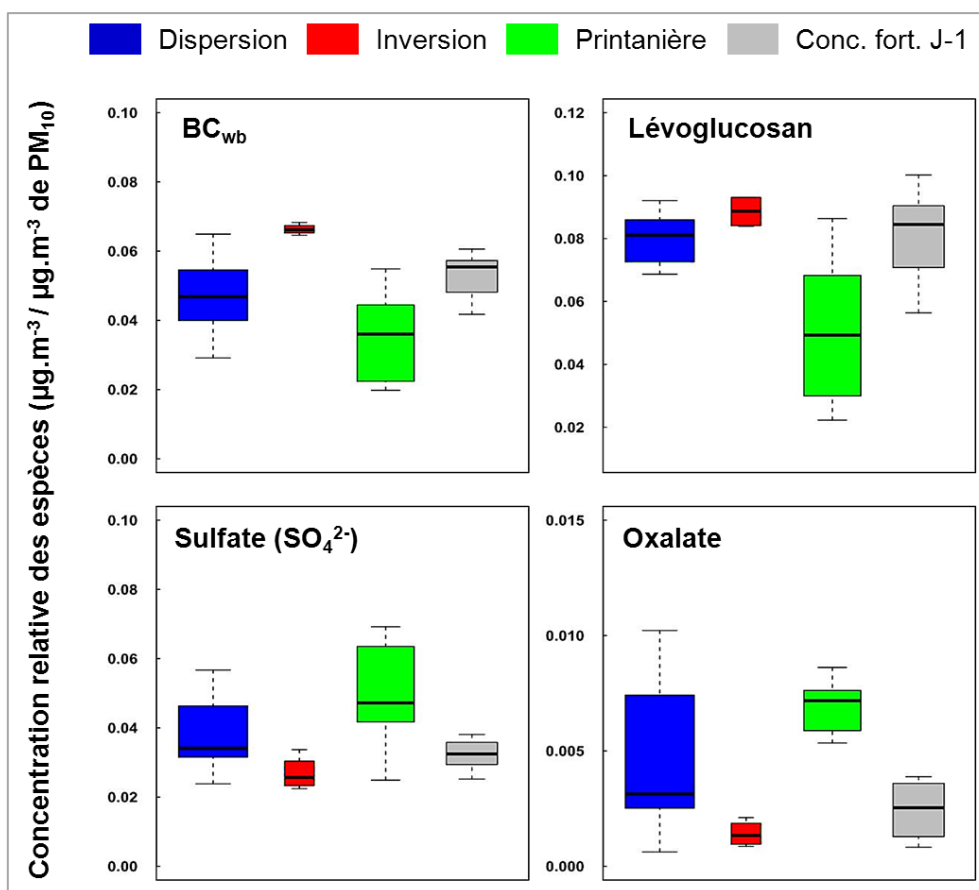


Figure IV.5: Comparaison des concentrations relatives de  $BC_{wb}$ , lévoglucosan, ions sulfates et oxalate aux  $PM_{10}$  selon les différentes classes atmosphériques sur l'hiver 13-14 (01/11 au 31/03) à Passy. Les effectifs de journées pour les classes « Dispersion », « Inversion », « Printanière », « Conc. forte à J-1 » sont de 22, 4, 15 et 12, respectivement.

Ainsi, la Figure IV.5 présente par exemple les concentrations relatives du  $BC_{wb}$ , du lévoglucosan et des ions sulfates et oxalate par rapport aux  $PM_{10}$  selon les différentes classes lors du 1<sup>er</sup> hiver à Passy. On note très clairement que les ratios  $BC_{wb}/PM_{10}$  et lévoglucosan/ $PM_{10}$  sont plus élevés pour les journées de la classe « Inversion », alors qu'à contrario, les fractions de sulfate et oxalate sont les plus faibles pour cette classe. A l'inverse, les fractions des traceurs de la combustion de la biomasse sont significativement plus faibles pour les journées de « Printanière », alors que celles des 2 autres espèces sont les plus élevées. Les classes « Dispersion » et « Conc. fortes à J-1 » se situent à l'intermédiaires des deux extrêmes précédents. On note donc des différences significatives selon les classes météorologiques pour les fractions massiques de certaines espèces.

### 2.3. Comparaison des profils chimiques selon les 4 hivers

Les évolutions au cours des hivers des profils chimiques des  $PM_{10}$  selon les classes de conditions atmosphériques et les sites ont été évaluées avec la représentation selon les distances PD et SID (Figure IV.6).



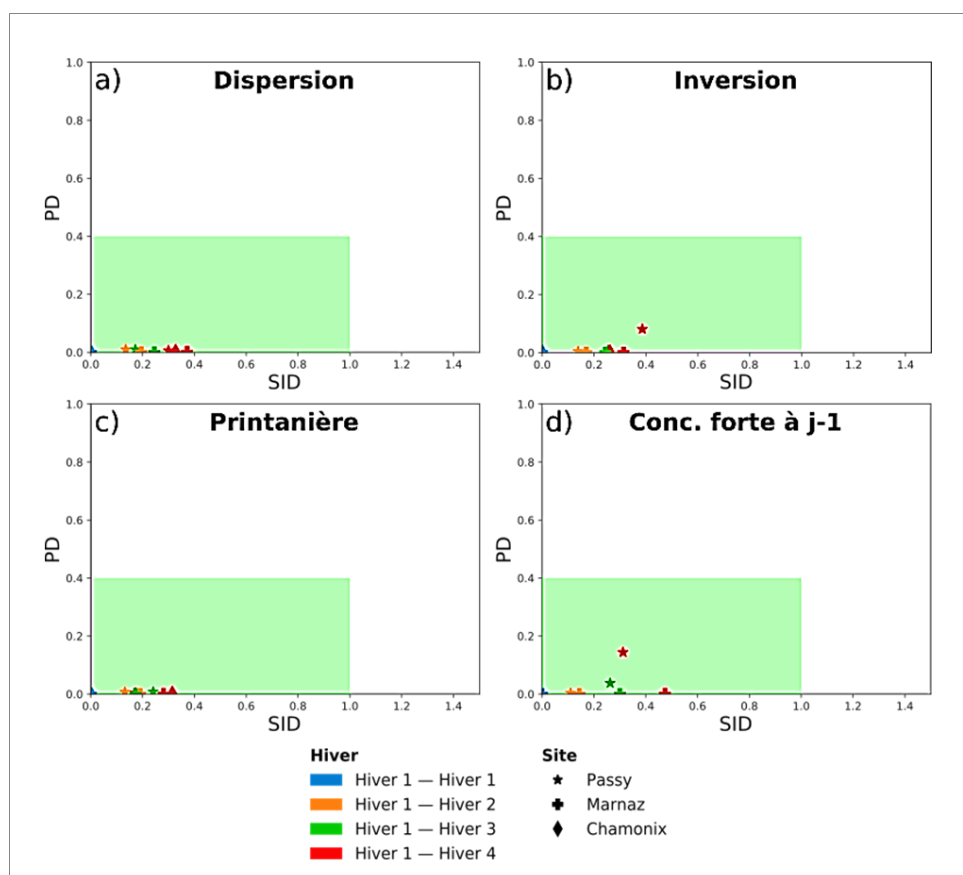


Figure IV.6: Comparaison des profils chimiques des  $PM_{10}$  par rapport à l'hiver 1 pour chacun des 3 sites, pour les classes « Dispersion », « Printanière », « Concentration forte à J-1 ». Le nombre de jours par classe et hiver varie entre 4 et 35.

Cette représentation montre là encore que les profils chimiques restent très similaires avec les valeurs seuils retenues pour ces critères. On pourrait cependant noter que pour chacun des 3 sites, ces profils tendent à se différencier graduellement d'année en année pour la distance SID, pour tous les types de conditions atmosphériques, avec le 4<sup>ème</sup> hiver (marques rouges) présentant les SID les plus élevés. Ce résultat est valable pour la classe « Dispersion », mais aussi pour les 3 autres classes alors que des inhomogénéités de conditions atmosphériques ont été décelées (voir Section 3 du Chapitre 3) pour les sites de Marnaz et Chamonix pour ces classes.

De façon identique à l'analyse conduite dans la section précédente, les différences éventuelles entre les distributions des concentrations relatives des espèces entre les hivers ont été testées pour chaque classe de condition atmosphérique pour le site de Passy. Les p-values obtenues sont rapportées en Annexe 7. La Figure IV.7 représente par exemple les concentrations relatives de la somme des monosaccharides anhydres (lévoglucozan et ses 2 isomères) et de l'ion ammonium aux  $PM_{10}$  au cours des hivers en fonction des classes de conditions atmosphériques.

On observe que pour les classes de type « Dispersion », « Inversion » et « Conc. forte à J-1 », les contributions des monosaccharides diminuent de manière presque graduelle entre les hivers. A contrario, ces fractions restent stables entre les hivers pour la classe de type « Printanière » (test KW, p-value=0,14). Cette diminution des traceurs de la combustion de la biomasse se ferait en faveur de la fraction ionique secondaire, comme le montrent les concentrations relatives de l'ion ammonium, directement associé aux sulfates et nitrates qui constituent ensemble la 2<sup>ème</sup> fraction contributrice à la masse des  $PM_{10}$  en période hivernale (Chevrier, 2016). Ces contributions des espèces ioniques secondaires sont plus élevées lors du 4<sup>ème</sup> hiver que lors du 1<sup>er</sup> pour les classes « Inversion » et « Con. forte à J-1 », ainsi que pour la classe « Dispersion » malgré une évolution non monotone au cours des hivers.

Ainsi, le comportement constant au cours des hivers de ces deux séries d'espèces chimiques lors des conditions « Printanière » confirme une spécificité de cette classe vis-à-vis de la source « combustion de la biomasse », avec des contributions de cette source plus faibles que pour les autres classes, mais assez stables selon les hivers.

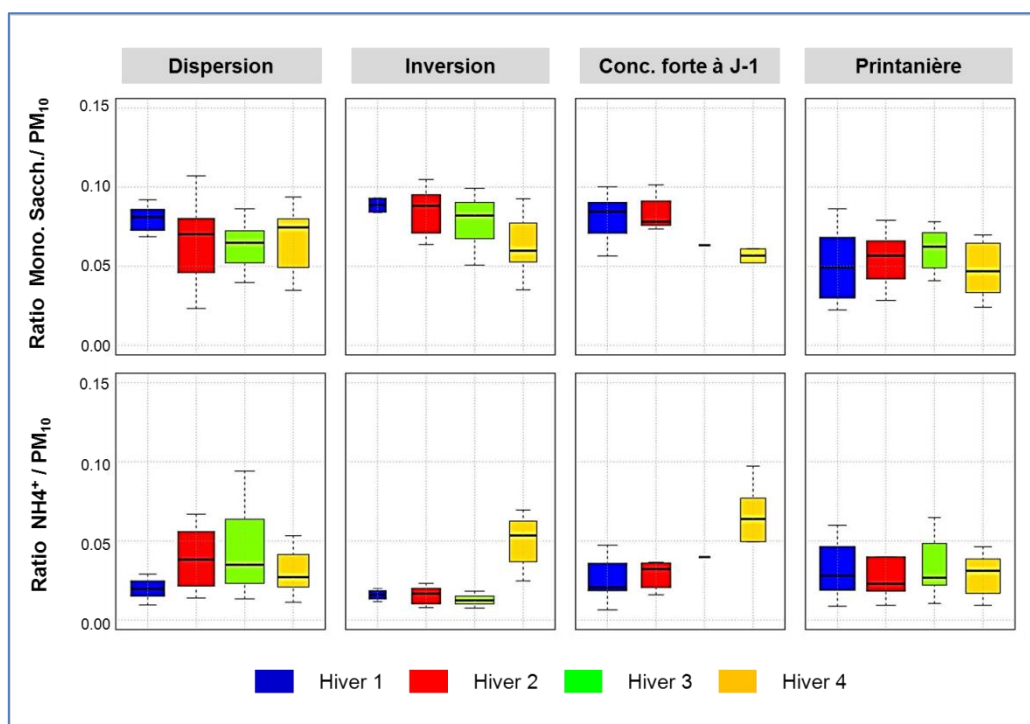


Figure IV.7: Comparaison des concentrations relatives de la somme des monosaccharides anhydres et de l'ion ammonium aux  $PM_{10}$  en fonction des hivers et des classes de conditions atmosphériques à Passy. Le nombre de jours par classe et hiver varie entre 2 et 29.

## Synthèse

On montre ainsi avec ces exemples qu'il existe des évolutions des ratios pour les espèces chimiques constitutives des  $PM_{10}$ , en particulier pour les espèces émises par la combustion de biomasse, à la fois entre les hivers (figures IV.1, IV.2, IV.3) et entre les classes météorologiques (figures IV.5, IV.7). Cependant, des outils de comparaison globale des profils chimiques (développés dans le cadre de l'action EU FAIRMODE) indiquent (figures IV.4 et IV.6) que ces profils restent relativement homogènes sur les sites et les hivers.

Ces diminutions, dont certaines sont graduelles d'hiver en hiver (comme la diminution des fractions de lévoglucosan ou de la somme des HAP dans la matière organique), vont bien dans le sens attendu d'améliorations des conditions de combustion pour des appareils plus performants. Ainsi, et sans pouvoir refaire une étude PMF complète pour chaque site qui permettrait de recalculer les facteurs entre  $PM_{10wb}$  et  $BC_{wb}$ , nous devons faire l'hypothèse que l'utilisation des coefficients spécifiques  $PM_{10wb}/BC_{wb}$  déterminés (pour chaque site) sur les mesures du 1<sup>er</sup> hiver reste valide pour estimer les concentrations de  $PM_{10wb}$  sur les hivers suivants. Cette hypothèse est en partie supportée par les outils de comparaison globale des profils chimiques. Les concentrations estimées de  $PM_{10wb}$  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. Les concentrations de  $PM_{10wb}$  et des traceurs de la combustion de la biomasse vont ainsi être comparées selon certaines classes de conditions atmosphériques pour les 4 hivers.

### 3. Evolution des concentrations des traceurs et PM<sub>10wb</sub> au cours des 4 hivers

Le chapitre 2 a exposé la méthodologie pour déterminer des concentrations des PM<sub>10wb</sub> moyens journaliers, qui ont ensuite été calculés sur l'ensemble des sites et des hivers. La section 2 de ce chapitre 4 a permis de discuter des limitations de cette procédure liées à une éventuelle évolution des profils chimiques des émissions de combustion de biomasse avec l'amélioration des appareillages au courant du temps. Le chapitre 3 a présenté la méthodologie de classification qui permet de comparer des concentrations entre hivers pour des classes météorologiques aussi homogènes que possible. Les deux sections suivantes vont maintenant présenter les résultats concernant les variations temporelles de cette fraction PM<sub>10wb</sub> sur le programme DECOMBIO.

#### 3.1. Comparaison en fonction des conditions atmosphériques sur le site de 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 », les profils météorologiques des 3 autres classes de conditions atmosphériques sont suffisamment homogènes sur le site de Passy pour pouvoir considérer la comparaison des concentrations au cours de ces hivers. Ainsi, la Figure IV.8 présente les évolutions des moyennes pour les 4 classes (la classe « Inversion » étant donnée à titre indicatif), pour les concentrations de lévoglucosan et de PM<sub>10wb</sub> sur les 4 hivers du programme. La période du 15/11 au 15/03 a été choisie pour représenter l'hiver car elle correspond à la période lors de l'hiver 13-14 sur laquelle ont été déterminés les ratios PM<sub>10wb</sub>/BC<sub>wb</sub> sur chaque site.

Cette Figure montre que les concentrations décroissent, pour le lévoglucosan et les PM<sub>10wb</sub>, entre le 1<sup>er</sup> et le 4<sup>ème</sup> hiver du programme et pour toutes les classes de conditions atmosphériques. Les tendances ont été calculées avec la pente de Sen qui est une méthode statistique courante et robuste dans l'analyse des tendances de séries temporelles (Malherbe, et al. 2017). La robustesse de la tendance a été testée avec le test de Mann-Kendall. Les détails de ces 2 méthodes sont présentés en Annexe 6. Les effectifs de mesure étant différent entre chaque hiver, l'analyse des tendances a été réalisée sur 1000 itérations dans lesquelles le même nombre de mesures par hiver était sélectionné aléatoirement. Ces itérations ont permis de déterminer un intervalle de confiance (95%) de la diminution des concentrations exprimée en % par hiver. Du fait des effectifs, cette méthode est principalement valable pour les comparaisons des concentrations pour la classe « Dispersion » (10 mesures par hivers par rapport à un effectif < 5 pour les autres classes). Une diminution significative des concentrations de lévoglucosan et PM<sub>10wb</sub> est retrouvée lors des conditions de type « Dispersion » de 15% et 10% par hiver, respectivement. Les autres classes de conditions atmosphériques présentent également des diminutions entre les hivers (12% en moyenne par hiver), mais du fait principalement des effectifs faibles, la méthode précédemment décrite ne montre cependant pas de tendance significative robuste statistiquement.

Les décroissances des concentrations de PM<sub>10wb</sub> entre le 1<sup>er</sup> et le 4<sup>ème</sup> hiver sont de 31, 39, et 21 % pour les classes « Dispersion », « Inversion », et « Conc. Forte à J-1 ». On notera que les journées de la classe « Inversion » de l'hiver 16-17 présentent des valeurs de  $\Delta T$  (gradient thermique) similaires à celles du 1<sup>er</sup> hiver mais avec des températures journalières inférieures de 2°C en moyenne. Les conditions atmosphériques lors de ces journées de type « Inversion » du 4<sup>ème</sup> hiver sont donc davantage défavorables pour la qualité de l'air que lors du 1<sup>er</sup> hiver, mais une décroissance très nette des concentrations est cependant observée. Cela indique que cette diminution des concentrations n'est pas liée fondamentalement aux conditions atmosphériques.

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<sup>-1</sup>). Les diminutions moyennes de concentration par hiver sont inférieures pour le lévoglucosan et les PM<sub>10wb</sub> par rapport aux autres classes et ne sont pas significatives avec le test de robustesse employé, avec des intervalles de confiances (95%) particulièrement grands. Entre le 1<sup>er</sup> et le 4<sup>ème</sup> hiver, les concentrations moyennes de lévoglucosan ont cependant diminué de 14% (moins de 5%

pour les concentrations de  $PM_{10wb}$ ). Cette diminution plus faible pour cette classe est difficile à expliquer en l'état de nos connaissances, mais rejoint les observations déjà faites précédemment sur la spécificité de cette classe.

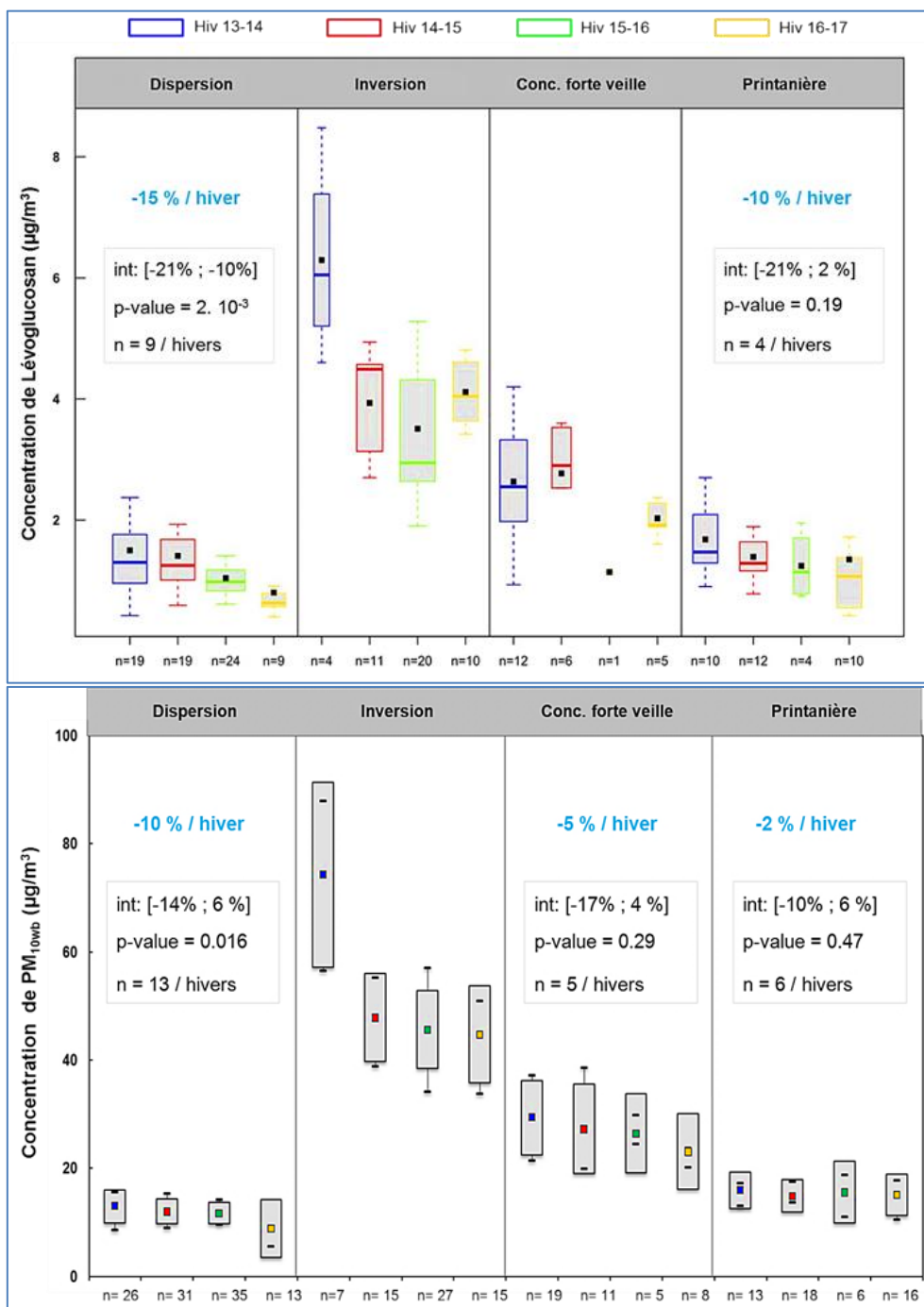


Figure IV.8: Evolution des concentrations de lévoglucosan et de  $PM_{10wb}$  selon les classes de conditions atmosphériques sur le site de Passy. Le % de réduction correspond à la pente de Sen calculée à partir de  $n$  mesures par hivers. L'intervalle à 95% de confiance du % de réduction est indiqué, ainsi que la robustesse de la pente (p-value, test de Mann-Kendall). Les concentrations de lévoglucosan sont représentées sous forme de boxplot tandis que l'aire grisée pour les concentrations de  $PM_{10wb}$  correspond à l'intervalle d'incertitude à 95% de confiance de la moyenne hivernale indiquée par les carrés colorés. L'intervalle correspond à 50% des valeurs. On rappelle que la classe « Inversion » présente des caractéristiques de température non homogènes selon les hivers.

Les tendances sur les 4 hivers d'autres traceurs issus de la source de combustion de la biomasse ainsi que d'espèces issues d'autres sources ont été analysées pour les conditions de type de « Dispersion ». L'objectif de cette analyse est d'évaluer si les tendances observées pour cette classe ne seraient pas dues en partie au fait que les conditions atmosphériques entre hivers ne soient pas tout à fait identiques. La Figure IV.9 ci-dessous représente les diminutions des concentrations sous forme de % par hiver déterminées à partir de la pente de Sen et dont la significativité a été testée avec le test statistique de Mann-Kendall.

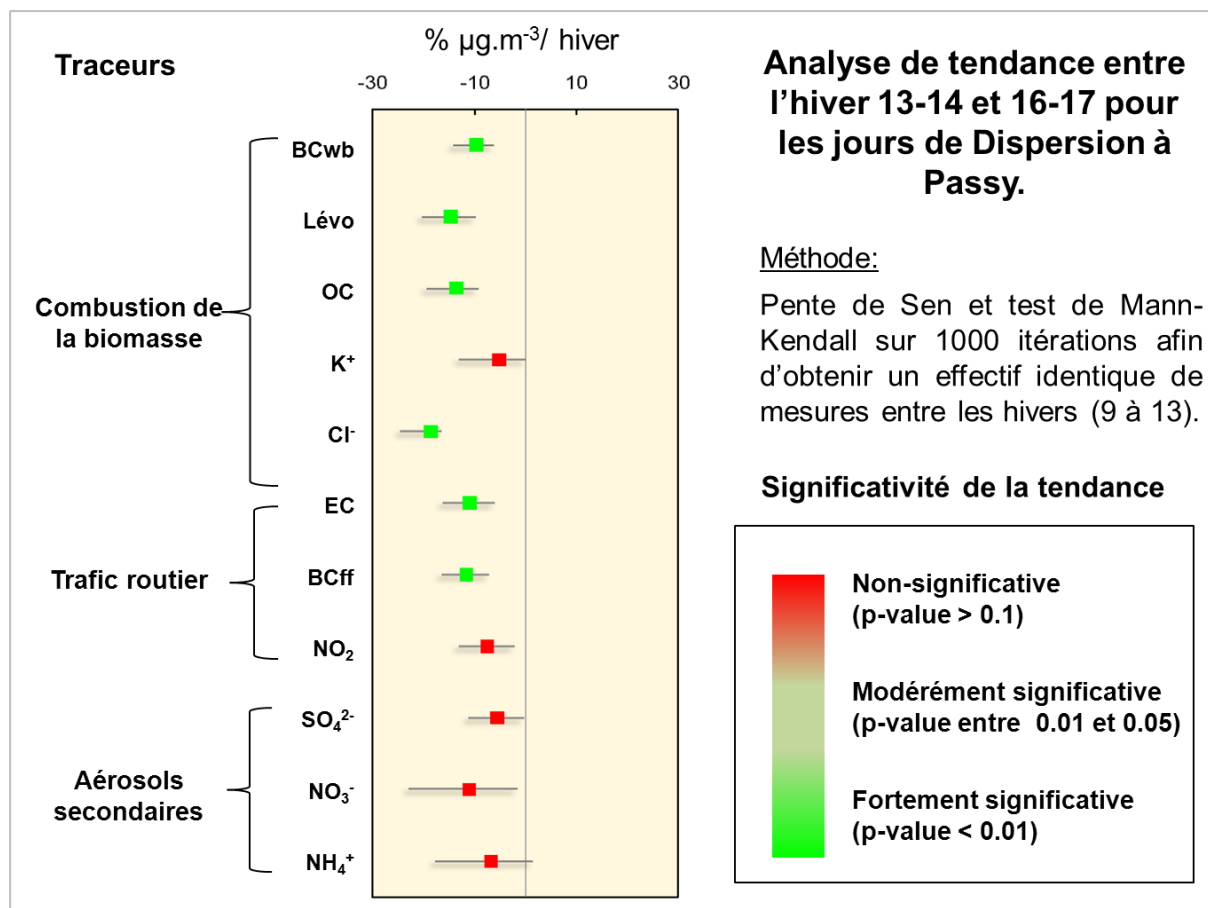


Figure IV.9: Analyse des tendances entre les 4 hivers pour les jours de conditions atmosphériques « Dispersion » sur le site de Passy pour les concentrations des traceurs de la combustion de la biomasse, du trafic routier et des aérosols secondaires. La robustesse des tendances est représentée par la graduation colorée et l'intervalle à 95% de confiance des % par hiver est représenté par le segment horizontal.

Cette figure indique que quasiment les seules espèces montrant une diminution significative sur les 4 hivers sont celles directement liées aux émissions de la combustion de la biomasse (OC, EC, lévoglucosan,  $\text{BC}_{\text{wb}}$ ). Les concentrations de la majorité des autres espèces issues d'autres sources n'évoluent pas (sulfate, nitrate, ammonium, oxydes d'azote). Les seules exceptions concernent :

- l'ion  $\text{K}^+$  que l'on sait provenir d'autres sources d'émission que celle de la combustion de la biomasse (sels de routes, poussières crustales, etc.) (Zhang, et al. 2010 ; Whang, et al. 2007).
- l'EC et le  $\text{BC}_{\text{ff}}$ , associés aux sources de combustion fossile comme le trafic routier, pour laquelle ATMO-aura a montré une baisse des émissions due à un renouvellement marqué du parc roulant avec des véhicules moins émissifs entre 2011 et 2016 (ATMO-aura 2017).

On observe également une diminution des concentrations des chlorures, espèce qui n'est généralement pas explicitement considérée comme traceur de la combustion de la biomasse en

raison de son caractère semi-volatil, mais dont on sait qu'elle représente l'un des deux ions prédominants des émissions de la combustion de la biomasse (Jing, et al. 2017 ; Posfai, et al. 2003).

Ce résultat général permet d'augmenter notre confiance pour dire que la diminution des concentrations des traceurs de la combustion de la biomasse, significative pour la comparaison lors des conditions de « Dispersion » sur le site de Passy, n'est pas liée à des hétérogénéités de conditions atmosphériques entre les hivers mais bien à une réduction d'émissions provenant de cette source.

Contrairement au site de Passy où l'on peut considérer les différentes classes météorologiques, les journées de la classe « Dispersion » sont les seules permettant de pouvoir analyser l'évolution des concentrations pour les sites de Marnaz et de Chamonix, dans des conditions statistiquement valides ; cette comparaison fait l'objet de la section ci-dessous.

### 3.2. Comparaison sur les 3 sites pour les conditions de « Dispersion »

La Figure IV.10 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 et la classe « dispersion ». Les effectifs varient selon les sites, les hivers, et les espèces chimiques considérées, avec jusqu'à 10 - 40 journées par hiver pour les concentrations de  $BC_{wb}$ . Les résultats pour les autres classes sont représentés en Annexe, à titre indicatif puisque la représentativité statistique n'est pas assurée. Cette figure IV.10 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<sup>er</sup> et le 2<sup>ème</sup> hiver, suivie d'une diminution sur les autres hivers sans qu'il soit possible de l'expliquer. Ce résultat d'évolution est cependant moins robuste que sur les 2 autres sites du fait d'un effectif statistique plus faible.

L'évolution des concentrations moyennes de  $PM_{10wb}$  au cours des hivers, quantifiées à partir des mesures de  $BC_{wb}$  et des ratios  $PM_{10wb}/BC_{wb}$  spécifiques à chaque site est représentée sur la Figure IV.11. On voit que, malgré une incertitude relativement élevée sur les moyennes, une diminution des concentrations  $PM_{10wb}$  est observée, lors des 3<sup>ème</sup> et 4<sup>ème</sup> années du programme, et sur les 3 sites. Les diminutions sont de l'ordre de 10% par hiver à Passy et 19% par hiver à Chamonix dues principalement à la diminution très forte des concentrations entre le 2<sup>ème</sup> et le 3<sup>ème</sup> hiver. Comme sur Passy, la tendance des concentrations de  $PM_{10wb}$  est significative sur le site de Chamonix mais pas sur le site de Marnaz. Une diminution de l'ordre de 9% par hiver est cependant observée sur ce site mais en prenant en compte une période plus élargie pour les mesures (nécessaire pour obtenir une meilleure représentativité statistique du fait du dysfonctionnement de l'AE33 lors du 4<sup>ème</sup> hiver sur ce site).

Il est à noter que si les concentrations de lévoglucosan diminuent environ du même ordre de grandeur que les concentrations de  $BC_{wb}$  et de  $PM_{10wb}$  sur les sites de Marnaz et de Passy, elles diminuent cependant plus faiblement entre le 1<sup>er</sup> et le 4<sup>ème</sup> hiver sur le site de Chamonix comparativement aux concentrations de  $PM_{10wb}$  (diminutions de 12% et de 52%, respectivement), sans qu'il soit possible de l'expliquer actuellement.

L'ordre de grandeur de la diminution des concentrations de  $PM_{10wb}$  observée entre le 1<sup>er</sup> et le 4<sup>ème</sup> hiver dans cette étude DECOMBIO peut être comparé aux diminutions des concentrations de  $PM_{10}$  ou de  $PM_{2.5}$  mesurées avant et après d'autres programmes de renouvellement d'appareils de chauffage au bois dans des sites fortement impactés par la combustion de la biomasse. Le Tableau IV.1 récapitule les résultats des principales études sur l'évaluation de tels programmes. L'étude de Lanslebourg n'a pas été incluse en raison de la difficulté d'interprétation des résultats avec le changement de site de prélèvement et de l'absence de réelles évolutions attribuables au renouvellement de 30 appareils sur la commune.

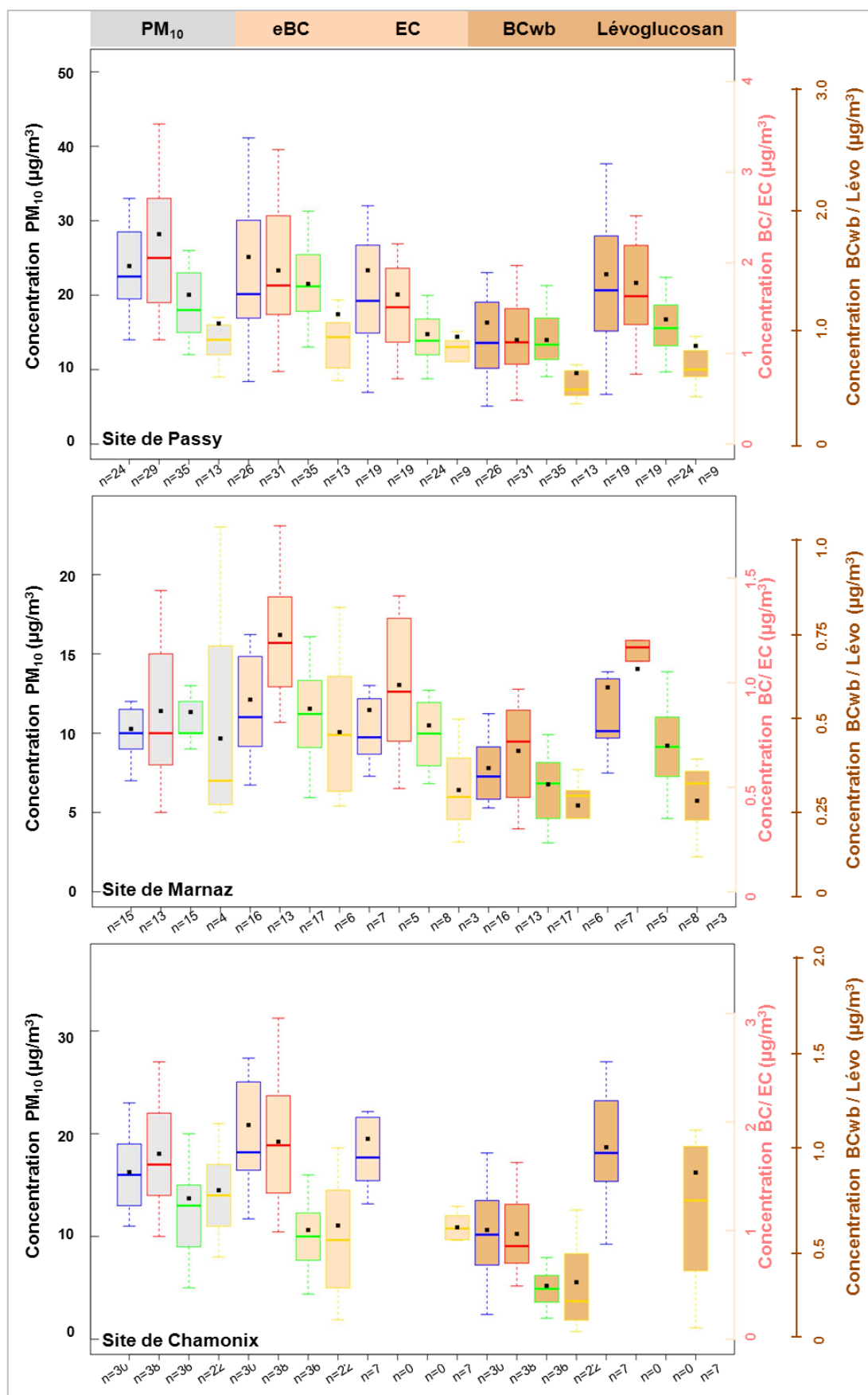


Figure IV.10: Représentation de type boxplot des distributions des concentrations de PM<sub>10</sub>, eBC, EC, BC<sub>wb</sub> et lévoglucosan sur les 3 sites lors des journées de type « Dispersion » au cours des 4 hivers (15/11 au 15/03 pour Passy et Chamonix et 01/11 au 31/03 pour le site de Marnaz).



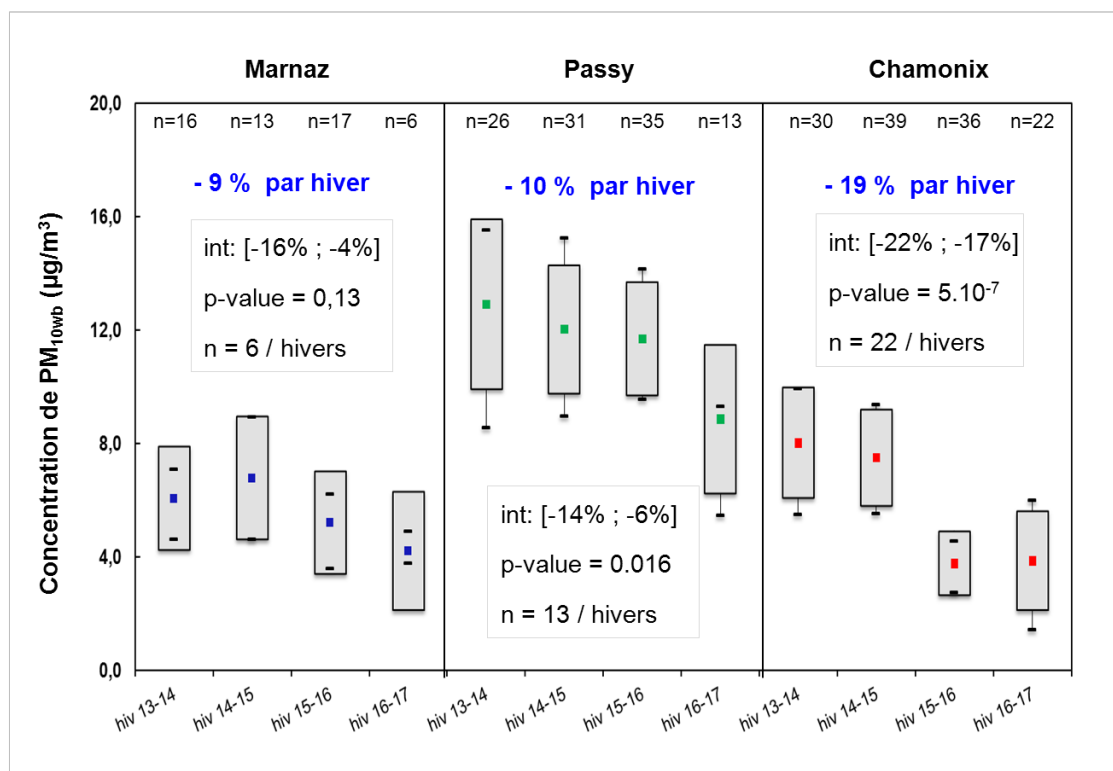


Figure IV.11: Evolutions moyennes des concentrations de  $PM_{10wb}$  au cours des 4 hivers (15/11 au 15/03) pour les journées de type « Dispersion ». La moyenne des concentrations de  $PM_{10wb}$  pour chaque hiver est représentée par le carré tandis que l'aire grisée représente son incertitude. Les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

| Nom du Programme   | Taux d'appareils renouvelés   | Type de mesures effectuées  | Résultat sur la qualité de l'air  |
|--|---|---|---|
| <b>Clean Heat Project (Nouvelle Zélande) 2003-2009</b><br>(Scott et Scarrott 2011)         | Christchurch : 76 % des anciens appareils (34 000 renouvelés dont 13000 du au CHP)<br>Timaru : 50% des anciens appareils (3000 renouvelés dont 300 du au CHP) | Mesures de $PM_{10}$ dans une station résidentielle dans chaque ville de 1999 à 2009<br>Prise en compte de la météorologie : modèle GAM | ↓ $PM_{10}$ de 26 à 52% entre 2002 et 2009 à Christchurch<br>↓ $PM_{10}$ de 3 à 11 % entre 2001-2008 à Timaru |
| <b>Lauceston Wood Replacement Program (Australie) 2001-2004</b><br>(Johnston, et al. 2013) | ↓ du nombre de logements équipés d'un appareil de 66 à 30 %   | Mesures de $PM_{10}$ dans une station de fond de 1997- 2007   | 1997-2000 : 23,7 $\mu\text{g}/\text{m}^3$ de $PM_{10}$ à 18,4 sur 2001-2007 (soit ↓ de 22%)                   |
| <b>Libby Wood stove changeout program (Etats-Unis) 2005-2007</b>                           | 76 % d'appareils renouvelés sur l'ensemble des appareils (1147 renouvelés)  | Mesures de $PM_{2.5}$ de 2003-2009 sur un site résidentiel (Noonan, et al. 2012)  | 27% de réduction des $PM_{2.5}$ en hiver.   |

Tableau IV.1 : Synthèse de l'impact de programmes de renouvellement d'appareils de chauffage au bois sur les concentrations de PM.

Entre le début de l'opération du Fond Air Bois (04/2013) et novembre 2016, 1 932 appareils non-performants ont été renouvelés sur le territoire du PPA de la vallée de l'Arve correspondant à 17% des appareils non-performants estimés en 2012 (ADEME 2013). Entre le 1<sup>er</sup> et le 4<sup>ème</sup> hiver, une réduction des concentrations moyennes de PM<sub>10wb</sub> de l'ordre de 31% est observée sur les sites de Passy et Marnaz, et de 52% à Chamonix. Compte-tenu du taux d'appareils renouvelés, les valeurs de réductions observées pour des conditions atmosphériques de type « Dispersion » sont relativement élevées par rapport aux résultats des autres programmes de renouvellement d'appareils, bien que la portée de cette comparaison soit très limitée du fait de plusieurs paramètres différents (concentrations PM<sub>10wb</sub> vs PM, prise en compte de la météorologie, etc.). Les relativement fortes réductions observées dans ce programme DECOMBIO pourraient s'expliquer par plusieurs hypothèses non exclusives et non limitatives :

- des sites de mesure localisés en des points où de nombreux logements ont renouvelés des appareils de chauffage au bois performants,
- un parc d'appareils de chauffage au bois non-performants renouvelé sans que l'habitant ne fasse de demande d'aide du Fond Air Bois,
- des émissions de la source de combustion de la biomasse diminuant avec la réduction du brûlage des déchets verts ou la modification de comportements d'usagers d'appareils de chauffage au bois jusqu'à-là peu optimaux sur les conditions de combustion.

Ainsi, il semble nécessaire de développer une meilleure compréhension des facteurs qui entrent en jeu dans la forte réduction des fractions PM<sub>10wb</sub> observée sur DECOMBIO. Ainsi, cette évaluation d'une action locale de réduction des émissions à partir de mesures de concentrations, même en suivant spécifiquement la part de la source d'émission concernée dans les concentrations de PM et en prenant en compte la variabilité des conditions atmosphériques, nécessite-t-elle de s'intéresser en parallèle à l'évolution des émissions. Ceci est l'objet du dernier chapitre de cette thèse dont l'objectif est d'apporter un éclairage à certaines des hypothèses énumérées ci-dessus, à partir des données des dossiers du Fond Air Bois.

## 4. Conclusion

La classification des conditions atmosphériques, établie dans le précédent chapitre, a permis de comparer les concentrations d'espèces au cours des hivers dans des conditions atmosphériques similaires. Elle a également permis d'investiguer l'impact que pouvait avoir ces différents types de conditions atmosphériques sur les profils chimiques des PM<sub>10</sub> déterminés à partir des mesures réalisées sur filtres journaliers.

On montre une modification graduelle du profil chimique des PM<sub>10</sub> au cours des hivers avec la baisse de la contribution à l'OC du lévoglucosan, ainsi que celle d'autres traceurs de la combustion de la biomasse (méthoxyphénols, HAP). Ces diminutions sont très probablement attribuables aux renouvellements d'appareils de chauffage au bois et à l'amélioration des conditions de combustion dans les nouveaux appareils. Ce type de modification a déjà été montré dans le cadre d'évaluation d'autres programmes de renouvellement d'appareils de chauffage au bois et va dans le sens des mesures à l'émission réalisées par exemple par Bertrand et al. (2018) sur différents types d'appareils. L'utilisation d'un outil novateur de mesure de comparaison des profils chimiques indique cependant que tous ces profils restent assez similaires, ce qui autorise l'application de la méthodologie envisagée pour le calcul de la fraction PM<sub>10wb</sub> sur l'ensemble du programme.

Sur le site de Passy, une diminution des concentrations des traceurs de la combustion de la biomasse et des concentrations de PM<sub>10wb</sub> est constatée au cours des hivers en fonction de différents types de conditions atmosphériques. Une tendance significative n'est cependant trouvée que pour les journées de type « Dispersion », les effectifs des autres journées étant assez faibles et ne permettant pas d'établir des statistiques robustes. On rappelle que cette classe de « Dispersion » présente des concentrations journalières 4 à 5 fois moins élevées que celles mesurées lors des conditions de la classe « Inversion ». Elle est donc assez éloignée des conditions rencontrées lors des épisodes de

dépassement. A contrario, les concentrations des ions nitrates, sulfates et ammonium, fraction inorganique secondaire représentant la seconde fraction constitutive des  $PM_{10}$  en hiver, ne présentent pas de tendances significatives au cours des hivers, permettant de confirmer que la diminution des concentrations de  $PM_{10wb}$  constatée n'est pas due aux incertitudes de la classification.

Des diminutions de 9%, 10% et 19% par hiver des concentrations de  $PM_{10wb}$  sont observées au cours des 4 hivers sur les sites de Marnaz, Passy et Chamonix, respectivement, pour les journées de type « Dispersion ». Ce résultat est assez largement supérieur à ceux qui ont pu être observés sur les quelques autres programmes de renouvellement de chauffage au bois non performants présentés dans la littérature. Afin de confirmer l'impact de l'opération du Fond Air Bois sur ces évolutions de concentrations, les évolutions des émissions des  $PM_{10wb}$  liées aux renouvellements des appareils de chauffage au bois autour des sites de mesure doivent être précisées.

## Chapitre 5 : Evolution comparée des mesures de concentrations avec l'avancée des remplacements d'appareils

|   |            |
|---|------------|
| <b>1. Réduction des émissions de PM<sub>10</sub> des appareils renouvelés du Fonds Air Bois...</b>  | <b>108</b> |
| <b>1.1. Méthodologie de quantification de l'influence des facteurs d'incertitudes sur les réductions des PM<sub>10</sub> des appareils renouvelés.....</b>  | <b>109</b> |
| 1.1.1. Consommations de bois de l'ancien et du nouvel appareil.....   | 109        |
| 1.1.2. Facteurs d'émissions de l'ancien et du nouvel appareil.....  | 112        |
| 1.1.3. Imputation des données manquantes.....   | 113        |
| <b>1.2. Résultats.....</b>  | <b>114</b> |
| <b>2. Mise en regard de l'évolution des concentrations de PM<sub>10wb</sub> dans les conditions atmosphériques similaires avec celles des émissions estimées autour des sites de mesures.....</b> | <b>118</b> |
| <b>2.1. Influence de l'aire de représentativité sur l'évolution des réductions de PM<sub>10</sub> des appareils renouvelés estimés.....</b>   | <b>118</b> |
| <b>2.2 Estimation des émissions de PM<sub>10wb</sub> des appareils hors Fonds Air Bois autour des sites de mesures.....</b>   | <b>120</b> |
| <b>2.3. Résultats.....</b>  | <b>122</b> |
| <b>3. Conclusion.....</b>   | <b>124</b> |

Peu de situations permettent de s'attendre à ce que l'évolution de mesures de concentrations atmosphériques soit proportionnelle à celle des estimations des émissions des sources dans une zone donnée (AQEG 2013). En effet, les concentrations, en  $PM_{10}$  par exemple, résultent de l'intégration de l'effet de plusieurs sources d'émissions ainsi que des conditions de dispersions atmosphériques. La comparaison des concentrations des  $PM_{10}$  issues de la combustion de la biomasse pour des conditions atmosphériques similaires permet en théorie de prendre en grande partie ces deux points en compte. Cependant, dans le cas de l'Arve, le remplacement des appareils de chauffage au bois, considéré comme le facteur majeur de l'évolution des émissions de la combustion de la biomasse sur les 4 hivers, peut ne pas induire des variations des émissions de  $PM_{10}$  homogènes sur l'ensemble du territoire de la vallée. Il est ainsi nécessaire d'estimer l'évolution des émissions de  $PM_{10wb}$  sur les 4 hivers dans l'aire de représentativité des sites de mesures chimiques, c'est-à-dire la zone où le remplacement d'un appareil induisant une réduction des émissions pourrait être observable dans nos mesures de concentrations de  $PM_{10wb}$ .

Le rayon de l'aire de représentativité pour ce type de station de mesures (station de fond urbain) est évalué entre 100 m et 2 km (EUROAIRNET 1998). L'estimation des émissions à cette très petite échelle nécessite de prendre en compte de façon précise la large variabilité existant sur les consommations de bois et les facteurs d'émissions. 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 en chauffage réelles (Destais 2017; Morly et Hazas 2011; Cayla et al, 2010). Les facteurs d'émissions des appareils de chauffage au bois sont dépendants à la fois de la technologie et du type d'appareil, mais également d'autres variables de type comportemental comme l'utilisation et la maintenance de l'appareil, le choix et le séchage du combustible (Collet 2016 ; EAA 2016; Besombes, et al. 2014). De plus, d'autres facteurs d'incertitudes tels que les hypothèses sur les méthodes de quantification et de spatialisation, ou les données manquantes dans les informations disponibles vont directement impacter l'estimation des émissions des appareils de chauffage au bois pour le parc du Fonds Air Bois mais aussi pour le parc des autres appareils.

Les données des demandes d'aide du Fonds Air Bois constituent des informations précises à l'échelle du logement rarement disponibles pour l'établissement des inventaires d'émissions réglementaires. Dans la première partie de chapitre, les différentes variables permettant de caractériser les émissions liées aux appareils de l'opération du Fonds Air Bois sont recherchées. Les facteurs d'incertitudes pouvant impacter l'estimation de la réduction des émissions des  $PM_{10}$  liées aux renouvellements des appareils du Fonds Air Bois à climat normal sont également déterminés. La spatialisation de la réduction des émissions des  $PM_{10}$  permettra de discuter de la représentativité des sites de mesures vis-à-vis des appareils remplacés du Fonds Air Bois. Avant la confrontation de l'évolution de ces estimations des émissions avec les concentrations mesurées, point qui fait l'objet de la 2<sup>ème</sup> partie de ce chapitre, deux étapes sont nécessaires : (i) la détermination d'une aire de représentativité des sites de mesures et (ii) la quantification des émissions des appareils de chauffage au bois hors Fonds Air Bois dans les aires de représentativité des sites, à partir du parc d'appareils de 2012 ayant servi au dimensionnement du Fonds (ADEME 2013).

## 1. Réduction des émissions de $PM_{10}$ des appareils renouvelés du Fonds Air Bois

La différence des émissions annuelles de  $PM_{10}$  entre l'utilisation de l'ancien appareil non-performant et du nouvel appareil performant se détermine à partir du produit de la consommation de bois (en  $kWh.an^{-1}$ ) par des facteurs d'émissions ( $gPM_{10}.kWh^{-1}$ ) concernant l'ancien et le nouvel appareil. Les facteurs d'émissions sont déclinés selon une segmentation des appareils qui peut différer suivant les inventaires d'émissions réglementaires. Les facteurs d'émissions ADEME ont servi à dimensionner le Fonds Air Bois et sont associés à 6 segments d'appareils : les foyers ouverts, les foyers fermés antérieurs à 2002, de 2002 à 2007, postérieurs à 2007, flamme verte 5\* ou équivalent à bûches, flamme verte 5\* ou équivalent à granulés. Les catégories et valeurs de facteurs d'émissions

employées dans l'inventaire régional d'Atmo-AuRA sont très similaires, hormis la distinction pour les chaudières, affectées de facteurs d'émissions plus faibles par rapport à ceux des autres foyers fermés (voir Tableau I.7 section 4.1.3 du Chapitre 1). Malgré la précision des données des dossiers de demandes d'aide à l'échelle d'un logement, plusieurs facteurs d'incertitude, répertoriés dans le Tableau V.1 pèsent sur la quantification des consommations de bois (exprimés en kWh), ainsi que sur l'assignation des facteurs d'émissions. Par facteurs d'incertitude, on sous-entend tous les éléments pouvant impacter l'estimation des émissions. Une méthodologie a été établie dans notre travail afin de pouvoir évaluer leurs impacts sur la réduction des émissions de PM<sub>10</sub> des appareils renouvelés à climat normal.

| Paramètre   | Facteurs d'incertitudes  |
|---|--|
| <b>Consommations de bois (kWh.an<sup>-1</sup>)</b>              | <ul style="list-style-type: none"> <li>➤ <i>Fiabilité</i> des consommations déclarées avec l'ancien appareil</li> <li>➤ <i>Données manquantes</i> des consommations déclarées et de la surface du logement</li> <li>➤ <i>Absence de connaissance</i> concernant les consommations après renouvellement</li> <li>➤ <i>Variabilité</i> du Pouvoir Calorifique Inférieur, PCI, permettant de convertir la masse de bois brûlée sous forme de chaleur (kWh), selon la nature du combustible (Landreau et Rogeau 2016)</li> </ul> |
| <b>Facteurs d'émissions (gPM<sub>10</sub>.kWh<sup>-1</sup>)</b> | <ul style="list-style-type: none"> <li>➤ <i>Données manquantes</i> des types d'appareils et du combustible de l'ancien et du nouvel appareil</li> <li>➤ <i>Variabilité</i> très importante des facteurs d'émission, même entre 2 types d'appareils employés avec un combustible identique</li> </ul>   |

Tableau V.1 : Synthèse des différents facteurs d'incertitudes impactant l'estimation de la réduction des émissions de PM<sub>10</sub> des appareils renouvelés, concernant les consommations de bois ou les facteurs d'émissions.

### 1.1.Méthodologie de quantification de l'influence des facteurs d'incertitudes sur les réductions des PM<sub>10</sub> des appareils renouvelés

L'analyse des incertitudes liées à des données manquantes ou à la variabilité d'un facteur sur un résultat est réalisée couramment par des simulations probabilistes ou la méthode de Monte-Carlo. Cette méthode correspond à une des deux méthodes préconisées pour évaluer les incertitudes des émissions annuelles à l'échelle nationale (GIEC 2001). Le paramètre jugé incertain est choisi aléatoirement à partir de sa fonction de densité de probabilité pour ensuite calculer les émissions. Cette étape est itérée de nombreuses fois permettant d'établir une fonction de densité des émissions totales. Cette méthode repose sur la spécification des distributions de probabilité pour les facteurs dont l'on veut quantifier l'incertitude, et représente une étape-clé. L'impact des facteurs d'incertitudes correspondant à des choix d'hypothèses pour le calcul des émissions de PM<sub>10</sub> peut quant-à-lui être évalué en calculant plusieurs fois les émissions avec des choix d'hypothèses différents. Ces méthodes seront appliquées, à notre cas, afin d'évaluer l'incertitude des facteurs présentés dans le Tableau V.1 sur les réductions des émissions de PM<sub>10</sub> des appareils renouvelés. Pour cela, les différents paramètres à introduire sous forme probabiliste ou le choix de différentes hypothèses nécessaires à l'estimation des émissions sont tout d'abord considérés.

#### 1.1.1. Consommations de bois de l'ancien et du nouvel appareil

Les consommations réelles de bois, quel que soit le combustible, sont difficilement modélisables à l'échelle d'un logement du fait de l'influence de facteurs comportementaux sur lesquels nous ne disposons pas d'information (BrisePierre 2013 ; Song, et al. 2012 ; Allibe 2009). Les consommations de bois annuelles déclarées dans les dossiers FAB pour les anciens appareils sont les seules disponibles qui peuvent donner des informations précises, pour ces consommations réelles

de bois. Les enquêtes ADEME-BVA (2013) et PRE2A (Cassagne, et al. 2015) ont montré l'ancienneté du parc d'appareil sur le territoire, avec un âge moyen des appareils de l'ordre de 8 à 10 ans. Les consommations déclarées dans les dossiers du FAB peuvent ainsi être considérées comme des consommations à climat normal, en faisant l'hypothèse que les personnes interrogées intègrent cette longue période d'utilisation pour leur réponse et que le « climat » sur cette période est proche de la moyenne (cf Annexe 11). Toutefois, la fiabilité de consommations de bois déclarées dans les enquêtes ménages, n'a jamais été évaluée en général et peut être remise en question du fait par de l'absence d'unité standard du volume de bois (et de facteur de conversion standard entre ces unités), ou encore d'un approvisionnement majoritairement personnel du bois (42% des habitants ayant bénéficié du FAB ont déclaré s'approvisionner par eux-mêmes). Ce champ « Consommation déclarée » est par ailleurs manquant dans 18% des dossiers du FAB. L'existence de 4 enquêtes ménage réalisées indépendamment dans la Vallée de l'Arve entre 2010 et 2014 a permis d'utiliser ces différentes sources de données afin d'évaluer la fiabilité de ces consommations déclarées. Ces différentes enquêtes sont décrites plus en détail dans la section 6 du Chapitre 2. Les consommations déclarées de bois par m<sup>2</sup> ont été comparées entre les différentes enquêtes, et l'influence des consommations déclarées de bois par m<sup>2</sup> en fonction de plusieurs paramètres présents dans les enquêtes a été analysée.

Avant 2016, les consommations de bois utilisées dans l'inventaire régional d'Atmo-AuRA étaient issues d'un modèle basé sur les besoins unitaires de chauffage (kWh.m<sup>-2</sup>) déterminés par l'enquête CEREN (Atmo-AuRA 2016). Les paramètres pris en compte pour estimer les consommations étaient le type de logement (maison ou appartement), la période d'achèvement du logement (définissant la réglementation thermique en vigueur lors de la construction du logement permettant d'indiquer son degré d'isolation), le type et le mode d'usage de l'appareil. Ces paramètres sont également renseignés dans les enquêtes DREAL (171 utilisateurs d'appareils non-performants, Atmo-AuRA 2011), PRE2A (477 utilisateurs d'appareils non-performants) et les dossiers FAB (963 dossiers avec la consommation déclarée entre 2013 et juin 2015). Les résultats de l'enquête ADEME-BVA ne sont connus que par le rapport ADEME de cette étude qui en présente les résultats généraux. L'Annexe 9 présente en détail l'analyse de ces consommations, effectuée à partir du test du X<sup>2</sup> et de l'algorithme BORUTA dans les cas des données très détaillées de l'enquête DREAL, contenant des champs de variables tels que la température de confort, la période de chauffe ou l'essence de bois.

On a ainsi pu montrer que :

- les quantités de bois déclarées (ramenées par m<sup>2</sup> de logement) ne sont influencées que par le mode d'usage de l'appareil (base, appoint, loisir) parmi les paramètres utilisés dans le modèle initial de consommations dans l'inventaire Atmo-AuRA.
- les quantités de bois consommé (ramenées par m<sup>2</sup> de logement) en fonction du mode 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 V.1),
- 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 m<sup>2</sup> 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 ou structurels (telle que la période de construction du logement).

Les consommations unitaires déclarées pour l'usage de l'ancien appareil dans les dossiers 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 10) permettant de déterminer un PCI moyen de 1613 kWh/stère ( $\pm 40$  kWh/stère). Pour l'usage principal, et en supprimant les valeurs extrêmes, une consommation énergétique moyenne de 117 kWh/m<sup>2</sup>/an variant entre 42 et 277 kWh/m<sup>2</sup>/an est calculée pour les dossiers du FAB, en appliquant cette valeur moyenne de PCI. Ces valeurs correspondent à celles qui sont habituellement rencontrées pour les consommations électriques de chauffage (SOeS 2015). Le facteur PCI a été introduit sous une forme probabiliste à partir d'une loi de probabilité de type loi Normale ( $\mu=1613$  kWh,  $\sigma=40$  kWh) permettant de tenter de prendre en compte l'incertitude concernant les consommations déclarées à l'échelle d'un logement et la variabilité naturelle du PCI. De même, les consommations déclarées manquantes sont imputées de manière aléatoire selon des lois de type lognormal déterminées à partir des densités de probabilités sur les consommations de bois déclarés par m<sup>2</sup> en fonction du mode d'usage de l'appareil.

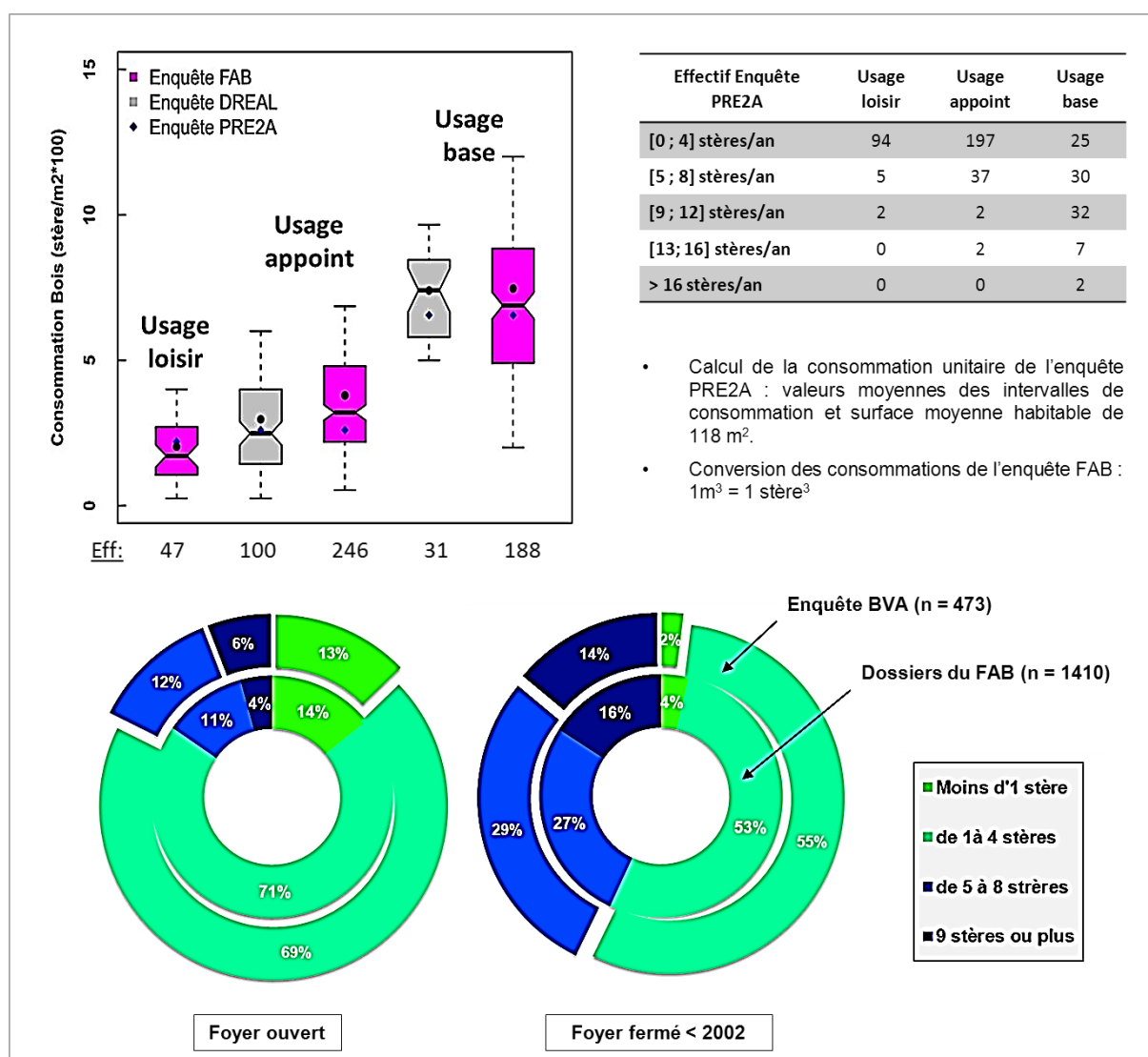


Figure V.1: (En haut) Représentation de type Boxplot des consommations annuelles de bois déclarées par m<sup>2</sup> pour des appareils non-performants des dossiers du SM3A (Fonds Air Bois) et de l'enquête DREAL selon le mode d'usage de l'appareil. Les valeurs de consommation moyenne annuelle provenant des classes de stères déclarés dans l'enquête PRE2A sont indiquées en bleu. (En bas) 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 ADEME-BVA et les dossiers du SM3A.

Les données disponibles pour estimer les consommations avec le nouvel appareil (en kWh/m<sup>2</sup>/an) dans les dossiers du FAB 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 de l'ancien appareil. Ce facteur correspond au rapport des rendements énergétiques moyens de l'ancien et du nouvel appareil.

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 » (voir section 4.1.2 du Chapitre 1). L'effet rebond direct correspond à l'incitation à consommer plus d'un service lorsque (dans notre cas) la performance énergétique a été améliorée. Il n'existe pas d'étude d'évaluation ni d'estimation de l'effet rebond concernant le renouvellement d'appareils de chauffage au bois. L'effet rebond concernant des évaluations sur l'amélioration de système de chauffage résidentiel est estimé en moyenne de 20% avec un grand intervalle de 5 à 60 %, voire 100 % (Gavankar et al, 2010 ; Sorell, et al. 2009, 2008). Le changement du mode d'utilisation de l'ancien appareil en appoint ou loisir par un appareil performant utilisé comme chauffage principal est considéré comme un effet rebond, et un tel changement a été déclaré dans 21% des dossiers du FAB.

Comme montré précédemment, le mode d'usage de l'appareil est une variable explicative fondamentale de la variabilité des consommations déclarées par m<sup>2</sup>. 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 m<sup>2</sup> entre les 2 modes d'usage des appareils. Le Tableau V.2. répertorie les différents facteurs utilisés selon les modes d'usage. L'application de ce facteur aux consommations initiales constitue déjà une prise en compte de « l'effet rebond » sur les consommations avec les appareils renouvelés.

| <b>appareil<br/>Nouvel appareil</b> | <b>Ancien</b> | <b>Principale</b> | <b>Appoint</b> | <b>Plaisir</b> |
|-------------------------------------|---------------|-------------------|----------------|----------------|
| <b>Usage énergie principale</b>     |               | 1                 | 1,99           | 3,37           |
| <b>Usage énergie d'appoint</b>      |               | 0,50              | 1              | 1,70           |
| <b>Usage de plaisir</b>             |               | 0,30              | 0,60           | 1              |

Tableau V.2 : 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'évaluer le facteur d'incertitude de l'effet rebond de consommations avec le nouvel appareil sur la réduction des émissions de PM<sub>10</sub>, 2 cas ont été établis :

- Dans le 1<sup>er</sup> 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), ce cas correspond le plus au calcul théorique des gains énergétiques.
- Dans le 2<sup>ème</sup> 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), ce cas correspond à un fort effet rebond sur les consommations.

#### 1.1.2. Facteurs d'émissions de l'ancien et nouvel appareil

De nombreuses études expérimentales mettent en avant la très grande variabilité des facteurs d'émissions qui peut aller jusqu'à un facteur de différence de 8 en employant un appareil identique et en ne variant qu'un paramètre sur les conditions de combustions, telle que la nature du combustible

(Fachinger, et al. 2017; Collet 2016 ; Landreau et Rogaume, 2016). Si on retourne aux sources, on s'aperçoit que les facteurs d'émissions associés à la segmentation d'appareil utilisée dans les inventaires d'émissions réglementaires sont issus seulement de 1 à 4 études publiées, selon le Guidebook de l'EAA (2016) où ces références sur ces facteurs d'émissions sont reportées (voir Tableau I.7 de la section 4.2.1 du Chapitre 1). Ces études ont été réalisées sur un nombre limité de réplicas, et en majorité réalisées en laboratoire selon des conditions de combustion très définies. Ces facteurs d'émissions ne peuvent donc refléter la variabilité qu'il peut y avoir entre les émissions de 2 logements. Les introduire sous forme de loi de probabilité était donc tout indiqué pour en obtenir un facteur d'incertitude, ce qui a déjà été réalisé dans d'autres études d'évaluations des émissions provenant du chauffage au bois résidentiel (Rao, et al. 2017 ; Karvosenoja, et al. 2008).

Pour déterminer les lois de probabilités des facteurs d'émissions en fonction du type d'appareil, les mesures des études référencées dans le Guidebook de EAA (2016) ainsi que les résultats d'études supplémentaires réalisées avec la même méthode de mesure des facteurs d'émissions (tunnel de dilution) ont été compilées. Coulson et al. (2015) ont montré que la forme de la densité de probabilité des facteurs d'émissions est de type log-normal, dans une étude effectuée à partir de 51 mesures en conditions réelles, et une telle fonction de répartition a été utilisée dans l'évaluation d'incertitudes des émissions de Rao et al. (2017) et de Karvosenoja et al. (2008). Les différents paramètres des lois déterminés sont répertoriés en Annexe 10. Le Tableau V.3 récapitule les facteurs d'émissions de l'ADEME et les facteurs moyens déterminés dans notre étude selon la méthode exposée. Globalement, ces facteurs d'émissions moyens 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.

| Type d'appareil                 | FE ADEME | FE « probabilistes » | Nombre de références | Références supplémentaires par rapport à EAA, 2013  |
|---------------------------------|----------|----------------------|----------------------|---|
| <b>Foyer Ouvert</b>             | 750      | 478 (91-1066)        | 4                    | Nussbaumer 2010 ; Fine, et al. 2002 ; McDonald, et al. 2000   |
| <b>Foyers fermés &lt;2002</b>   | 700      | 271 (16-4375)        | 7                    | Peren2bois 2012 ; Petterson, et al. 2011 ; Gonçalves, et al. 2010 ; Nussbaumer, et al. 2008 ; McDonald, et al. 2000 |
| <b>Chaudière &lt;2002</b>       | 700      | 671 (46-2131)        | 5                    | Peren2bois 2012 ; Nussbaumer, et al. 2010 ; Gaegauf, et al. 2001  |
| <b>Foyer fermé 5* à granulé</b> | 50       | 38 (12-78)           | 6                    | Bertrand, et al. 2017 ; Peren2bois, 2012 ; Nussbaumer 2010 ; Sippula 2010 ; Boman, et al. 2004                      |
| <b>Foyer fermé 5* à bûches</b>  | 50       | 104 (8-213)          | 2                    | Bertrand, et al. 2017   |

Tableau V.3 : Facteurs d'émissions de  $PM_{10}$ , en fonction du type d'appareil, de l'ADEME et FE moyens (min-max) 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.

### 1.1.3. Imputation des données manquantes

Le taux de données manquantes peut être important pour certaines des variables mentionnées dans les dossiers du FAB, et il est intéressant d'essayer de remplacer ces données de la façon la plus réaliste possible afin de garder la puissance statistique de cette base de données. Lors

de l'analyse entre les caractéristiques des appareils et des logements avec des émissions (voir Annexe10), des relations de dépendance ont été mises en évidence entre le type de d'appareil et les paramètres « période d'achèvement du logement », « mode d'usage de l'appareil », et « combustible ». Les associations sont retrouvées dans les différentes enquêtes ménages et sont identiques à celles de l'étude ADEME (2015) portant sur la caractérisation et la segmentation des appareils de chauffage au bois. La Figure V.2 récapitule les différentes relations de dépendance trouvées. Afin de garder les proportions des différentes variables entre elles, une méthode d'imputation multiple a été développée (Gregori, et al. 2010) consistant à compléter aléatoirement les données manquantes à chaque itération du calcul de la réduction des émissions de PM<sub>10</sub>.

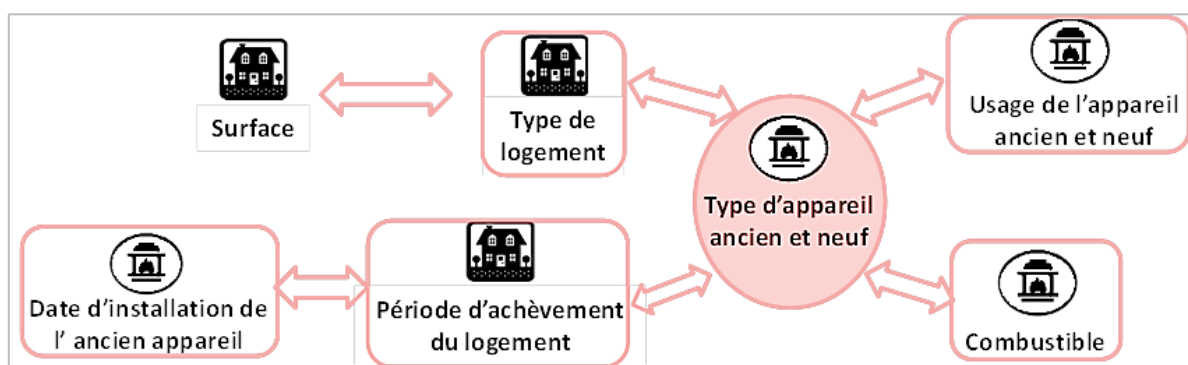


Figure V.2: Relations de dépendances mises en avant à l'aide du test du Chi-2 entre les paramètres utilisés dans les méthodes d'estimation des émissions à partir des dossiers du Fonds Air Bois et des enquêtes DREAL et PRE2A.

Comme vu précédemment pour les données manquantes des consommations déclarées de l'ancien appareil, le champ « surface » est complété selon une loi de probabilité issue des surfaces déclarées selon le type de logement (maison, appartement) dans les dossiers du FAB. 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 Fonds 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. Cette méthodologie est présentée plus en détail en Annexe 10.

Ainsi, les réductions des émissions de PM<sub>10</sub> des appareils renouvelés vont être estimées par simulation probabiliste (100 itérations) de l'imputation des données manquantes et de la valeur du PCI. Ces calculs seront reproduits en variant l'hypothèse sur les consommations de bois avec le nouvel appareil (effet rebond fort ou pas d'effet) et le jeu de données des facteurs d'émissions (FE de l'ADEME employés pour le dimensionnement du Fonds Air Bois et FE dit « probabilistes »). Cette méthode permet d'évaluer l'incertitude sur les émissions de PM<sub>10</sub>, apportée par les données manquantes, la variabilité des consommations de bois, et la variabilité des FE.

## 1.2. Résultats

Entre le début de l'opération FAB 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 (ADEME 2013a). Les renouvellements d'appareils ont été effectués de manière relativement hétérogène au sein du territoire (Figure V.3). Les sites de mesures de Marnaz, Passy et Chamonix sont situés dans des zones où le nombre d'appareils non-performants renouvelés est important par rapport aux taux moyens des appareils renouvelés au sein des mailles de 1km. La représentativité des sites de mesure sera détaillée plus loin avec la réduction des PM<sub>10</sub>

due aux appareils renouvelés. Le Tableau V.4 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 PM<sub>10</sub>, la méthodologie définie précédemment ne pouvant s'appliquer.

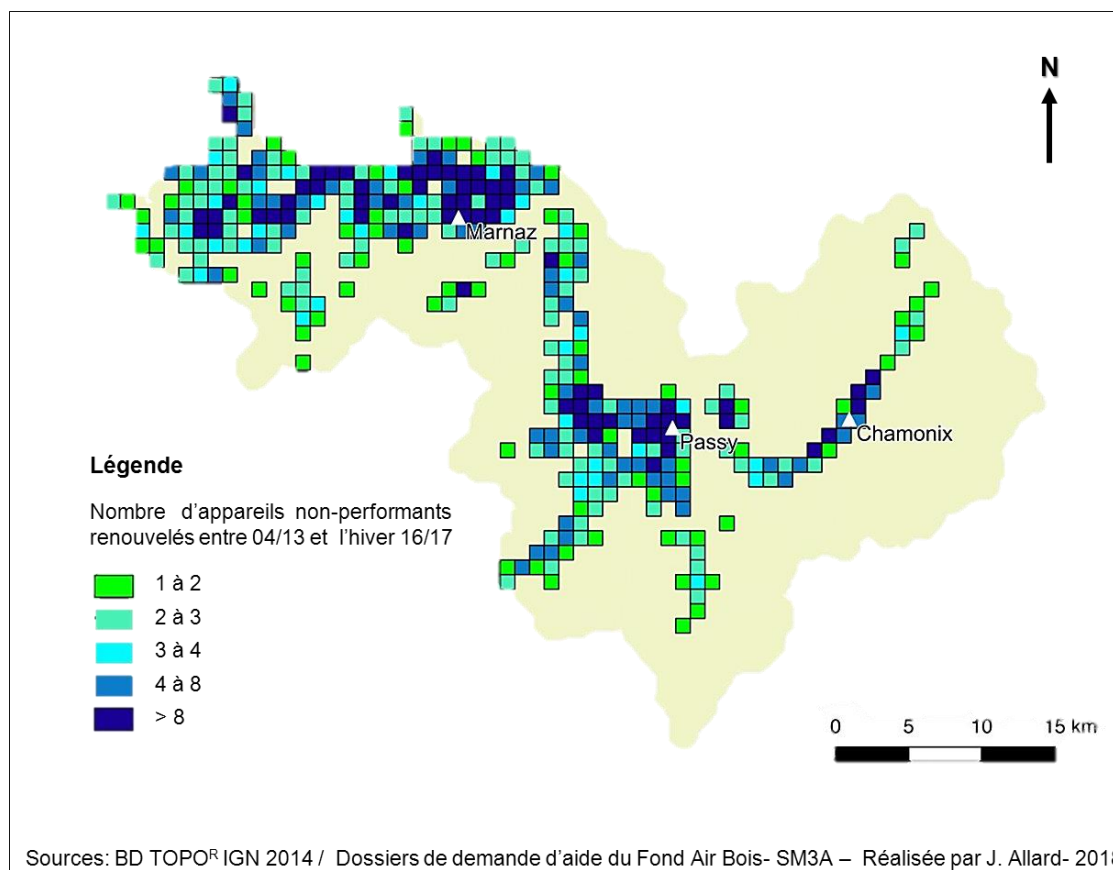


Figure V.3: Représentation des effectifs d'appareils non-performants renouvelés dans le cadre de l'opération du Fonds Air Bois entre avril 2013 et novembre 2016 dans des mailles de 1km. Les sites de mesures DECOMBIO sont représentés par des triangles blancs.

|     | Facteurs d'émission | Hypothèse sur la consommation avec le nouvel appareil (kWh/an) | Réduction des émissions (tPM <sub>10</sub> .an <sup>-1</sup> ) | %par rapport aux émissions de PM <sub>10wb</sub> 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 | « Probabilistes »   | $Cancien * f_{cgt.util} * f_{rdt}$                             | 16.0 ± 0.5   | 4.8 %  |
| IV  | « Probabilistes »   | $Cancien * f_{cgt.util}$                                       | 12.4 ± 0.5   | 3.7 %  |

Tableau V.4 : Réduction des émissions en tPM<sub>10</sub>.an<sup>-1</sup> provenant du renouvellement des 1903 appareils du Fonds Air Bois sur le territoire du PPA à climat normal en fonction de 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<sub>10wb</sub> totales correspondent à celles de l'inventaire de 2015 d'Atmo-AuRA sans prise en compte du renouvellement des appareils du FAB. Ces émissions ont été validées par rapport à celles provenant des autres secteurs d'intérêt économiques (transport, industrie, etc.). Les évolutions annuelles moyennes sont calculées sur la base de l'estimation sur les 4 ans, sans tenir compte d'un plus ou moins grand renouvellement des appareils non-performants selon les hivers.

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 (réduction allant de  $12.4 \pm 0.5$  à  $37.2 \pm 0.5$   $tPM_{10}.an^{-1}$ ), selon le scénario de mode de calcul utilisé. Ces réductions d'émissions de  $PM_{10}$  représentent entre 3,7 et 11,6 % des émissions totales de  $PM_{10}$  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. A titre de comparaison, Atmo-AuRA selon une méthodologie de calcul différente a estimé, dans le cadre de l'évaluation du PPA de la vallée de l'Arve en 2016, une réduction d'émissions de  $PM_{10}$  de 17,8 tonnes par an pour le renouvellement de 2 177 appareils (Atmo-AuRA 2017a). Leur estimation, dans le cadre de l'évaluation réglementaire du PPA, correspond donc à la fourchette basse des réductions de  $PM_{10}$  estimées dans cette étude.

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 soit 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 »), soit 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 précédemment. Par ailleurs, le champ « âge de l'appareil » a été utilisé afin d'investiguer l'impact que pourrait avoir la prise en compte de 1996 (au lieu de 2002) comme date limite pour les appareils non performants. Cette segmentation des appareils est employée dans l'inventaire national du CITEPA et dans l'inventaire régional d'Air Paris (Honoré, et al. 2017). Avec l'emploi de l'année 1996 au lieu de 2002 comme année de rupture technologique des appareils de chauffage au bois, on obtient une diminution de 18% sur la réduction des émissions de  $PM_{10}$  totales en ne variant que ce paramètre, montrant ainsi l'importance de la segmentation des appareils choisie.

Parmi ces différentes méthodes d'estimation de la réduction des émissions proposées dans le tableau V.4., 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 facteurs d'émission font cependant aujourd'hui l'objet de remises en question sur leur représentativité en conditions réelles (Collet, 2016). Les facteurs d'émissions « probabilistes » (scénarii III et IV) constituent ainsi une alternative dont l'utilisation se développe dans les travaux scientifiques, et ils sont particulièrement intéressants à considérer dans notre étude, en vue de la comparaison avec des mesures réelles en atmosphère libre (cf section suivante).

La Figure V.4 représente les réductions d'émission moyennes par logement et leurs incertitudes relatives, pour 2 scénarios : l'un avec les FEs de l'Ademe (scénario I) l'autre avec les FEs « probabilistes » (scénario IV). On observe que les incertitudes relatives sont beaucoup plus faibles dans le scénario I que dans le scénario IV. C'est davantage les FE qui font varier les résultats à l'échelle d'un logement que les données manquantes ou le PCI. Mais encore une fois, les densités de probabilité des facteurs d'émissions reposent cependant sur un nombre restreint de mesures et sont donc incertaines. Ainsi, la réduction des émissions de  $PM_{10}$  liée à l'opération du Fonds 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 en 2015.

L'effectif des appareils renouvelés et la réduction moyenne de  $PM_{10}$  annuelle associée estimés dans les mailles d'1km sur le territoire du PPA représenté sur la Figure V.4 ont été confrontés aux valeurs obtenues dans les mailles où sont situés les 3 sites de mesures. Dans les 2 cas, les mailles où aucun appareil n'a été renouvelé n'ont pas été comptabilisées. Par rapport à l'ensemble du territoire du PPA, le site de mesure de Passy est situé là où le nombre d'appareils non-performants renouvelés dans le cadre de l'opération du Fonds Air Bois est le plus important (35 appareils dans la



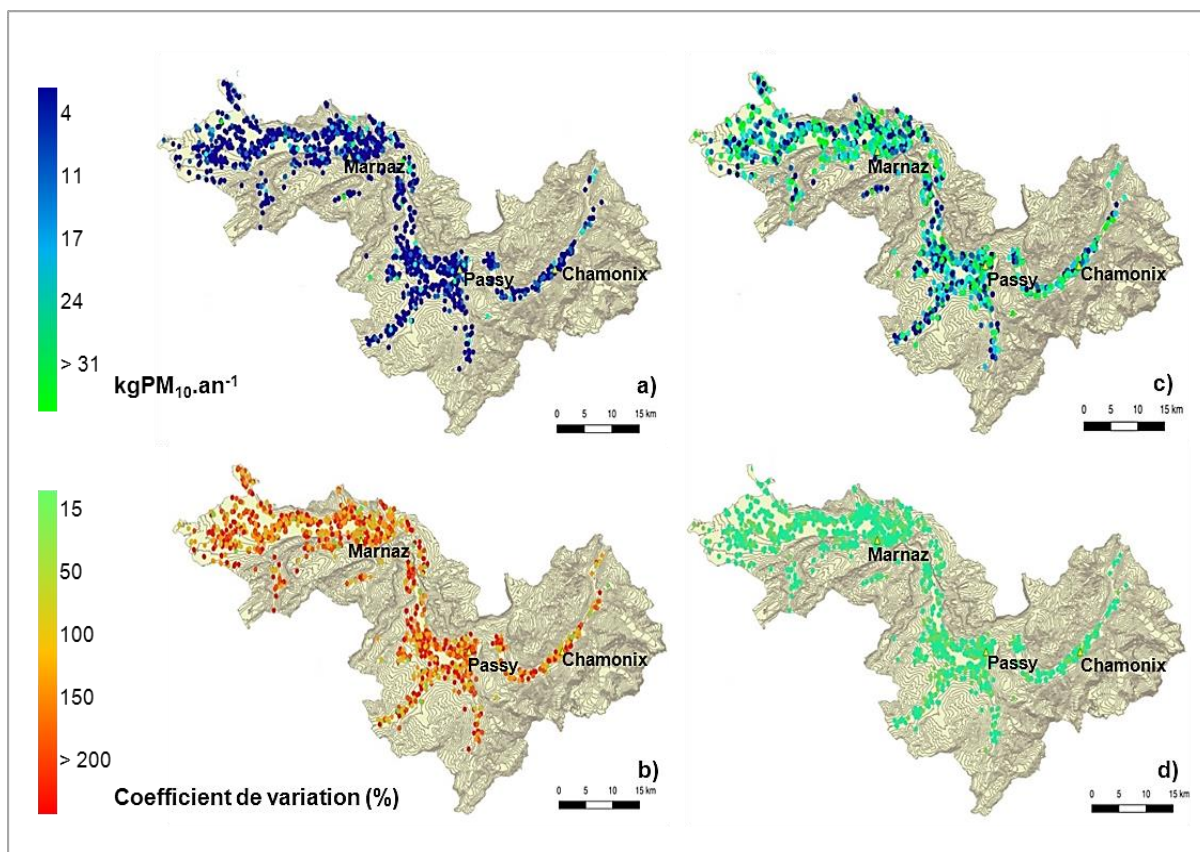


Figure V.4: Réduction des émissions liées au renouvellement des appareils et leurs incertitudes relatives (coefficient de variation) pour a) et b) les FE « probabilistes » et les consommations avec le nouvel appareil avec un fort « effet rebond » ( $\text{Cancien} * f_{\text{cgt.util}} * f_{\text{rdt}}$ ) et pour c) et d) les FE de l'ADEME et les consommations avec le nouvel appareil ( $\text{Cancien} * f_{\text{cgt.util}}$ )

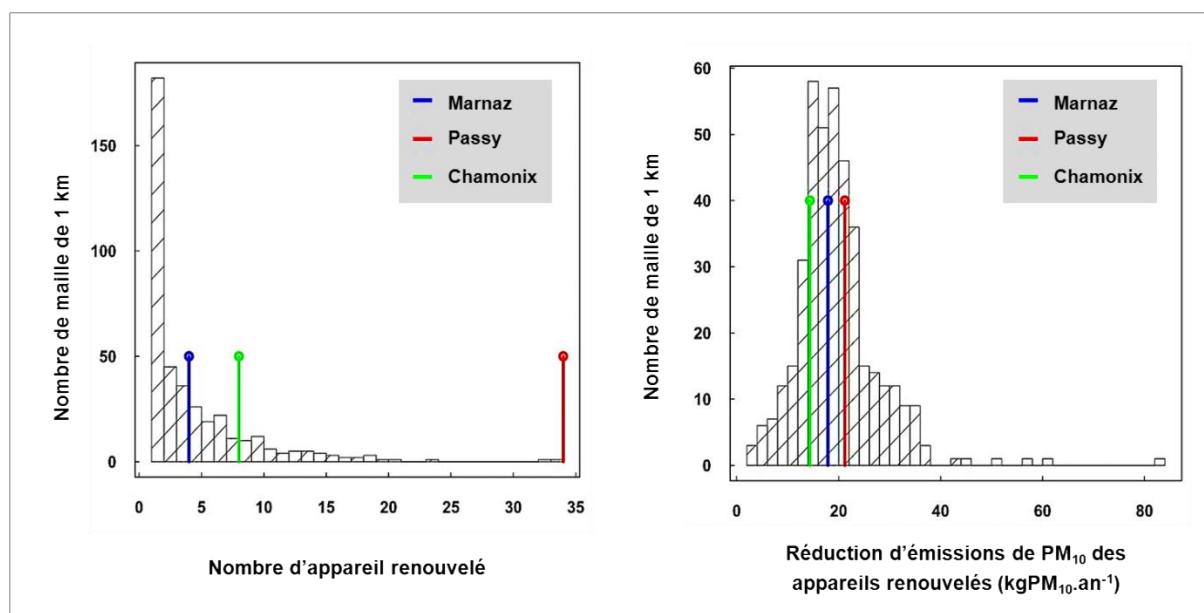


Figure V.5: Distribution du nombre d'appareil renouvelé et de la réduction d'émissions de  $\text{PM}_{10}$  associées moyennes calculées avec le scénario I (FE ADEME) dans les mailles d'1km représentées sur la Figure V.4, avec indication du nombre d'appareil renouvelés et de la réduction d'émissions de  $\text{PM}_{10}$  moyenne dans les mailles où sont situés les sites de mesures de Marnaz, Passy, et Chamonix.



maille d'1km). Les sites de Marnaz et Chamonix sont situés dans des zones où le nombre d'appareils renouvelés (4 et 8, respectivement, dans les mailles d'1km carré) sont proche de l'effectif moyen de remplacement par maille (4,6 remplacements). Cependant, du point de vue de la réduction des émissions de PM<sub>10</sub> estimée selon le scénario de calcul I (méthode la plus similaire à celle employée pour le dimensionnement du Fonds Air Bois), les 3 sites se situent dans des zones où les réductions moyennes de PM<sub>10</sub> des appareils renouvelés sont proches de la réduction moyenne par maille (20,3 kgPM<sub>10</sub>.an<sup>-1</sup>). Ainsi, avec cette dernière méthode d'estimation des émissions, les sites de mesure semblent être représentatifs de la réduction moyenne de PM<sub>10</sub> des appareils renouvelés dans le cadre du Fonds Air Bois, dans les zones où des appareils ont été remplacés.

## **2. Mise en regard de l'évolution des concentrations de PM<sub>10wb</sub> dans des conditions atmosphériques similaires avec celles des émissions estimées autour des sites de mesures**

Avant de comparer les évolutions des concentrations et des émissions au cours des 4 hivers, 3 points sont à considérer :

- l'aire 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,
- les émissions de PM<sub>10</sub> provenant des appareils, autres que ceux de l'opération du Fonds Air Bois (ancien et nouveau),
- la pertinence de comparer des émissions estimées sur la période entière de la saison de chauffe avec des concentrations mesurées lors de conditions atmosphériques similaires, supposant que les émissions évoluent sur les 4 hivers de façon proportionnelle selon chaque type de conditions atmosphériques.

Pour la comparaison, ce sont les évolutions des concentrations de PM<sub>10wb</sub> déterminées lors des conditions atmosphériques « Dispersion » qui vont être employées. En effet, seule cette classe de condition atmosphérique permet de pouvoir comparer l'évolution des concentrations sur les 3 sites. Sur le site de Chamonix, ces jours présentent des Degrés Jours Unifiés (DJU) moyens de 16,0, 16,7, 17,0 et 15,5 lors des 4 hivers du programme, respectivement. Les DJU sont employés pour déterminer la rigueur climatique dans les statistiques de consommations énergétiques et représentent la quantité de chauffage nécessaire par rapport à la température extérieure. Les DJU des conditions de « Dispersion » sont supérieurs au DJU moyen déterminé sur les périodes de chauffe de 2002 à 2016 (avec une valeur de 13,2, cf Annexe 11) mais peuvent être considérés statistiquement comme homogènes entre les 4 hivers (p-value > 0.20, test de Mann-Whitney). La relation proportionnelle entre le DJU et les émissions journalières liées au chauffage n'a jamais été montrée et peut poser question dans le cas du chauffage au bois, du fait d'une utilisation importante en chauffage d'appoint. Afin de ne pas rajouter d'incertitudes supplémentaires, les émissions annuelles estimées à climat moyen n'ont pas été « corrigées » avec les DJU dans cette étude.

### **2.1. Influence de l'aire de représentativité sur l'évolution des réductions de PM<sub>10</sub> des appareils renouvelés estimés**

L'aire de représentativité des stations de type Fonds Urbain est estimée entre 100 m et 2 km (EUROAIRNET, 1998). Elle est cependant difficile à évaluer en conditions réelles. 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, ainsi que 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 champ de vent, température, pression sont très généralement nécessaires à l'échelle horaire comme données d'entrée de ces modèles, données dont nous ne disposons pas dans cette étude.

Ainsi, l'aire de représentativité a été considérée comme circulaire, simplification également employé dans d'autres études (Chow, et al. 2006). 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 Figure V.6), 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 pentes obligeant généralement les flux d'air à s'écouler dans le sens des vallées.



Figure V.6: Représentation d'une aire circulaire de rayon 1km autour du site de mesure de Chamonix.

L'influence de ce choix sur les émissions estimées a été analysés selon 2 cas, dont les détails sont rapportés en Annexe 13 :

- 1) **Cas 1 (test de sensibilité)** : les émissions de  $PM_{10}$  issues des appareils de chauffage au bois ont été estimées en fonction d'un *rayon représentatif de 500 m ou d'1 km*, 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.

Les données de champ 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 de dispersion gaussien avec des hypothèses simplificatrices, et essentiellement pour des conditions atmosphériques de type « Dispersion ». Une différence moyenne de seulement 6% a été trouvée entre les évolutions au cours des hivers selon les différentes aires de représentativité. Par la suite, le rayon définissant l'aire de représentativité des sites de mesures a été imposé à 1 km, aire pour laquelle les résultats se

rapprochent le plus en moyenne des évolutions des concentrations de PM<sub>10wb</sub> pour les jours dits de « Dispersion » au cours des hivers.

## 2.2. Estimation des émissions de PM<sub>10wb</sub> des appareils hors Fonds Air Bois autour des sites de mesures

Pour estimer les émissions de PM<sub>10</sub> provenant de l'ensemble des appareils de chauffage au bois situés dans les aires de rayon 1 km autour des sites de mesures, les résultats de l'enquête ADEME-BVA ayant servi à dimensionner l'opération ont été utilisés. Le Tableau V.5 répertorie le nombre d'appareil, selon leur type, présent dans les résidences principales et secondaires des 3 communautés de communes (CC) où sont situés les sites de mesure.

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

Tableau V.5 : 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 (ADEME 2013).

A partir de ces parcs, des hypothèses doivent être posées pour pouvoir estimer et désagréger spatialement les émissions :

- Le nombre d'appareils par classe de performances a été segmenté selon le mode d'usage de l'appareil (base / appoint) et 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 répartie de façon homogène selon la densité de population de la CC,
- Les émissions estimées pour les appareils hors ceux du « Fonds Air Bois » sont considérées 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 (ADEME 2013b) et des facteurs d'émissions correspondant respectivement aux scénarii I et IV (FE Ademe et « probabilistes », respectivement). Ces deux scénarii de calcul ont été sélectionnés pour la comparaison des évolutions émissions/concentrations car le 1<sup>er</sup> correspond à la méthode la plus proche de celle employée pour le dimensionnement du Fonds Air Bois, et le 2<sup>ème</sup>, à la réduction des émissions de PM<sub>10</sub> des appareils renouvelés la plus faible calculée. Le Tableau V.6 récapitule les émissions estimées pour les appareils hors FAB autour des stations selon ces 2 méthodes de calcul.

| 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 kgPM <sub>10</sub> .an <sup>-1</sup> provenant des appareils hors FAB sur la CC                             | Scén. I : 111174<br>Scén. VI : 86046 | Scén. I : 160138<br>Scén. IV : 123135 | Scén. I : 49167<br>Scén. IV : 37090 |
| Emissions en kgPM <sub>10</sub> .an <sup>-1</sup> provenant des appareils hors FAB dans un rayon de 1km autour des sites | Scén. I : 978<br>Scén. VI : 721      | Scén. I : 5697<br>Scén. IV : 2886     | Scén. I : 1022<br>Scén. IV : 549    |
| Nombre d'appareils du Fonds Air Bois situés dans un rayon de 1 km autour des sites                                       | 44                                   | 81                                    | 20                                  |

Tableau V.6 : Récapitulatif des éléments ayant permis d'estimer les émissions de PM<sub>10</sub> provenant des appareils de chauffage au bois hors appareils du Fonds Air Bois. Les émissions de PM<sub>10</sub> ont été estimées à partir des consommations moyennes de bois du rapport ADEME (2013), d'une valeur PCI de 1570 kWh/stère et des facteurs d'émissions de l'ADEME (Scénario I) ou « probabilistes » (Scénario IV) (voir Tableau V.3). 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.

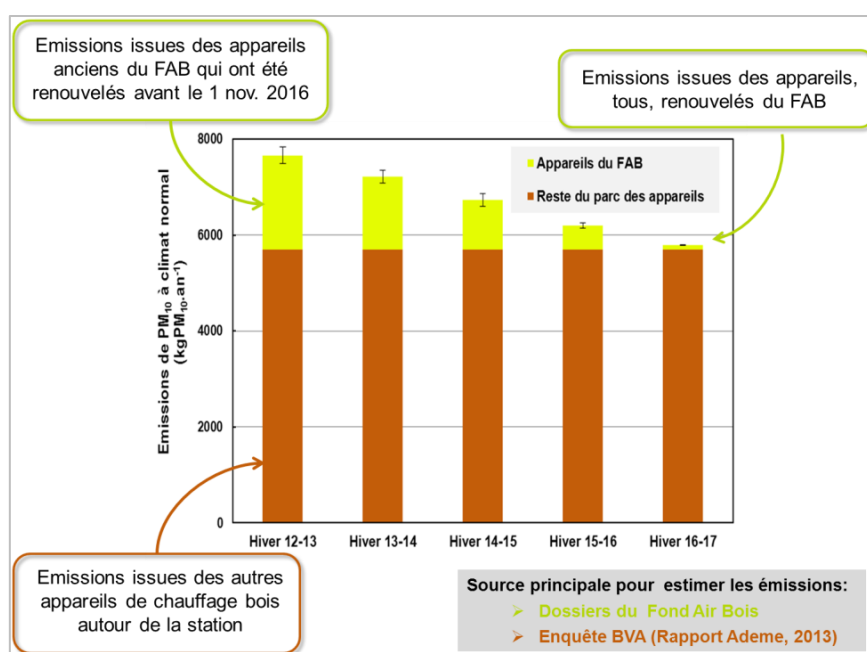


Figure V.7 : Evolutions des émissions liées aux appareils de chauffage au bois autour du site de mesure de Passy avant (hiver 2012-2013) et durant l'opération du FAB à climat normal en kgPM<sub>10</sub>.an<sup>-1</sup>. Les émissions ont été estimées à partir des FE de l'Ademe (Scénario I).

La Figure V.7 représente les émissions de  $PM_{10wb}$  provenant des appareils hors FAB et des appareils du FAB au niveau 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 12. Les émissions de  $PM_{10wb}$  issues des appareils du Fonds Air bois correspondent à 48%, 26% et 25% des émissions totales de  $PM_{10wb}$  estimées avant le remplacement des appareils dans un rayon de 1km autour des stations de Marnaz, Passy, et Chamonix respectivement. Lorsque l'on considère les émissions estimées à partir des FEs « probabilistes » et du scénario de calcul IV pour les émissions issues des appareils du Fonds Air Bois, ces dernières représentent respectivement 35%, 23%, et 23% des émissions totales de  $PM_{10wb}$  estimées autour des stations. La variation quantifiée des émissions de  $PM_{10wb}$  entre les hivers est donc fortement dépendante des émissions de  $PM_{10wb}$  provenant d'appareils de chauffage au bois hors Fonds Air Bois, pour lesquelles nous ne disposons pas de beaucoup de données pour l'estimation à fine échelle.

### 2.3. Résultats de la comparaison entre émissions et concentrations

La Figure V.8 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 IV.

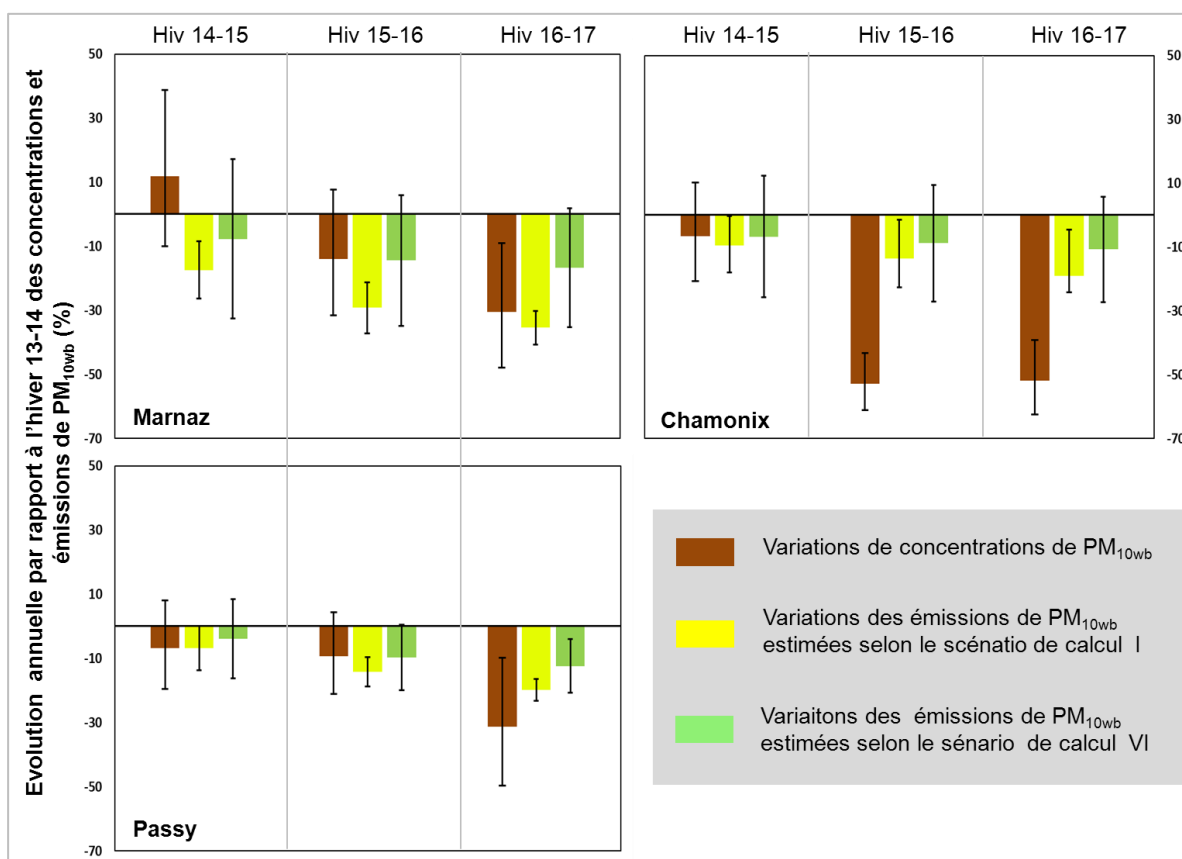


Figure V.8 : Evolutions (en %) des émissions liées aux appareils de chauffage au bois autour des sites de mesures et des concentrations de  $PM_{10wb}$  pour des journées de type « Dispersion », en référence au 1er hiver du programme (hiver 13-14). Les évolutions des émissions estimées à partir des 2 méthodes sont représentées, constituant un intervalle des résultats possibles. Un intervalle de confiance 95% est représenté pour chacune. Pour les émissions, seules les incertitudes provenant des émissions liées aux appareils du Fonds Air Bois ont pu être comptabilisées.

Globalement, les estimations de l'évolution des émissions correspondent à celles des concentrations de  $PM_{10wb}$  pour les journées de type « Dispersion » pour les sites de Marnaz et Passy avec les incertitudes quantifiées. Elles sont par contre très inférieures sur le site de Chamonix pour les hivers 15-16 et 16-17 (20% de variation estimée pour les émissions entre le 4ème et le 1er 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 Fonds Air Bois autour de la station, qui seraient encore moins réalistes sur ce site par rapport aux 2 autres.

Les incertitudes sur les variations des émissions estimées sont importantes et proviennent majoritairement de celles sur les émissions des  $PM_{10}$  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 et des ateliers de menuiserie, extrêmement nombreux sur certaines zones du PPA. Les installations et renouvellements qui n'ouvraient 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 d'une CC est discutable puisque les appareils de chauffage au bois sont davantage retrouvés dans les maisons plutôt que les appartements (Plejdrup, et al. 2016). C'est notamment le cas pour le 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.

De même, et comme déjà discuté dans le chapitre 4, l'évolution des concentrations de  $PM_{10wb}$  présente des incertitudes provenant et de la méthode de quantification (avec un ratio  $PM_{10wb}/BC_{wb}$  constant les 4 hivers, alors que le profil chimique des  $PM_{10}$  tend à se modifier), et de l'imprécision de la classification des conditions atmosphériques (avec des variations de température pour une même classe selon les hivers, par exemple). Seule la classe de Dispersion permet une comparaison sur les 4 hivers en raison d'une relative homogénéité des conditions atmosphériques (notamment cette température) au sein des classes au cours des hivers.

Ainsi, la comparaison des émissions estimées provenant des appareils de chauffage au bois au niveau des sites avec les concentrations de  $PM_{10wb}$  restera à améliorer. Dans le cas de l'estimation des émissions, une analyse de sensibilité sur les émissions de  $PM_{10}$  estimées pourrait être effectuée en employant les données des parcs d'appareils communaux annuels établis par Atmo-AuRA ou en testant différentes méthodes de désagrégation spatiale et temporelle. De façon générale, les incertitudes sur les émissions de  $PM_{10wb}$  liées aux appareils du Fonds 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. Ceci permettrait également d'améliorer les connaissances sur la variabilité journalière des émissions de  $PM_{10wb}$  qui semble également être la combinaison d'un part comportementale des utilisateurs et de facteurs météorologiques et environnementaux.

La quantification des concentrations de  $PM_{10wb}$ , après plusieurs années de programme de renouvellement d'appareil pourrait être consolidée avec une nouvelle étude PMF qui permettrait de valider sur le long terme le dispositif de mesure mis en place dans le cadre d'autres évaluations d'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  $PM_{10wb}$ .

### 3. Conclusion

Ce chapitre était dédié à déterminer les paramètres permettant de comparer les évolutions de concentrations de  $PM_{10wb}$  mesurées dans des conditions atmosphériques similaires avec les émissions issues du chauffage au bois résidentiel. Cet exercice très complexe pouvait être tenté ici grâce aux données locales précises des appareils renouvelés provenant des dossiers du FAB et de la quantification des concentrations atmosphériques des  $PM_{10}$  issues de la combustion de la biomasse.

L'incertitude sur la réduction des  $PM_{10}$  des appareils renouvelés a été évaluée par différents scénarios de calcul avec des simulations probabilistes. Cette méthode a permis d'évaluer l'impact sur l'estimation des réductions des émissions de  $PM_{10}$  (i) des données manquantes, (ii) des consommations déclarées pour l'ancien appareil, (iii) de la variabilité des facteurs d'émissions, et (iv) des hypothèses concernant les consommations avec le nouvel appareil. A climat normal, le remplacement de 1903 appareils non-performants conduit à une réduction des émissions estimées entre 12 et 38 tonnes de  $PM_{10}$  par an, représentant de 4 à 12% des émissions totales des  $PM_{10}$  issues du chauffage au bois résidentiel. L'utilisation de facteurs d'émissions aléatoires est de loin, le paramètre faisant varier le plus les résultats. Les densités de probabilités de ces facteurs ont été déterminées à partir des résultats d'études publiées utilisant la même méthode de mesure des facteurs d'émissions (tunnel de dilution). Par rapport aux facteurs d'émissions des inventaires d'émissions réglementaires, ces facteurs ont été établis sur plus de résultats de mesures et prennent en compte le large intervalle de variation trouvé entre ces résultats pour un même type d'appareil. Ils constituent ainsi une première approche vers des facteurs d'émissions plus représentatifs des conditions réelles.

L'analyse de plusieurs tests sur l'impact de l'aire de représentativité des sites de mesures sur l'évolution des émissions estimées a été réalisée en variant le rayon de cette aire ou en utilisant un modèle de dispersion gaussien à hypothèses simplifiées. Une aire de représentativité circulaire de 1 km a ainsi été proposée comme la plus réaliste, avec le peu de données météorologiques de fine échelle à disposition (notamment les mesures de vent). Les émissions provenant des appareils hors Fonds Air Bois ont été estimées à partir des résultats de l'enquête ménage sur laquelle a été dimensionnée l'opération. Elles représentent la plus grande source d'incertitude sur l'estimation des émissions totales, d'une part, parce que de nombreuses hypothèses ont dû être employées pour les estimer dans un rayon de 1 km autour des sites de mesures, et d'autre part parce qu'elles représentent 50 à 75% des émissions totales de  $PM_{10wb}$  estimées autour des sites de mesures.

En définitive, malgré l'ensemble de ces incertitudes, les évolutions estimées des émissions mais et celles des concentrations de  $PM_{10wb}$  mesurées présentent une tendance similaire sur les 4 années du programme DECOMBIO.



## Conclusion générale

La combustion de la biomasse constitue une source d'émissions fortement contributrice aux concentrations de  $PM_{10}$  en hiver, même sur des sites de fond urbain situés en plaine. Afin de réduire les émissions de cette source, un programme de très large envergure de renouvellement d'appareils de chauffage au bois non-performant, le Fonds Air Bois a été lancé depuis 2013 dans la vallée de l'Arve. Ce programme est très probablement le plus ambitieux jamais conduit en Europe. L'évaluation de son effet sur les concentrations atmosphériques constitue de ce fait un enjeu pour les futures politiques de gestion de la qualité de l'air. Le programme PRIMEQUAL DECOMBIO (2013-2018) a été proposé afin de mettre en place des méthodologies permettant d'évaluer l'impact de cette opération sur les concentrations de  $PM_{10}$ . Ce programme DECOMBIO, qui a servi de cadre à ce travail de thèse, s'est appuyé sur la confrontation durant 4 hivers des mesures en continu des  $PM_{10}$  issus de la combustion de la biomasse (noté  $PM_{10wb}$ ), des conditions météorologiques, et des variations d'émissions liées au renouvellement des appareils. Pour répondre à cet enjeu, le 1<sup>er</sup> objectif de cette thèse était de développer une méthode permettant de prendre en compte l'influence des conditions atmosphériques sur les concentrations hivernales de  $PM_{10}$ . Le second objectif concernait la détermination des paramètres et facteurs d'incertitudes permettant d'estimer les variations d'émissions de  $PM_{10wb}$  liées au remplacement des appareils au niveau des sites de mesures.

D'importantes bases de données de mesures chimiques et météorologiques constituées durant les 4 hivers (2013-14 à 2016-17) au niveau de 3 sites ont été utilisées. Les sites retenus correspondent à des stations de type fond urbain du réseau de surveillance de la qualité de l'air d'Atmo-AuRA représentant les différentes zones de la vallée. Dans un premier temps, la quantification des concentrations des  $PM_{10wb}$  a reposé, pour chaque site, sur le suivi en continu du carbone suie issu de la combustion de la biomasse et l'application d'un facteur de conversion obtenu sur la base d'un profil chimique des  $PM_{10}$ , en faisant l'hypothèse de facteurs constants sur les 4 hivers. Le suivi de la composition chimique globale des  $PM_{10}$  (spéciation chimique matière carbonée, fraction ionique) ainsi que les marqueurs des émissions de la combustion de la biomasse par prélèvements sur filtres a permis d'évaluer la pertinence de l'utilisation de facteurs constants pour la quantification des  $PM_{10wb}$ . Dans un second temps, l'état de la stabilité thermique de l'atmosphère, paramètre essentiel pour déterminer les épisodes d'inversions thermiques, a été suivi en continu grâce à un système peu onéreux de capteurs de température sous abris installés le long des pentes. Ce système non standardisé a fait l'objet d'une validation par comparaison à des mesures issues de radiosondages et d'un Lidar provenant de la campagne Passy-2015 (Paci, et al. 2016) pilotée par Météo-France et le laboratoire LEGI. Finalement, les données techniques issues des dossiers de renouvellements des appareils pour bénéficier de l'aide financière du Fonds Air Bois nous ont été communiquées permettant de temporaliser et spatialiser les réductions des émissions de  $PM_{10wb}$  estimées provenant de ces remplacements d'appareils.

Les conditions météorologiques des hivers 2013-14 à 2016-17 ont été assez différentes, avec notamment des situations anticycloniques de longue durée lors de l'hiver 2016-17. Les conditions météorologiques locales dans ces vallées encaissées sont le facteur premier conditionnant les concentrations atmosphériques. Leur variabilité interannuelle rend donc impossible une comparaison pertinente des concentrations moyennes au cours des hivers. Une classification des conditions atmosphériques a alors été établie, permettant de s'affranchir de cette variabilité et de comparer les concentrations pour des conditions atmosphériques similaires entre les différents hivers. L'innovation de cette approche repose d'une part sur la prise en compte du degré d'influence de variables météorologiques et de paramètres liés à l'intensité des émissions, et d'autre part sur l'utilisation d'une variable météorologique liée à la stratification des basses couches de l'atmosphère. Cette méthode, basée sur le couplage de l'algorithme Random Forest (pour quantifier l'influence relative des variables

sur les concentrations) et de 2 algorithmes de clustering (pour évaluer le degré d'appartenance des journées aux différents clusters), pourrait directement être applicable à d'autres sites d'étude.

Néanmoins, l'application de cette classification à l'évaluation de l'impact des remplacements d'appareils sur les concentrations atmosphériques présente des limites. Pour plusieurs classes de conditions atmosphériques, certaines variables météorologiques notamment la température et le  $\Delta T$  (indice de l'état de stabilité atmosphérique) diffèrent entre les hivers, fragilisant la représentativité de la comparaison des concentrations. C'est le cas de la classe dite « Inversion » correspondant aux journées de fortes inversions thermiques et de concentrations de  $PM_{10}$  les plus élevées, pour laquelle on observe l'essentiel des dépassements du seuil réglementaire des concentrations journalières. Une analyse plus approfondie des conditions météorologiques synoptiques et locales de ces épisodes sur une plus longue série temporelle permettrait d'étudier si la dynamique de ces épisodes présente des variabilités attribuables à certains paramètres météorologiques. En plus de permettre éventuellement d'établir une classification plus fine de ces épisodes d'inversions pour comparer les mesures de concentrations entre les hivers pour les journées les plus problématiques vis-à-vis de la qualité de l'air, ces connaissances permettraient d'améliorer la prévision des épisodes de pollution.

On a pu montrer que les profils chimiques des  $PM_{10}$  entre les hivers et les différentes classes météorologiques restent globalement similaires aux profils chimiques mesurés lors du 1<sup>er</sup> hiver, quand une caractérisation chimique détaillée avait permis par une analyse PMF de quantifier la contribution de la source de la combustion de la biomasse aux  $PM_{10}$  entre 60 et 75%. Ainsi, la source de combustion de la biomasse reste prédominante sur les concentrations de  $PM_{10}$  au bout du 4<sup>ème</sup> hiver et après le remplacement de 1 932 appareils non-performants (17% des appareils non-performants estimés sur le territoire). Cependant, des diminutions graduelles des contributions des différents marqueurs de la combustion de la biomasse (lévoglucosan, méthoxyphénols, HAPs) à la matière carbonée au cours des hivers sur les 3 sites ont été mises en évidence. Ces diminutions sont fortement attribuables au renouvellement des appareils non-performants par des appareils avec des conditions de combustion améliorées. Ainsi, le programme de renouvellement des appareils induit une modification de la composition chimique de la matière carbonée des PM atmosphériques, et en particulier pour des espèces chimiques présentant des impacts sanitaires comme les HAP. Ce phénomène a aussi pour conséquence d'augmenter l'incertitude sur les déterminations des concentrations estimées de  $PM_{10wb}$  au fur et à mesure des hivers. Toutefois, seule une nouvelle analyse PMF pourrait permettre de diminuer ce facteur d'incertitude, en permettant de déterminer un nouveau ratio  $PM_{10wb}/BC_{wb}$ . Une telle étude pourrait être intéressante pour l'évaluation de futurs Fonds Air Bois basés sur le suivi des concentrations de  $BC_{wb}$  avec un aethalomètre.

Les analyses de la composition chimique des  $PM_{10}$ , plus nombreuses sur le site de Passy, ont permis de montrer que les évolutions des différents marqueurs de la combustion de la biomasse (OC, lévoglucosan,  $BC_{wb}$ ) présentaient des diminutions significatives au cours des hivers pour les conditions « Dispersion ». Dans le même temps, les concentrations de sulfates, ammonium et nitrates, seconde fraction constitutive des  $PM_{10}$  en hiver, présentent des tendances non significatives. Ce résultat montre assez clairement que la tendance à la baisse des traceurs de combustion de biomasse n'est pas un artefact statistique, mais est liée à la réduction des émissions. Pour cette classe de « Dispersion », des diminutions moyennes de 9%, 10%, et 19% par hiver des concentrations de  $PM_{10wb}$  sont ainsi observées au bout des 4 hivers sur les sites respectivement de Marnaz, Passy, et Chamonix. Sur le site de Passy où les concentrations entre les hivers ont pu être comparées pour les autres classes de conditions atmosphériques, une diminution moyenne des  $PM_{10wb}$  de 21% est observée entre le 1<sup>er</sup> et le 4<sup>ème</sup> hiver. Lors du 1<sup>er</sup> et du 4<sup>ème</sup> hiver, les journées de la classe « Inversion » présentent une stabilité thermique ( $\Delta T$ ) similaires mais avec des températures inférieures lors du 4<sup>ème</sup> hiver (de l'ordre de 2°C en moyenne sur Passy). Malgré ces conditions plus défavorables pour la qualité de l'air lors du 4<sup>ème</sup> hiver, une diminution des concentrations de  $PM_{10wb}$  est observée entre le 1<sup>er</sup> et le 4<sup>ème</sup> hiver sur les 3 sites (de l'ordre de 20% à Chamonix et 30% à Passy et Marnaz) qui ne peut s'expliquer que par les variations des conditions météorologiques. Par rapport, aux programmes ayant permis un renouvellement ou une suppression d'au-moins 30% de l'ensemble

des appareils de chauffage au bois dans des sites fortement impactés par cette source d'émissions, les diminutions de concentrations de  $PM_{10wb}$  observées dans la vallée de l'Arve sont élevées avec le renouvellement de 17% des appareils non-performants. Plusieurs hypothèses peuvent être formulées pour expliquer ce phénomène (site de mesure au niveau de nombreux appareils renouvelés, renouvellement en dehors de l'opération Fond Air Bois, etc.) qui ne peuvent être précisées qu'en s'intéressant, en parallèle, à l'évolution des émissions de  $PM_{10wb}$ .

La connaissance de données précises sur les appareils anciens et nouveaux du Fonds Air Bois, ainsi que celles provenant d'enquêtes ménages sur les pratiques et utilisations du chauffage au bois dans la vallée de l'Arve ont permis l'évaluation des réductions d'émission de  $PM_{10}$  avec le renouvellement des appareils. Nous avons surtout pu développer une approche des incertitudes associées à ces estimations, en prenant en compte les principaux paramètres affectant les émissions. A notre connaissance, cette analyse est la 1<sup>ère</sup> à quantifier l'influence des différents facteurs d'incertitudes de la quantification des émissions du chauffage au bois sur la réduction totale estimée des  $PM_{10}$ . Le remplacement de 1 903 appareils non performants (1,5% des dossiers n'ont pu être pris en compte) conduit à une réduction d'émissions de 12 à 38 tonnes de  $PM_{10}$  par an à climat normal, représentant 4 à 12% des émissions de  $PM_{10}$  du chauffage au bois résidentiel total estimées par Atmo-AuRA sur le territoire étudié.

En variant les hypothèses concernant les consommations avec le nouvel appareil (prise en compte d'effet rebond), ou encore l'emploi de facteurs d'émissions (FE) des inventaires réglementaires ou ceux introduits sous forme de densité de probabilité à partir de FE publiés, il peut exister une différence allant jusqu'à un facteur 3 pour l'estimation de la réduction des émissions de  $PM_{10wb}$ . Parmi les facteurs d'incertitudes, l'emploi des différents jeux de données sur les facteurs d'émissions est le plus critique. Les facteurs d'émissions des inventaires réglementaires se réfèrent principalement à des études en conditions de laboratoire et des efforts sont encore à produire afin de déterminer des facteurs d'émissions plus représentatifs des conditions réelles. Pour cela, une meilleure connaissance des paramètres comportementaux prépondérants sur les facteurs d'émissions permettrait de pouvoir investiguer le comportement moyen des utilisateurs, et ainsi décrire des conditions de combustion moyenne réelle plus « représentatives ».

La spatialisation des estimations des réductions d'émissions de  $PM_{10}$  a permis de montrer que les sites de mesures, bien que situés dans des zones où de nombreux appareils ont été renouvelés dans le cadre du Fonds Air Bois, sont représentatives de la réduction moyenne des  $PM_{10}$  des appareils renouvelés. Sur la base du peu de données météorologiques disponibles à fine échelle (notamment pour le vent), une aire de représentativité des sites de mesures de 1 km de rayon a été déterminée représentant la zone où un changement d'appareil peut impacter les mesures de concentrations.

L'estimation des émissions provenant des appareils de chauffage au bois, hors Fonds Air Bois, dans les aires de représentativité des sites de mesures a également été nécessaire afin de pouvoir comparer l'évolution des émissions de  $PM_{10wb}$  estimée avec celle des concentrations de  $PM_{10wb}$  mesurée lors de conditions atmosphériques de type « Dispersion ». Les incertitudes sur cette estimation, établie à partir de la seule connaissance des parcs d'appareils à l'échelle des communautés de communes avant l'opération du Fonds Air Bois, sont particulièrement critiques pour le résultat des évolutions comparées. Les émissions de ce parc représentent en effet de 50 à 75% des émissions de  $PM_{10wb}$  estimées autour des sites de mesures. En comparant l'évolution des émissions totales de  $PM_{10}$  liées au chauffage au bois résidentiel estimé sur la période entière de chauffe avec celle des concentrations de  $PM_{10wb}$  mesurées lors de conditions de « Dispersion », une tendance similaire de diminution au cours des hivers est observée, mais avec une amplitude moindre dans le cas des émissions estimées.

Les émissions totales de  $PM_{10wb}$  estimées souffrent en effet de nombreuses incertitudes qui pourraient peut-être être appréhendées par une analyse en faisant varier les méthodes de désagrégation spatiales et temporelles des émissions existantes, ainsi que les données de parcs

d'appareils (inventaire ATMO-AuRA). Cependant, une comparaison robuste des émissions et des concentrations mesurées semble ne pouvoir faire l'abstraction de l'emploi d'un modèle de dispersion en raison du nombre important de paramètres à prendre en compte pour effectuer cette comparaison.

Ainsi, au terme de ce travail de thèse et du programme DECOMBIO, nous avons été à même de développer et de valider plusieurs outils méthodologiques (utilisation de capteurs le long des pentes, classification météorologique adaptée à la qualité de l'air, estimation des incertitudes sur les émissions de parc de dispositifs de chauffage au bois). Ces bases solides nous ont permis de mieux comprendre les mesures réalisées sur les PM atmosphériques, et leurs liens avec les estimations des émissions. De nombreux champs restent cependant à explorer, et en particulier les processus entrant en jeu lors des épisodes de forte inversion de température, qui sont ceux conduisant aux dépassements des normes de qualité de l'air.

## Références bibliographiques

- ADEME. (2002). Classification et critères d'implantation des stations de surveillance de la qualité de l'air. Rapport ADEME, 63 p.
- ADEME. (2012). Le chauffage au bois labellisé Flamme Verte dans l'habitat individuel. Dossier de presse, 10 p.
- ADEME. (2013a). Enquête sur les Pratiques et utilisation du chauffage au bois dans la Vallée de l'Arve- Etude réalisée par l'Institut BVA. Rapport ADEME, convention n°1262c0002, 62 p.
- ADEME. (2013b). Etude sur le chauffage domestique au bois: marchés et approvisionnement. Rapport ADEME, 87 p.
- ADEME. (2015). Biomasse et qualité de l'air: Elaboration 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- Issu du projet "Biomasse et qualité de l'air (BIOMQA) du programme. Rapport ADEME, convention n°13c0042, 46 p.
- ADEME. (2015a). Caractérisation technique et segmentation du parc des appareils de chauffage domestique au bois en maison individuelle. Rapport ADEME, 93 p.
- ADEME. (2015b). Chiffres-Clés Climat Air et Energie. 214 p.
- Aiken, A., DeCarlo, P., Kroll, J., Worsnop, D., Huffman, J., Docherty, K., . . . Alfarra, M. (2008). O/C and OM/OC Ratios of Primary, Secondary, and Ambient Organic Aerosols with High-Resolution Time-of-Flight Aerosol Mass Spectrometry. *Environmental Science & Technology*, 42, 4478-4485.
- AirPACA. (2017). Qualité de l'air dans le cadre de la mise en service de la L2. Etude AirPACA, disponible sur [airpaca.org](http://airpaca.org), consulté le 11/05/18.
- Alastuey, A., Querol, X., Aas, W., Lucarelli, F., Perez, N., Moreno, T., . . . al, e. (2016). Geochemistry of PM10 over Europe during the EMEP intensive measurement periods in summer 2012 and winter 2013. *Atmos. Chem. Phys. Discuss*, 1-37.
- Al-Hawamdah, M. (2012). Random Forest. Consulté le 26/06/2018, sur [slideshare.net/m80m07/random-forest-128129001011](http://slideshare.net/m80m07/random-forest-128129001011)
- Allibe, B. (2009). Modélisation des consommations d'énergie du secteur résidentiel français à long-terme-Amélioration du réalisme comportemental et scénarios volontaristes. Thèse de l'Ecole des Hautes Etudes en Sciences Sociales.
- 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), 101, 692-700.
- Amarillo, A. C., & Carreras, H. (2016). Quantifying the influence of meteorological variables on particle-bound PAHs in urban environments. *Atmospheric Pollution Research*, 7, 597-602.
- Amato, F., Alastuey, A., Karanasiou, A., Lucarelli, F., Nava, S., Calzolari, G., . . . Colombi, C. (2015). AIRUSE-LIFE+: a harmonized PM speciation and source apportionment in 5 Southern European cities. *Atmos. Chem. Phys. Discuss.*, 15, 23989-24039.
- Amodeo, T. (2018). Guide méthodologique pour la mesure du "Black Carbon" par aethalometre multi-longueur d'onde AE33 dans l'air ambiant. Rapport LCSQA, 36 p.
- Anastasio, C., & Martin, S. (2001). Atmospheric nanoparticles. *Reviews in Mineralogy and Geochemistry*, 44, 293-349.
- AQEG. (2013). Linking Emission Inventories and Ambient Measurements . Report of Air Quality Expert Group, disponible sur [uk-air.defra.gov.uk](http://uk-air.defra.gov.uk), 114 p.

- Arduini, G., Staquet, C., & Chemel, C. (2016). Interactions between the night-time valley-wind system and a developing cold-air pool. *Boundary- Layer Meteorology*, 161, 49-72.
- Atmo-AuRA. (2011). Réalisation d'une enquête relative aux moyens de chauffage utilisés en Vallée de l'Arve (hiver 2010-2011). Rapport Air-APS, 40 p.
- Atmo-AuRA. (2014). Calage des modèles d'aérodynamique sur le sillon alpin. Rapport disponible sur [atmo-auvergnerhonealpes.fr](http://atmo-auvergnerhonealpes.fr), 52 p.
- Atmo-AuRA. (2016). Méthode d'élaboration de l'inventaire des émissions atmosphériques en Rhône-Alpes. 40 p.
- Atmo-AuRA. (2017a). Evaluation du PPA de la vallée de l'Arve (2011-2016). Rapport disponible sur [atmo-auvergnerhonealpes.fr](http://atmo-auvergnerhonealpes.fr), 99 p.
- Atmo-AuRA. (2017b). Méthode d'élaboration de l'inventaire des émissions atmosphériques en Auvergne-Rhône-Alpes. Rapport disponible sur [atmo-auvergnerhonealpes.fr](http://atmo-auvergnerhonealpes.fr), 45 p.
- Aulinger, A., Matthias, V., & Quante, M. (2011). An Approach to temporally disaggregate Benzo(a)pyrene Emissions and their application to a 3D Eulerian Atmospheric Chemistry Transport Model. *Water Air and Soil Pollution*, 216, 643-655.
- Aung, T., Jain, G., Sethuraman, K., Baumgartner, J., Reynolds, C., Grieshop, A., . . . Brauer, M. (2016). Health and Climate-Relevant Pollutant Concentrations from a Carbon-finance approved cookstove intervention in rural india. *Environmental Science & Technology*, 50, 7228-7238.
- Aymoz, G., Jaffrezo, J., Chapuis, D., Cozic, J., & Maenhaut, W. (2007). Seasonal variation of PM10 main constituents in two valleys of the French Alps. I: EC/OC fractions. *Atmos. Chem. Phys.*, 7, 661-675.
- Baeza, A., & Marano, F. (2007). Pollution atmosphérique et maladies respiratoires, un rôle central pour le stress oxydant. *Médecine/Sciences*, 23, 75-99.
- Bärfver, L. (2008). Particles from biomass combustion- Characteristics and influence of additives. Thesis of Chalmers University of Technology.
- Baid, U., Talbar, S., & Talbar, S. (2017). Comparative study of K-means, Gaussian Mixture Model, Fuzzy C-means algorithms for Brain Tumor Segmentation. *International Conference on Communication and Signal Processing-2016*, (592-597).
- Baillargeon, S. (2012). Prêtatement de données en R. Université Laval.
- Banta, R. M., Mahrt, L., Vickers, D., Sun, J., Balsley, B. B., Pichugina, Y. L., & Williams, E. J. (2007). The very stable boundary layer on nights with weak low-level jets. *Journal of the atmospheric sciences*, 64, 3068-3089.
- Barnpadinos, I., Hueglin, C., J., K., Henne, S., & Prévôt, A. (2011). Influence of meteorology on PM10 trends and variability in Switzerland from 1991 to 2008. *Atmos. Chem. Phys.*, 11, 1813-1835.
- Barth, M., Stuart, A., & Skamarock, W. (2001). Numerical simulations of the July 10 stratospheric-tropospheric experiment: radiation, aerosols, and ozone/deep convection storm: redistribution of soluble tracers. *J. Geophys. Res.*, 106, 12381-12400.
- Barth, T. (2012). Vers une observation inter-disciplinaire des phénomènes naturels sur les bassins versants de montagne: Hydrogéologie à coût limité du bassin du Vorz (Massif de Belledone, Isère). *Sciences de la Terre*. Thèse de l'Université Grenoble-Alpes.
- Basagna, X., Triguero-Mas, M., Agis, D., Pérez, N., Reche, C., Alastuey, A., & Querol, X. (2018). Effect of public transport strikes on air pollution levels in Barcelona (Spain). *Science of the Total Environment*, 610, 1076-1082.

- Bauer, H., Schueller, E., Weinke, G., Berger, A., Hitzemberger, R., Marr, I., & 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., Pernigotti, D., Karagulian, F., Pirovano, G., Larsen, B., Gerboles, M., & Hopke, P. (2015). A new methodology to assess the performance and uncertainty of source apportionment models in intercomparison exercises. *Atmospheric Environment*, 119, 35-44.
- Belusic, A., Herceg-Bulic, I., & Klacic, Z. B. (2015). Using a generalized additive model to quantify the influence of local meteorology on air quality in Zagreb. *Geofizika*, 32, 45-77.
- Bergauff, M., Ward, T., Noonan, C., & Palmer, C. (2009). The effect of a wood-stove changeout on ambient levels of PM<sub>2.5</sub> and chemical tracers for woodsmoke in Libby, Montana. *Atmospheric Environment*, 43, 2938-2943.
- Berrueta, V., Serrano-Medrano, M., Garcia-Bustamente, C., Astier, M., & Masera, O. (2017). Promoting sustainable local development of rural communities and mitigating climate change: the case of Mexico's Patsari improved cookstove project. *Climate Change*, 140:63-77.
- Bertrand, A. (2017). Vieillissement atmosphérique de l'aérosol de combustion de biomasse: du potentiel de formation d'aérosol organique secondaire à la modification de l'empreinte chimique à l'échelle moléculaire. Thèse de l'Université Aix-Marseille.
- Bertrand, A., Stefenelli, G., Bruns, E., Pieber, S., Temime-Roussel, B., Slowik, J. G., . . . 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.
- Bertrand, A., Stefenelli, G., Jen, C., Pieber, S., Bruns, E., Temime-Roussel, B., . . . Marchand, N. (2018). Evolution of the chemical fingerprint of biomass burning organic aerosol during aging. *Atmos. Chem. Phys. Discuss.*, in review.
- Besombes, J., Carteret, M., Golly, B., Brulfert, G., Collet, S., Rogauze, C., & Y., R. (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, p. 149 p.
- Besombes, J., Cozic, J., Duval, M., Hulin, A., Jaffrezo, J., Pakulic, C., . . . Racher, A. (2011). Particul'Air: Etude inter-régionale de la pollution particulaire en zone rurale. Rapport final ADEME, 168 p.
- Besombes, J., Sylvestre, A., Francony, J., Provent, A., Oliveier, P., Vidaud, R., & Brulfert, G. (2017). Evaluation des impacts sur la qualité de l'air des actions de modernisation du parc d'appareils de chauffage au bois à Lanslebourg. Rapport final provisoire ADEME .
- Biernacki, C. (2009). Pourquoi les modèles de mélange pour la classification? *Revue MODULAD*, 40, 1-22.
- Bieser, J., Aulinger, A., Matthias, V., Quante, M., & Builtjes, P. (2010). SMOKE for Europe-adaptation, modification and evaluation of a comprehensive emission model for Europe. *Geosci. Model Dev. Discuss.*, 3, 949-1007.
- Birch, M., & Cary, R. (1996). Elemental carbon-based method for monitoring occupational exposures to particulate diesel exhaust. *Aerosol Science and Technology*, 25,221-241.
- Bizjak, T. (2016). Model sensitivity for determining the sources of black carbon to the selected input parameters. University of Nova Gorica-Thesis, Slovenian, 130 p.
- Bobbia, M., Cori, A., & de Fouquet, C. (2008). Représentativité spatiale d'une station de mesure de la pollution atmosphérique. *Pollution Atmosphérique*, 197, 63-75.



- 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, Part 1: Pellet Stoves. *Energy & Fuels* 25, 397-314.
- Bond, T., Doherty, S., Fahey, D., Forster, P., Berntsen, T., DeAngelo, B., . . . Zhang, S. (2013). Bounding the role of black carbon in the climate system: A scientific assessment. *J. Geophys. Res. Atmospheres*, 118, 5380-5552.
- Bond, T., Strretts, D., Yarber, K., Nelson, S., Woo, J.-H., & Klimont, Z. (2004). A technology-based global inventory of black and organic carbon emissions from combustion. *J. Geophys. Res.*, 109, D14203.
- Bonvalot, E., Tuna, T., Fagault, Y., Jaffrezo, J., 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.
- Borge, R., Lumberras, J., Pérez, J., de la Paz, D., Vedrenne, M., de Andrés, J., & Rodriguez, M. (2014). Emission inventories and modelling requirements for the development of air quality plans. Application to Madrid (Spain). *Science of Total Environement*, 466, 809-819.
- Bourcier, L., Masson, O., Laj, P., Chausse, P., Pichon, J., Paulat, P., . . . Sellegri, K. (2012). A new method for assessing the aerosol to rain chemical composition relationships. *Atmospheric Research*, 118, 295-303.
- Breiman, L. (2001). Random forests. *Machine learning*, 45((1), 5-32.
- Brisepierre, G. (2013). Analyse sociologique de la consommation d'énergie dans les bâtiments résidentiels et tertiaires: Bilan et perspectives. Rapport ADEME, 51 p.
- Burshtein, N., Lang-Yona, N., & Rudich, Y. (2011). Ergosterol, arabitol and mannitol as tracers for biogenic aerosols in the eastern Mediterranean. *Atmos. Chem. Phys.*, 11, 829-839.
- Buseck, P., & Adachi, K. (2008). Nanoparticles in the atmosphere. *Elements*, 4, 389-394.
- Calas, A., Uzu, G., Martins, J., Houdier, S., Thomas, F., Molton, F., . . . Jaffrezo, J. (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*.
- Callas, A. (2017). Pollution atmosphérique particulière: développement de méthodologies non-invasives et acellulaires pour l'évaluation de l'impact sanitaire. Thèse de l'Université Grenoble-Alpes.
- Carslaw, D., & Taylor, P. (2009). Analysis of air pollution data at amixed source location using boosted regression trees. *Atmospheric Environment*, 43, 3563-3570.
- Cassagne, E., Pottier, A., Guillam, M., Martin, S., & Segala, C. (2015). Projet ARVE-PRE2A: Suivi du changement d'équipements de de l'évolution des pratiques liées à la combustion de biomasse dans le cadre du "PPA de l'Arve": attitudes et facteur d'adhésion, perception et représentation de la qualité de l'air. Rapport intermédiaire ADEME- 99 p.
- Cassou, C. (2004). Du changement climatique aux régimes de temps: l'oscillation nord-atlantique. *La Météorologie*, 45, 21-32.
- Cavalli, F., Viana, M., Yttri, K., Genberg, J., & Putaud, J. (2010). Toward a standardised thermal-optical protocol for measuring atmospheric organic and elemental carbon: the EUSAAR protocol. *Atmos. Meas. Tech.*, 3, 79-89.
- Cayla, J., Allibe, B., & Laurant, M. (2010). From Practices to Behaviors: Estimating the Impact of Household Behavior on Space Heating Energy Consumption. ACEEE Summer Study on Energy Efficiency in Buidings. Pacific Grove, Etats-Unis.

- Cesari, D., Donateo, A., Conte, M., Merico, E., Giangreco, E., Giangreci, A., & Contini, D. (2016). An inter-comparison of PM<sub>2.5</sub> at urban and urban background sites: Chemical characterization and source apportionment. *Atmospheric Research*, 174, 106-109.
- CGDD-SDES. (2017). Bilan de la qualité de l'air en France en 2016 et principales tendances observées sur la période 2000-2016. *Datalab*, 26, 28 p.
- Charron, A., Harrison, R., Moorcroft, S., & Booker, J. (2004). Quantitative interpretation of divergence between PM<sub>10</sub> and PM<sub>2.5</sub> mass measurement by TEOM and gravimetric (Partisol) instruments. *Atmospheric Environment*, 38, 415-423.
- Chemel, C., Arduini, G., Staquet, C., Langeron, Y., Legain, D., Tzanos, D., & Paci, A. (2016). Valley heat deficit as a bulk measure of wintertime particulate air pollution in the Arve River Valley. *Atmospheric Environment*, 128, 208-215.
- Cheng, Y., & Li, Y. (2010). Influences of Traffic Emissions and meteorological conditions on ambient PM<sub>10</sub> and PM<sub>2.5</sub> Levels at a Highway Toll Station. *Aerosol and Air Quality Research*, 10, 456-462.
- Cheng, Y., He, K.-b., Du, Z.-y., Zheng, M., Duan, F.-k., & Ma, Y.-l. (2015). Humidity plays an important role in the PM<sub>2.5</sub> pollution in Beijing. *Environmental Pollution*, 197, 68-75.
- 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 Grenoble-Alpes.
- Choisnel, E. (2001). L'homme et les climats. *La Météorologie*, 35, 36-47.
- Chow, J., Anthony Chen, L., Watson, J., Lowenthal, D., Magliano, K., Turkiewicz, K., & Lehrman, D. (2006). PM<sub>2.5</sub> chemical composition and spatiotemporal variability during the California Regional PM<sub>10</sub>/PM<sub>2.5</sub> Air Quality Study (CRPAQS). *Journal of Geophysical Research*, 111, D10S04.
- Chow, J., Lowenthal, D., Chen, L., Wang, X., & Watson, J. (2015). Mass reconstruction methods for PM<sub>2.5</sub>: a review. *Air Quality, Atmosphere and Health*, 8, 243-263.
- Cimini, D., De Angelis, F., Dupont, J.-C., Pal, S., & Haeffelin, M. (2013). Mixing layer retrievals by multichannel microwave radiometer observations. *Atmos. Meas. Tech.*, 6, 2941-2951.
- CITEPA. (2018). OMINEA- Organisation et méthodes des inventaires nationaux des émissions atmosphériques en France. 15ème édition, 878 p.
- Colette, A., Andersson, C., Manders, A., Mar, K., Mircea, M., Pay, M.-T., . . . Fagerli, H. (2017). EURODELTA-Trends, a multi-model experiment of air quality hindcast in Europe over 1990-2010. *Geoscientific Model Development*, 10, 3255-3276.
- Collaud Coen, M., Praz, C., Haeefe, A., Ruffieux, D., Kaufmann, P., & Calpini, B. (2014). Determination and climatology of the planetary boundary layer height above the Swiss plateau by in situ and remote sensing measurements as well as by the COSMO-2 model. *Atmos. Chem. Phys.*, 14, 13205-13221.
- Collet, S. (2016). Détermination de facteurs d'émission de polluants des foyers domestiques alimentés au bois. Rapport ADEME, 77 p.
- Contini, D., Gambaro, A., Donateo, A., Cescon, P., Cesari, D., Merico, E., . . . Citron, M. (2015). Inter-annual trend of the primary contribution of ship emissions to PM<sub>2.5</sub> concentrations in Venice (Italy): Efficiency of emissions mitigation strategies. *Atmospheric Environment*, 102, 183-190.
- COST. (2005). Session AW8 - Weather Types Classifications. Proceedings from the 5th Annual Meeting of the European Meteorological Society, EUR 22594.
- 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*, 15, 2246-2356.

- Czernecki, B., Polrolniczak, M., Kolendowicz, L., Marosz, M., Kendzierski, S., & Pilguy, N. (2017). Influence of the atmospheric conditions on PM10 concentrations in Poznan, Poland. *Journal of Atmospheric Chemistry*, 74, 115-139.
- Dall'Osto, M., Harrison, R., Coe, H., & Williams, P. (2009). Real-time secondary aerosol formation during a fog event in London. *Atmos. Chem. Phys.*, 9, 2459-2469.
- DDT\_Haute-Savoie. (2017). Trafic routier 2016. pp. inforoute74.fr, consulté le 23 avril 2018.
- de Franceschi, M., & Zardi, D. (2009). Study of wintertime high pollution episodes during Brenner-South ALNAP measurement campaign. *Meteorology and Atmospheric Physics*, 103, 237-250.
- Delmas, R., Mégie, G., & Peuch, V. (2005). *Physique et chimie de l'atmosphère*. Paris: Belin.
- Demain, E. (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. Rapport, 202 p.
- Demuzere, M., Triogo, R., Vila-Guerau de Arellano, J., & van Lipzig, N. (2009). The impact of weather and atmospheric circulation on O3 and PM10 in mid-latitude site. *Atmos. Chem. Phys.*, 9, 2695-2714.
- Deng, H., & Runger, G. (2013). Gene selection with guided regularized random forest. *Pattern Recognition*, 46, 3483-3489.
- Denier van der Gon, H., Bergström, R., Fountoukis, C., Johansson, C., Pandis, S., Simpson, D., & Visschedijk, A. (2015). Particulate emissions from residential wood combustion in Europe-revised estimates and an evaluation. *Atmos. Chem. Phys.*, 15, 6503-6519.
- Denier van der Gon, H., Hendriks, C., Kuenen, J., Segers, A., Visschedijk, & A. (2011). Description of current temporal emission patterns and sensitivity of predicted AQ for temporal emission patterns. EU FP7 MACC, ECMWF, UK.
- Destais, G. (2017). Variables explicatives de la consommation de chauffage dans l'habitat: les leçons de l'analyse d'une copropriété sur données journalières". *Développement durable et territoires*, 8, 2.
- DGEC. (2017). Plan national de réduction des émissions de polluants atmosphériques (PREPA).
- Doran, J., Fast, J., & Horel, J. (2002). The VTMX 2000 campaign. *Bull. Ame. Meteorol. Soc.*, 83, 537-551.
- Douguedroit, A., & Santignon, M. (1984). Les gradients de température et de précipitations en montagne. *Revue de Géographie Alpine*, 72, 225-240.
- Drinovec, L., Mocnik, G., Zotter, P., Prévôt, A., Ruckstuhl, C., Coz, E., . . . Hansen, A. (2015). The "dual-spot" Aethalometer: an improved measurement of aerosol black carbon with real-time loading compensation. *Atmos. Meas. Tech.*, 8, 1965-1979.
- Du, C., Liu, S., Yu, X., Li, X., Chen, C., Peng, Y., . . . Wang, F. (2013). Urban boundary layer height characteristics and relationship with particulate matter mass concentrations in Xi'an, Central China. *Aerosol and Air Quality Research*, 13: 1598-1607.
- Dumas, D., & Rome, S. (2009). Les températures dans les alpes du Nord: influence de l'altitude et évolution depuis 1960. *Geographica Technica Numéro spécial*, 145-150.
- Duro, D., Franklin, S., & Dubé, M. (2012). Multi-scale object-based image analysis and feature selection of multi-sensor earth observation imagery using random forests. *International Journal of Remote Sensing*, 33, 4502-4526.
- ECOMESURE. (2014). Analyseur de poussières- TEOM FDMS. Disponible sur [ecomasure.com](http://ecomasure.com) (consulté le 05/06/18).
- Eder, B., Davis, J., & Bloomfield, P. (1994). An automated classification scheme designed to better elucidate the dependence of ozone on meteorology. *Journal of Applied Meteorology*, 33, 1182-1197.

- EEA. (2016). Technical guidance to prepare national emission inventories. Air pollution emission inventory guidebook, 28 p.
- EEA. (2017). Air pollutant emission inventory guidebook 2016. Guidebook EMEP/EAA, Small combustion, 196 p.
- EEA. (2017). Air quality in Europe. EEA Report.
- Eisenbud, M. (1978). Environment, technology, and Health; human ecology in historical perspective. New York University Press.
- El Haddad, I., Marchand, N., Dron, J., Termime-Roussel, B., Quivet, E., Wortham, H., . . . Gille, G. (2009). Comprehensive primary particulate organic characterization of vehicular exhaust emissions in France. *Atmospheric Environment* 43, 6190-6198.
- Escrig, A., Monfort, E., Celades, I., Querol, X., Amato, F., Minguillon, M., & Hopke, P. (2009). Application of Optically Scaled Target Factor Analysis for Assessing Source Contribution of ambient PM10. *Journal of the Air & Waste Management Association*, 59, 1296-1307.
- EUROAIRNET. (1998). Site selection . Technical Report n°16\_EPA, 54 p.
- Fachinger, F., Drewnick, F., Gieré, R., & Borrmann, S. (2017). How the user can influence particulate emissions from residential wood and pellet stoves: Emission factors for different fuels and burning conditions. *Atmospheric Environment*, 158, 216-226.
- Favez, e. a. (2016). Bilan des travaux 2014-2015 du programme CARA. Rapport LCSQA-INERIS-DRC-16-152341-05992A, 75 p.
- Favez, O., El Haddad, I., Piot, C., Boréave, A., Abidi, E., Marchand, N., . . . 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.
- Favez, O., Salameh, D., & Jaffrezo, J. (2017). Traitement harmonisé de jeux de données multi-sites pour l'étude de sources de PM par Positiv Matrix Factorization (PMF). Rapport LCSQA, DRC-16-152341-07444A, 44 p.
- Ferrero, L., Castelli, M., Ferrini, B., Moscatelli, M., Perrone, M., Sangiorgi, G., . . . Cappelletti, D. (2014). Impact of black carbon aerosol over Italian basin valleys: high-resolution measurements along vertical profiles, radiative forcing and heating rate. *Atmos. Chem. Phys.*, 14, 9641-9664.
- 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. *Environment Science & Technology*, 36, 1442-1451.
- Fine, P., Cass, G., & Simoneit, B. (2004). Chemical Characterization of Fine Particle Emissions from the Fireplace Combustion of Wood Grown in the Midwestern and Western United States. *Environment Science & Technology*, 21, 387-409.
- Fortelli, A., Scafetta, N., & Mazzarella, A. (2016). Influence of synoptical and local atmospheric patterns on PM10 air pollution levels: a model application to Naples (Italy). *Atmospheric Environment*, 143, 218-228.
- Friedman, J. (2001). Greedy function approximation: a gradient boosting machine. *Annals of Statistics*, 29, 1189-1232.
- Fuller, G., Tremper, A., Baker, T., Yttri, K., & Butterfield, D. (2014). Contribution of wood burning to PM10 in London. *Atmospheric Environment*, 87, 87-94.
- Gaegauf, C., Wieser, U., & Macquat, Y. (2011). Field investigation of nanoparticle emissions from various biomass combustion systems. *Aerosols from Biomass Combustion, International Seminar*, (80-86).

- Galibert, G. (1960). L'évolution actuelle des "faces nord" de la haute montagne alpine dans le massif de Zermatt. *Revue géographique des Pyrénées et du Sud-Ouest. Sud-Ouest Européen*, 31-2, 133-163.
- 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.
- GBD. (2017). Global, regional, and national comparative risk assessment of 84 behavioral, environmental and occupational, and metabolic risks or clusters of risks, 1990-2016: A systematic analysis for the Global Burden of Disease. *The Lancet*, 390, 1345-1422.
- Geiss, A., Wiegner, M., Bonn, B., Schäfer, K., Forkel, R., von Schneidmesser, E., . . . Nothard, R. (2017). Mixing layer height as an indicator for urban air quality? *Atmos. Meas. Tech.*, 10, 2969-2988.
- GIEC. (2001). *Recommendations du GIEC en matière de bonnes pratiques et de gestion des incertitudes pour les inventaires nationaux*. Rapport du GIEC, Chapitre 6, 507 p.
- Giri, D., Krishna Murthy, V., & Adhikary, P. (2008). The influence of meteorological conditions on PM10 concentrations in Kathmandu valley. *International Journal Environment Research*, 2, 49-60.
- Glasius, M., Vikesøe, J., Bossi, R., Andersen, H., Holst, J., Johansen, E., & Schleicher, O. (2005). Dioxin, PAH og partikler fra brændevne. *Danmarks Miljøundersøgelser*.
- Golly, B. (2014). *Etude des sources et de la dynamique atmosphérique de polluants organiques particulaires en vallées alpines: apport de nouveaux traceurs organiques aux modèles récepteurs*. Thèse de l'Université Grenoble-Alpes.
- Golly, B., Brulfert, G., Berlioux, G., Jaffrezo, J., & Besombes, J. (2015). Large chemical characterisation of PM10 emitted from graphite material production: Application à source apportionment. *Science of the Total Environment*, 538, 634-643.
- Golly, B., Waked, A., Weber, S., Samaké, A., Jacob, V., Conil, S., . . . Jaffrezo, J. (2018). Chemical characterization of PM2.5 for the year 2013 at 5 rural background sites in France. Submitted to *Atmospheric Environment* on 24/04/2018.
- Goncalves, C., Alves, C., Evtugina, M., Mirante, F., Pio, C., Caseiro, A., . . . Carvalho, F. (2010). Characterisation of PM10 emissions from woodstove combustion of common woods grown in Portugal. *Atmospheric Environment*, 44, 4474-4480.
- Gottardi, F. (2009). *Estimation statistique et réanalyse des précipitations en montagne. Utilisation d'ébauches par types de temps et assimilation de données d'enneigement. Application aux grands massifs montagneux français*. Hydrologie. Thèse de l'Institut National Polytechnique de Grenoble.
- Grange, S., Carslaw, D., Lewis, A., Boleti, E., & Hueglin, C. (2018). Random forest meteorological normalisation models for Swiss PM10 trend analysis. *Atmos. Chem. Phys. Discuss*, 18, 6223-6239.
- 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.
- Gregori, P., Felip-Bardoli, J., & Gras, R. (2010). Imputation multiple de données manquantes par l'Analyse Statistique Implicative. *A.S.I 5 Proceedings* 5-7- November 2010.
- Guarnieri, M., & Balme, J. (2015). Outdoor air pollution and asthma. *The Lancet*, 383, 1581-1592.
- Guerreiro, C. B., Foltescu, V., & De Leeuw, F. (2014). Air quality status and trends in Europe. *Atmospheric Environment*, 98, 376-384.
- Guffond, V. (2015). *Evaluation du projet bois énAIRgie à Lanslebourg Mont-Cenis*. Rapport, 25 p.
- Hastie, T., & Tibshirani, R. (1990). *Generalized Additive Models*. Chapman & Hall/CRC.

- He, G.-X., Yu, C. W., Lu, C., & Deng, Q.-H. (2013). The influence of synoptic pattern and atmospheric boundary layer on PM10 and urban heat island. *Indoor and Built Environment*, 22, 796-807.
- 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.
- Honoré, C., Joly, F., Kimmerlin, C., Ghersi, V., Garnoussi, P., & Kauffmann, A. (2017). Evaluation a priori et suivi au fil du temps des impacts des politiques locales de réduction des émissions de polluants atmosphériques. *Pollution Atmosphérique*, p. 235.
- Hooyberghs, J., Mensink, C., Dumont, G., Fierens, F., & Basseur, O. (2005). A neural network forecast for daily average PM10 concentrations in Belgium. *Atmospheric Environment*, 39, 3279-3289.
- Hussain, K., Rahman, M., Prakash, A., Prasad Sarma, K., & Hoque, R. R. (2016). Atmospheric bulk deposition of PAHs over Brahmaputra Valley: Characteristics and influence of meteorology. *Aerosol and Air Quality Research*, 16, 1675-1689.
- Huth, R., Beck, C., Philipp, A., Demuzere, M., Ustrnul, Z., Cahynova, M., . . . Tveito, O. (2008). Classifications of Atmospheric Circulation patterns: recent advances and applications. *Annals of the New York Academy of Sciences*, 105-152.
- Immitzer, M., Atzberger, C., & Koukal, T. (2012). Tree species classification with Random Forest using very high spatial resolution 8-band Worldview-2 Satellite data. *Remote Sensing*, 4, 2661.
- Invernizzi, G., Ruprecht, A., Mazza, R., De Marco, C., Mocnick, G., Sioutas, C., & Westerdahl, D. (2011). Measurement of black carbon concentration as an indicator of air quality benefits of traffic restriction policies within the ecopass zone in Milan, Italy. *Atmospheric Environment*, 45, 3522-3527.
- Ionescu, A. (2013). Prévion statistique des concentrations de particules dans l'air: tour d'horizon des principaux outils mathématiques. *Pollution atmosphérique*, 217.
- Jaffrezo, J. (1987). Etude du lessivage des aérosols atmosphériques par les précipitations. Thèse de Chimie Organique. Université Paris 7.
- Jaffrezo, J., Aymoz, G., & Cozic, J. (2005). Size distribution of EC and OC in the aerosol of Alpine valleys during summer and winter. *Atmos. Chem. Phys.*, 5, 2915-2925.
- Jaffrezo, J., Besombes, J., Marchand, N., Mocnick, G., Brulfert, G., Chevrier, F., . . . Allard, J. (2018). DECOMBIO (DEconvoluiton de la contribution de la COMbustion de la BIOMasse aux PM10 dans la vallée de l'Arve). Rapport final provisoire ADEME.
- Jaffrezo, J., Chapui, D., Jacob, V., & al, e. (2005). P.O.V.A. (Pollution des Vallées Alpines). 45p: rapport ADEME.
- Jiang, W., Boltze, M., Groer, S., & Scheuven, D. (2017). Impacts of low emission zones in Germany on air pollution levels. *Transport Research Procedia*, 25, 3370-3382.
- Jing, B., Peng, C., Wang, Y., Liu, Q., Tong, S., Zhang, Y., & Ge, M. (2017). Hygroscopic properties of potassium chloride and its internal mixtures with organic compounds relevant to biomass burning aerosol particles. *Scientific Reports*, 7, 43572.
- Johansson, ,. L., Tullin, C., Leckner, B., & Sjövall, P. (2003). Particle emissions from biomass combustion in small combustors. *Biomass and Bioenergy*, 25, 435-446.
- Johnston, F., Hanigan, I., Henderson, S., & Morgan, G. (2013). Evaluation of interventions to reduce air pollution from biomass smoke on mortality in Launceston, Australia: retrospective analysis of daily mortality, 1994-2007. *BMJ*, 345, e8446.
- Johnston, O., Johnston, F., Todd, J., & Williamson, G. (2016). Community-Wide Distribution of a Catalytic Device to reduce winter ambient fine particulate matter from residential wood combustion: a field study. *PLoS ONE*, p. 11:e0166677.

- Jones, Z., & Linder, F. (2015). Exploratory Data Analysis using Random Forests. 73rd annual MPSA conference.
- 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.*, 102, 26861-26875.
- Kanakidou, M., Seinfeld, J., Pandis, S., Barnes, I., Dentener, F., Fachini, M., . . . Nielsen, C. o. (2005). Organic aerosol and global climate modelling: a review. *Atmos. Chem. Phys.*, 5, 1053-1123.
- Kaplan, J., Krumhardt, K., Ellis, E., Ruddiman, W., Lemmen, C., & Goldewijk, K. (2010). Holocene carbon emissions as a result of anthropogenic land cover change. *The Holocene*, 21, 775-791.
- Karaca, F., & Camci, F. (2010). Distant source contributions to PM10 profile evaluated by SOM based cluster analysis of air mass trajectory sets. *Atmospheric Environment*, 44, 892-899.
- Karagiannidis, A., Poupkou, A., Giannaros, T., Melas, D., & Argiriou, A. (2015). The air quality of a mediterranean urban environment area and its relation to major meteorological parameters. *Water Air Soil Pollution*, 2239, 226, 2239.
- Karagulian, A., Belis, C., Dora, C., Prüss-Ustün, A., S., B., Adair Rohani, H., & Amann, M. (2015). Contributions to cities ambient particulate matter (PM): a systematic review of local source contributions at global level. *Atmospheric Environment*, 120, 475-483.
- Karanasiou, A., Minguillon, M., Viana, M., Alastuey, A., Putaud, J., Maenhaut, W., . . . Kuhlbusch, T. (2015). Thermal-optical analysis for the measurement of elemental carbon (EC) and organic carbon (OC) in ambient air : a literature review. *Atmos. Meas. Tech. Discuss.* , 8(9), 9649-9712.
- 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.
- Keckhut, P., Borchi, F., Bekki, S., Hauchecorne, A., & Silaouina, M. (2006). Cirrus classification at Midlatitude from systematic lidar observations. *Journal of Applied Meteorology and Climatology*, 45, 249-257.
- Kim, Y. (2011). Air quality modeling: evaluation of chemical and meteorological parameterizations. Thèse de l'Université Paris-Est, Earth Sciences-English.
- Kirchstetter, T., Novakov, T., & Hobbs, P. (2004). Evidence that the spectral dependence of light absorption by aerosols is affected by organic carbon. *Journal of Geophysical Research: Atmospheres*, 109, D21208.
- Krishnapuram, R., Joshi, A., & Yi, L. (2002). A fuzzy relative of the k-medoids algorithm with application to web document and snippet clustering. *IEEE International Fuzzy Systems*.
- Kuenen, J., Visschedijk, A., Jozwicka, M., & Denier Van Der Gon, H. (2014). TNO-MACC II emission inventory; a multi-year (2003-2009) consistent high resolution European emission inventory for air quality modelling. *Atmos. Chem. Phys.*, 20, 10963-10976.
- Kukkonen, J., Partanen, L., Karppinen, A., Ruuskanen, J., Junninen, H., Kolehmainen, M., . . . Cawley, G. (2003). Extensive evaluation of neural network models for the prediction of NO2 and PM10 concentrations, compared with a deterministic modelling system and measurements in central Helsinki. *Atmospheric Environment*, 37, 4539-4550.
- Kursa, M., & Rudnicki, W. (2010). Feature Selection with the Boruta Package. *Journal of Statistical Software*, 26 (11), 36.
- Labranche, S. (2015). Brève introduction à la sociologie de l'énergie. *Ressource électronique encyclopedie-energie.org*.



- Lamarque, P., & Jourdain, S. (1994). Elaboration de longues séries climatologiques homogènes pour l'étude de l'évolution climatique. *La Météorologie*, 8, 61-68.
- Lamb, H. H. (1972). British Isles weather types and a register of daily sequence of circulation patterns 1871-1971. *Geophysical Memoir*, 116, HMSO, London, 85 p.
- Landreau, J., & Rogaume, C. (2016). QUALICOMB Réduction à la source des émissions issues du chauffage domestique au bois par usage de combustible de qualité. Rapport final ADEME, 122 p.
- Lareau, N., Crosman, E., Whiteman, C. D., Horel, J., Hoch, S. W., Brown, W., & Horst, T. (2013). The persistent cold-air pool study. *Bull. Ame. Meteorol. Soc.*, 94, 51-63.
- Largeroy, Y. (2010). Dynamique de la couche limite atmosphérique stable en relief complexe. Application aux épisodes de pollution particulaire des vallées alpines. *Océan, Atmosphère*. Thèse de l'Université Grenoble-Alpes.
- 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.
- LCSQA. (2017). Conception, implantation et suivi des stations françaises de surveillance de la qualité de l'air. Guide méthodologique, 107 p.
- Leroy, M. (2002). La mesure au sol de la température et des précipitations. *La Météorologie*, 39, 52-56.
- Leroy, M., & Lèches, G. (2014). Classification d'un site. Note Technique n°35B. Direction des Systèmes d'Observation.
- Lhotellier, R. (2005). Spatialisation des températures en zone de montagne alpine. *Géographie*. Thèse de l'Université Joseph Fourier-Grenoble.
- Li, Y., Chen, Q., Zhao, H., Wang, L., & Tao, R. (2015). Variations in PM10, PM2.5 and PM1.0 in an urban area of the Sichuan basin and their relation to meteorological factors. *Atmosphere*, 6, 150-163.
- Liang, P., Zhu, T., Fang, Y., Li, Y., Han, Y., Wu, Y., . . . Wang, J. (2017). The role of meteorological conditions and pollution control strategies in reducing air pollution in Beijing during APEC 2014 and Victory Parade 2015. *Atmos. Chem. Phys.*, 17, 13921-13940.
- Lianou, M., Chalbot, M.-C., Vei, I.-C., Kotronarou, A., Kavouras, I., Hoek, G., . . . Harrison, R. (2013). The impact of wind on particle mass concentrations in four European urban areas. *Global Nest*, 2, 188-194.
- Lillis, D., Cruz, C., Collett, J., Richards, L., & Pandis, S. (1999). Production and removal of aerosol in a polluted fog layer: model evaluation and fog effect on PM. *Atmospheric Environment*, 33, 4797-4816.
- Liu, Y., Yuan, B., Li, X., Shao, M., Lu, S., Li, Y., . . . Zhu, T. (2015). Impact of pollution controls in Beijing on atmospheric oxygenated volatile organic compounds (OVOCs) during the 2008 Olympic Games: observation and modeling implications. *Atmos. Chem. Phys.*, 15, 3045-3062.
- Lopez-Aparicio, S., Guevara, M., Thunis, P., Cuvelier, K., & Tarrason, L. (2017). Assessment of discrepancies between bottom-up and regional emission inventories in Norwegian urban areas. *Atmospheric Environment*, 154, 285-296.
- Mailler, S., Menut, L., Khvorostyanov, D., Valari, M., Couvidat, F., Siour, G., . . . Meleux, F. (2017). CHIMERE-2017: from urban to hemispheric chemistry-transport modelling. *Geoscience Model Development*, 10, 2397-2423.

- Malherbe, L., & Beauchamp, M. (2016 ). Guide méthodologique pour le calcul des statistiques relatives à la qualité de l'air. Rapport LCSQA, 88 p.
- Malherbe, L., Beauchamp, M., Bourin, A., & Sauvage, S. (2017). Analyse de tendances nationales en matière de qualité de l'air. Rapport final LCSQA, 111 p.
- Mallet, V. (2010). Introduction aux modèles de chimie-transport pour la qualité de l'air. Support de cours- Master SGE, INRIA-CEREA.
- Mathé, F. (2016). Conformité technique d'appareillages pour la surveillance réglementaire de la qualité de l'air. Note Technique LCSQA, 22p.
- Matthias, V., Arndt, J. A., Aulinger, A., Bieser, J., Van Der Gon, H. D., Kranenburg, R., . . . Quante, M. (2018). Modeling emissions for three-dimensional atmospheric chemistry transport models. *Journal of the Air & Waste Management Association*, 24, 1-38.
- McDonald, J., Zielinska, B., Fujita, E., Sagebiel, J., Chow, J., & Watson, J. (2000). Fine particle and gaseous emission rates from residential wood combustion. *Environment Science & Technology*, 34, 2080-2091.
- MEDDTL/DGALN/DHUP. (2004). Nouvel algorithme de calcul des consommations conventionnelles des logements pour la réalisation des diagnostics de performance énergétique. 83 p.
- MEEM. (2004). Note méthodologique sur l'évaluation des effets sur la santé de la pollution de l'air dans les études d'impact routières. Disponible sur [www2.developpement-durable.gouv.fr/IMG/pdf/note-methodo-airsante.pdf](http://www2.developpement-durable.gouv.fr/IMG/pdf/note-methodo-airsante.pdf).
- Michelot, N., Carrega, P., & Rouïl, L. (2015). Panorama de la modélisation de la dispersion atmosphérique. *Pollution Atmosphérique*, p. Numéro spécial. Consulté le 26/04/2018 sur [appanapc.fr](http://appanapc.fr).
- Morawska, L., Jayaratne, R., Mengersen, K. L., Jamriska, M., & Thomas, S. B. (2002). Differences in airborne particle and gaseous concentrations in urban air between weekdays and weekends. *Atmospheric Environment*, 36, 4375-4383.
- Morly, J., & Hazas, M. (2011). The signifiacnce of difference: understanding variation in households energy consumption. *EC EEE Proceedings*, (2037-2046).
- Mues, A., Kuenen, J., Hendriks, C., Manders, A., Segers, A., Scholz, Y., . . . Schaap, M. (2014). Sensitivity of air pollution simulations with LOTOS-EUROS to the temporal distribution of anthropogenic emissions. *Atmos. Chem. Phys.*, 14, 939-955.
- Nair, V. S., Moothy, K. K., Alappattu, D. P., Kunhikrishnan, P. K., George, S., Nair, P. R., . . . Reddy, R. (2007). Wintertime aerosol characteristics over the Indo-Gangetic Plain (IGP): Impacts of local boundary layer process and long-range transport. *Journal of Geophysical Research*, 112, D13205.
- Nidzgorska-Lencewicz, J., & Czarnecka, M. (2015). Winter weather conditions vs. air quality in Tricity, Poland. *Theoretical and Applied Climatology*, 119, 611-627.
- NILU. (2011). Delivrrable D2.2.2.1: source apportionment using receptor modelling: intercomparison accross cities and between methodologies. In: *TRANSPHORM- Transport related Air Polluiton and Health impacts*. 7th Framework Programme. ENV. 2009. 1.2.2.1.
- Noonan, C., Ward, T., Navidi, W., & Sheppard, L. (2012). A rural community intervention targetting biomass combustion sources: effects on air quality and reporting of children's respiratory outcomes. *Occupational and Environmental Medicine*, 69, 354-360.
- Nozière, B., Kalberer, M., Claeys, M., Allan, J., D'Anna, B., Decesari, S., . . . al., e. (2015). The Molecular Identification of Organic Compounds in the Atmosphere: State of the Art and Challenges. *Chemical Reviews*, 115, 3919-3983.
- 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.
- OMM. (2011). Guide des pratiques climatologiques. Temps-Climat-Eau, 152 p.
- Ouyang, W., Guo, B., Cai, G., Li, Q., Han, S., Liu, B., & Liu, X. (2015). The washing effect of precipitation on particulate matter and the pollution dynamics of rainwater in downtown Beijing. *Science of the Total Environment*, 505, 306-314.
- Paatero, P., & Tapper, U. (1994). Positiv matrix factorization: A non-negative factor model with optimal utilization of error estimates of data values. *Environmetrics*, 5, 111-126.
- Paci, A., Staquet, C., Allard, J., Barral, H., Canut, G., Cohard, J., . . . Legain, D. (2016). La campagne Passy-2015: dynamique atmosphérique et qualité de l'air dans la vallée de l'Arve. *Pollution Atmosphérique*, 231-232.
- Pal, S., Haefflin, M., & Batchvarova, E. (2013). Exploiting a geophysical process-based attribution technique for the determination of the atmospheric boundary layer depth using aerosol lidar and near-surface meteorological measurements. *Journal of Geophysical Research: Atmospheres*, 118, 9277-9295.
- Panday, A., & Prinn, R. (2009). Diurnal cycle of air pollution in the Kathmandu Valley, Nepal: Observations. *Journal of Geophysical Research*, 114, D09305.
- Papanastasiou, D. K., Melas, D., & Kioutsoukis, I. (2007). Development and assessment of neural network and multiple regression models in order to predict PM10 levels in a medium-sized Mediterranean City. *Water Air Soil Pollution*, 182, 325-334.
- Pastorello, C., Caserini, S., Galante, S., Dilara, P., & Galletti, F. (2011). Importance of activity data for improving the residential wood combustion emission inventory at regional level. *Atmospheric Environment*, 45, 2869-2876.
- Pateraki, S., Asimakopulos, D., Maggos, T., Flocas, H. A., & Vasilakos, C. (2010). The role of wind, temperature and relative humidity on PM fractions in a suburban mediterranean region. *Fresenius Environment Bulletin*, 19, 2013-2018.
- PCIT. (2012). Méthode d'élaboration des inventaires territoriaux des émissions atmosphériques. MEDDE-DGEC, Disponible sur [lcsqa.org/system/files/ressources/medde-dgrec-guide\\_methaodo-elaboration\\_inventaires-pcit-2012\\_vf.pdf](https://lcsqa.org/system/files/ressources/medde-dgrec-guide_methaodo-elaboration_inventaires-pcit-2012_vf.pdf).
- Pearce, J., Beringer, J., Nicholls, N., Hyndman, R. J., & Tapper, N. (2011). Quantifying the influence of local meteorology on air quality using generalized additive models. *Atmospheric Environment*, 45, 1328-1336.
- Peinke, I. (2015). Analysis of temperature inversions in the Passy Valley as inferred from wintertime Field Campaign. Master Thesis, Université Grenoble Alpes.
- Peren2Bois, a. 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, 47 p.
- Pernigotti, D., & Belis, C. (2018). DeltaSA tool for source apportionment benchmarking, description and sensitivity analysis. *Atmospheric Environment*, 180, 138-148.
- Pernin, J., Vrac, M., Crevoisier, C., & Chédin, A. (2016). Mixture model-based atmospheric air mass classification: a probabilistic view of thermodynamic profiles. *Advances in Statistical Climatology, Meteorology and Oceanography*, 2, 115-136.

- Petit, J., Favez, O., Sciare, J., Canonaco, F., Croteau, P., Mocnik, G., . . . 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.
- 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, 315-323.
- Petzold, A., Ogren, J., Fiebig, M., Laj, P., Li, S., Baltensperger, U., . . . Zhang, X. (2013). Recommendations for reporting "black carbon" measurements. *Atmos. Chem Phys*, 16, 8365-8379.
- Philipp, A., Bartholy, J., Beck, C., Erpicum, M., Esteban, P., Fettweis, X., . . . Spekat, A. (2010). Cost733cat- A database of weather and circulation type classifications. *Physics and Chemistry of the Earth*, 35, 360-373.
- Piersanti, A., Vitali, L., Righini, G., Cremona, G., & Ciancarella, L. (2015). Spatial representativeness of air quality monitoring stations: A grid model based approach. *Atmospheric Pollution Research*, 6, 953-960.
- Piot, C. (2011). Polluants atmosphériques organiques particulaires en Rhône-Alpes: caractérisation chimique et sources d'émissions. Thèse, Université de Grenoble, 294 p.
- 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*, 126, 200-210.
- PPA de la Vallée de l'Arve (2012). Plan de Protection de l'Atmosphère (PPA) de la Vallée de l'Arve. 70 pp.
- Posfai, M., Simonics, R., Li, J., Hobbs, P., & Buseck, P. (2003). Individual aerosol particles from biomass burning in southern Africa: 1. Compositions and size distributions of carbonaceous particles. *Journal of Geophysical Research*, 108, D13,8483.
- Pusede, S., Gentner, D., Wooldridge, P., Browne, E., Rollins, A., Min, K.-E., . . . St. Clair, J. (2014). On the temperature dependence of organic reactivity, nitrogen oxides, ozone production, and the impact of emission controls in San Joaquin Valley, California. *Atmos. Chem. Phys.*, 14, 3373-3395.
- Putaud, J. R., Van Dingenen, R., Brüggemann, E., Facchini, M., Decesari, S., Fuzzi, S., . . . Brink, H. (2004). A European aerosol phenomenology-2: chemical characteristics of particulate matter at kerbside, urban, rural and background sites in Europe. *Atmospheric Environment*, 38, 2579-2595.
- Putaud, J., Van Dingenen, R., Alastuey, A., Bauer, H., Birmili, W., Cyrus, J., . . . Kuhlbusch, T. (2010). A European aerosol phenomenology- 3: Physical and chemical characteristics of particulate matter from 60 rural, urban, and kerbsites across Europe. *Atmospheric Environment*, 44, 1308-1320.
- Querol, X., Alastuey, A., de la Rosa, J., Sanchez-de-la-Campa, A., Plana, F., & Ruiz, C. (2002). Source apportionment analysis of atmospheric particulates in an industrialised urban site in southwestern Spain. *Atmospheric Environment*, 36, 3113-3125.
- Querol, X., Alastuey, A., Pandolfi, M., Reche, C., Pérez, N., Minguillon, M., . . . Reina, F. (2014). 2001-2012 trends on air quality in Spain. *Science of the Total Environment*, 490, 957-969.
- Querol, X., Alastuey, A., Ruiz, C., Artinano, B., Hansson, H., Harrison, R., . . . Schneider, J. (2004). Speciation and origin of PM10 and PM2.5 in selected European cities. *Atmospheric Environment*, 38, 6547-6555.
- Rao, M., D'Elia, I., & Piersanti, A. (2018). An uncertainty quantification of PM2.5 emissions from residential wood combustion in Italy. *Atmospheric Pollution Research*, 9, 526-533.

- 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. Rapport n°03-0805/2A, 795 p.
- Reeves, H. D., Elmor, K., Manikin, G. S., & Stensrud, D. J. (2011). Assessment of forecasts during persistent valley cold pools in the Bonneville basin by the North American Mesoscale model. *Weather Forecasting*, 26, 447-467.
- Robinson, A., Donahue, N., Shrivasta, M., Weitkamp, E., Sage, A., Grieshop, A., . . . Pandis, S. (2007). Rethinking Organic Aerosols: Semivolatile Emissions and Photochemical Aging. *Science*, 315, 1259-1262.
- Robinson, A., Subramanian, R., Donahue, N., & Rogge, W. (2006). Source Apportionment of Molecular Markers and Organic Aerosol. Polycyclic Aromatic Hydrocarbons and Methodology for Data Visualization. *Environmental Science & Technology*, 40, 7803-7810.
- Rogge, W., Hildemann, L., Mazurek, M., Cass, G., & Simoneit, B. (1993). Sources of fine organic aerosol. Natural gas home appliances. *Environmental Science & Technology*, 27, 2736-2744.
- Rogge, W., Hildemann, L., Mazurek, M., Cass, G., & Simoneit, B. (1997). Sources of Fine Organic Aerosol. Boilers Burning. Distillate Fuel Oil. *Environmental Science & Technology*, 31, 2731-2737.
- Rost, J., Holst, T., Sähn, E., Klingner, M., & Anke, K. (2009). Variability of PM10 concentrations dependent on meteorological conditions. *International Journal of Environment and Pollution*, 36, 3-18.
- Rousseeuw, P. (1987). Silhouettes: a graphical aid to the interpretation and validation of cluster analysis. *Journal of Computational and Applied Mathematics*, 20, 53-65.
- Roustan, Y., Sartelet, K., Tombette, M., Debry, E., & Sportisse, B. (2010). Simulation of aerosols and gas-phase species over Europe with the Polyphemus system. Part II: Model sensitivity analysis for 2001. *Atmospheric Environment*, 44, 4219-4229.
- Russo, A., Trigo, R., Martins, H., & Mendes, M. (2014). NO<sub>2</sub>, PM<sub>10</sub>, O<sub>3</sub> urban concentrations and its association with circulation weather types in Portugal. *Atmospheric Environment*, 89, 768-785.
- Sabatier, T., Paci, A., Canut, G., Largeron, Y., Dabas, A., Donier, J.-M., & Douffet, T. (2018). Wintertime local wind dynamics from scanning doppler lidar and air quality in the Arve River Valley. *Atmosphere*, 9, 118.
- Salameh, D. (2015). Impacts atmosphériques des activités portuaires et industrielles sur les particules fines (PM<sub>2.5</sub>) à Marseille. Thèse de l'Université Aix-Marseille.
- Salameh, D., Weber, S., Favez, O., Riffault, V., Perdrix, E., Albinet, A., . . . Jaffrezo, J. (2018). A harmonized PM source apportionment at 15 different sites in France using a constrained PMF approach. *Atmosphere in progress*.
- Sandradewi, J., Prévôt, A., Szidat, S., Perron, N., Alfara, M., Lanz, V., . . . 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., 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.
- Sansone, M., Bressan, M., Pernigotti, D., Rossa, A., Ferrario, M., & Benassi, A. (2006). A multiple regression approach to forecasting PM<sub>10</sub> concentration in the city of Padua, Italy. Report of ARPAV (Agenzia Regionale per la Prevenzione e Protezione Ambientale del Veneto), Disponible sur [arpa.veneto.it](http://arpa.veneto.it), consulté le 18/05/18.
- Saporta, G. (2006). Probabilités, analyse des données et statistique. Editions TECHNIP.

- Saxena, A., Prasad, M., Gupta, A., Bharill, N., Prakash Patel, O., Tiwari, A., . . . Lin, C. (2017). A review of clustering techniques and developments. *Neurocomputing*, 267, 664-681.
- Sayegh, A. S., Munir, S., & Habeebullah, T. M. (2014). Comparing the performance of statistical models for predicting PM10 concentrations. *Aerosol and Air Quality Research*, 14, 653-665.
- Schmidl, C., Maar, I., Caseiro, A., Kotianova, P., Berner, A., Bauer, H., . . . Puxbaum, H. (2008). Chemical characterisation of fine particle emissions from wood stove combustion of common woods growing in mid-European Alpine regions. *Atmospheric Environment*, 42, 126-141.
- Schneider, J., Kirchner, U., Borrmann, S., Vogt, R., & Scheer, V. (2008). 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. *Atmospheric Environment*, 42, 4257-4268.
- Sciare, J., Cachier, H., Sarda-Estève, R., Yu, T., & Wang, X. (2007). Semi-volatile aerosols in Beijing (R.P. China): Characterization and influence on various PM2.5 measurements. *Journal of Geophysical Research*, 112, D18202.
- Scott, A., & Scarrott, C. (2011). Impacts of residential heating intervention measures on air quality and progress towards targets in Christchurch and Timaru, New Zealand. *Atmospheric Environment*, 45, 2972-2980.
- Seibert, P., Beyrich, F., Gryning, S.-E., Joffre, S., Rasmussen, A., & Tercier, P. (2000). Review and intercomparison of operational methods for the determination of the mixing height. *Atmospheric Environment*, 34, 1001-1027.
- Seinfeld, J., & Pandis, S. (2006). *Atmospheric chemistry and physics: from air pollution to climate change*. 2nd ed. J. Wiley, Hoboken, N.J.
- Seinfeld, J., & Pandis, S. (2012). *Atmospheric chemistry and physics: from air pollution to climate change*. John Wiley & Sons.
- Seinfeld, J., Bretherton, C., Carslaw, K., Coe, H., DeMott, P., Dunlea, E., . . . others. (2016). Improving our fundamental understanding of the role of aerosol-cloud interactions in the climate system. *Proc. Natl. Acad. Sci.*, 113, 5781-5790.
- Silcox, G., Kelly, K., Crosman, E., Whiteman, C., & Allen, B. L. (2012). Wintertime PM2.5 concentrations during persistent, multi-day cold-air pools in a mountain valley. *Atmospheric Environment*, 46, 17-24.
- Sippula, O. (2010). Fine particle formation and emission in biomass combustion. PhD thesis, University of Eastern Finland, Kuopio, 68 p.
- Smyth, C., Rampley, G., Lemprière, T., Schwab, O., & Kurz, W. (2017). Estimating product and energy substitution benefits in national-scale mitigation analyses for Canada. *GCB Bioenergy*, pp. 9, 1071-1084, doi:10.1111/gcbb.12389.
- SOeS (2015). *Consommations énergétiques des ménages en 2012. Chiffres & statistiques n°645*. Disponible sur [statistiques.developpement-durable.gouv.fr](http://statistiques.developpement-durable.gouv.fr).
- Solberg, S., Colette, A., & Guerreiro, C. (2015). Discounting the impact of meteorology to the ozone concentration trends. ETC/ACM Technical Paper 2015/9.
- Song, N., Aguilar, F., Shifley, S., & Goerndt, M. (2012). Factors affecting wood energy consumption by U.S. households. *Energy Economics*, 34, 389-397.
- 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.

- Steinacker, R., Whiteman, C., Dorninger, M., Pospichal, B., Eisenbach, S., Holzer, A., . . . Baumann, K. (2007). A sinkhole field experiment in the eastern alps. *Bull. Ame. Meteorol. Soc.*, 88, 701.
- Steiner, A., & Chameides, W. (2005). Aerosol induced thermal effect increase modeled terrestrial photosynthesis and transpiration. *Tellus*, 57B, 404-411.
- Stull, R. (1988). *An Introduction to Boundary layer Meteorology*. Dordrecht: Kluwer Academic Publishers.
- Subramanian, R., Kok, G., Baumgardner, D., Clarke, A., Shinozuka, Y., Campos, T., . . . 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.
- Sylvestre, A., Mizzi, A., Mathiot, S., Masson, F., Jaffrezo, J., Dron, J., . . . Marchand, N. (2017). Comprehensive chemical characterization of industrial PM<sub>2.5</sub> from steel industry activities. *Atmospheric Environment*, 152, 180-190.
- Tai, A., Mickley, L., & Jacob, D. (2010). Correlations between fine particulate matter (PM<sub>2.5</sub>) and meteorological variables in the United States: Implications for the sensitivity of PM<sub>2.5</sub> to climate change. *Atmospheric Environment*, 44, 3976-3984.
- Tang, W., Cohan, D., Morris, G., Byun, D., & Luke, W. (2011). Influence of vertical mixing uncertainties on ozone simulation in CMAQ. *Atmospheric Environment*, 45, 2898-2909.
- Terrenoire, E., Bessagnet, B., Rouil, L., Tognet, F., Pirovano, G., Letinois, L., . . . Menut, L. (2015). High resolution air quality simulation over Europe with the chemistry transport model CHIMERE. *Geoscience Model Development*, 8, 21-42.
- Terzano, C., Di Stefano, F., Conti, V., Graziani, E., & Petroianni, A. (2010). Air pollution ultrafine particles: toxicity beyond the lung. *European Review for Medical and Pharmacological Sciences*, 14, 809-821.
- Thompson, M. L., Reynolds, J., Cox, L. H., Guttorp, P., & Sampson, P. D. (2001). A review of statistical methods for the meteorological adjustment of tropospheric ozone. *Atmospheric Environment*, 35, 617-630.
- Thorpe, A., & Harrison, R. (2008). Sources and properties of non-exhaust particulate matter from road traffic: a review. *Science of the Total Environment*, 400, 270-282.
- Titos, G., Lyamani, H., Drinovec, L., Olmo, F., Mocnik, G., & Alados-Arboledas, L. (2015). Evaluation of the impact of transportation changes on air quality. *Atmospheric Environment*, 114, 19-31.
- Tiwari, S., Bisht, D., Srivastava, A., Pipal, A., Taneja, A., Srivasta, M., & Atti, S. (2014). Variabilite in atmospheric particulates and meteorological effects on their mass concentrations over Dehli, India. *Atmospheric Research*, 145-146, 45-56.
- Tiwari, S., Srivastava, A., Bisht, D., Parmita, P., Srivasta, M., & Attri, S. (2013). Diurnal and seasonal variations of black carbon and PM<sub>2.5</sub> over New Delhi, India: Influence of meteorology. *Atmospheric Research*, 125-126, 50-62.
- Tong, W., Hong, H., Fang, H., Xie, Q., & Perkins, R. (2003). Decision Forest: Combining the Predictions of Multiple Independent Decision Tree Models. *Journal of Chemical Information and Computer Science*, 43, 525-531.
- Triantafyllou, A. (2001). PM<sub>10</sub> pollution episodes as a function of synoptic climatology in a mountainous industrial area. *Environmental Pollution*, 112, 491-500.
- Trombetti, M., Pisoni, E., & Lavallo, C. (2017). Downscaling methodology to produce a high resolution gridded emission inventory to support local/city level Air quality policies. JRC Technical Reports EUR 28428 EN, 31 p.

- Trombetti, M., Thunis, P., Bessagnet, B., Clappier, A., Couvidat, F., Guevara, M., . . . Lopez-Aparicio, S. (2018). Spatial inter-comparison of Top-down emission inventories in European urban areas. *Atmospheric Environment*, 173, 142-156.
- Turpin, B., Saxena, P., & Andrews, E. (2000). Measuring and simulating particulate organics in the atmosphere: problems and prospects. *Atmospheric Environment*, 34, 2983-3013.
- Umbria, A., Galan, M., Munoz, M., & Martin, R. (2004). Characterization of atmospheric particles: analysis of particles in the Campo de Gibraltar. *Atmosfera*, 191-206.
- UNECE. (2013). Protocole de 1999 à la Convention sur la pollution atmosphérique transfrontière à longue distance, relatif à la réduction de l'acidification, de l'eutrophisation et de l'ozone troposphérique, tel que modifié le 4 mai 2012. ECE/EB.AIR/114, 103 p.
- Valverde, V., Pay, M. T., & Baldasano, J. M. (2015). Circulation type classification derived on a climatic basis to study air quality dynamics over the Iberian Peninsula. *International Journal of Climatology*, 35, 2877-2897.
- Van Loo, T., & Koppejan, J. (2008). Biomass Ash Characteristics and Behaviour in Combustion Systems. Technologie Report of IEA Bioenergy, 12 p.
- Vardoulakis, P., & Kassemenos, P. (2008). Sources and factors affecting PM10 levels in two European cities: implications for local air quality management. *Atmospheric Environment*, 42, 3949-3963.
- Vesna, O., Sjogren, S., Weingartner, E., Samburova, V., Kalberer, M., Gäggeler, H., & Ammann, M. (2008). Changes of fatty acid aerosol hygroscopy induced by ozonolysis under humid conditions. *Atmos. Chem. Phys.*, 4683-4690.
- Viaene, P., Janssen, S., Carnevale, C., Finzi, G., Pisoni, E., Volta, M., . . . Juda-Rezle, K. (2013). D2.3 Air quality assessment and planning including modelling and measurement. Appraisal project (FP7-ENV CA 303895).
- Viana, M., Kuhlbusch, T., Querol, X., Alastuey, A., Harrison, R., Hopke, P., . . . Hittenberger, R. (2008). Source apportionment of particulate matter in Europe: A review of methods and results. *Journal of Aerosol Science*, 39, 827-849.
- Vincente, E., & Alves, C. (2018). An overview of particulate emissions from residential biomass combustion. *Atmospheric Research*, 199, 159-185.
- Waked, A., Favez, O., Alleman, L., Piot, C., Petit, J., Delaunay, T., . . . Leoz-Garzianda, E. (2014). Source apportionment of PM10 in a north-western Europe regional urban background site (Lens, France) using positive matrix factorization and including primary biogenic emissions. *Atmos. Chem. Phys.*, 14, 3325-3346.
- Wall, S., John, W., & Ondo, J. (1988). Measurement of aerosol size distributions for nitrate and major ionic species. *Atmospheric Environment*, 22, 1649-1656.
- Wang, X. Y., & Wang, K. C. (2014). Estimation of atmospheric mixing layer height from radiosonde data. *Atmos. Meas. Tech.*, 7, 1701-1709.
- Wang, X., Westerdahl, D., Chi Chen, L., Hao, J. P., Guo, X., & Zhang, K. (2009). Evaluating the air quality impacts of the 2008 Beijing Olympic Games: On-road emission factors and black carbon profiles. *Atmospheric Environment*, 43, 4535-4543.
- Wang, Y., Zhang, Y., Schauer, J. J., de Foy, B., Guo, B., & Zhang, Y. (2016). Relative impact of emissions controls and meteorology on air pollution mitigation associated with the Asia-Pacific Economic Cooperation (APEC) conference in Beijing, China. *Science of the Total Environment*, 571, 1467-1476.



- Wang, Z., Li, Y., Chen, T., Li, L., Liu, B., Zhang, D., . . . Pan, L. (2015). Changes in atmospheric composition during the 2014 APEC conference in Beijing. *J. Geophys. Res. Atmos.*, 120, 12, 695-707.
- Ward, T., Palmer, C., Houck, J., Navidi, W., Geinitz, S., & Noonan, C. (2009). Community woodstove changeout and impact on ambient concentrations of Polycyclic Aromatic Hydrocarbons and Phenolics. *Environmental Science & Technology*, 43, 5345-5350.
- Watson, J. (1997). Chemical Mass Balance Receptor Model version 8 (CMB8) - User's manual. US-Environmental Protection Agency.
- Weber, S., Uzu, G., Calas, A., Chevrier, F., Besombes, J., Charron, A., . . . Jaffrezo, J. (2018). An apportionment method for the Oxidative Potential to the atmospheric PM sources: application to a one-year study in Chamonix, France. *Atmos. Chem. Phys.*, 18, 9617-9629.
- Whang, Q., Shao, M., Liu, Y., William, K., Paul, G., Li, X., & Liu, Y. e. (2007). Impact of biomass burning on urban air quality estimated by organic tracers: Guangzhou and Beijing as cases. *Atmospheric Environment*, 41, 8380-8390.
- Whiteman, C. (2000). *Mountain meteorology: fundamentals and applications*. Richland, WA (US): Pacific Northwest National Laboratory.
- Whiteman, C., & Hoch, S. (2014). Pseudovertical temperature profiles in a broad valley from lines of temperature sensors on sidewalls. *Journal of Applied Meteorology and Climatology*, 53, 2430-2437.
- Whiteman, C., Eisenbach, S., Pospichal, B., & Steinacker, R. (2004). Comparison of Vertical Soundings and sidewall air temperature measurements in a small Alpine basin. *Journal of Applied Meteorology*, 43, 1635-1647.
- Whiteman, C., Hoch, S., Horel, J., & Charland, A. (2014). Relationship between particulate air pollution and meteorological variables in Utah's Salt Lake Valley. *Atmospheric Environment*, 94, 742-753.
- Whiteman, C., Hubbe, J., & Shaw, W. (2000). Evaluation of an inexpensive temperature datalogger for meteorological applications. *Journal of Atmospheric and Oceanic Technology*, 17, 77-81.
- Whiteman, C., Zhong, S., & Bian, X. (1999). Wintertime boundary layer structure in the Grand Canyon. *Journal of Applied Meteorology*, 38, 1084-1102.
- 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).
- Yap, P.-S., & Garcia, C. (2015). Effectiveness of Residential Wood-Burning Regulation on Decreasing Particulate Matter levels and Hospitalizations in the San Joaquin Valley Air Basin. *American Journal of Public Health*, 105, 772-776.
- Yasunari, T., Tan, Q., Lau, K., Bonasoni, P., Marinoni, A., Laj, P., . . . Chin, M. (2013). Estimated range of black carbon dry deposition and the related snow albedo reduction over Himalayan glaciers during dry pre-monsoon periods. *Atmospheric Environment*, 78, 259-267.
- Yu, J., Huang, X.-F., Xu, J., & Hu, M. (2005). When Aerosol Sulfate goes up, so does Oxalate: implication for the formation mechanisms of Oxalate. *Environmental Science & Technology*, 39, 128-133.
- Zanatta, M. (2016). *The black carbon in european atmosphere: identification, transfert, deposition and impacts*. Thèse de l'Université Grenoble-Alpes.
- Zanatta, M., Gysel, M., Bukowiecki, N., Müller, T., Weingartner, E., Areskourg, H., . . . 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.

- Zardi, D., & Whiteman, C. (2013). *Diurnal Mountain Wind Systems*. Edition: Chow, F.; De Wekker, S.; Snyder, B. *Mountain Weather Research and Forecasting*, Springer Atmospheric Sciences.
- Zhang, G., Li, J., Li, X., Xu, Y., Guo, L., Tang, J., & Lee, C. e. (2010). Impact of anthropogenic emissions and open biomass burning on regional carbonaceous aerosols in South China. *Environmental Pollution*, 158, 3392-3400.
- Zhang, J., Zhu, T., Zhang, Q., Li, C., Shu, H., Ying, Y., . . . Yi, B. (2012). The impact of circulation patterns on regional transport pathways and air quality over Beijing and its surroundings. *Atmos. Chem. Phys.*, 12, 5031-5053.
- Zhang, X., Wang, Y., Lin, W., Zhang, Y., Zhang, X., Gong, S., . . . Li, Y. (2009). Changes of atmospheric composition and optical properties over Beijing. 2008 Olympic Monitoring Campaign. *Bull. Am. Meteorol. Soc.*, 90, 1633-1651.
- Zhang, Y., Ding, A., Mao, H., Nie, W., Zhou, D., Liu, L., . . . Fu, C. (2016). Impact of synoptic weather patterns and inter-decadal climate variability on air quality in the North China Plain during 1980-2013. *Atmospheric Environment*, 124, 119-228.
- Zuk, M., Rojas, L., Blanco, S., Serrano, P., Cruz, J., Angeles, F., . . . Masera, O. (2007). The impact of improved wood-burning stoves on fine particulate matter concentrations in rural Mexican homes. *Journal of Exposure Science and Environmental Epidemiology*, 17(3), 224-232.

**ANNEXES**

|  |     |
|--|-----|
| ANNEXE 1 : Description des capteurs de température le long des pentes.....   | 150 |
| ANNEXE 2 : Inter-comparaison des mesures de températures réalisées au niveau des sites de mesures chimiques.....   | 155 |
| ANNEXE 3 : Inter-comparaison des mesures de températures d'un Tinytag sous abri avec le système utilisé dans les stations RADOME de Météo-France.....                                | 156 |
| ANNEXE 4 : Protocole d'extraction et performances analytiques des composés organiques.....   | 157 |
| ANNEXE 5: Caractéristiques météorologiques des classes de conditions atmosphériques.....   | 159 |
| ANNEXE 6: Méthodes statistiques pour la comparaison de plusieurs distributions et le calcul de tendances.....  | 163 |
| ANNEXE 7: Résultats de la comparaison des contributions relatives des espèces aux PM <sub>10</sub> en fonction des hivers et des classes de conditions atmosphériques.....           | 164 |
| ANNEXE 8: Evolutions des concentrations de traceur de la combustion de la biomasse et des PM <sub>10wb</sub> selon les 4 classes de conditions atmosphériques, pour les 3 sites..... | 166 |
| ANNEXE 9 : Analyse de la variabilité des consommations déclarées dans la vallée de l'Arve.....   | 170 |
| ANNEXE 10 : Méthode d'imputation des données manquantes et de prise en compte de la variabilité des facteurs d'émissions.....  | 173 |
| ANNEXE 11 : Pertinence de la comparaison émissions de chauffage à climat normal avec des concentrations à conditions réelles.....  | 176 |
| ANNEXE 12 : Evolutions des émissions de PM <sub>10</sub> issues des appareils de chauffage au bois autour des sites de mesures chimiques de l'hiver 13-14 à 16-17.....               | 177 |
| ANNEXE 13: Investigation de l'aire de représentativité des sites de mesures chimiques sur l'estimation des émissions de PM <sub>10wb</sub> .....                                     | 180 |
| ANNEXE 14: Liste des travaux de valorisations des travaux de thèses.....   | 185 |

**ANNEXE 1 : Description des capteurs de température le long des pentes**

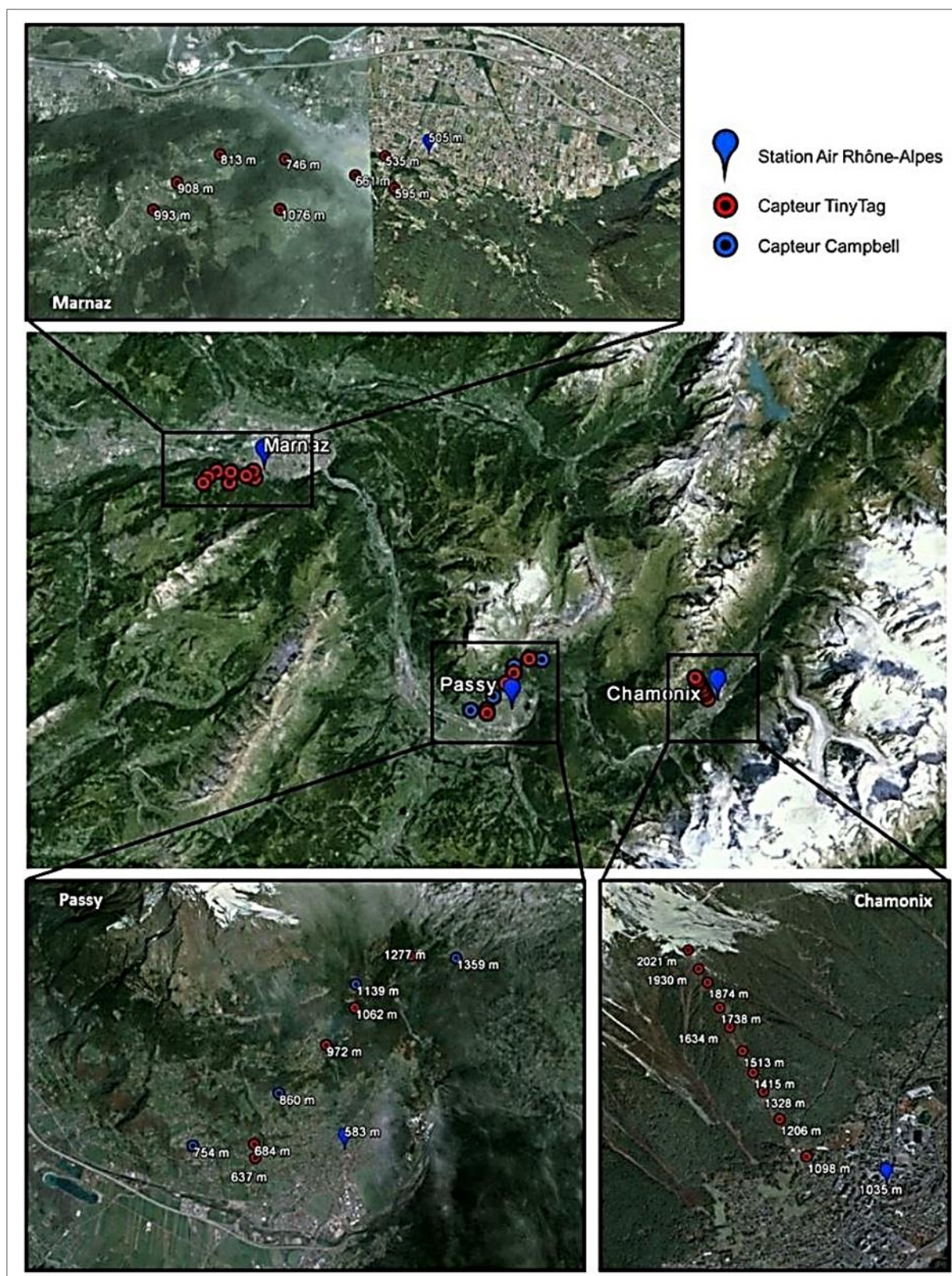


Figure VI. 1 : Localisation des capteurs de température sous abri (Tinytag et Campbell CS215)  
(Source : Google Earth, Chevrier 2016)

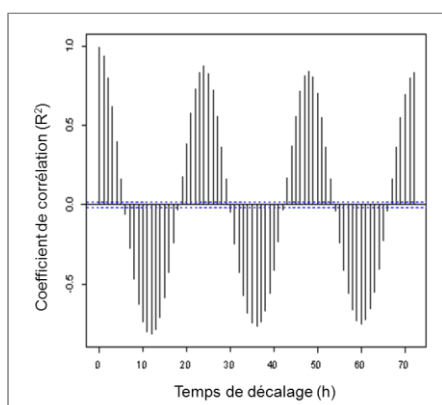


Les trois réseaux de capteurs sont constitués de 10 à 11 capteurs de température installés sous abri à environ 4 m du sol, localisés sur la Figure VI.1. Les différents capteurs sont repérés en fonction de l'altitude à laquelle il se situe par rapport au site de mesure chimique et à la première lettre du nom du site de mesure chimique. Par exemple, les capteurs situés au niveau des sites de mesures de Marnaz, Passy et Chamonix sont repérés comme M-0, P-0 et C-0 respectivement. A l'exception des capteurs situés au niveau des sites de mesures chimiques, le pourcentage de fonctionnement est de 99,7 % pour les réseaux de Passy et Marnaz et de 80,0% pour le réseau de Chamonix situé sur le téléphérique de Plan-Praz dont la maintenance a été assurée avec la collaboration de la Compagnie du Mont-Blanc. Les capteurs M-0, P-0 et C-0 correspondent initialement aux capteurs appartenant à Atmo-AuRA installés sous abri à 1 m de hauteur sur le toit des différentes stations de mesures. Les mesures se sont arrêtées au cours de l'année 2015 au niveau des 3 sites nécessitant l'installation de nouveaux capteurs pour la campagne hivernale 15-16. Sauf dans le cas de Chamonix où un capteur Tinytag a été remplacé identiquement au capteur initial, les capteurs des sites de mesures chimiques de Marnaz et Passy ont été placés sous abri à 4m du sol sur un pilier métallique. Ces différentes conditions de l'environnement local des capteurs peuvent impacter les mesures de températures comme d'autres paramètres connus qui ont été répertoriés pour chacun des capteurs dans le Tableau VI.1. Pour tester si les mesures d'un ou plusieurs capteurs ne sont pas drastiquement impactées par des facteurs d'environnement micro-météorologique des capteurs, l'homogénéité relative des capteurs a été analysée à partir de la méthode des doubles cumuls (OMM 2011, Lamarque 1994).

Le principe de la méthode des doubles cumuls consiste à tracer le cumul des mesures de températures d'un capteur en fonction de celui d'un capteur de référence. Lorsque les séries sont homogènes, on obtient une droite. L'homogénéité se définit ici comme le fait que les différences entre les mesures de températures simultanées de deux capteurs sont une série de nombre aléatoire (Lamarque et al, 1994). Aucun de nos capteurs ne pouvant être clairement défini comme capteur de référence, la méthode des doubles cumuls a été utilisée à partir des mesures de températures de tous les capteurs entre eux. 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 Choisnel (2001), les facteurs correspondant à l'environnement très local seront essentiellement présents dans des phénomènes météorologiques à forte évolution diurne. En décomposant les mesures de températures en fonction de la variation diurne des températures, nous pourrions ainsi tester l'homogénéité des capteurs selon ces deux échelles de temps.

La décomposition des mesures de températures horaires est basée sur l'équation de la moyenne mobile (Cowpertwait, 2006). Le paramètre,  $p$ , est appelée paramètre de saisonnalité, il correspond au cycle diurne dans notre cas (soit 24 avec des mesures de températures horaires).

$$m_t = \left[ x_{t-\frac{p}{2}} + 2 * \sum_{i=t+1-\frac{p}{2}}^{k=t-1+\frac{p}{2}} x_i + x_{t+p/2} \right] / 2p$$



Un corrélogramme de la température des résidus journaliers représenté à gauche montre bien une périodicité journalière. La moyenne des températures résiduelles est centrée sur 0, ce qui est recherchée pour attester de la validité d'une décomposition. Les températures sans l'effet du cycle diurne (températures non-résiduelles) présentent des variations de l'ordre de plusieurs jours correspondant aux variations de temps synoptiques.

Figure VI. 2 : Corrélogramme des températures résiduelles sur 72 h à partir des mesures horaires de températures du capteur P-0.

| Capteurs                 | Structure du pilier d'accroche | Hauteur au-dessus de la surface | Type de surfaces proches  |
|--------------------------|--------------------------------|---------------------------------|---|
| <b>C-0i /C-0</b>         | métallique                     | 1 m                             | <ul style="list-style-type: none"> <li>• Toit de la station en PVC de couleur noire</li> <li>• Arve à environ 10 m</li> <li>• Route, immeubles aux alentours</li> </ul> |
| <b>C-33</b>              | métallique                     | 4 m                             | <ul style="list-style-type: none"> <li>• Situé au-dessus d'une haie</li> <li>• Route</li> </ul>   |
| <b>C-63 à C-986</b>      | métallique                     | 7 m                             | Non-connu   |
| <b>P-0i</b>              | métallique                     | 1 m                             | <ul style="list-style-type: none"> <li>• Toit de la station en tuile (terre cuite)</li> <li>• Parking</li> </ul>  |
| <b>P-0</b>               | métallique                     | 3 m                             | <ul style="list-style-type: none"> <li>• Parking</li> </ul>   |
| <b>P-22</b>              | métallique                     | 4 m                             | <ul style="list-style-type: none"> <li>• Platebande</li> <li>• Rivière à 2 m</li> <li>• Route</li> </ul>  |
| <b>P-54</b>              | bois                           | 4 m                             | <ul style="list-style-type: none"> <li>• Plate-bande</li> <li>• Route</li> </ul>  |
| <b>P-101</b>             | béton                          | 4 m                             | <ul style="list-style-type: none"> <li>• Situé dans un champ, à 100 m d'une forêt</li> <li>• Route</li> </ul>   |
| <b>P-389</b>             | bois                           | 4 m                             | <ul style="list-style-type: none"> <li>• Située au-dessus d'une haie</li> <li>• Route</li> </ul>  |
| <b>P-479</b>             | tronc d'arbre                  | 4 m                             | <ul style="list-style-type: none"> <li>• Situé sous couvert forestier, au-dessus d'un cours d'eau</li> <li>• Route</li> </ul>   |
| <b>P-684</b>             | bois                           | 4 m                             | <ul style="list-style-type: none"> <li>• Situé à 5 m d'une rivière</li> <li>• Route</li> </ul>  |
| <b>P-171/277/556/776</b> | trépied métallique             | 2 m                             | Non-connu   |
| <b>M-0i</b>              | métallique                     | 1 m                             | <ul style="list-style-type: none"> <li>• Toit de la station en acier (container)</li> <li>• Parking</li> </ul>  |
| <b>M-0/403</b>           | métallique                     | 3 m                             | <ul style="list-style-type: none"> <li>• Parking</li> </ul>   |
| <b>M-60/156/241/308</b>  | tronc d'arbre                  | 4 m                             | <ul style="list-style-type: none"> <li>• Situé sous couvert forestier</li> <li>• Route</li> </ul>   |
| <b>M-30/488/571</b>      | bois                           | 4m                              | <ul style="list-style-type: none"> <li>• Situé dans un champ</li> <li>• Route</li> </ul>  |

Tableau VI. 1 : Synthèse des systèmes d'accroche et des types de surfaces environnantes des différents capteurs pouvant impacter les mesures de température.

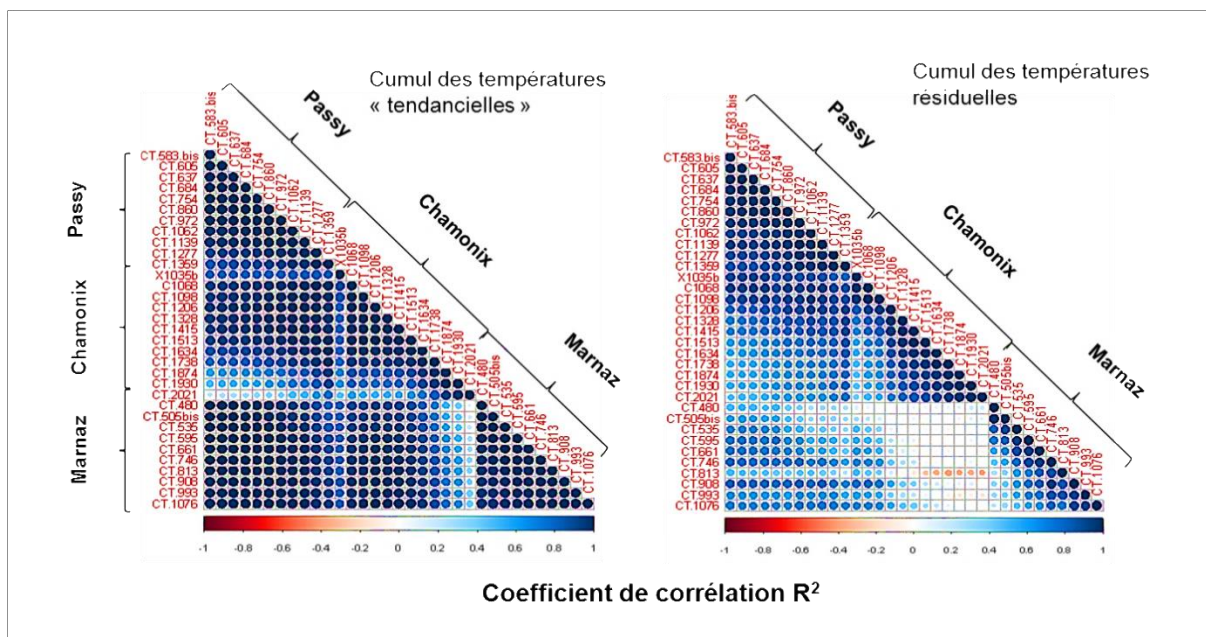


Figure VI. 3 : Coefficients de corrélation ( $R^2$ ) des régressions linéaires des cumuls de température avec les mesures de températures sans la variation du cycle diurne (à droite) et des températures correspondant à la variation du cycle diurne (températures résiduelles, à gauche). Les mesures de températures décomposées proviennent des mesures horaires de température sur l'hiver 15-16 (01/11 au 31/03) à celle de l'hiver 15-16.

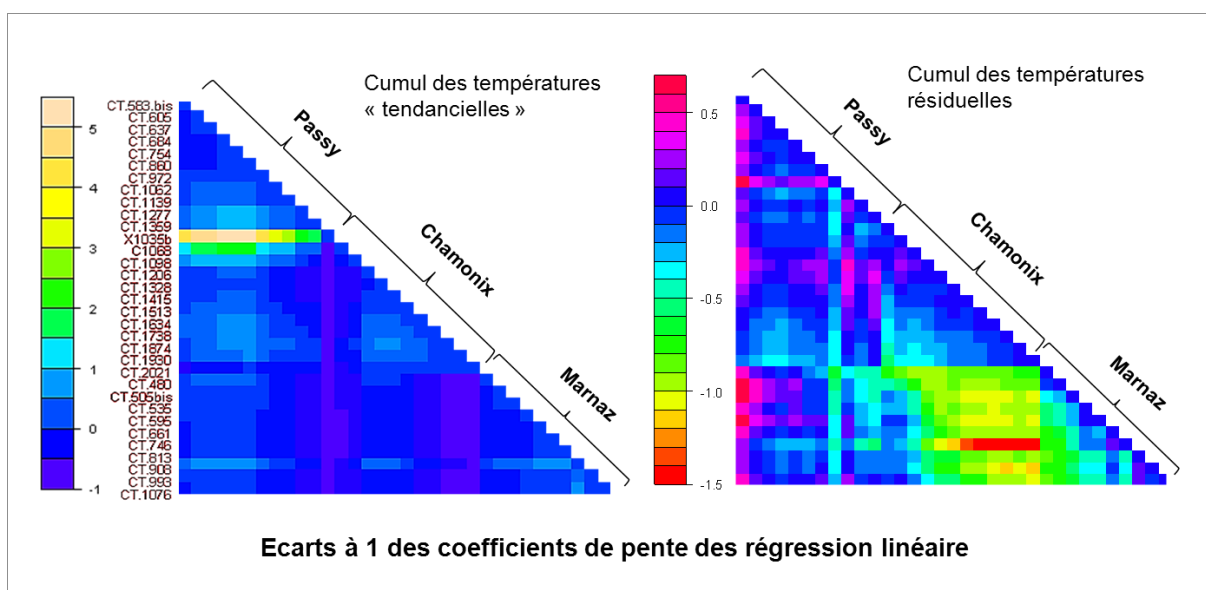


Figure VI. 4: Écart à 1 des coefficients de pente des régressions linéaires des cumuls de température avec les mesures de températures sans la variation du cycle diurne (à droite) et des températures correspondant à la variation du cycle diurne (températures résiduelles, à gauche).

Les Figures VI.3 et VI.4 représentent les coefficients de corrélation et les écarts à 1 des coefficients de pente des régressions linéaires entre les cumuls des températures décomposées provenant des mesures de température de l'hiver 15-16, choisi en raison du fonctionnement de tous les capteurs sur cet hiver. Globalement, les coefficients de corrélation sont très élevés et proche de 1 au sein des profils et entre les capteurs des différents profils pour la température sans variation du

cycle diurne. Les écarts à 1 sont, de plus relativement, faibles, à l'exception du 1<sup>er</sup> capteur de Chamonix.

Les coefficients de corrélation de la régression linéaire des cumuls de la température résiduelle correspondant au cycle diurne viennent confirmer l'effet de l'altitude au sein des profils : les mesures de températures à l'échelle diurne sont, davantage, homogènes pour des altitudes peu éloignées au sein d'un même profil. On remarque, ainsi, que les températures à cette échelle sont davantage homogènes entre les capteurs de Passy et Chamonix qu'entre les capteurs de Marnaz et Passy pourtant globalement situés aux mêmes altitudes. Les écarts à 1 des coefficients de pente permettent d'affiner encore plus ces constatations : les écarts les plus élevés au sein des profils sont trouvés pour le profil de Marnaz puis de Passy. Les écarts trouvés au sein du profil de Chamonix peuvent quant à eux être reliés à l'effet d'altitude. On peut confirmer que ces écarts à 1 des coefficients de pente correspondent bien à des effets de l'environnement local avec deux exemples : les écarts les plus élevés au sein du profil de Passy correspondent au capteur situé sous couverture forestier contrairement aux autres, de même pour Marnaz, où le 3<sup>ème</sup> capteur en partant de la fin est particulièrement encaissé par rapport aux autres capteurs.

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 unique par les facteurs de son environnement local. Les températures sans variation du cycle diurne sont très homogènes entre les différents capteurs pour cette période hivernale, ce sont la méthode des doubles cumuls sur les températures résiduelles, notamment l'étude des coefficients de pente des régressions linéaires entre les cumuls qui permettent de montrer les effets de l'environnement local sur les capteurs. Les mesures de températures résiduelles sont homogènes avec les mesures des capteurs situés aux altitudes les plus proches hormis certaines exceptions dont les facteurs de terrain connus peuvent expliquer les hétérogénéités.



## ANNEXE 2 : Inter-comparaison des mesures de températures réalisées au niveau des sites de mesures chimiques

Les mesures de températures réalisées en fond de vallée sont particulièrement importantes pour la détermination du  $\Delta T$ , mesure de l'état de stabilité thermique de l'atmosphère. Or les capteurs des sites de mesures chimiques de Marnaz et Passy ont été changés lors du 3<sup>ème</sup> hiver du programme et installés sur un poteau à 3 m du sol comme les autres capteurs contrairement au départ, où ils étaient installés sur le toit tôle ou tuilé des stations de Marnaz et Passy respectivement. La méthode des doubles cumuls, présentée dans l'Annexe 1, ne permet pas de vérifier si les séries de températures journalières sont homogènes sur les 4 hivers. Pour cela, les mesures journalières ont été comparées aux mesures de température réalisées sous abri dans les stations Météo-France les plus proches des stations (à 5 et 11 km à vol d'oiseau du site de Passy et Marnaz, respectivement) (Figure VI.5).

On observe que le changement de localisation des capteurs des sites de mesures chimiques a un impact visible sur les mesures de températures hivernales, surtout sur le site de Passy. Sur les deux sites, les températures journalières des 2 premiers hivers sont très corrélés ( $r^2 > 0.98$ ) et présentent la même relation linéaire avec les mesures journalières réalisées dans les stations Météo-France proches. Lors du 3<sup>ème</sup> hiver, les mesures journalières avec les capteurs placés à 3 m au-dessus du sol sont également très corrélés aux mesures journalières ( $r^2 > 0.98$ ) mais ont des relations linéaires différentes par rapport aux mesures avec les capteurs installés sur les toits. Sur le site de Passy, les températures mesurées lors du 3<sup>ème</sup> hiver sont plus élevées de 1,5°C en moyenne avec celles réalisées sur le toit (en tuile) tandis que sur le site de Marnaz, elles sont plus froides de 1,1°C en moyenne avec celles réalisées sur le toit (en acier). Ce phénomène opposé peut s'expliquer par la nature du toit : la station de Marnaz correspondant à un container en acier blanc est une source de chaleur tandis que le toit en tuile de Passy induit un biais froid sur les mesures de températures par rapport aux mesures réalisées à 3 m au-dessus du sol.

Les corrélations ayant été trouvées élevées dans les 2 cas avec les mesures journalières des stations Météo-France, ce sont ces mesures qui ont été employées afin de déterminer les mesures de  $\Delta T$  pour l'analyse de l'influence de l'état de la stabilité atmosphérique sur les concentrations au cours des 4 hivers.

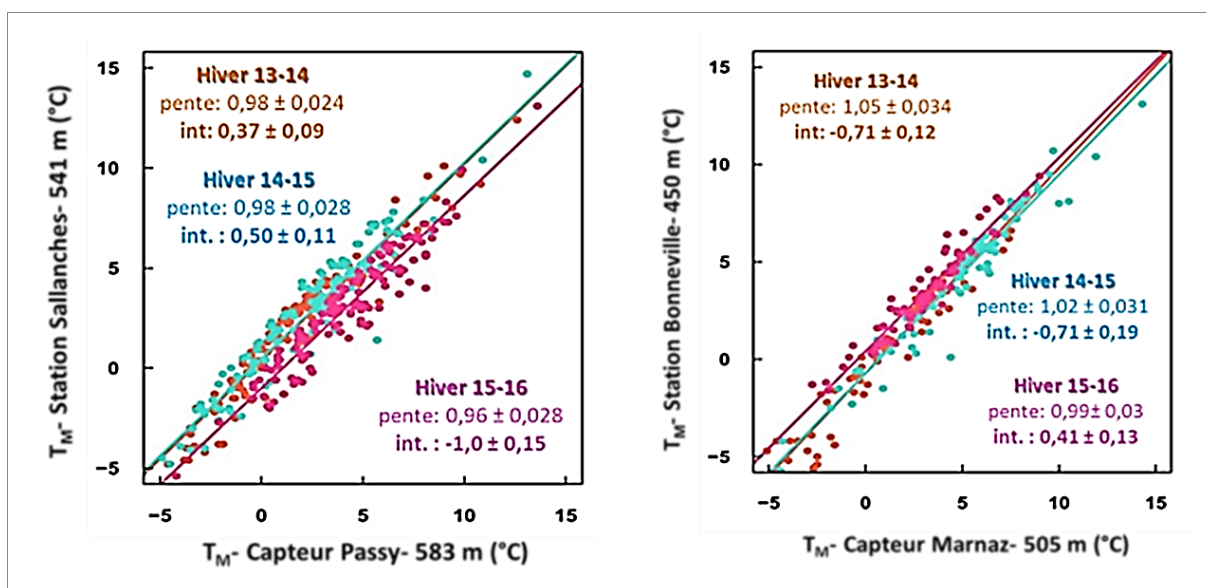


Figure VI. 5: Températures journalières mesurées au niveau des sites de mesures chimiques de Passy et Marnaz en fonction des températures mesurées sous abri dans les stations Météo-France les plus proches lors des hivers 13-14, 14-15 et 15-16.

### ANNEXE 3 : Inter-comparaison des mesures de températures d'un Tinytag sous abri avec le système utilisé dans les stations RADOME de Météo-France

Une inter-comparaison des mesures de température et humidité d'un Tinytag sous abri installé à 2 m du sol et du système de mesures des stations du réseau RADOME (sonde PT-100 et abri Socrima) a été réalisée du 27/11/15 au 26/06/16 sur le site MétéoFlux à Toulouse. La Figure IV.6 compare l'évolution des mesures de températures et humidité relative tous les quart-d'heure entre les capteurs sur le mois de Février, correspondant au mois avec les températures les plus froides et donc les plus représentatives des conditions hivernales dans la vallée de l'Arve. Les mesures de températures sont très corrélées entre les 2 capteurs avec des écarts de température centrés sur 0. Des écarts de température de l'ordre de 1 ou 2°C sont retrouvés pour des conditions de fort rayonnement et vent faible sur les mois de printemps, conditions connus pour induire des biais chaud sur les mesures de températures réalisés dans des abris non ventilés (Leroy, 2002). Concernant les mesures d'humidité, un biais systématique de 6 à 8 % est observé sur les mesures du Tinytag, lors d'humidités élevés avec une saturation de la sonde. Ce biais avait été également mis en évidence lors de l'inter-comparaison des capteurs en chambre climatique (voir Section 2 du Chapitre 2). En-dessous de 60% d'humidité relative, les mesures d'humidité des Tinytags correspondent à celles mesurées par le capteur de Météo-France.

Ainsi, par rapport aux mesures sous abri réalisées dans les stations du réseau RADOME de Météo-France, les Tinytags sous abri ont des performances similaires pour les mesures de température. Les mesures d'humidité, du fait de l'existence d'un biais important, n'ont pas été considérées dans l'étude de l'influence des conditions atmosphériques sur les concentrations.

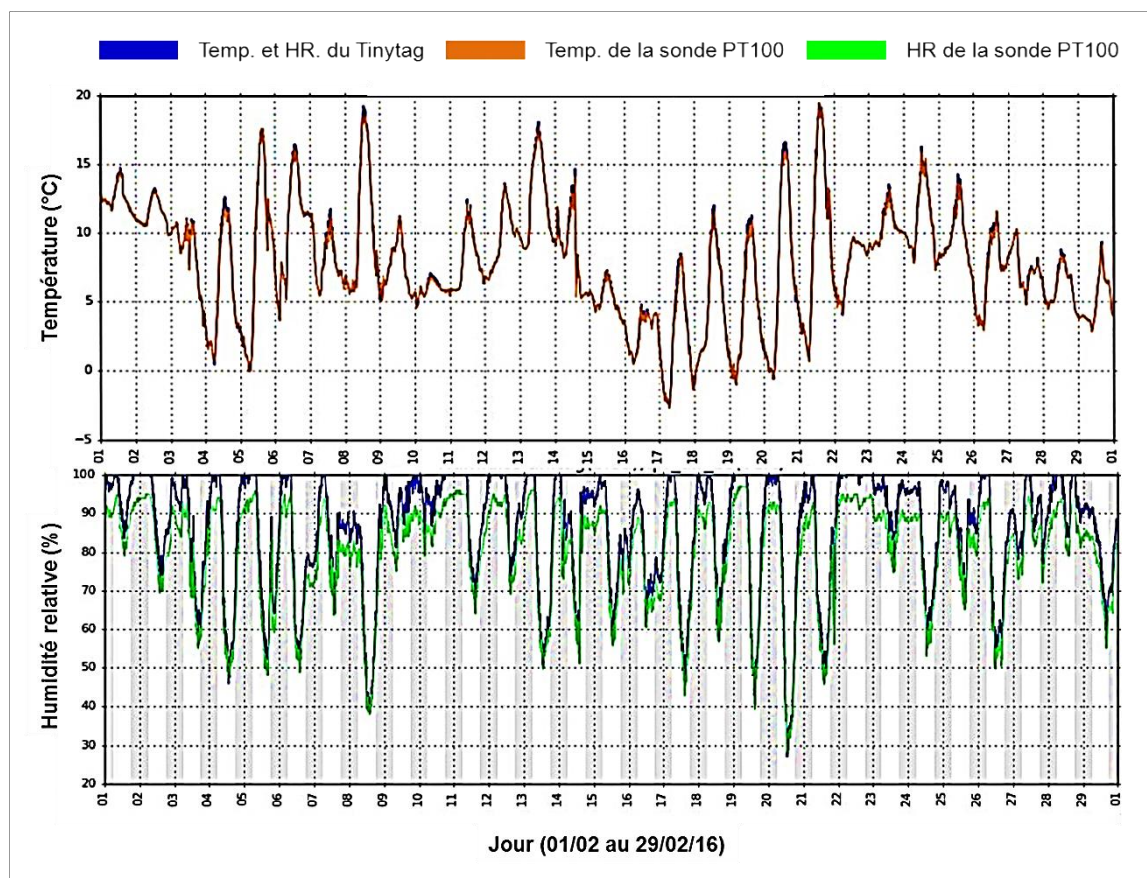


Figure VI. 6: Comparaison des températures et humidité relatives réalisées à une fréquence de 15 minutes entre le capteur Tinytag et celui de Météo-France du 01/02 au 29/02, mois ayant présenté les températures les plus froides lors de la campagne de comparaison.

## ANNEXE 4 : Protocole d'extraction et performances analytiques des composés organiques

Parmi les différentes fractions de l'aérosol mesurées, les composés organiques nécessitent, avant analyse par chromatographie, d'être extraits. Ces dernières ont été réalisées au LCME par extraction solide/liquide grâce à un Accelerated Solvent Extractor (ASE 200 - Dionex). Cet appareil présente plusieurs avantages : le temps d'extraction est court avec un minimum de volume de solvants dû à la réalisation de l'extraction à des températures et pressions élevées. Chevrier (2016) a décrit les différentes étapes de l'extraction :

- la cellule contenant le filtre échantillon à extraire est tout d'abord remplie de solvant puis chauffée et mise sous pression (maintien du solvant à l'état liquide durant l'extraction),
- l'extrait est ensuite transféré de la cellule vers un vial de récupération.
- le système est ensuite purgé sous un flux d'azote.

Ce cycle est réalisé 3 fois sur chaque échantillon selon le protocole répertorié dans le Tableau V.1.2. Les extraits sont ensuite rassemblés (représentant un volume total d'environ 50 mL) et concentrés grâce à un évaporateur TurboVap II (Zimark) puis filtré grâce à un filtre PTFE à 0,2 µm avant d'être analysé à la fois pour les HAP (en HPLC-fluo) et pour une très large série d'espèces organiques (en GC-MS). Ces extraits sont stockés au réfrigérateur à 5 °C avant et après analyses. Le Tableau VI.3 répertorie les performances analytiques des 16 HAP, 8 HAPs méthylés, 5HAPs soufrés et 13 composés méthoxyphénols analysés durant les 4 campagnes hivernales du programme de DECOMBIO.

| Paramètre      | Méthode 1  | Méthode 2   |
|----------------|--|---|
| Pression       | 100 bar  | 100 bar   |
| Température    | 100 °C   | 100 °C  |
| Solvants       | MeOH (10 %) + CH <sub>2</sub> Cl <sub>2</sub> (90 %) | acétone (50 %) + CH <sub>2</sub> Cl <sub>2</sub> (50 %) |
| Chauffage      | 5 min  | 5 min   |
| Phase statique | 5 min  | 5 min   |
| Flush volume   | 10 %   | 10 %  |
| Purge          | 60 s   | 60 s  |
| Cycle          | 2  | 1   |

Tableau VI.2 : Paramètres utilisés pour l'extraction (Flush volume : quantité de solvant utilisée pour rincer la cellule (en % du volume de la cellule) - Cycle : nombre de cycles phase statique + rinçage, Chevrier, 2016)

| Famille de composés  | LD (ng.m <sup>-3</sup> ) | CV (%) | LQ (ng.m <sup>-3</sup> ) | Rendement d'extraction (%) |
|----------------------|--------------------------|--------|--------------------------|----------------------------|
| <b>HAP</b>           |                          |        |                          |                            |
| phénanthrène         | 0,00030                  | 5,6    | 0,153                    | 104,5 ± 1,6                |
| anthracène           | 0,00005                  | 3,2    | 0,012                    | 87,5 ± 1,2                 |
| fluoranthène         | 0,00015                  | 5,4    | 0,436                    | 80,0 ± 0,7                 |
| pyrène               | 0,00026                  | 3,2    | 0,370                    | 84,6 ± 3,9                 |
| triphénylène         | 0,00009                  | 5,2    | 0,046                    | 88,7 ± 2,8                 |
| rétène               | 0,00013                  | 5,2    | 0,201                    | 318,7 ± 11,0               |
| benzo(a)anthracène   | 0,00004                  | 5,2    | 0,132                    | 119,7 ± 1,0                |
| chrysène             | 0,00003                  | 5,2    | 0,066                    | 97,1 ± 3,3                 |
| benzo(e)pyrène       | 0,00033                  | 5,2    | 0,025                    | 103,4 ± 1,4                |
| benzo(b)fluoranthène | 0,00004                  | 5,2    | 0,014                    | 81,0 ± 0,5                 |
| benzo(k)fluoranthène | 0,00001                  | 5,3    | 0,007                    | 88,6 ± 1,0                 |

| Famille de composés    | LD (ng.m <sup>-3</sup> ) | CV (%) | LQ (ng.m <sup>-3</sup> ) | Rendement d'extraction (%) |
|------------------------|--------------------------|--------|--------------------------|----------------------------|
| benzo(a)pyrène         | 0,00002                  | 4,7    | 0,009                    | 81,7 ± 0,8                 |
| benzo(g,h,i)pérylène   | 0,00005                  | 5,4    | 0,009                    | 87,9 ± 2,4                 |
| dibenzo(a,h)anthracène | 0,00002                  | 5,4    | 0,001                    | 85,0 ± 2,0                 |
| indéno(1,2,3-cd)pyrène | 0,00009                  | 4,9    | 0,006                    | 70,24 ± 0,7                |
| coronène               | 0,00007                  | 4,9    | 0,039                    | 147,38 ± 5,8               |
| <b>HAP méthylés</b>    |                          |        |                          |                            |
| 3-méthylphénanthrène   | 0,014                    | 12,2   | 0,03                     | 116,2 ± 7,3                |
| 2-méthylphénanthrène   | 0,014                    | 12,7   | 0,04                     | 91,0 ± 3,5                 |
| 4/9-méthylphénanthrène | 0,014                    | 11,9   | 0,02                     | 69,5 ± 5,0                 |
| 1-méthylphénanthrène   | 0,007                    | 12,7   | 0,04                     | 124,7 ± 4,2                |
| 3-méthylchrysène       | 0,007                    | 10,0   | 0,03                     | 157,2 ± 10,0               |
| <b>HAP soufrés</b>     |                          |        |                          |                            |
| dibenzothiophène       | 0,007                    | 12,7   | 0,01                     | 111,9 ± 4,3                |
| <b>Méthoxyphénols</b>  |                          |        |                          |                            |
| syringol               | 0,006                    | 5,4    | 0,35                     | 58,8 ± 1,2                 |
| 4-méthylsyringol       | 0,006                    | 5,1    | 0,61                     | 63,0 ± 2,5                 |
| vanilline              | 0,168                    | 7,8    | 1,75                     | 65,4 ± 1,9                 |
| acétovanillone         | 0,547                    | 6,2    | 0,82                     | 78,8 ± 0,9                 |
| 4-propenylsyringol     | 0,281                    | 5,1    | < LD                     | 66,3 ± 1,6                 |
| guaïacylacétone        | 0,567                    | 5,2    | 0,91                     | 97,0 ± 2,5                 |
| acide vanillique       | 0,175                    | 6,0    | < LD                     | 118,4 ± 5,1                |
| acétosyringone         | 0,275                    | 5,8    | < LD                     | 106,4 ± 4,7                |
| acide homovanillique   | 0,144                    | 4,9    | < LD                     | 104,9 ± 6,6                |
| syringylacétone        | 0,170                    | 7,0    | < LD                     | 98,8 ± 2,8                 |
| coniféraldéhyde        | 0,564                    | 19,1   | < LD                     | 111,6 ± 5,4                |
| acide syringique       | 0,178                    | 4,9    | < LD                     | 108,7 ± 7,4                |
| sinapylaldéhyde        | 0,556                    | 13,8   | < LD                     | 112,2 ± 5,0                |

Tableau VI.3 : Limites de détection analytiques, coefficients de variation, limites de quantification et rendements d'extraction moyens pour chaque composé analysé

### ANNEXE 5: Caractéristiques météorologiques des classes de conditions atmosphériques

Les Tableaux VI.4 à VI.6 récapitulent, pour chacun des 3 sites, les moyennes des 9 variables météorologiques ou liées à l'intensité des émissions selon les 4 conditions atmosphériques définies.

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

| Classes         | T (°C)         | % jours avec RR <sub>ve</sub> $\leq 2$ mm | [BC <sub>wb</sub> ] <sub>ve</sub> ( $\mu\text{g}/\text{m}^3$ ) | 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 VI.4 : Moyennes et écart-types des variables météorologiques en fonction des 4 classes établis sur le site de Passy en utilisant la concentration de BC<sub>wb</sub> de la veille et les coefficients d'influence relative associés.

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

| Classes         | T (°C)         | % jours avec RR <sub>ve</sub> $\leq 2$ mm | [BC <sub>wb</sub> ] <sub>ve</sub> ( $\mu\text{g}/\text{m}^3$ ) | 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 VI.5 : Moyennes et écart-types des variables météorologiques en fonction des 4 classes établis sur le site de Marnaz en utilisant la concentration de BC<sub>wb</sub> de la veille et les coefficients d'influence relative associés.

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

| Classes    | T (°C)         | % jours avec RR <sub>ve</sub> $\leq 2$ mm | [BC <sub>wb</sub> ] <sub>ve</sub> ( $\mu\text{g}/\text{m}^3$ ) | % 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 VI.6: Moyennes et écart-types des variables météorologiques en fonction des 3 classes établis sur le site de Chamonix en utilisant la concentration de BC<sub>wb</sub> de la veille et les coefficients d'influence relative associés

On retiendra que les caractéristiques météorologiques de ces classes de conditions atmosphériques sont différentes entre elles et très similaires sur les 3 sites, ce qui a participé *in fine*

aux critères de sélection de ces classes. Une sélection des journées a été effectuée à partir du « degré d'appartenance » ( $\mu$ ) déterminé par l'algorithme de fuzzy clustering et employé pour distinguer les journées bien classées des celles présentant des conditions atmosphériques qui s'éloignent des conditions atmosphériques de la classe. Ce dernier point a été vérifié en comparant les distributions des différentes variables selon le seuil de degré d'appartenance sélectionné ainsi qu'en vérifiant la relation de cet indicateur avec l'indice Silhouette (Rousseeuw 1987), couramment utilisé pour évaluer la qualité des classifications automatiques.

La Figure VI.7 représente l'évolution des mesures de  $\Delta T$  sur le site de Passy sur les journées sélectionnées en fonction de plusieurs seuils de degré d'appartenance à la classe de condition atmosphérique. On observe que, plus le seuil de degré d'appartenance choisi pour sélectionner les journées est élevé, plus le nombre de variables extrêmes et la variance diminuent. Les mesures de  $\Delta T$  tendent également à être de plus en plus différentes entre les classes de conditions atmosphériques. Une augmentation de 21% du  $\Delta T$  moyen est constatée pour les journées de la classe Inversion sans sélection ou sélectionnées avec un seuil supérieur ou égal à 1, conditions atmosphériques pour lesquelles les  $\Delta T$  étaient les plus élevées des autres classes. De même, pour la classe Dispersion pour laquelle les journées présentent les  $\Delta T$  les plus faibles, on observe une diminution de 15% des mesures moyennes entre le cas extrême où toutes les journées classées « Dispersion » sont considérées ou le cas où seules les journées avec un degré d'appartenance  $\geq 1$  sont considérées.

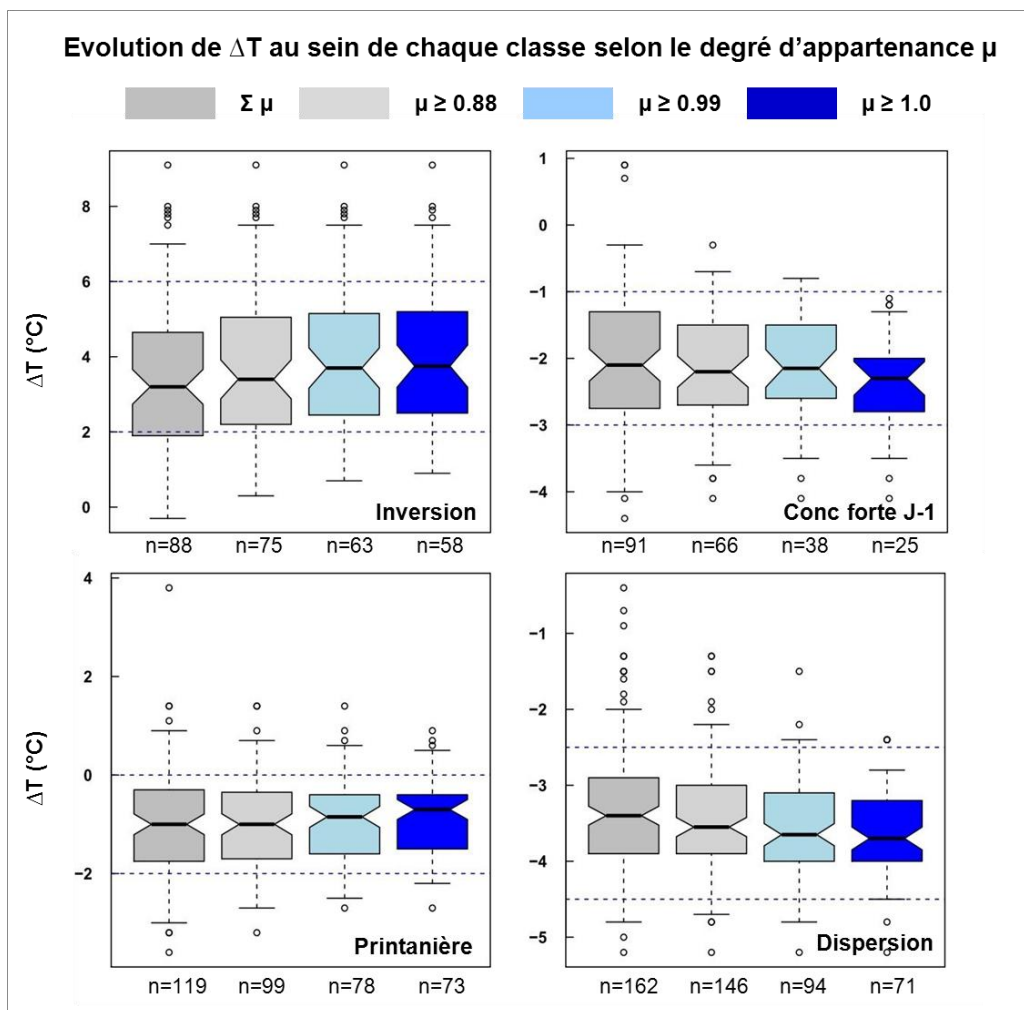


Figure VI. 7: Evolution des distributions des mesures de  $\Delta T$  au sein des différentes classes de conditions atmosphériques déterminées sur le site de Passy en fonction du degré d'appartenance,  $\mu$ , des journées à la classe de conditions atmosphériques.



Une relation très forte a également été constatée entre les indices Silhouette affiliées aux journées et le degré d'appartenance (non montré) permettant de valider à ce point des connaissances, l'indicateur du degré d'appartenance pour sélectionner les conditions atmosphériques les plus homogènes au sein des classes de conditions atmosphériques. Comme décrit dans le Chapitre 3, un seuil de degré d'appartenance de 0.98 a été choisi permettant de garder un effectif statistique suffisant pour la comparaison des concentrations entre les hivers (Tableau VI). En effet, les variables sélectionnées pour classer les concentrations expliquent environ 70% de la variance des concentrations de BC<sub>wb</sub> et de PM<sub>10</sub> (cf Chapitre 3). 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 1er hiver soit lors du dernier hiver du programme.

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

Tableau VI.7 : 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

L'homogénéité entre les hivers des valeurs des paramètres les plus influents sur les concentrations de PM<sub>10</sub> hivernales ( $\Delta T$ , 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 VI représente les écarts de  $\Delta T$ , concentration à J-1, température journalière, et vitesse du vent moyens hivernaux avec les valeurs moyennes du 1er 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 1er hiver du programme présentent des  $\Delta T$  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 1er 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 1er hiver) et également de fort écarts du ratio entre les concentrations de BC<sub>wb</sub> à J-1 et à J avec des ratios relativement plus élevés lors du 4ème hiver. Cela traduit que les concentrations de BC<sub>wb</sub> à J-1 sont donc plus élevées par rapport aux concentrations de BC<sub>wb</sub> à J que lors du 1er hiver. Les journées de type « Inversion » lors du 4ème hiver présentent des températures inférieures de 4°C en moyenne avec le 1er 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.

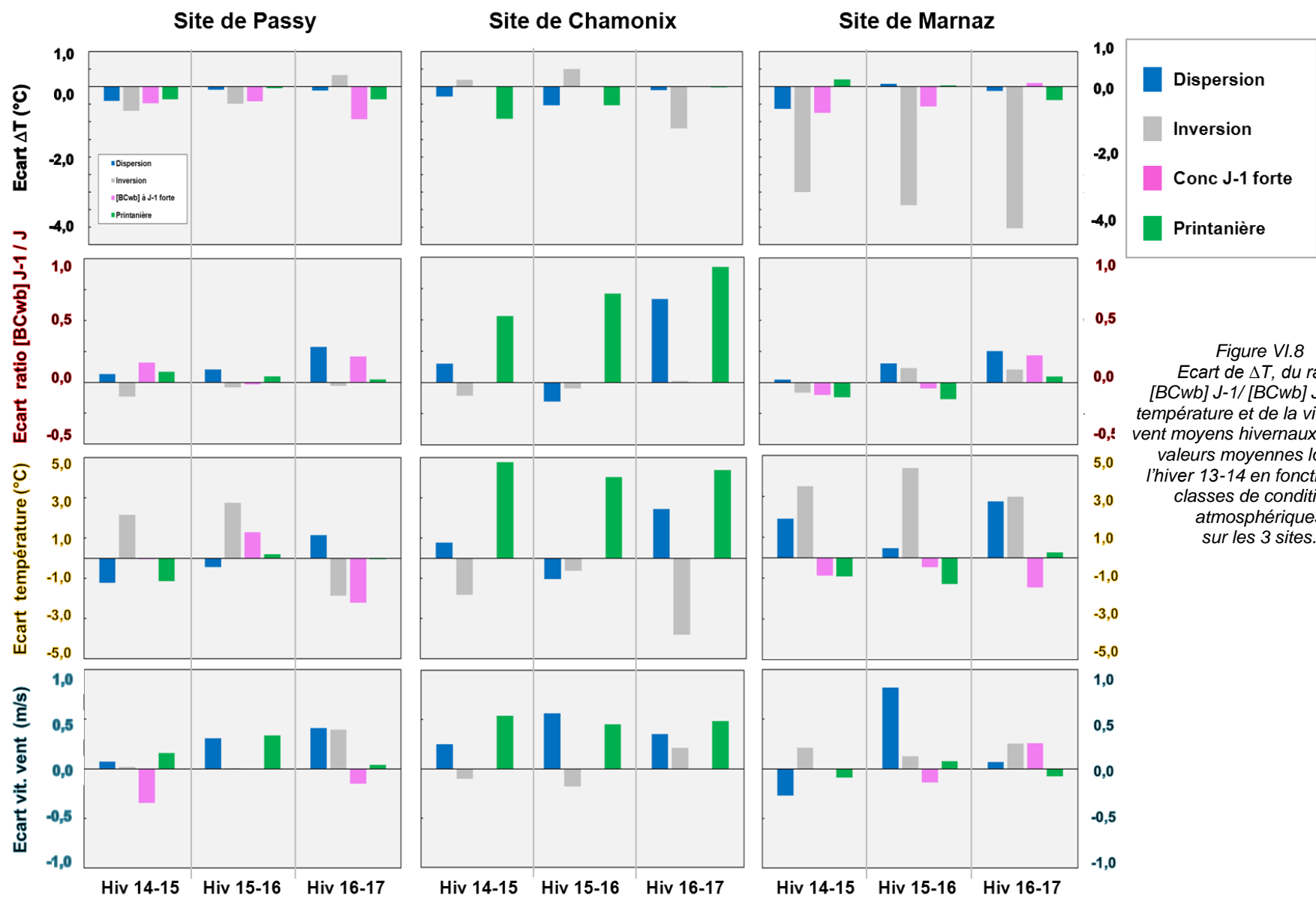


Figure VI.8  
 Ecart de  $\Delta T$ , du ratio  
 [BCwb] J-1/ [BCwb] J, de la  
 température et de la vitesse du  
 vent moyens hivernaux avec les  
 valeurs moyennes lors de  
 l'hiver 13-14 en fonction des  
 classes de conditions  
 atmosphériques  
 sur les 3 sites.



## ANNEXE 6: Méthodes statistiques pour la comparaison de plusieurs distributions et le calcul de tendances

### 1- Comparaison de deux ou plusieurs distributions

Pour tester si des échantillons proviennent de populations de valeur identiques ou différentes, les tests non paramétriques de Mann-Whitney (Mann et Whitney 1947) et de Kruskal-Wallis (Kruskal et Wallis 1952) ont été employés dans le cas de la comparaison de deux ou plus de deux distributions respectivement. Ces deux tests statistiques sont basés sur les rangs des observations, c'est-à-dire l'ordre dans lequel apparaissent les observations des différents échantillons lorsqu'ils sont réunis et triés. Ils testent l'hypothèse nulle ( $H_0$ ) selon laquelle les échantillons sont identiquement positionnés. La statistique de ces tests se calcule selon l'expression suivante (U pour le test Mann-Whitney et K pour le test de Kruskal-Wallis) :

$$U \text{ ou } K = \frac{12}{(N(N+1))} \sum_i^k [R_i^2 - 3(N+1)]$$

avec N, la somme des tailles des échantillons  $i$  et  $R_i$ , la somme des rangs pour l'échantillon  $i$  parmi l'ensemble des échantillons.

A partir de cette statistique U ou K, la probabilité de rejeter l'hypothèse nulle alors que celle-ci est vraie, nommée p-valeur (ou valeur de p), est calculée à partir de la comparaison de U ou K à un « seuil critique » correspondant de la table de Mann-Whitney ou de la loi du  $X^2$  respectivement au nombre d'échantillon -1 degrés de libertés. Conventionnellement, une valeur de p inférieure à  $5.10^{-2}$  permet de rejeter l'hypothèse nulle et de considérer que les deux échantillons ou que deux échantillons parmi tous les échantillons testés sont différents.

### 2- Calcul de tendance

Dans le contexte de la qualité de l'air, deux tests non-paramétriques sont employés afin de définir respectivement la robustesse de la tendance (test de Mann-Kendall) et le calcul de la pente (Sen-Theil). Ces deux tests présentent l'avantage d'être peu impactés par les valeurs extrêmes et l'autocorrélation temporelle (Malherbe, et al. 2017).

La statistique de Mann-Kendall, S se définit par :

$$S = \sum_{k=1}^{n-1} \sum_{j=k+1}^n \text{sgn}(x_j - x_k)$$

Avec  $\text{sgn}(x_j - x_k) = 1; 0 \text{ ou } -1$  si  $(x_j - x_k) > 0, = 0 \text{ ou } < 0$  respectivement et  $x_j$ , la variable pour le temps  $j$  et  $n$ , le nombre de temps  $t$  disponibles. S est, ensuite, réduite afin que sa distribution s'approche d'un loi Normale permettant de déterminer le « seuil critique » et la valeur de p.

En faisant l'hypothèse d'une tendance linéaire pour la série temporelle de  $n$  mesures, la pente Q dans le test de Sen se détermine à partir d'un ensemble de pentes  $Q_{jk}$ , estimé pour chacune des  $n(n-1)/2$  paires de données :

$$Q_{jk} = \frac{x_j - x_k}{j - k}$$

La pente de Sen correspond à la médiane de cet ensemble de pentes et peut s'exprimer sous différentes formes (% sur la période, % par unité de temps  $t$ , etc.), assortie d'un intervalle de confiance déterminé à partir de la distribution de l'ensemble des pentes  $Q_{jk}$ .

## ANNEXE 7: Résultats de la comparaison des contributions relatives des espèces aux PM<sub>10</sub> en fonction des hivers et des classes de conditions atmosphériques

Les contributions des principales espèces aux PM<sub>10</sub> (matière carbonée, fraction ionique et marqueurs organiques de la combustion de la biomasse) ont été comparées entre les différents hivers et les différentes classes de conditions atmosphériques sur le site de Passy. Ce site est, en effet le seul à présenter des classes de conditions atmosphériques relativement homogènes au cours des 4 hivers (à l'exception de la classe Inversion). Le Tableau VI.8 répertorie le nombre de mesures par hiver et par classe de conditions atmosphériques obtenues entre le 01/12 et le 28/02. Les Tableaux VI.9 et VI.10 répertorient les différentes valeurs de p obtenues à partir du test de Kruskal-Wallis.

|         | Dispersion | Inversion | Printanière | Conc. forte à J-1 |
|---------|------------|-----------|-------------|-------------------|
| Hiver 1 | 22         | 4         | 15          | 12                |
| Hiver 2 | 26         | 11        | 18          | 7                 |
| Hiver 3 | 29         | 20        | 7           | 1                 |
| Hiver 4 | 19         | 10        | 14          | 5                 |

Tableau VI.8 : Effectif des mesures journalières en fonction des 4 hivers du programme DECOMBIO et des 4 classes de conditions atmosphériques entre le 01/12 et le 28/02.

|                               | Hiver 1  | Hiver 2  | Hiver 3  | Hiver 4  |
|-------------------------------|----------|----------|----------|----------|
| OC                            | 1,28E-04 | 2,77E-03 | 1,23E-02 | 3,46E-02 |
| BC <sub>wb</sub>              | 1,30E-04 | 9,80E-06 | 2,17E-06 | 4,96E-01 |
| BC <sub>ff</sub>              | 6,47E-02 | 1,23E-02 | 4,33E-04 | 3,14E-01 |
| MSA                           | 7,40E-05 | 2,58E-02 | 9,10E-03 | 3,16E-01 |
| Cl <sup>-</sup>               | 2,25E-03 | 3,10E-02 | 5,51E-06 | 1,83E-04 |
| NO <sub>3</sub> <sup>-</sup>  | 3,26E-01 | 5,35E-02 | 5,90E-05 | 1,73E-03 |
| SO <sub>4</sub> <sup>2-</sup> | 1,54E-03 | 9,03E-04 | 2,69E-05 | 7,71E-01 |
| Oxalate                       | 6,21E-03 | 2,66E-02 | 4,88E-07 | 2,41E-01 |
| Na <sup>+</sup>               | 2,48E-02 | 6,31E-01 | 2,73E-01 | 1,69E-02 |
| NH <sub>4</sub> <sup>+</sup>  | 9,76E-02 | 1,46E-03 | 1,49E-06 | 6,14E-03 |
| K <sup>+</sup>                | 1,11E-04 | 1,34E-03 | 4,10E-06 | 3,46E-01 |
| Mg <sup>2+</sup>              | 3,36E-03 | 3,68E-02 | 6,57E-02 | 1,56E-03 |
| Ca <sup>2+</sup>              | 6,75E-06 | 2,39E-04 | 6,17E-04 | 1,44E-05 |
| Mono. Sacch.                  | 5,56E-04 | 2,16E-03 | 7,88E-03 | 1,41E-01 |
| Polyols                       | 1,68E-04 | 2,56E-01 | 6,52E-02 | 1,75E-06 |

Tableau VI.9 : Comparaison des contributions des espèces aux PM<sub>10</sub> entre chacune des classes de conditions atmosphériques pour chacun des hivers. Les valeurs de p indiquées en vert représentent les contributions qui sont considérées différentes entre au-moins deux classes de conditions atmosphériques.

La différence des profils chimiques de PM<sub>10</sub> entre les classes de conditions atmosphériques est plus complexe à interpréter que celle des profils chimiques entre les hivers pour chacune des classes de conditions atmosphériques. En effet, peu de contributions d'espèces sont retrouvées significativement différentes ou significativement non-différentes entre les classes de conditions atmosphériques pour chacun des hivers, à l'exception de l'ion Ca<sup>2+</sup>. Ceci s'explique en partie par les effectifs de mesures qui varient entre chaque classe et chaque hiver et peuvent être très faibles (> 5). Des généralités ont cependant été déduites en analysant plus en détail les distributions des contributions des espèces au PM<sub>10</sub> et qui sont rapportés dans le Chapitre 4. Le profil chimique des PM<sub>10</sub> de la classe Printanière se détache des profils des autres classes de conditions atmosphériques par des contributions faibles des marqueurs de la combustion de la biomasse aux PM<sub>10</sub> et des

contributions élevées d'espèces fortement présentes en période estivale (sulfates, polyols,  $\text{Ca}^{2+}$ , oxalates). Ceci est confirmée par la comparaison des contributions des espèces aux  $\text{PM}_{10}$  au cours des hivers pour lesquelles aucune différence significative des traceurs de la combustion de la biomasse aux  $\text{PM}_{10}$  n'est trouvée pour les conditions de type « Printanière ». A contrario, les profils chimiques des classes Dispersion et Inversion présentent des différences entre les hivers concernant les contributions des traceurs de la combustion de la biomasse (OC,  $\text{BC}_{\text{wb}}$ ,  $\text{Cl}^-$ , monosaccharides anhydres,  $\text{K}^+$ ) et des aérosols inorganiques secondaires (sulfates, nitrates, ammonium). La classe « Concentration forte à J-1 » ne présente qu'une seule mesure lors du 3<sup>ème</sup> hiver biaisant les résultats.

|                         | Dispersion | Inversion | Conc forte J-1 | Printanière |
|-------------------------|------------|-----------|----------------|-------------|
| OC                      | 1,09E-02   | 5,66E-03  | 8,77E-02       | 3,70E-01    |
| $\text{BC}_{\text{wb}}$ | 6,02E-02   | 2,33E-05  | 2,38E-02       | 1,85E-01    |
| $\text{BC}_{\text{ff}}$ | 3,32E-01   | 7,66E-03  | 6,47E-01       | 2,03E-01    |
| MSA                     | 5,68E-01   | 1,13E-01  | 6,73E-01       | 9,12E-02    |
| $\text{Cl}^-$           | 7,96E-05   | 1,51E-02  | 2,13E-01       | 8,60E-01    |
| $\text{NO}_3^-$         | 7,92E-03   | 2,97E-05  | 8,79E-02       | 9,51E-01    |
| $\text{SO}_4^{2-}$      | 4,16E-03   | 5,21E-05  | 1,31E-03       | 5,45E-01    |
| Oxalate                 | 6,41E-05   | 2,50E-03  | 6,40E-01       | 5,20E-04    |
| $\text{Na}^+$           | 8,16E-02   | 1,16E-02  | 4,52E-02       | 9,98E-01    |
| $\text{NH}_4^+$         | 1,12E-03   | 3,46E-05  | 4,80E-02       | 9,45E-01    |
| $\text{K}^+$            | 2,90E-05   | 7,31E-04  | 2,88E-03       | 1,16E-06    |
| $\text{Mg}^{2+}$        | 2,77E-01   | 6,60E-03  | 7,51E-01       | 1,72E-03    |
| $\text{Ca}^{2+}$        | 2,27E-01   | 2,69E-03  | 9,35E-01       | 1,58E-01    |
| Mono. Sacch.            | 7,50E-03   | 1,05E-02  | 6,41E-02       | 7,33E-01    |
| Polyols                 | 4,89E-03   | 1,83E-04  | 3,97E-03       | 2,61E-01    |

Tableau VI.10 : Comparaison des contributions des espèces aux  $\text{PM}_{10}$  entre les hivers pour chacune des classes de conditions atmosphériques.. Les valeur de p indiquées en vert représentent les contributions qui sont considérées différentes entre au-moins deux hivers.

Ainsi, bien que les profils chimiques de  $\text{PM}_{10}$  soient des profils types d'aérosols impactés fortement par la combustion de la biomasse, des différences ont pu être mises en évidence par l'analyse des contributions des espèces aux  $\text{PM}_{10}$  entre les hivers du programme mais également entre la classe de condition atmosphérique « Printanière » et les autres classes de conditions atmosphériques.

## **ANNEXE 8: Evolutions des concentrations de traceur de la combustion de la biomasse et des PM<sub>10wb</sub> selon les 4 classes de conditions atmosphériques sur les 3 sites**

La section 2 du Chapitre 4 présente les évolutions pour les 4 hivers des concentrations moyennes de PM<sub>10</sub>, EC, eBC, BC<sub>wb</sub> et lévoglucosan pour les 3 sites et pour la classe « Dispersion », ainsi que les évolutions pour les 4 hivers des concentrations de PM<sub>10wb</sub> pour le site de Passy, pour les 4 classes. 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 ne soient pas rigoureusement semblables. Les évolutions des concentrations des PM<sub>10wb</sub> et lévoglucosan sont représentées, à titre indicatif, pour chaque hiver et chacune des classes sur chacun des sites (Passy Figure VI.9; Chamonix Figure VI.10, et Marnaz Figure VI.11).

Sur le site de Passy, les concentrations du lévoglucosan diminuent globalement entre le 1<sup>er</sup> et la 4<sup>ème</sup> hiver entre 14 et 36% selon la classe de conditions atmosphériques, tandis que les concentrations de BC<sub>wb</sub> et PM<sub>10wb</sub> diminuent entre 21 et 40% entre le 1<sup>er</sup> et le 4<sup>ème</sup> 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 précédemment mentionnées dans le Chapitre 4. D'une part, 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<sub>wb</sub> et PM<sub>10wb</sub> (calculé sur la base de BC<sub>wb</sub>) 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<sub>10wb</sub> et de lévoglucosan pour la classe « Printanière » pose question : les concentrations de lévoglucosan montrent bien une diminution tandis que les concentrations de BC<sub>wb</sub> (et donc de PM<sub>10wb</sub>) ne diminuent que très faiblement. Ce phénomène n'a pas pu être observé sur les 2 autres sites du fait d'effectif trop restreint.

Sur le site de Chamonix, une diminution des concentrations BC<sub>wb</sub> (et donc de PM<sub>10wb</sub>) de l'ordre de 55% est constatée entre le 1<sup>er</sup> et le 4<sup>ème</sup> hiver lors des conditions atmosphériques dites de « Dispersion » (également vue pour la classe « Printanière », mais le 1<sup>er</sup> 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<sup>er</sup> et le 4<sup>ème</sup> hiver. Les concentrations de lévoglucosan diminuent également entre le 1<sup>er</sup> et le 4<sup>ème</sup> hiver pour les 3 types de conditions, bien que plus faiblement que les concentrations de BC<sub>wb</sub>. 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 PM<sub>10</sub> présentent quant-à-elles une diminution de l'ordre de 20% entre le 1<sup>er</sup> et le 4<sup>ème</sup> 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<sup>ème</sup> 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<sup>er</sup> et le 4<sup>ème</sup> hiver est observée pour les concentrations de lévoglucosan, PM<sub>10wb</sub> et PM<sub>10</sub>. A l'opposé, les concentrations de BC<sub>wb</sub> et lévoglucosan restent relativement stables lors des conditions « Concentration forte la veille », tandis qu'une augmentation relativement importante est observée pour

les concentrations de PM<sub>10</sub>. Les concentrations ne peuvent pas être pertinemment comparées pour la classe « Printanière » avec un effectif de 3 mesures lors du 4<sup>ème</sup> hiver.

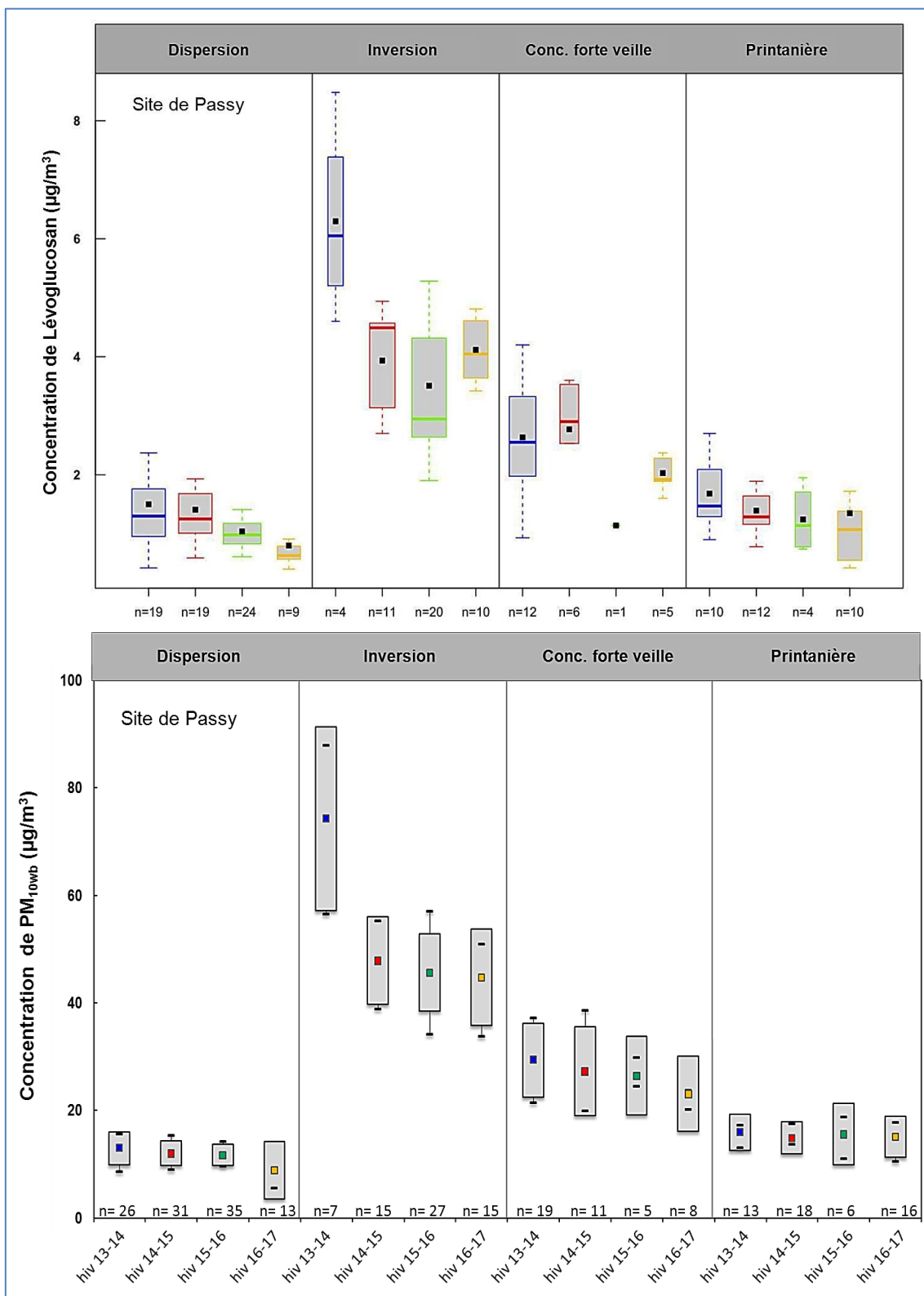


Figure VI.9 : Représentation de type « Boxplot » des concentrations de lévoglucosan et PM<sub>10wb</sub> issues des mesures de BC<sub>wb</sub> au cours des 4 hivers (15/11 au 15/03) selon les différentes classes de conditions atmosphériques sur le site de Passy. Evolutions des concentrations moyennes et de leurs incertitudes avec un intervalle de confiance à 95%.

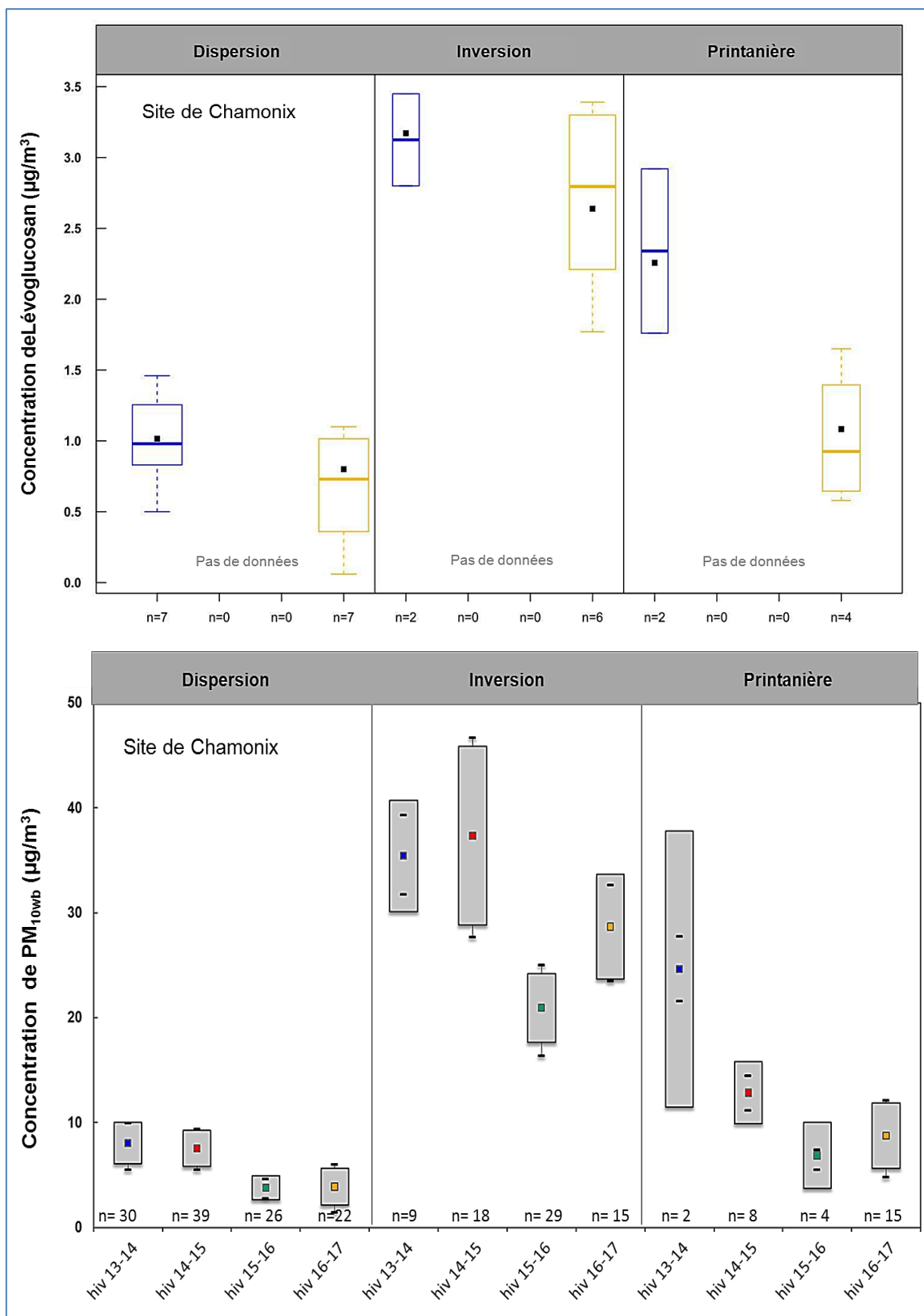


Figure VI.10 : Représentation de type « Boxplot » des concentrations de lévoglucosan et  $\text{PM}_{10\text{wb}}$  issues des mesures de  $\text{BC}_{\text{wb}}$  au cours des 4 hivers (15/11 au 15/03) selon les différentes classes de conditions atmosphériques sur le site de Chamonix. Evolutions des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

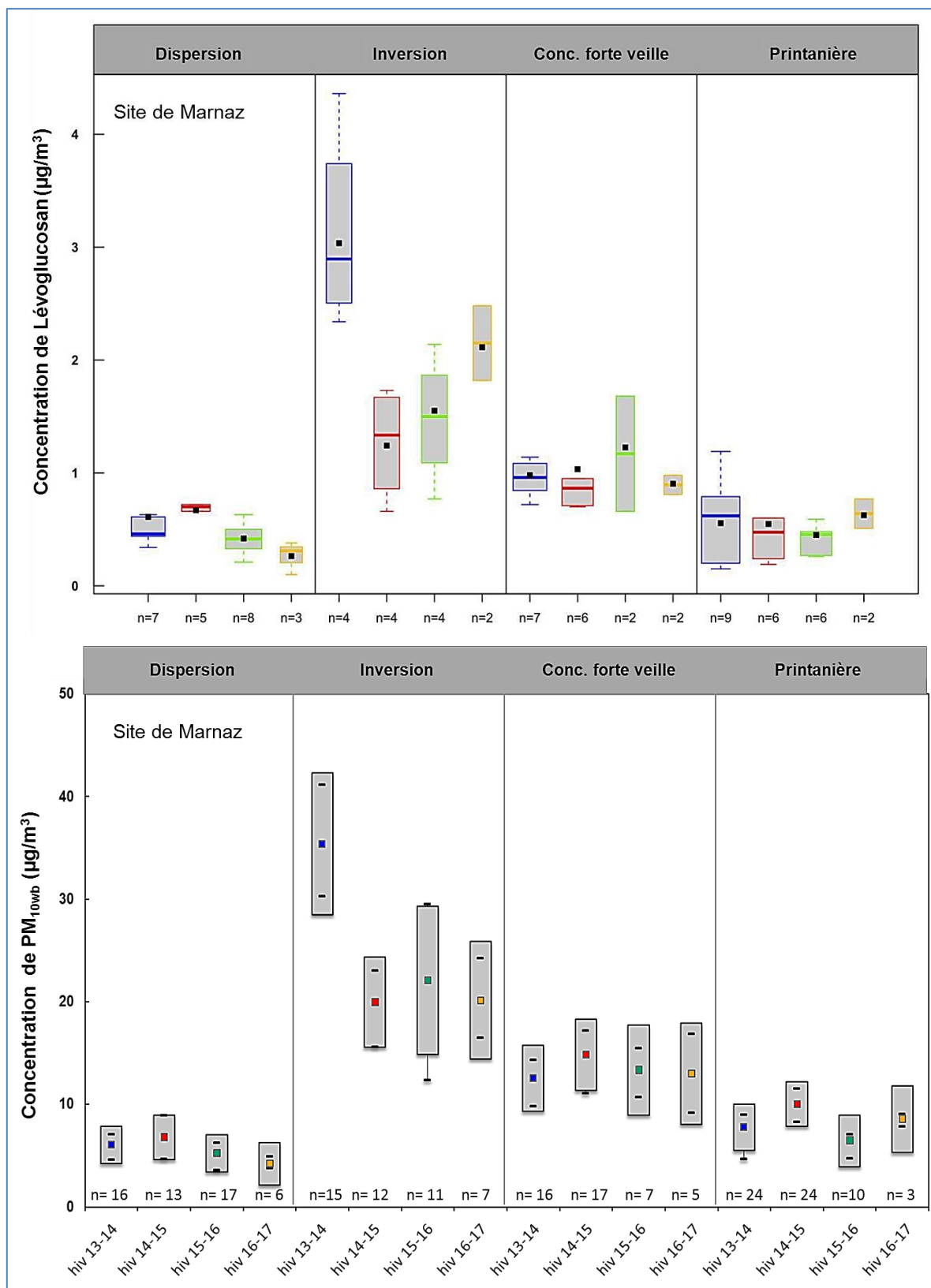


Figure VI.11 : Représentation de type « Boxplot » des concentrations de lévoglucosan et  $\text{PM}_{10\text{wb}}$  issues des mesures de  $\text{BC}_{\text{wb}}$  au cours des 4 hivers (15/11 au 15/03) selon les différentes classes de conditions atmosphériques sur le site de Marnaz. Evolutions des concentrations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



### ANNEXE 9 : Analyse de la variabilité des consommations déclarées dans la vallée de l'Arve

La comparaison des consommations annuelles de bois déclarées des appareils non-performants dans les dossiers du SM3A et les enquêtes ménage PRE2A et DREAL (voir Section 6 du Chapitre 2) a mis en avant une variabilité très importante des consommations rapportées par m<sup>2</sup> de surface de logement en fonction des modes d'usage. Outre ces données, les enquêtes et dossiers contiennent des renseignements sur le type d'appareil (foyer ouvert, poêle, insert, chaudière, cuisinière), le mode d'usage (principal, appoint) et la période d'achèvement du logement (catégorie établi selon les différentes réglementations thermiques : 1975, 1990, 2005). L'influence de ces paramètres sur les consommations, qui étaient initialement utilisées dans l'inventaire Atmo-AuRA pour estimer les consommations annuelles de bois, ainsi que la dépendance entre ces paramètres ont été investiguées avec le test du X<sup>2</sup>. Comme les autres tests statistiques présentés dans l'Annexe 8, une hypothèse nulle est testée correspondant pour ce test à l'absence de dépendance entre les 2 variables testées.

La Figure VI.12 présente les statistiques de ce test réalisées entre des classes de consommations déclarées et le type d'appareil, le type d'appareil et le mode d'usage, ainsi qu'entre la période d'achèvement du logement et le type d'appareil. Plus la statistique est élevée positivement ou négativement, plus les paramètres sont dépendants de façon positive ou négative. Les classes de consommations déclarées ont été trouvées faiblement dépendantes du type d'appareil, à l'exception des chaudières présentant des consommations de bois élevées par rapport aux autres types d'appareil et les foyers ouverts présentant des consommations de bois faibles par rapport aux autres types d'appareil. Cette dépendance s'explique par les modes d'usage préférentiels des chaudières en base et des foyers ouverts en appoint. Les relations de dépendance entre le type d'appareil, le mode d'usage et la période d'achèvement du logement sont retrouvées dans les 3 sources de données et synthétisées dans le Tableau VI.11. Ces caractéristiques correspondent à l'étude ADEME sur la caractérisation technique des appareils de chauffage au bois (ADEME 2015a) permettant de confirmer la fiabilité des données déclarées des dossiers du SM3A. Toutefois, parmi ces paramètres, seul le mode d'usage a un impact prépondérant sur les consommations annuelles déclarées. L'enquête DREAL, contenant d'autres paramètres de type technique ou lié à l'usage de l'appareil (température de confort, essence de bois, etc.) permet d'aller plus loin dans l'analyse de la variabilité des consommations déclarées.

| Période d'achèvement du logement | Type d'appareil utilisé préférentiellement | Type d'appareil très peu utilisé | Mode de chauffage préférentiel |
|----------------------------------|--|----------------------------------|--------------------------------|
| Avant 1949                       | Poêle/Cuisinière                           | Insert                           | Base                           |
| 1949-1975                        | Chaudière/ FO                              | Insert                           | Appoint                        |
| 1975-1990                        | Insert                                     | Poêle                            |                                |
| 1990-2005                        |  | Foyer Ouvert                     |                                |

Tableau VI.11 : Description des dépendances entre le type d'appareil et le mode de chauffage avec la période d'achèvement du logement à partir des résultats des tests du  $\chi^2$ .

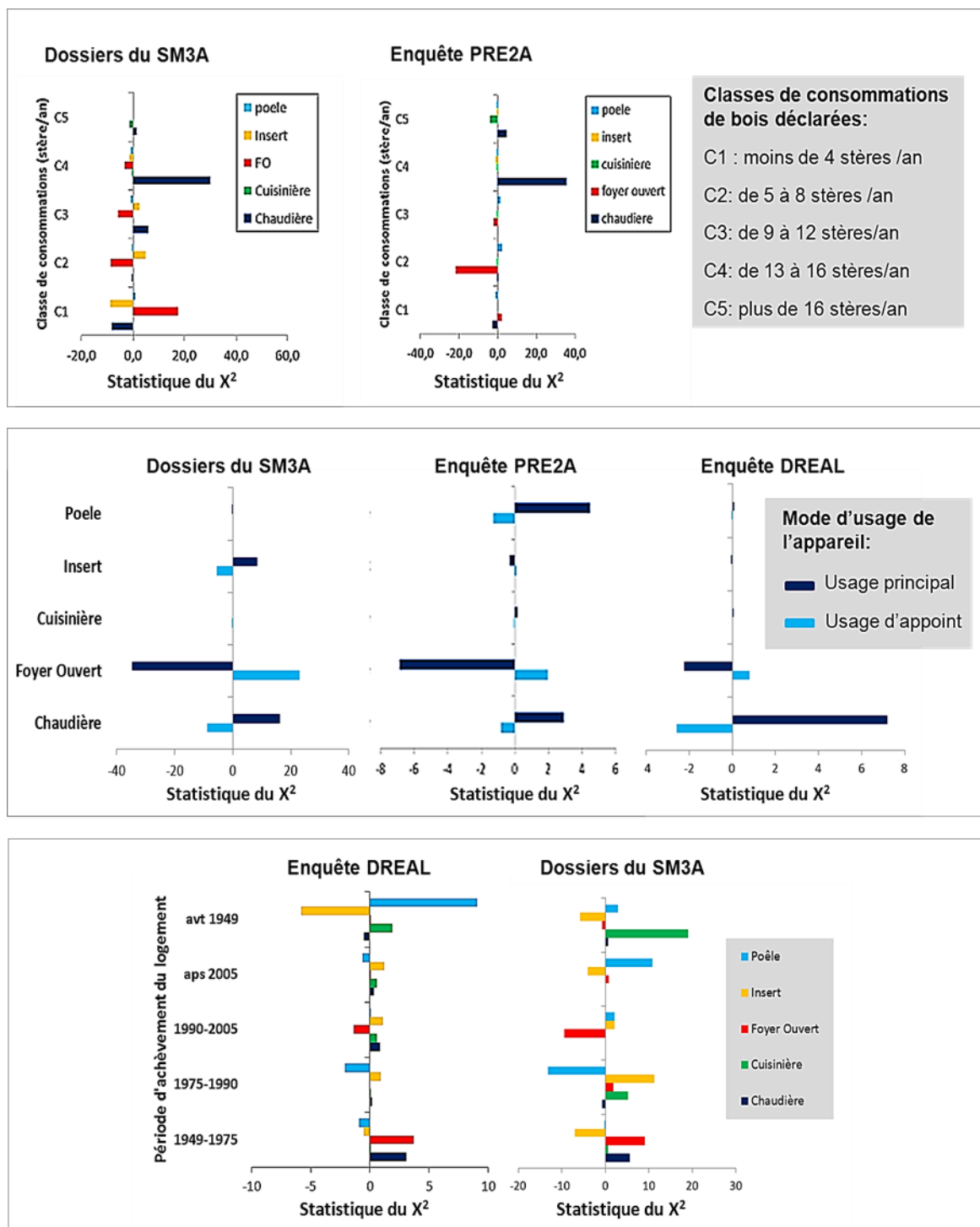


Figure VI.12 : Statistiques du test du  $X^2$  réalisé sur les données issues des dossiers du SM3A (Fond Air Bois) et des enquêtes DREAL et PRE2A entre les classes de consommations annuelles déclarées et le type d'appareil (en haut), entre le type d'appareil et le mode d'usage de l'appareil (au milieu) et entre la période d'achèvement du logement et le type d'appareil (en bas).

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 (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. Allibe et al (2010) justifie 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 (Landreau et Rogeau 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.

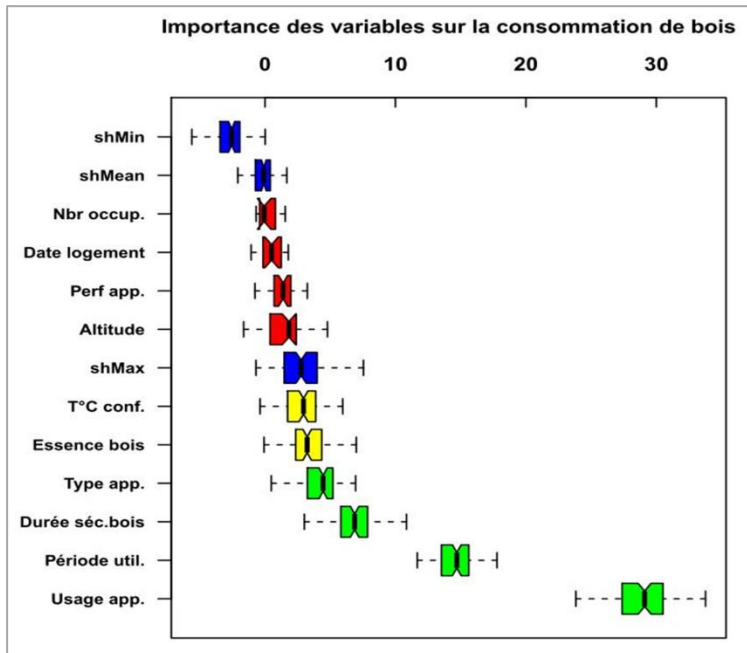


Figure VI.13 : Importance relative des différents paramètres sur les consommations unitaires de l'ensemble des appareils de chauffage (appareils anciens, récents non-performants et performants, enquête DREAL, effectif 131).

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 VI.13 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.

Ainsi les consommations de bois rapportées par m<sup>2</sup> de logement en fonction des modes d'usage de l'appareil sont extrêmement variables, variabilité qui s'explique davantage par des paramètres liés au comportement d'usage tels que la durée de séchage de bois ou la période d'utilisation de l'appareil. A l'échelle d'un logement, les consommations réelles sont difficilement modélisables et les consommations déclarées représentent les données les plus fiables disponibles.

## ANNEXE 10 : Méthode d'imputation des données manquantes et de prise en compte de la variabilité des facteurs d'émissions

### 1-Variables de type quantitatif

Afin de respecter les relations entre les champs de variables mises en avant lors de l'analyse sur la variabilité des consommations déclarées (voir Annexe 9), les champs « Consommation déclarée » et « Surface du logement » ont été complétés aléatoirement selon des densités de probabilités spécifiques lorsque les données étaient manquantes. Ces 2 paramètres sont les seuls paramètres de type quantitatif à être parfois manquant dans les dossiers du SM3A et servant à estimer les émissions de PM<sub>10</sub> des appareils de chauffage au bois. Les densités de probabilités de ces paramètres ont été déterminées à partir des données des dossiers où le type de logement, la surface, la consommation déclarée avec l'ancien appareil et le mode d'usage de l'appareil étaient renseignées. De façon analogue, pour prendre en compte la variabilité très importante des facteurs d'émissions (voir Section 4 du Chapitre 1), des densités de probabilités en fonction du type d'appareil ont été déterminées à partir des mesures provenant d'études publiées (voir Section 1 du Chapitre 5). Le Tableau VI.12 répertorie les estimateurs des lois de probabilités utilisées pour l'estimation de la réduction des émissions de PM<sub>10</sub> des appareils renouvelés.

| Champ à compléter  | Eff. | Type de loi | Estimateurs de la loi   |
|--|------|-------------|---|
| Surface pour un appartement                                      | 177  | Normale     | $\mu = 84 \text{ m}^2$ ; $\sigma = 29 \text{ m}^2$ ; $\text{min} = 20 \text{ m}^2$  |
| Surface pour une maison  | 1279 | Normale     | $\mu = 116 \text{ m}^2$ ; $\sigma = 41 \text{ m}^2$ ; $\text{min} = 25 \text{ m}^2$   |
| Consommation de bois par m <sup>2</sup> pour un usage en base    | 447  | Lognormale  | $\mu = 1,85$ ; $\sigma = 0,446$ ;<br>$\text{min} = 1,4 \cdot 10^{-2}$ ; $\text{max} = 15,1 \cdot 10^{-2} \text{ stère/m}^2$ |
| Consommation de bois par m <sup>2</sup> pour un usage en appoint | 605  | Lognormale  | $\mu = 1,07$ ; $\sigma = 0,64$ ;<br>$\text{min} = 0,2 \cdot 10^{-2}$ ; $\text{max} = 9,5 \cdot 10^{-2} \text{ stère/m}^2$   |
| Consommation de bois par m <sup>2</sup> pour un usage en loisir  | 87   | Lognormale  | $\mu = 0,509$ ; $\sigma = 0,695$ ;<br>$\text{min} = 0,2 \cdot 10^{-2}$ ; $\text{max} = 6,4 \cdot 10^{-2} \text{ stère/m}^2$ |
| FE pour les foyers ouverts                                       | 5    | Lognormale  | $\mu = 5,86$ ; $\sigma = 0,85$<br>(gPM <sub>10</sub> .GJ <sup>-1</sup> )  |
| FE pour les foyers fermés anciens                                | 7    | Lognormale  | $\mu = 5,12$ ; $\sigma = 1,10$<br>(gPM <sub>10</sub> .GJ <sup>-1</sup> )  |
| FE pour les chaudières anciennes                                 | 5    | Lognormale  | $\mu = 5,86$ ; $\sigma = 1,20$<br>(gPM <sub>10</sub> .GJ <sup>-1</sup> )  |
| FE pour les foyers fermés performants à bûches                   | 2    | Lognormale  | $\mu = 4,54$ ; $\sigma = 0,84$<br>(gPM <sub>10</sub> .GJ <sup>-1</sup> )  |
| FE pour les foyers fermés performants à granulés                 | 6    | Lognormale  | $\mu = 3,43$ ; $\sigma = 0,66$<br>(gPM <sub>10</sub> .GJ <sup>-1</sup> )  |

Tableau VI.12 : Synthèse des différents paramètres et type de loi de probabilité utilisés pour compléter les champs de données manquantes ou pour remplacer les facteurs d'émissions des inventaires réglementaires par des facteurs d'émissions probabilistes. Les effectifs de mesures ayant permis de déterminer les paramètres des densités de probabilités par maximum de vraisemblance sont indiqués.

A l'échelle d'un logement, un autre paramètre est susceptible de varier et impacte les consommations réelles de bois : le Pouvoir Calorifique Inférieur ou PCI. Ce paramètre 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. Si de plusieurs paramètres peuvent faire varier le PCI d'un combustible, l'humidité du bois reste le facteur le plus influent, ainsi que de manière moindre, l'essence du bois.

L'enquête PRE2A et les dossiers du SM3A 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 SM3A et 64% de l'enquête PRE2A). Le Tableau VI.13 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.

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

Tableau VI.13: 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/m<sup>3</sup> a été choisie, celle-ci pouvant aller de 300 kg/m<sup>3</sup> pour les bois résineux à 800 kg/m<sup>3</sup> pour les feuillus.

Le Tableau VI.13 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. Un PCI moyen de 1613 kWh/stère ( $\pm 40$  kWh/stère) a été déterminé permettant d'établir à partir des consommations déclarées pour les appareils utilisés en énergie principale, une consommation énergétique moyenne de 117 kWh/m<sup>2</sup>/an variant entre 42 et 277 kWh/m<sup>2</sup>/an. Ces valeurs de consommations énergétiques correspondent à celles habituellement rencontrées. Le PCI a, ainsi, été inclus dans le calcul de la réduction des émissions de PM<sub>10</sub> des appareils renouvelés sous forme probabiliste issu d'une loi Normale ( $\mu = 1613$  et  $\sigma = 40$  kWh/stère).

D'autres champs de variables, cette fois-ci de type qualitatif des dossiers du SM3A sont nécessaires afin d'estimer la réduction des émissions de PM<sub>10</sub>. Une autre méthode d'imputation multiple a été établie pour ces paramètres.

## 2-Variables de type qualitatif

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 VI.14 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 ».

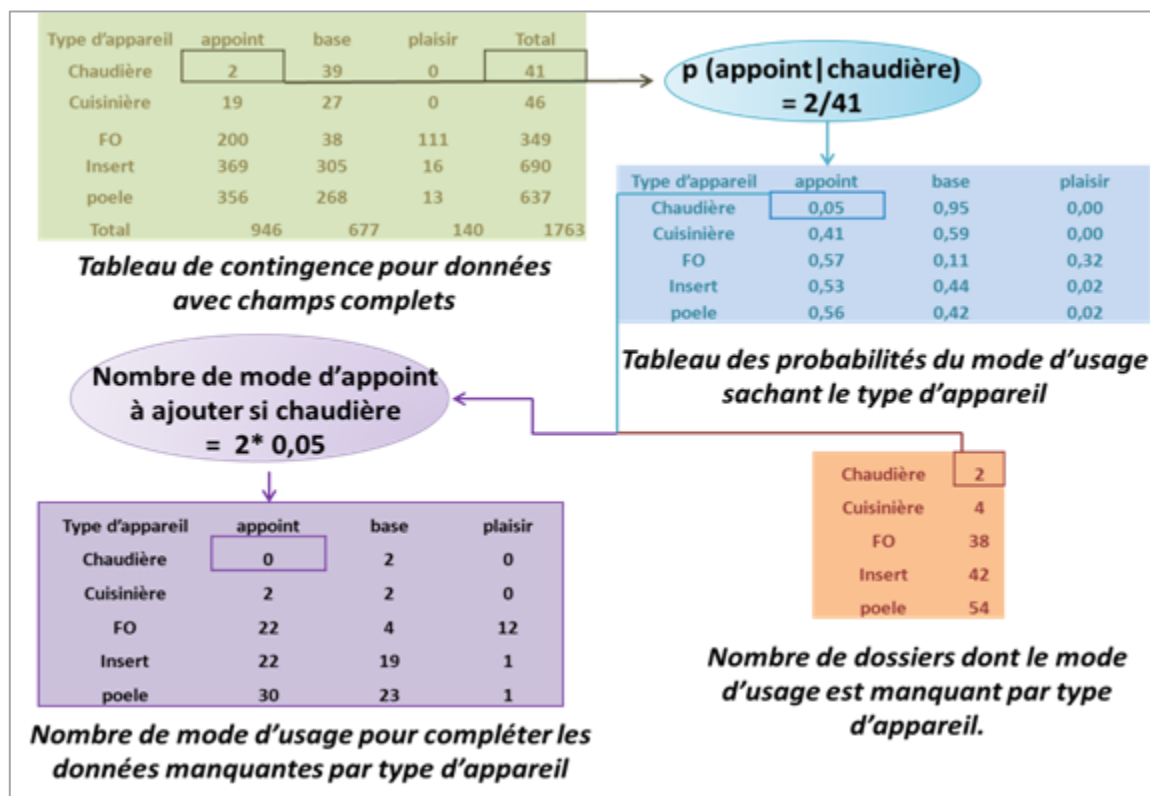


Figure VI.14: Exemple de la démarche pour obtenir la fréquence des modalités du champ à compléter en fonction du type d'appareil ancien ou nouveau.

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 11 : Pertinence de la comparaison émissions de chauffage à climat normal avec des concentrations à conditions réelles

On peut faire l'hypothèse que les consommations de bois déclarées pour les dossiers du SM3A 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 (ADEME 2013a). L'estimation des réductions d'émissions qui est faite à partir de ces consommations déclarées sera comparée à celle des concentrations réelles de PM<sub>10wb</sub> 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 VI.16 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 SM3A peuvent donc être considérées valides pour estimer les réductions d'émissions de PM<sub>10</sub> des appareils renouvelés 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.

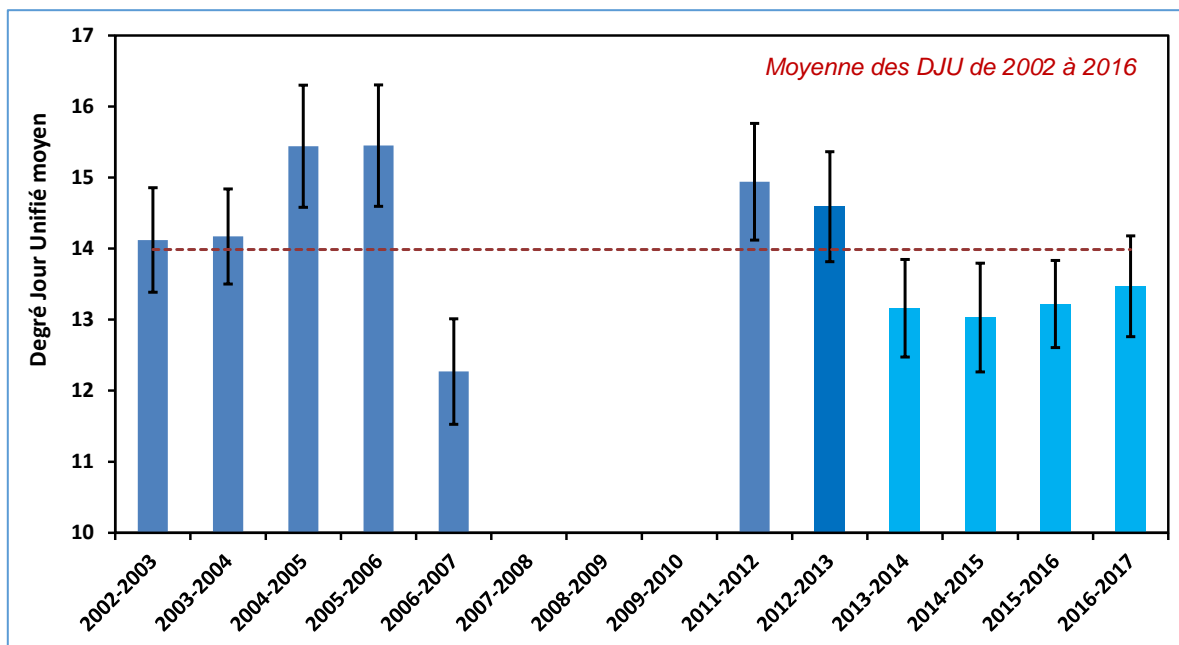


Figure VI.15 : Degré jour unifié moyen à Chamonix sur la période de chauffe (01/10 au 30/4) de 2002 à 2017 avec un intervalle de confiance de 95%. Les mesures de température proviennent de la station du réseau RADOME de MétéoFrance (Source : MétéoFrance et Météociel). Le DJU correspond à la différence 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 supérieure à 17°C, le DJU est égal à 0 (SOeS 2014).

## ANNEXE 12 : Evolutions des émissions de PM<sub>10</sub> issues des appareils de chauffage au bois autour des sites de mesures chimiques de l'hiver 13-14 à 16-17.

Le Tableau VI.14 répertorie les parcs d'appareils des communautés de communes issus de l'enquête BVA (ADEME 2013a) segmentés selon des hypothèses en fonction du type de résidence (principale ou secondaire) et du mode d'usage de l'appareil (principal ou appoint).

| 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 VI.14 : 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 sein 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.

La Figure VI.16 représente l'évolution des émissions de PM<sub>10</sub> issues des appareils du Fond Air Bois et des autres appareils de chauffage au bois dans un rayon de 1 km autour des 3 sites de mesures chimiques des hivers 12-13 à 16-17. Les émissions de PM<sub>10wb</sub> issues des appareils du Fond Air bois correspondent à 48%, 26% et 25% des émissions totales de PM<sub>10wb</sub> estimées dans un rayon de 1km autour des stations de Marnaz, Passy et Chamonix respectivement. Lorsque l'on considère les émissions estimées à partir des FE « probabilistes » et du scénario de calcul VI pour les émissions issues des appareils du Fond Air Bois (cf Chapitre 5), ces dernières représentent respectivement 35%, 23% et 23% des émissions totales de PM<sub>10wb</sub> estimées autour des stations. La



variation quantifiée des émissions de  $PM_{10wb}$  entre les hivers est donc fortement dépendantes des émissions de  $PM_{10wb}$  provenant d'appareils de chauffage au bois hors chauffage au bois pour lesquelles nous ne disposons pas de beaucoup de données pour l'estimation à fine échelle.

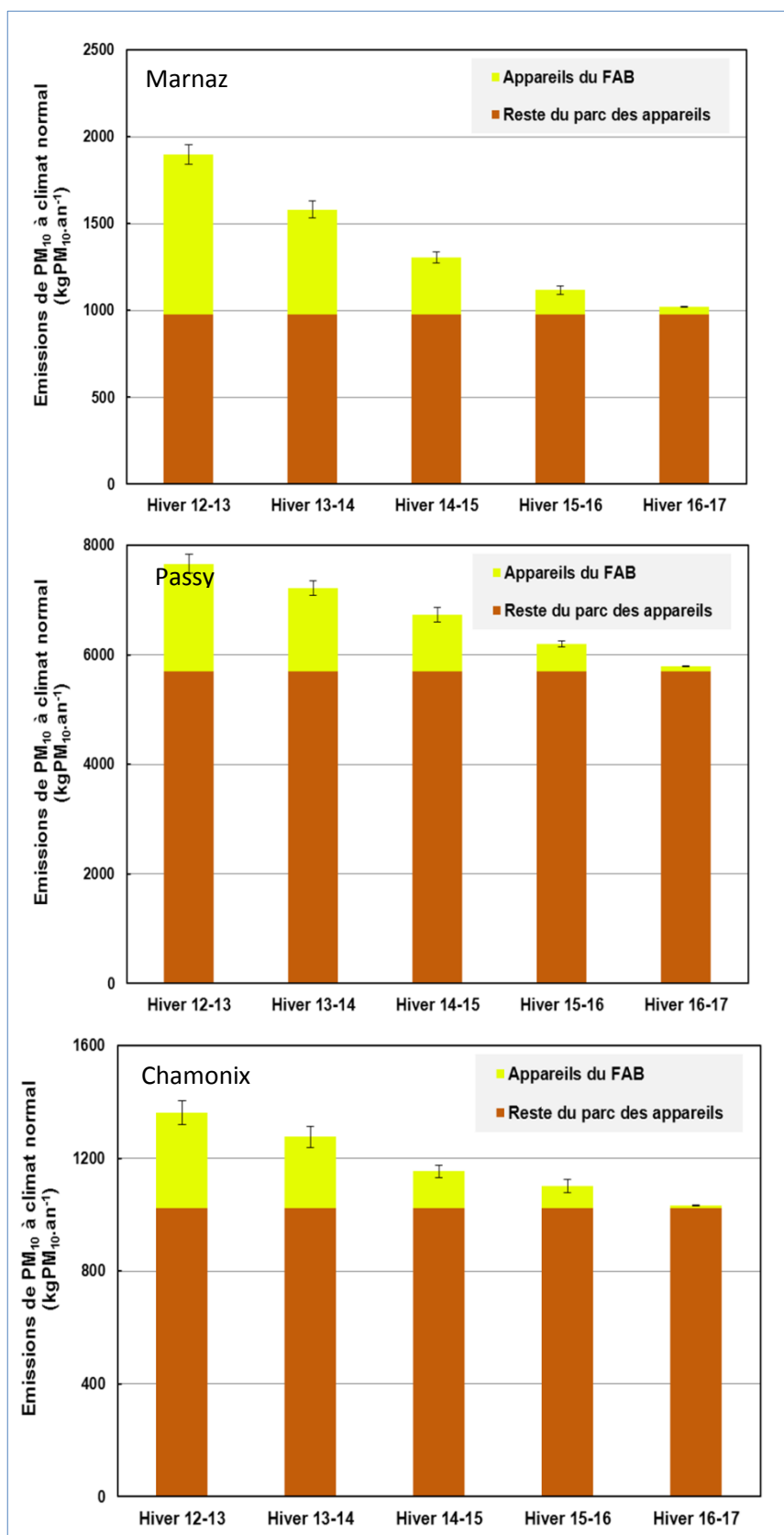


Figure VI.16: Evolutions des émissions de PM<sub>10wb</sub> estimées dans un rayon de 1km autour des stations de Marnaz, Passy et Chamonix. Les émissions ont été estimées à partir des facteurs d'émissions de l'Ademe et du scénario du calcul I (cf Chapitre 5) pour les émissions issues des appareils du Fond Air Bois.

### **ANNEXE 13: Investigation de l'aire de représentativité des sites de mesures chimiques sur l'estimation des émissions de PM<sub>10wb</sub>**

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. L'influence de ce choix sur les émissions estimées a été analysée selon 2 cas :

- Cas 1 (test de sensibilité) : les émissions de PM<sub>10</sub> 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).
- Cas 2 (tentative d'approche de la réalité) : sur le site de Passy, en fonction des émissions de PM<sub>10wb</sub> 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.

#### **Cas 1 :**

Les évolutions des émissions de PM<sub>10wb</sub> selon un rayon de représentativité de la station de 500 m ou de 1 km (Figure VI.17) 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<sub>10wb</sub> 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<sub>10wb</sub> 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 1er et le 4ème hiver selon l'aire de représentativité. La variation des émissions estimées dans un rayon de 500 entre le 1er et le 4ème hiver s'approche le plus de celles estimées pour les concentrations de PM<sub>10wb</sub> (-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 1er et le 3ème hiver est beaucoup plus éloignée de celle des concentrations de PM<sub>10wb</sub> 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<sub>10wb</sub>). 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<sub>10wb</sub> 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<sub>10wb</sub>. Comme pour le site de Passy, les variations des émissions de PM<sub>10wb</sub> 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<sub>10wb</sub> mesurées pour tous les hivers. Ainsi, les variations des émissions de PM<sub>10wb</sub> 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<sub>10wb</sub> 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.

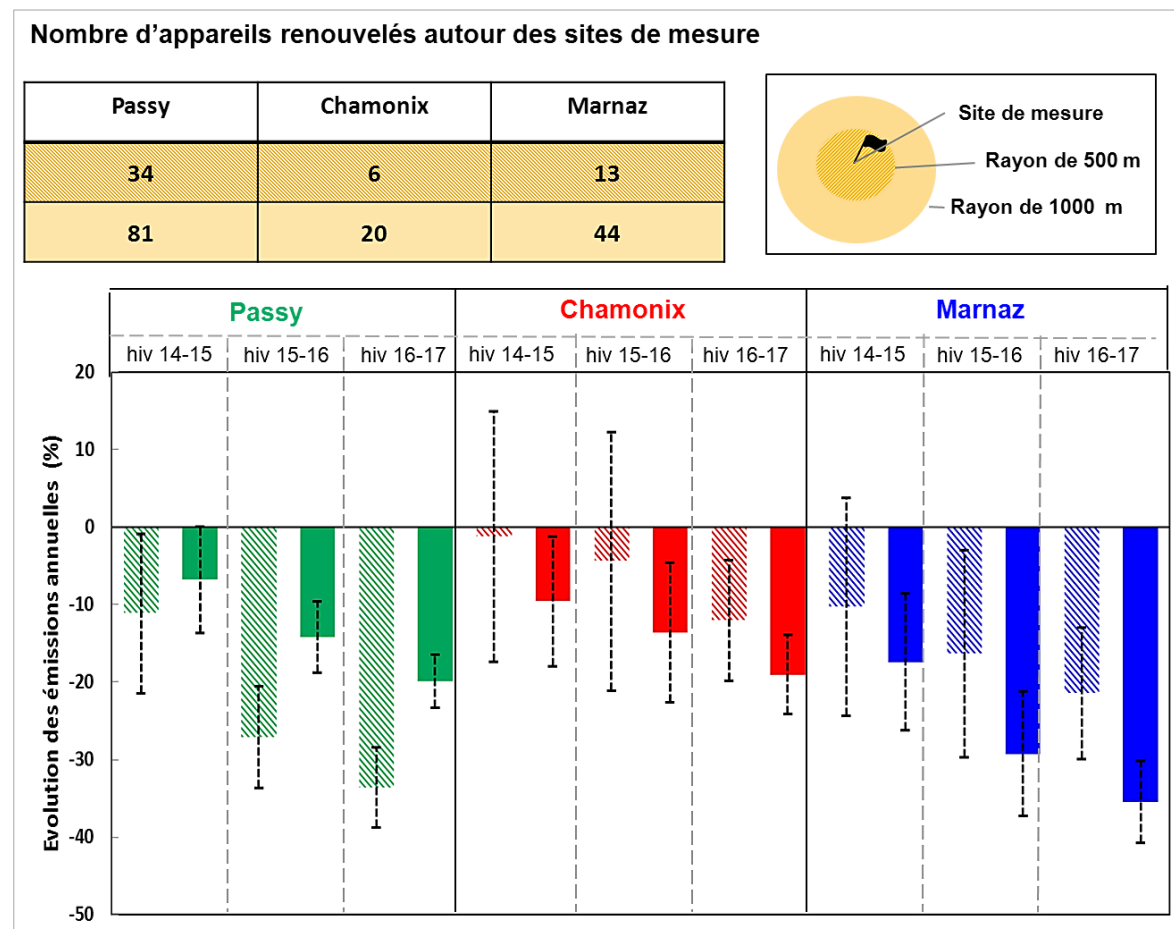


Figure VI.17 : Evolutions des émissions de  $PM_{10wb}$  issues des appareils du FAB et des autres appareils dans un rayon de 500m (coloris rayurés) et de 1km (coloris continus) autour des stations. Le nombre d'appareil du Fond Air Bois renouvelés entre le début de l'opération et le 01/11/16 selon les différentes aires est indiqué au-dessus. Les émissions sont estimées à partir des FEs de l'Ademe et du scénario de calcul I (cf Chapitre 5). Les barres d'erreurs représentent un intervalle de confiance de 95%, cependant seules les incertitudes provenant de certains éléments des dossiers du SM3A 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. Pour quantifier l'influence des émissions provenant des appareils du Fond Air Bois sur les mesures de concentrations réalisées au niveau du site de mesure, la concentration résultante au niveau du site de mesure provenant d'une émission identique de  $PM_{10}$  issus des appareils du Fond Air Bois a été modélisée. A partir de ces concentrations, une influence relative des émissions des appareils du FAB sur les mesures de concentrations réalisées au niveau de la station est déterminée. Cependant le manque de données météorologiques, utilisées comme données d'entrée des modèle de dispersion, a nécessité d'utiliser un modèle simple avec le moins de paramétrisation possible.

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.

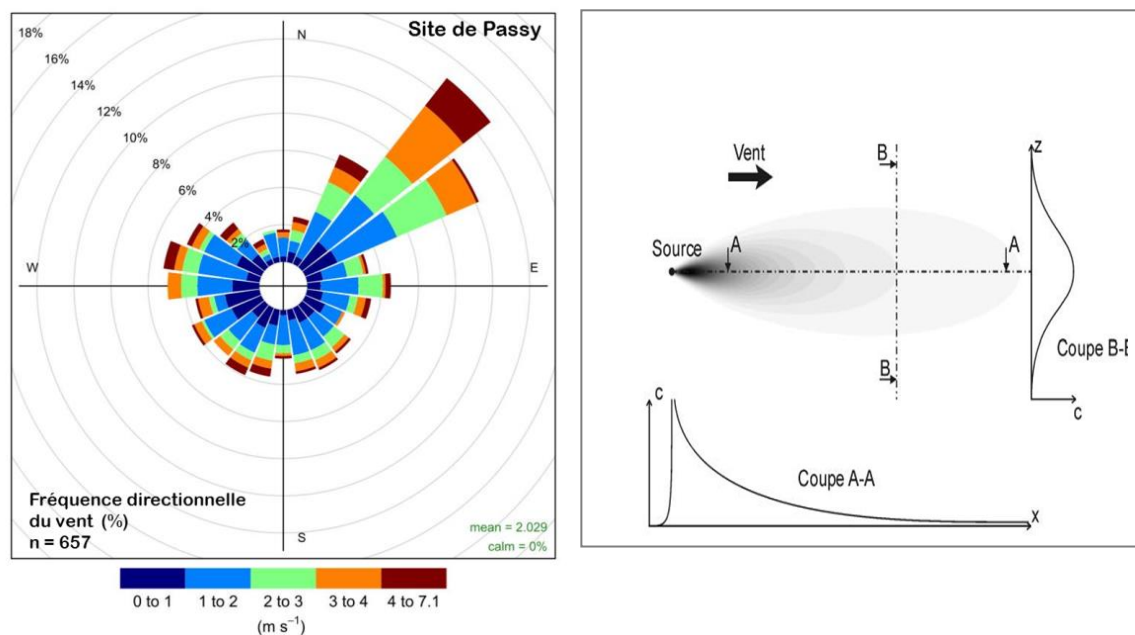


Figure VI.18 : Rose des vents correspondant aux conditions météorologiques de la classe « Dispersion » réalisée à partir des mesures horaires du Lidar WLS200S à 40m au-dessus de la station Passy. Profils de concentration dans un panache gaussien.

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  $\sigma_x$  et  $\sigma_z$  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  $\sigma$  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  $\sigma_x$  et  $\sigma_z$ . Les concentrations au niveau de la station provenant d'une émission identique de  $PM_{10}$  ( $717\mu gPM_{10}/s$  soit  $10kgPM_{10}$  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.

Pour déterminer le poids relatifs 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  $PM_{10}$  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 :

$$i (\%) = \frac{\sum_k f_k \cdot C_i^k}{\sum_i \sum_k f_k \cdot C_i^k} * 100$$

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 VI.19 illustre les concentrations estimées à la station résultant d'une émission identique de  $PM_{10}$  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  $45^\circ$  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 VI.20 ).

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.

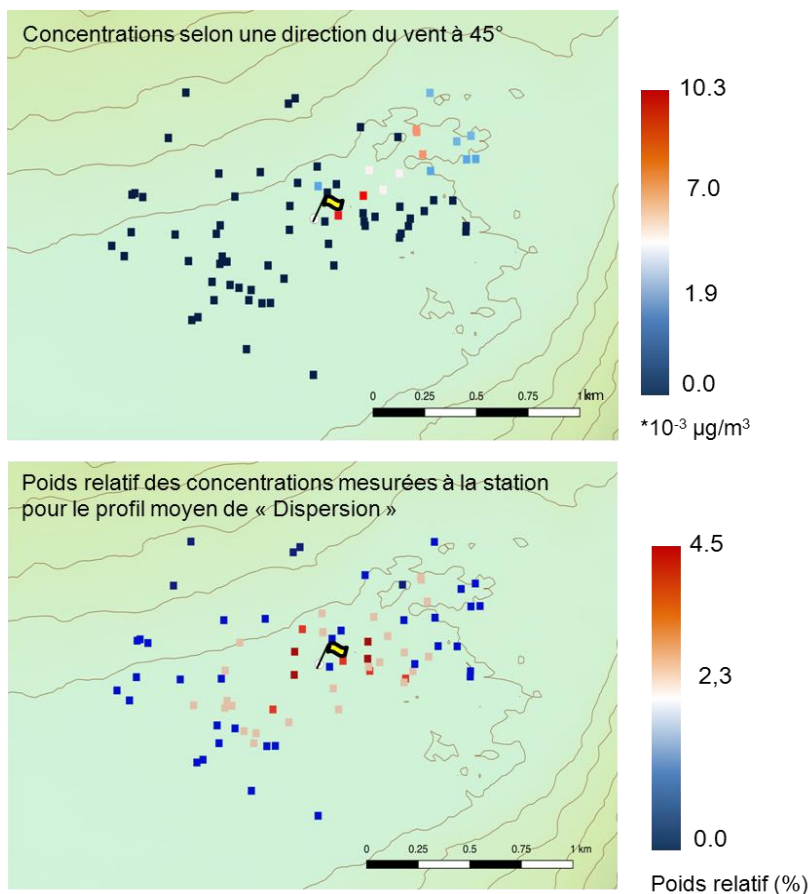


Figure VI.19 : **a)** Représentation des concentrations estimées au niveau de la station de Passy provenant d'une émission de 717µg/s de PM<sub>10</sub> par les logements ayant bénéficié de l'aide du Fond Air Bois dans un périmètre de 1km autour de la station si le type de temps correspond à la classe « 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 ».

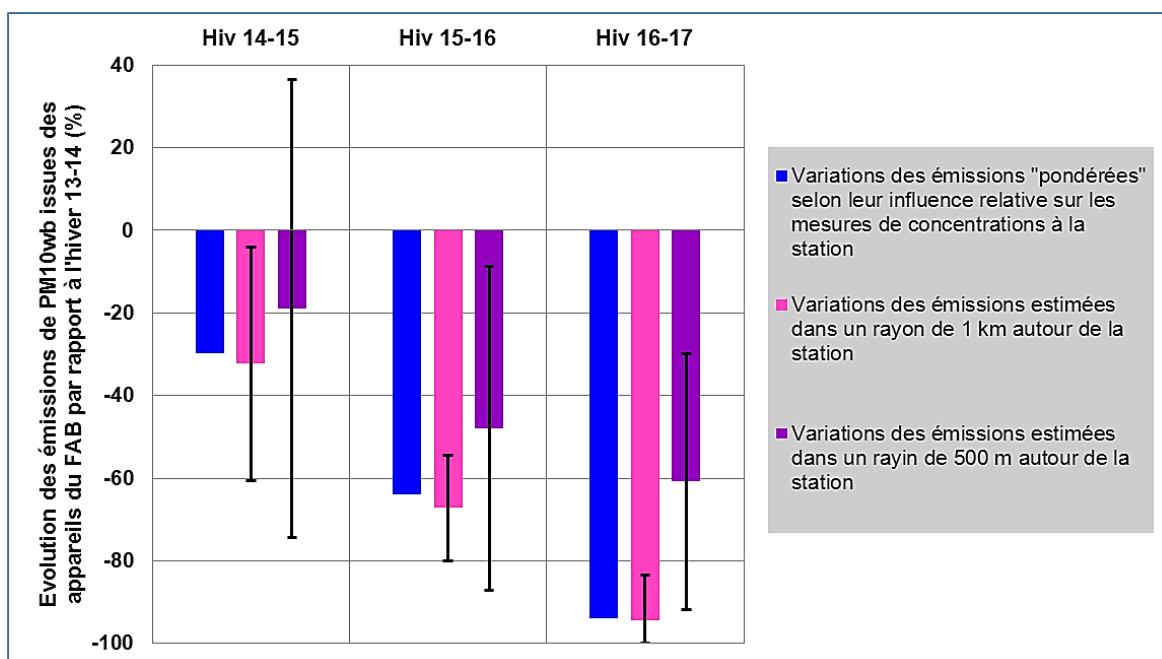


Figure VI.20 : Evolutions des émissions de PM<sub>10wb</sub> issues des appareils exclusivement du Fond Air Bois au cours des hivers selon différentes aires de représentativités autour de la station Passy. En bleu sont représentées les évolutions des émissions estimées dans un rayon de 1km autour de 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.

## ANNEXE 14: Liste des travaux de valorisations des travaux de thèses

### Publication

Paci A., Staquet C., **Allard, J.**, Barral H., Canut G., Cohard JM, Jaffrezo JL, Martinet P., Sabatier T., Troude F., Arduini G., Burnet F., Brun C., Chemel C., Dabas A., Donier JM, Garrouste O., Guillot R., Langeron Y., Legain, D. et 19 auteurs (2016) La campagne de Passy-2015 : dynamique atmosphérique et qualité de l'air dans la vallée de l'Arve. *Pollution Atmosphérique* 231-232

### Rapports

Jaffrezo JL, Besombes JL, Marchand N, Mocnik G, Brulfert G, Chevrier F, Bertrand A, Jezek I and **Allard J.** (2018) DECOMBIO (DEconvolution de la contribution de la COMbustion de la BIOmasse aux PM10 dans la vallée de l'Arve) – Rapport final ADEME. Tome I : rapport (65 pp) et Tome II : annexes (72 pp).

Jaffrezo JL, Besombes JL, Marchand N, Mocnik G, Brulfert G, Chevrier F, Bertrand A, Jezek I, **Allard J.** and Grillet C. (2015). DECOMBIO (DEconvolution de la contribution de la COMbustion de la BIOmasse aux PM10 dans la vallée de l'Arve) – Rapport intermédiaire ADEME (70 pp).

### Communications

**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). *11<sup>th</sup> International Conference on Air Quality, Barcelona, 12-16 March 2018.* (Oral)

**Allard J.**, Chevrier F., Jezek I, Mocnik 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, 4-9 September 2016.* (Poster)

**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'Ascq, 2-3 Février 2017.* (Oral)



