



HAL
open science

Des sources aux dépôts de particules fines émises par le trafic routier : quels sont les apports et les limites du magnétisme environnemental ?

Sarah Letaief

► To cite this version:

Sarah Letaief. Des sources aux dépôts de particules fines émises par le trafic routier : quels sont les apports et les limites du magnétisme environnemental?. Sciences de la Terre. Université de Montpellier, 2022. Français. NNT : 2022UMONG058 . tel-04213640

HAL Id: tel-04213640

<https://theses.hal.science/tel-04213640v1>

Submitted on 21 Sep 2023

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

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

THÈSE POUR OBTENIR LE GRADE DE DOCTEUR DE L'UNIVERSITÉ DE MONTPELLIER

En Sciences de la Terre

École doctorale GAIA

Unité de recherche Géosciences Montpellier

Des sources aux dépôts de particules fines émises par le
trafic routier : quels sont les apports et les limites du
magnétisme environnemental ?

Présentée par Sarah LETAÏEF
Le 09 Décembre 2022

Sous la direction de Pierre CAMPS

Devant le jury composé de

Matthias BEEKMANN, DR, LISA - Universités Paris-Est Créteil

Stuart GILDER, Prof, Ludwig-Maximilians Universität - Munchen

France LAGROIX, DR, Institut Physique du Globe de Paris

Jean-François RITZ, DR Géosciences Montpellier

Jean-François LEON, CR, Laboratoire d'Aérodologie - Université Toulouse III

Pierre CAMPS, DR, Géosciences Montpellier

Claire CARVALLO, MCF, IMPMC - Sorbonne Université

Christine FRANKE, MCF, École Nationale Supérieure des Mines de Paris

[Rapporteur]

[Rapporteur]

[Examinatrice]

[Examineur]

[Examineur]

[Directeur de thèse]

[Invitée]

[Invitée]



UNIVERSITÉ
DE MONTPELLIER

THÈSE POUR OBTENIR LE GRADE DE DOCTEUR

EN SCIENCES DE LA TERRE

À GÉOSCIENCES MONTPELLIER – UNIVERSITÉ DE MONTPELLIER

ÉCOLE DOCTORALE GAIA

DES SOURCES AUX DÉPÔTS DE PARTICULES FINES ÉMISES PAR LE TRAFIC : QUELS SONT LES APPORTS ET LES LIMITES DU MAGNÉTISME ENVIRONNEMENTAL ?

Présentée le : 09 Décembre 2022

Par : Sarah LETAÏEF

Sous la direction de Pierre CAMPS

Composition du jury :

Matthias BEEKMANN, DR, LISA – Universités Paris-Est Créteil..... *Rapporteur*

Stuart GILDER, Prof, Ludwig-Maximilians Universität- Munchen *Rapporteur*

France LAGROIX, DR, Institut Physique du Globe de Paris *Examinatrice*

Jean-François RITZ, DR, Géosciences Montpellier *Examineur*

Jean-François LÉON, CR, LA, Université Toulouse III..... *Examineur*

Pierre CAMPS, DR, Géosciences Montpellier. *Directeur de thèse*

Claire CARVALLO, MCF, IMPMC – Sorbonne Université *Invitée*

Christine FRANKE, MCF, École Nationale Supérieure des Mines de Paris..... *Invitée*

“All models are wrong, but some are useful “

Georges BOX

REMERCIEMENTS

Je remercie Pierre Camps pour sa confiance, son exigeante rigueur, sa générosité et sa pédagogie (toujours accompagnée d'un tableau noir et de craies), qui ont fait de moi une meilleure chercheuse. Merci aux membres du jury pour leurs commentaires et les discussions très intéressantes ayant permises de parfaire ce manuscrit. Ma gratitude va à Thierry Poidras et Patrick Nicol pour leur bienveillance et leur aide constante, quelle que soit la tâche que j'entreprenais mais également, à Claire, Christine et Aude alias les « écorcettes » avec qui j'ai toujours pris un grand plaisir à collaborer et à visiter sur Paris. Je pense aussi à tous les riverains de la rue Saint-Louis, à Davia Dosias-Perla et Lionel Scotto d'Appolonia sans qui, ce projet un peu fou d'une publication interdisciplinaire entre Sciences Humaines et Sociales et Géosciences, co-écrite de surcroit avec des citoyens n'aurait pas été possible ! Un grand merci à Sev pour ces discussions qui m'ont permises de garder le cap lorsque j'étais perdue... J'espère avoir l'occasion de te recroiser, très certainement sur une falaise !

Je terminerai par remercier tous les astres de ma bienveillante constellation amicale et familiale, pour leur indéniable soutien et dont la simple présence me porte au quotidien : ma mère, mon petit frère, Leny, les femmes de ma vie (alias Camille, Asma, Lolo, Eno, Tiph et Juju), Tet, et Léonard. Et finalement, une pensée pour toi Papa, en espérant t'avoir rendu fier où que tu te trouves.

RÉSUMÉ

La **surveillance** et la **mitigation** de la pollution de l'air sont devenues des problématiques publiques et politiques prioritaires. Selon les normes de l'Union Européenne, les particules fines (PM) sont mesurées en $\mu\text{g}/\text{m}^3$. Une mesure qui n'est pas sensible à la présence des plus fines étant donné leur faible masse, alors qu'elles sont plus nombreuses et plus nocives. C'est pourquoi, une approche non-conventionnelle et alternative basée sur le **magnétisme environnemental** offre une excellente opportunité de détecter les particules les plus fines. Cette approche consiste à mesurer les propriétés magnétiques des surfaces accumulatrices après qu'elles aient été exposées à un air pollué. Elle permet une cartographie locale des dépôts de polluants intégrés sur le temps d'exposition. **Mais jusqu'où peut aller cette méthode en terme de surveillance de la qualité de l'air ?**

Le premier volet de ma thèse vise à évaluer le **potentiel de la cartographie magnétique** réalisée aux abords d'une autoroute en comparant ses résultats avec ceux d'un modèle numérique de dispersion des polluants (CFD). Ce dernier prend en compte le **moment de vitesse et la turbulence induits par le trafic**, ce qui est rarement fait dans ce type d'approche. La cartographie du paramètre magnétique exposait une asymétrie des dépôts de polluants, où le maximum était localisé sous le vent. Cette observation surprenante a été confirmée par le modèle numérique qui prédisait à cet endroit un courant de recirculation dû à la présence d'un mur anti-bruit. Cette étude a permis de valider la cartographie magnétique des polluants en exprimant les valeurs en variation relative afin d'isoler la source de PM que l'on veut étudier.

Le deuxième volet fut l'occasion d'examiner si le magnétisme pouvait être utilisé dans une **étude de science citoyenne** et jusqu'à quel point des données non-conventionnelles pouvaient servir de levier à la décision politique dans une rue canyon de Montpellier. Finalement, la surveillance magnétique de la qualité de l'air semble être promue pour les études citoyennes en apportant des données de haute résolution à l'échelle de la rue et peut être également perçue comme une **alternative ou un complément** aux techniques de surveillance conventionnelles.

Le troisième volet s'intéresse de manière plus fondamentale à ce que l'on est capable de **mesurer avec le magnétisme** puisque que tous les polluants ne sont pas nécessairement magnétiques. Pour cela, j'ai caractérisé magnétiquement différentes sources provenant du trafic. En combinant les techniques, je peux dire aujourd'hui que les paramètres magnétiques ont un réel **potentiel pour discriminer** les différentes sources d'émission de polluants. Finalement, aux vues du nombre important d'échantillons, de leur hétérogénéité et des nombreuses analyses magnétiques effectuées, je n'ai pas été capable de comparer directement les propriétés magnétiques des sources avec celles mesurées sur les surfaces accumulatrices. Ainsi, j'ai utilisé le **Machine Learning** avec un algorithme du *k-nearest neighbor* pour **classifier les sources** en plusieurs catégories selon leurs paramètres magnétiques et prédire la principale source magnétique de PM mesurée sur les surfaces accumulatrices.

Le dernier volet traite de la **mitigation de la pollution de l'air par des barrières végétales**. Aujourd'hui il n'y a pas encore de consensus clair : certains affirment leurs capacités à extraire les polluants de l'air et d'autres soulignent la gêne qu'ils occasionnent à la dispersion des polluants. À l'aide d'un **tunnel à vent expérimental** « fait maison », nous avons réalisé plusieurs expériences en injectant du diesel sur différentes espèces végétales endémiques du sud de la France pour calculer leurs **vitesse de dépôt**. Ce paramètre permet de contraindre les modèles quant à l'effet des végétaux sur la captation ou dispersion des polluants. Malheureusement, nous n'avons pas trouvé

de corrélation entre les vitesses de dépôt et les mesures magnétiques réalisées sur les feuilles des haies.

ABSTRACT

Air pollution **monitoring and mitigation** have become a public and political issue of high priority. According to European Union standards, particulate matter (PM) is measured in $\mu\text{g}/\text{m}^3$. A measurement that is not sensitive to the presence of the finest given their low masses, while they are more numerous and harmful than the regulated PM. Therefore, an unconventional and alternative approach based on **environmental magnetism** offers an excellent opportunity to detect the finest particles. This approach consists of measuring the magnetic properties of accumulative surfaces after they have been exposed to polluted air. It allows local mapping of pollutant deposits integrated over the exposure time. **But how far can this method go in terms of air quality monitoring?**

The first part of my thesis made it possible to evaluate the **potential of magnetic mapping** carried out near a highway by comparing its results with those of a numerical model of pollutant dispersion (Computational Fluid Dynamic). The latter, considered the **moment of speed and the turbulence induced by the traffic**, which is rarely done in this kind of approach. Mapping of the magnetic parameter exposed an asymmetry in pollutant deposition, where the maximum was located downwind. This surprising observation was confirmed by the numerical model which predicted a recirculation current at this location due to the presence of a noise barrier. This study made it possible to validate the magnetic mapping of pollutants by expressing the values in relative change in order to isolate the source of PM that we want to characterize.

The second part was an opportunity to examine whether magnetism could be used in a study with a **citizen science approach** and to what extent unconventional data could be used as a lever for political decision-making in a canyon street in Montpellier. Finally, magnetic air quality monitoring seems to be promoted for citizen studies by providing high resolution street-scale data and also be seen as an **alternative or complement** to conventional monitoring techniques.

The third part focuses more fundamentally on what we are able **to measure with magnetism** since not all pollutants are necessarily magnetic. For this, I magnetically characterized different sources coming from traffic. By combining different techniques, I can say today that the **magnetic parameters have a real potential to discriminate** between the different sources of pollutant emissions. Finally, in view of the large number of samples, their heterogeneities and the numerous magnetic analyzes carried out, I was not able to directly compare the magnetic properties of the sources with those measured on the accumulative surfaces. Thus, I used **Machine Learning** with a *k-nearest neighbor* algorithm **to classify the sources** into several categories according to their magnetic parameters and to predict the main magnetic source of PM measured on the accumulator surfaces.

The last part covers the **mitigation of air pollution by urban hedgerows**. Today there is still no clear consensus: some affirm their ability to extract these pollutants from the air while others emphasize they hinder the dispersion of pollutants. Using a “homemade” **experimental wind tunnel**, we carried out several experiments by injecting diesel exhaust into different hedge of endemic species to the south of France to calculate their **deposition velocities**. This parameter is used to parameterize models on the plant effects on capture or dispersion of pollutants. Unfortunately, we did not find any clear correlation between data from PM sensors and the magnetic measurements.

TABLE DES MATIERES

CHAPITRE I : ETAT DE L'ART & METHODES 9

I.1 La pollution de l'air aux particules fines : un enjeu sociétal majeur 9

I.1.1 Introduction générale..... 9

I.1.2 Les particules fines (PM) : définitions et sources 10

I.1.2.1 Les particules fines : une pollutant sans définition chimique 10

I.1.2.2 D'où proviennent-elles ? 14

I.1.3 Caractéristiques physiques des particules fines 15

I.1.3.1 Transport et forces s'appliquant aux PM en suspension dans un fluide 15

I.1.3.2 Les principaux modes de dépôts secs des PM 16

I.1.3.3 Les diamètres équivalents des PM 19

I.1.3.4 Les distributions caractéristiques des aérosols 21

I.1.3.5 Les modes de distributions de taille 23

I.1.3.6 La vitesse de dépôt ou capacité de piégeage des PM 24

I.1.4 La surveillance de la qualité de l'air : une mesure (très) difficile 26

I.1.4.1 Les principes de la mesure 26

I.1.4.2 Les mesures de référence vs. Capteurs low-cost 29

I.2 Le magnétisme environnemental : une approche alternative pour mesurer la qualité de l'air.. 30

I.2.1 Notions de base en magnétisme de la matière 32

I.2.1.1 Moment magnétique, champ magnétique et aimantation 32

I.2.1.2 Comment la matière s'aimante-elle ? 33

I.2.1.3 Comment la matière reste-t-elle aimantée ? 35

I.2.2 Principes et applications de la bio surveillance magnétique sur des capteurs biologiques tels que des végétaux 40

I.2.3 Les outils de biosurveillance magnétique utilisés dans cette étude 43

I.2.3.1 L'aimantation rémanente isotherme (ARI) à saturation (SIRM) 43

I.2.3.2 L'aimantation rémanente anhystérique (ARA) 44

I.2.3.3 Ma procédure expérimentale 45

I.3 Objectifs 48

CHAPITRE II : MAGNETISME ENVIRONNEMENTAL VS. MODELISATION NUMERIQUE CFD AUX ABORDS D'UNE JONCTION D'AUTOROUTE 51

II.1 Avant-propos 51

II.1.1 Contexte de l'étude..... 51

II.1.2 Les modèle numériques de dispersion des polluants atmosphériques..... 53

II.1.2.1 Introduction 53

II.1.2.2 L'approche Gaussienne 54

II.1.2.3 L'approche Lagrangienne 57

II.1.2.4 L'approche Eulérienne 57

II.1.2.5 "Computational Fluid Dynamic Modeling" ou modèle CFD 58

II.1.3 Notions abordées dans l'étude..... 60

II.1.4 Synthèse de ma démarche expérimentale 61

II.2 Biomagnetic Monitoring vs. CFD Modeling : A Real Case study of Near-Source Depositions of Traffic-Related Particle Matter along a Motorway (Article 1)	62
II.3 Discussion et Perspectives.....	86
II.3.1 Évolution temporelle des dépôts de polluants.....	86
II.3.2 Comparaison des résultats aux données de micro-capteurs	89

CHAPITRE III : DE LA MESURE CITOYENNE DE LA QUALITE DE L’AIR À LA PRISE DE DECISION POLITIQUE : LIMITES & APPORTS DU MAGNETISME ENVIRONNEMENTAL..... 93

III.1 Avant-propos	93
III.1.1 Mise en place de l’étude.....	93
III.1.2 Montpellier et sa rue Saint-Louis au cours du temps	95
III.1.3 Synthèse de la démarche en Sciences Participatives	98
III.2 Benefits and limitations of environmental magnetism for completing citizen science on air quality : a case study in a street canyon (Article 2)	99
III.3 Le cas de l’usine de valorisation des déchets par traitement thermique : Ocréal	142
III.4 Discussion et Perspectives	145
III.4.1 La contribution de la Science Participative (SP) au service de la surveillance de la qualité de l’air	145
III.4.1.1 Les apports de la SP aux chercheurs	146
III.4.1.2 Les apports de la SP au grand public	147
III.4.2 Les challenges auxquels sont soumis les projets de science participative	147
III.4.3 Retours d’expérience	148

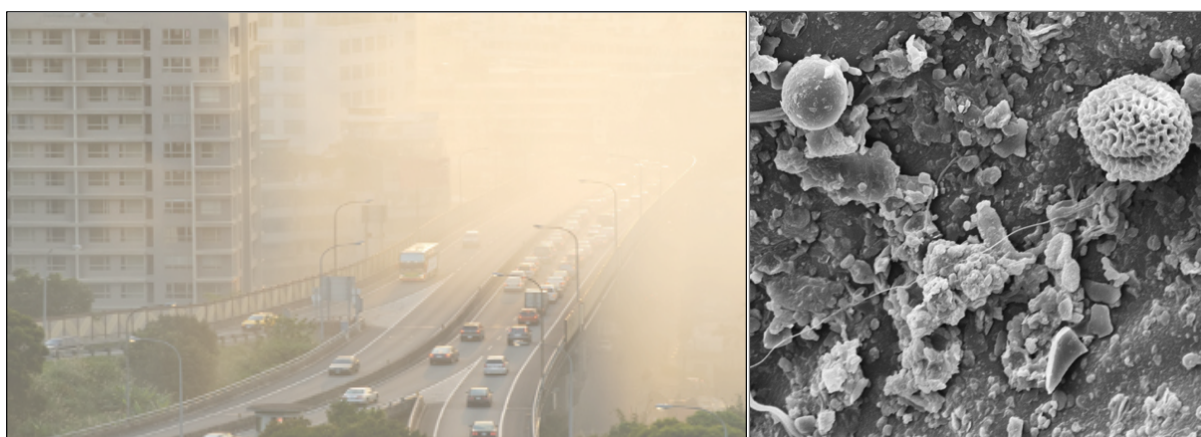
CHAPITRE IV: DES SOURCES AUX DEPÔTS: QUELS APPORTS DU MAGNETISME ENVIRONNEMENTAL POUR DISCRIMINER LES CONTRIBUTIONS DES SOURCES DE PM LIEES AU TRAFIC ?..... 151

IV.1 Caractérisation magnétique des sources de PM liées au trafic et des surfaces accumulatrices	151
IV.1.1 Mise en place de l’étude et problématique	151
IV.1.2 Résumé schématique des notions utilisées	154
IV.1.3 Description des outils analytiques	155
IV.1.3.1 Les paramètres d’hystérésis	155
IV.1.3.2 Les diagrammes de FORC	155
IV.1.3.3 Courbes d’acquisition d’ARI et étude de mélanges	157
IV.1.3.4 Mesures de la susceptibilité magnétique en fonction de la température (k_0-T)	160
IV.1.4 To what extent does the environmental magnetism act as a tool to characterize the traffic-related particulate matter sources ? (Article 3)	161
IV.2 Estimation de la principale source de PM liée au trafic à partir de leurs propriétés magnétiques et intégrées dans un algorithme de Machine Learning	199
IV.2.1 Avant-propos	199

IV.2.2	Résumé schématique des notions analytiques utilisées	200
IV.1.3	A supervised Machine-Learning approach to classify traffic-derived PM sources based on their magnetic properties (Article 4)	201
IV.3	Discussion et Perspectives	230
IV.3.1	Approche EM vs. Bayésienne	230
IV.3.2	Comment expliquer une diminution de l'aimantation au-dessus d'un champ appliqué de 1 Tesla ?	230
IV.3.2.1	<i>Hypothèse 1 : une erreur dans la mesure</i>	<i>231</i>
IV.3.2.2	<i>Hypothèse 2 : la diffusion atomique dans les ferrites</i>	<i>232</i>
IV.3.2.3	<i>Hypothèse 3 : l'interaction entre deux phases eutectoïdes</i>	<i>233</i>
IV.3.2.4	<i>Hypothèse 4 : le champ de désaimantation</i>	<i>237</i>
IV.3.3	Enfin jusqu'où peut aller le magnétisme appliqué à la qualité de l'air ?	238
CHAPITRE V : LES HAIES VEGETALES URBAINES : UN MOYEN EFFICACE DE PIEGER LES PARTICULES DU TRAFIC OU UN OBSTACLE À LEUR DISPERSION ?		241
V.1	Avant-Propos	241
V.1.1	La capacité de rétention des particules par les végétaux	241
V.1.2	Les végétaux : une solution pour la mitigation de la pollution de l'air ?	243
V.1.2.1	<i>"To tree or not to tree ?"</i>	<i>243</i>
V.1.2.2	<i>La Vitesse de dépôt : un facteur de levier clef</i>	<i>245</i>
V.2	Un tunnel à vent expérimental : le @ZephyrLab	247
V.2.1	Description générale	247
V.2.2	Principes de l'expérimentation sur une haie végétale	248
V.3	Résultats	248
V.3.1	Caractérisation physique du banc expérimental	248
V.3.1.1	<i>Mesurer à vitesse nulle</i>	<i>248</i>
V.3.1.2	<i>Profils de vitesse et turbulence du courant d'air à l'intérieur du tunnel</i>	<i>250</i>
V.3.1.3	<i>Caractérisation expérimentale de la perméabilité d'une haie au courant d'air</i>	<i>251</i>
V.3.1.4	<i>Débit volumique à l'intérieur du tunnel</i>	<i>253</i>
V.3.2	Capacité d'extraction de la haie	254
V.3.2.1	<i>Vue par les micro-capteurs</i>	<i>255</i>
V.3.2.2	<i>Vue par le magnétisme</i>	<i>260</i>
V.3.2.3	<i>Corrélation entre les deux approches</i>	<i>262</i>
V.4	Discussion et Perspectives	263
CONCLUSION GENERALE		267
VI.1	Le magnétisme environnemental au service de la surveillance des particules émises par le trafic	267
VI.2	Le magnétisme environnemental au service de la mitigation de la pollution de l'air	270
ANNEXES		273
REFERENCES		277

CHAPITRE I

ETAT DE L'ART & METHODES.



I.1 LA POLLUTION DE L'AIR AUX PARTICULES FINES : UN ENJEU SOCIETAL MAJEUR

I.1.1 Introduction générale

Du smog au-dessus des villes aux rejets de fumées à l'intérieur des maisons, la pollution de l'air est régulièrement citée dans la presse comme une menace majeure pour la santé, l'environnement et le climat. Ce terme « pollution de l'air » définit l'introduction dans l'air ambiant de composés chimiques, physiques ou biologiques nuisibles à la santé (*Rapport ANSES, 2019 ; Münzel et al., 2018*) et à l'environnement (*De Marco et al., 2019*). En 2018, le rapport de l'Organisation Mondiale de la Santé (OMS ; *WHO, 2018*) mentionnait que près de 4,2 millions de décès prématurés pour la seule année 2016 à travers le monde seraient dus à une exposition chronique à un air de mauvaise qualité, provoquant différentes pathologies comme les accidents vasculaires cérébraux, les maladies cardiaques, les cancers du poumon et les maladies respiratoires aiguës et chroniques. L'OMS décrit

d'ailleurs la pollution de l'air comme étant « un tueur silencieux » et recommande dès 2005 des valeurs guide pour les principaux polluants qui sont : les particules fines (PM), l'ozone (O₃), le dioxyde d'azote (NO₂) et le dioxyde de soufre (SO₂). Malheureusement, il semblerait qu'actuellement environ 91 % de la population mondiale vit encore dans des lieux où les niveaux de qualité de l'air dépassent les limites recommandées (WHO, 2018), faisant de la pollution de l'air une des préoccupations grandissantes de nos sociétés actuelles.

I.1.2 Les particules fines : définition et sources

I.1.2.1 Les particules fines : un polluant sans définition chimique

Les particules fines ou aérosols ou matière particulaire (PM en anglais pour *particulate matter*) regroupent un ensemble de particules et de gouttelettes dans l'air qui sont constituées d'un mélange hétérogène de composés organiques, de métaux, d'acides, de poussières minérales et d'eau (*US Environmental Protection Agency, 1996 ; Cieniewicz and Jaspers, 2007*). Ce complexe mélange entre particules solides et liquides provenant de substances organiques et inorganiques a la particularité de rester en suspension dans l'air et d'être transporté sur de longues distances, ce qui fait de ce polluant le plus impactant en terme de mortalité (*EEA, 2021 ; WHO 2014*). Les matières particulaires peuvent se former de deux façons. Soit directement (particules primaires) lorsqu'il s'agit des résidus de combustion ou des produits d'abrasion. On retrouve dans cette catégorie par exemple le carbone élémentaire (EC) ou organique (OC), les poussières minérales, le sel marin et toute une gamme d'éléments traces dépendant des sources d'émission (*Figure 1.2A*). Par exemple les poussières provenant des pots d'échappement de véhicules thermiques sont principalement constituées de Sc, Sr, As, Cu, Mn, Ni, Pb et Zn (*De Miguel et al., 1997 ; Carsignol and Calovi, 2004 ; Birmili et al., 2006, Charron et al., 2019*). Soit indirectement (particules secondaires) par conversion des gaz présents dans l'atmosphère en particules.

Les principaux gaz précurseurs des particules secondaires sont le dioxyde de soufre (SO₂), les oxydes d'azote (NO_x), et l'ammoniac (NH₃). Ces gaz réagissent dans l'atmosphère pour former des composés particulaires (*EEA, 2021 ; Zhang et al., 2015*) de sulfates (SO₄²⁻), de

nitrate (NO_3^-), et d'ammonium (NH_4^+). Le système troposphérique est complexe et non linéaire (Figure 1.1).

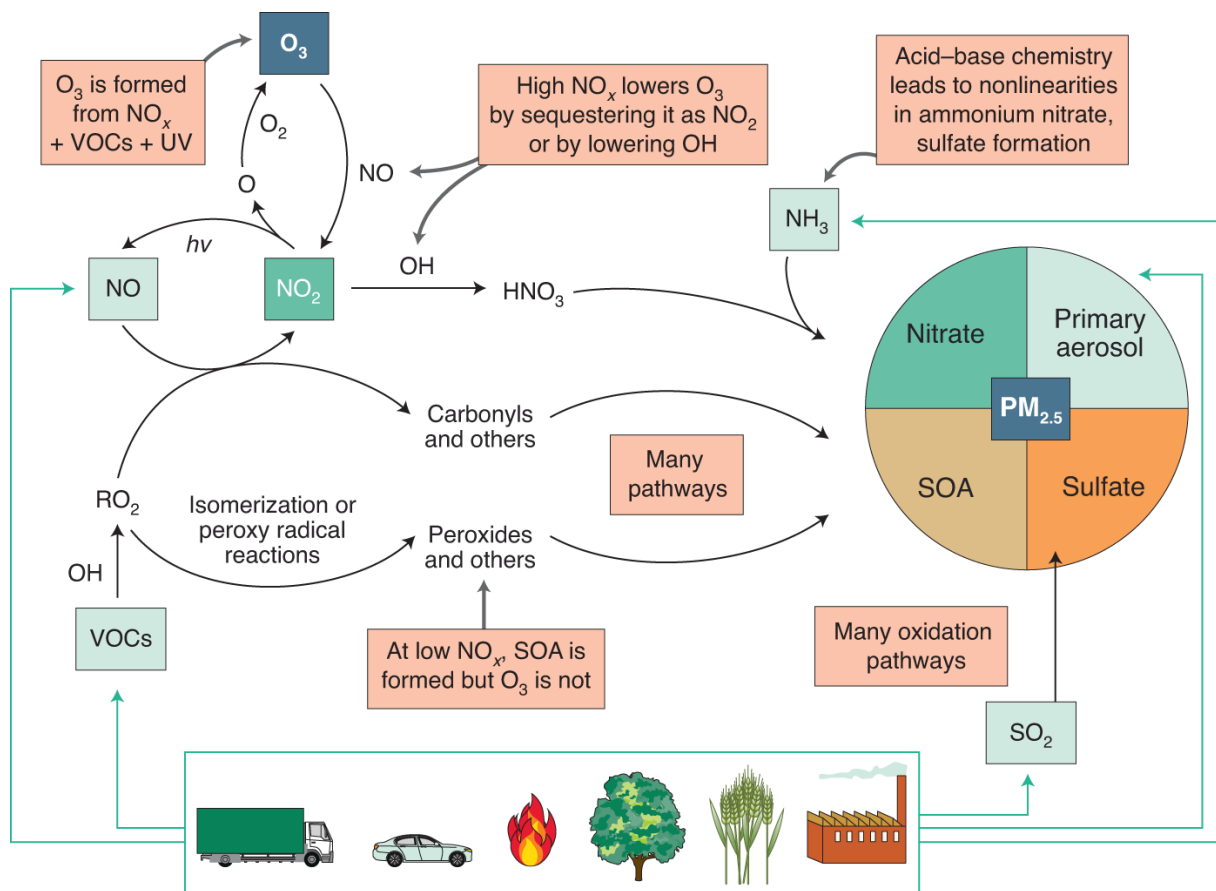


Figure 1.1 : Schéma (d'après Kroll et al., 2020) illustrant la complexité du système atmosphérique dans la formation de l'ozone et des $\text{PM}_{2.5}$: les flèches vertes représentent les émissions primaires et les flèches noires représentent les réactions chimiques secondaires.

Par exemple, le NH_3 neutralise l'acide sulfurique avant de réagir avec l'acide nitrique pour se condenser sur les aérosols sous forme de nitrate d'ammonium. Ainsi, selon leur taille et leur concentration, les particules en suspension dans l'air peuvent se trouver sous différentes formes : poussières, fumées, vapeurs, smogs, puffs, etc. Il faut également savoir qu'au-delà de leurs effets nocifs sur notre santé lorsque nous les inhalons, elles peuvent aussi avoir un impact important sur le climat par leurs capacités d'absorption ou de diffusion du rayonnement solaire (Charlson et al., 1992; Haywood and Shine, 1995; Schwartz, 1996b; Bessagnet et al. 2022), d'altération des nuages (Charlson et al., 1992; Jones et al., 1994; Boucher et Lohmann, 1995; Haywood and Boucher, 2000) et finalement, une diminution de

l'albédo de surface lorsqu'elles se déposent sur la neige et la glace (*Hansen and Nazarenko, 2004 ; Jacobson, 2004 ; Roberts and Jones, 2004*).

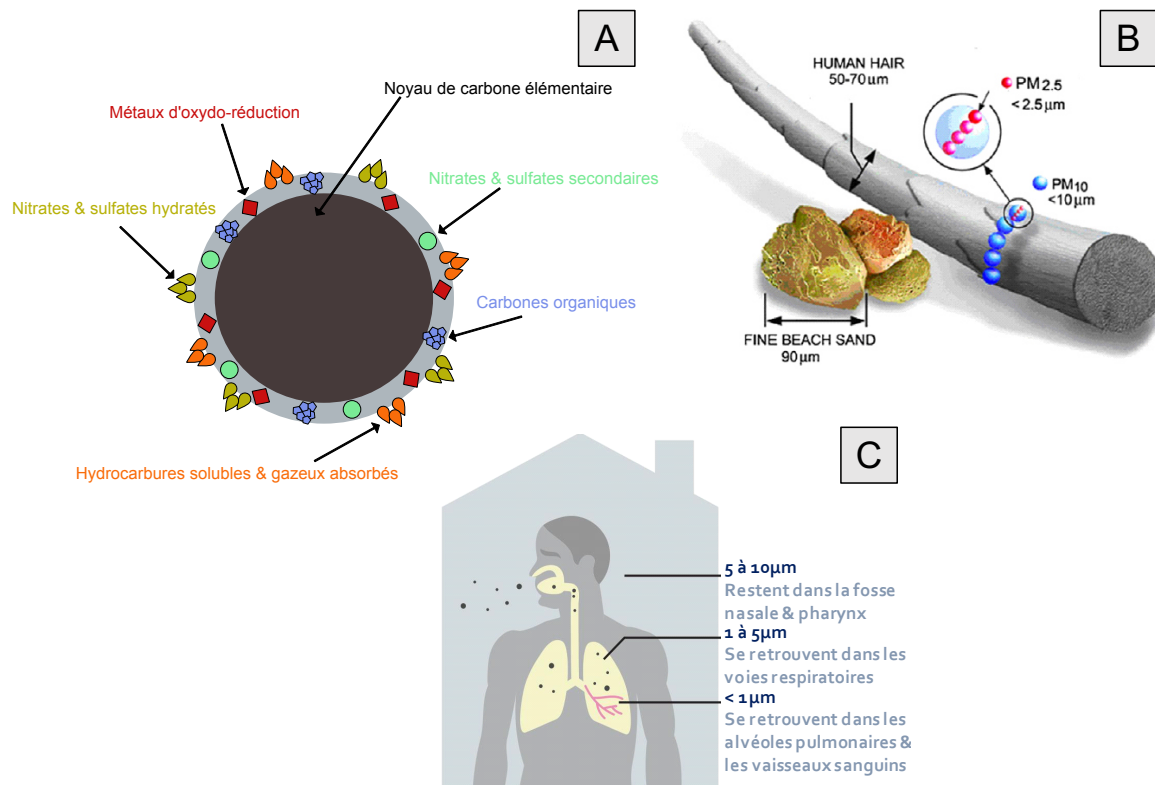


Figure 1.2 : [A] Représentation schématique de la composition complexe des particules fines ici issues d'un pot d'échappement (modifiée de *Stone et al., 2017*). [B] Comparaison de la taille des PM_{10} et $PM_{2.5}$ avec la taille d'un cheveu et des grains de sable fin (*EPA, 2010*). [C] Représentation schématisée de l'impact sur la santé des particules fines selon leurs tailles.

Les PM se caractérisent et se classent selon leur taille. Celle-ci est exprimée en diamètre équivalent d'une particule sphérique qui aurait les mêmes caractéristiques ou le même comportement physique. Dans les mesures réglementaires on parle de diamètre aérodynamique de la PM, correspondant ainsi au diamètre équivalent d'une sphère fictive de masse volumique de l'eau (1000 kg m^{-3}), ayant le même comportement dans un flux d'air que la particule en question. Par exemple, une PM_{10} représente une particule avec un diamètre aérodynamique égal ou inférieur à $10 \mu\text{m}$ (*Figure 1.2B*). Les autres diamètres équivalents seront présentés plus loin, dans la *partie I.1.3.3*. C'est en effet les particules les plus fines, de dimensions nanométriques qui vont avoir les effets les plus néfastes sur la

santé (Figure 1.2C, Penttinen et al., 2001 ; Wahlin et al., 2006 ; Raj, 2013, ANSES, 2019) même à de très faibles concentrations (WHO, 2018). Dans son rapport datant de 2018, l’OMS déclare qu’aucun seuil n’a été trouvé en dessous duquel aucun dommage pour la santé n’est garanti. Par conséquent, les valeurs cibles énoncées en 2005 visent à parvenir aux plus faibles concentrations possibles :

- **PM₁₀**: concentration moyenne annuelle de **20** µg/m³ ou **50** µg/m³ de moyenne journalière.
- **PM_{2.5}**: concentration moyenne annuelle de **10** µg/m³ ou **25** µg/m³ de moyenne journalière.

Ces valeurs guides ont été proposées pour la première fois dans le rapport datant de 1987 (WHO, 2017), qui a documenté les conclusions d'une analyse complète des d'études scientifiques établissant un lien entre les niveaux de pollution de l'air et les risques liés à la santé. Ces directives visent à fournir un outil d'aide aux décideurs du monde entier afin d'élaborer une législation sur la qualité de l'air et des normes d'émissions à des niveaux qui réduisent de manière significative les risques pour la santé publique. Depuis, ces valeurs ont régulièrement été mises à jour au fur et à mesure de l'avancée des travaux scientifiques sur le sujet jusqu'en 2006. Quinze ans après, en septembre 2021, l’OMS a publié la dernière édition des lignes directrices mondiales sur la qualité de l'air (WHO, 2021) :

Table 1.1 : Nouveaux objectifs recommandés par l’OMS pour les concentrations annuelles et journalières en PM_{2.5} et PM₁₀.

Recommandations	PM _{2.5} (µg.m ⁻³) annuelles	PM _{2.5} (µg.m ⁻³) pour 24h	PM ₁₀ (µg.m ⁻³) annuelles	PM ₁₀ (µg.m ⁻³) pour 24h
Objectif provisoire 1	35	75	70	150
Objectif provisoire 2	25	50	50	100
Objectif provisoire 3	15	37.5	30	75
Objectif provisoire 4	10	25	20	50
Recommandation OMS	5	15	15	45

1.1.2.2 D'où proviennent-elles ?

Les sources de pollution atmosphérique sont multiples et spécifiques au contexte. Les poussières peuvent à la fois provenir de sources naturelles et de sources anthropiques. Dans les processus naturels qui émettent des particules on peut trouver les éruptions volcaniques, l'érosion des sols et le transport de sable (saharien) par le vent, les feux de forêt ainsi que les embruns marins. Concernant les sources anthropiques les plus importantes sont le chauffage domestique, l'industrie, le trafic et l'agriculture (EEA, 2020, Chapitre 3).

En milieu urbain la qualité de l'air est fortement détériorée par les émissions des sources de combustion fixes (cheminées industrielles, chauffages domestiques, etc) et mobiles (transport routier, ferroviaire et maritime), contribuant de manière non négligeable aux émissions de PM et de plomb (Pb), entre autres. Mais dans beaucoup de villes, c'est sans équivoque le trafic qui est la principale source des rejets de particules fines dans l'atmosphère et en particulier aux heures de pointes (Maher et al., 2013; Hama et al., 2017). Ces particules proviennent plus spécifiquement des pots d'échappement (« exhaust emissions » ; Zhu et al., 2002 ; Liati et al., 2013 ; Pant and Harrison, 2013), mais aussi des produits dérivés de l'usure des véhicules (« non-exhaust emissions » ; Liati et al., 2015, Charron et al., 2019, Grange et al., 2021, Matthaios et al., 2022, Baensch-Baltruschat et al., 2020) via des processus de friction et d'abrasion des pneus ou du revêtement de la voirie, des freins et embrayages (Kukutschova et al., 2011 ; Mathissen et al., 2011) ainsi que de la remise en suspension des poussières déjà déposées sur les voies de circulation (Yang et al., 2016). Les poussières issues des pots d'échappement sont généralement décrites comme étant de tailles beaucoup plus fines (diamètre aérodynamique < 2.5 µm) que celles provenant des produits d'usure (PM_{2.5-10} ; Abu-Allaban et al., 2003 ; Thorpe and Harrison, 2008 ; Kam et al., 2012).

Durant ces dernières décennies, la plus grande partie de la recherche publique ou privée ainsi que l'action politique se sont concentrées sur la diminution des gaz à effet de serre et par conséquent, des émissions provenant des pots d'échappement. C'est pourquoi, les filtres à particules (FAP) dans la ligne d'échappement ont progressivement puis, systématiquement été mis en place. Les concentrations de particules émises par les « exhaust emissions » c'est-à-dire par les pots d'échappement ont de ce fait bien diminué

(Allen et al., 2006 ; Thorpe and Harrison, 2008 ; Mathissen et al., 2011). A l'inverse, la description et la prise en compte de la contribution des particules émises par l'usure du véhicule ont été sous-estimées (Amato et al., 2012 ; Harrison et al., 2012 ; Denier van der Gon et al., 2013). En effet, il a été montré par une compilation d'études réalisant des simulations que l'usure des freins représente 55 % des émissions dites « non-exhaust » et contribuent de manière significative à la détérioration de la qualité de l'air et de l'impact sanitaire qui en découle (Rahimi et al., 2021). Malheureusement, il a été démontré que même avec zéro émission des pots d'échappement, le trafic continuera de contribuer aux rejets de particules fines et ultrafines dans l'atmosphère grâce aux autres sources d'émission (Dahl et al., 2006 ; Kumar et al., 2013 ; Pankala et al., 2018).

I.1.3 Caractéristiques physiques des particules fines

Cette partie a été rédigée en se basant principalement sur le livre de Seinfeld and Pandis, 2016.

I.1.3.1 Transport et forces s'appliquant aux PM en suspension dans un fluide

A l'échelle microscopique, **un fluide visqueux** (tel que l'air) est composé de plusieurs molécules se déplaçant de façon linéaire jusqu'à ce qu'il y ait une collision avec d'autres molécules. Les molécules vont alors se mouvoir dans une autre direction jusqu'à ce qu'une autre collision se produise, et ainsi de suite. On définit alors **le libre parcours moyen** (LPM) comme la distance moyenne parcourue par une molécule entre chaque collision. Dépendamment de cette distance de libre parcours moyen des molécules de fluide et de la taille des particules en suspension dans le fluide, on distingue deux cas. Premièrement, pour une taille de matière particulaire supérieure à celle du LPM, le gaz va se comporter comme un fluide continu car la taille de la PM est trop grande par rapport au mouvement des molécules. Un observateur y voit alors un **écoulement continu**. Au contraire, lorsque la taille de la matière particulaire est inférieure à celle du LPM, les mouvements des molécules de fluide vont être visibles autour des PM, on parle donc d'un **régime cinétique**.

Étant donné que la particule (PM) se déplace à une vitesse U , le fluide exerce sur elle une **force de traînée** F_{drag} , toujours présente tant que la PM ne se trouve pas dans le vide. Partant des équations de continuité et de Navier-Stokes, **la loi de Stokes** décrit pour un milieu continu :

$$F_{drag} = F_n + F_t = 6\pi * \mu * R_p * U \quad (1.1)$$

où F_n correspondant aux forces normales agissant perpendiculairement en tout point à la surface de la particule, F_t représentant les forces tangentielles exercées par le fluide ; μ la viscosité, R_p le rayon de la particule et U sa vitesse. A noter que la loi de Stokes s'applique pour un écoulement dont le nombre de Reynolds $Re < 1$, c'est-à-dire pour un écoulement dit minimum, dont les forces visqueuses sont largement dominantes par rapport aux forces inertielles. Or, lorsque les forces inertielles ne peuvent être négligées ($Re \geq 1$), la force de traînée est exprimée en terme de **coefficient de traînée empirique C_D** , comme c'est le cas par exemple pour les particules plus grossières telles que les gouttelettes ou les PM en mouvement rapide.

Cependant, si une particule très fine ($< 10 \mu m$) s'approche de la même grandeur que celle du LPM dans l'air, il devient nécessaire de prendre en compte le fait que nous ne sommes plus dans un milieu continu en introduisant un coefficient de **correction de glissement (C_c)** dans la loi de Stokes.

1.1.3.2 Les principaux modes de dépôts secs des PM

Précédemment, nous avons décrit une PM en mouvement à vitesse constante U dans un fluide non turbulent, équivalent à un écoulement de fluide à vitesse U devant une PM stationnaire. Cependant, pour les PM grossières, en plus d'être soumises à la force de traînée, elles peuvent être soumises à des forces externes telles que la gravité ou encore la poussée d'Archimède lorsqu'elles se déposent sur des surfaces horizontales. On appelle ce mécanisme de dépôt : **la sédimentation**. Ceci va créer une différence de vitesse entre celle du fluide et celle de la PM, qui va avoir tendance à augmenter l'effet de la force de traînée.

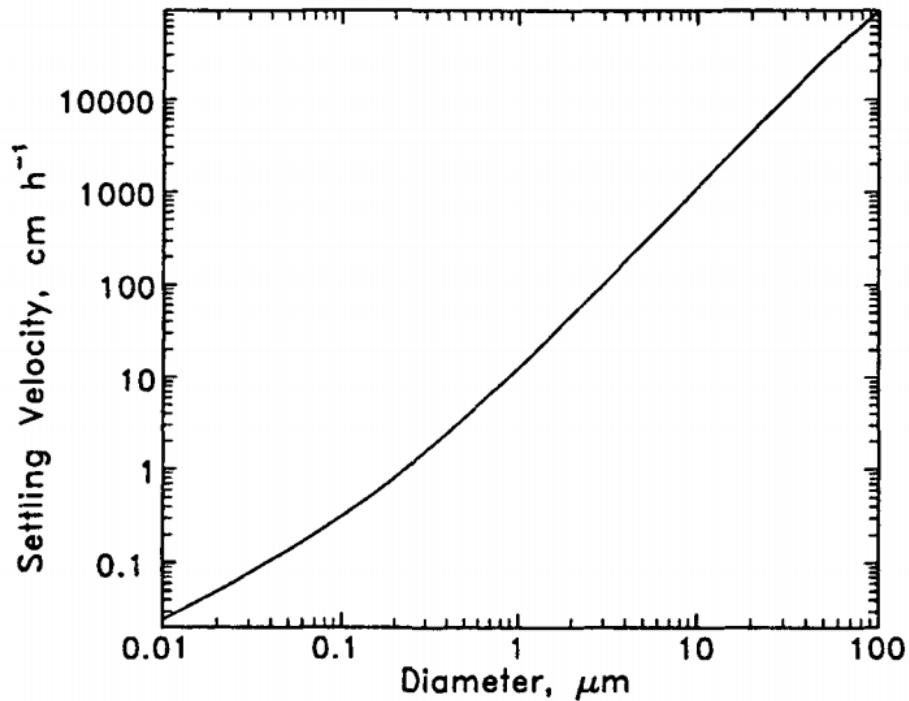


Figure 1.3: Vitesses de sédimentation des PM dans l'air en fonction de leurs diamètres (Seinfeld and Pandis, 2016).

L'équilibre de ces forces va être décrit par la vitesse terminale de chute (ou de sédimentation), qui va dépendre alors de la taille de la PM et de la viscosité du fluide (Figure 1.3). Pour une PM sphérique de densité $\rho_p \gg \rho_{\text{fluide}}$ et de diamètre D_p dans un régime de Stoke, on définit cette vitesse terminale V_t telle que :

$$V_t = \frac{1}{18} \frac{D_p^2 \rho_p g C_c}{\mu} \quad (1.2)$$

Le second mode de dépôt est la **diffusion Brownienne** (Figure 1.4A).

Celui-ci décrit les mouvements aléatoires des particules en suspension dans un fluide par une augmentation de fréquence des collisions avec les molécules du fluide environnant. Ce phénomène est d'autant plus important pour les PM les plus fines (diamètre $< 0.1 \mu\text{m}$) car la taille des PM va être du même ordre de grandeur que celle des molécules. Les collisions aléatoires entre elles vont donc significativement perturber les trajectoires des PM. Un gradient de concentration va alors apparaître, c'est-à-dire une migration de la zone plus

concentrée (PM en collision) vers une zone moins concentrée (paroi de dépôt), favorisant ainsi le dépôt.

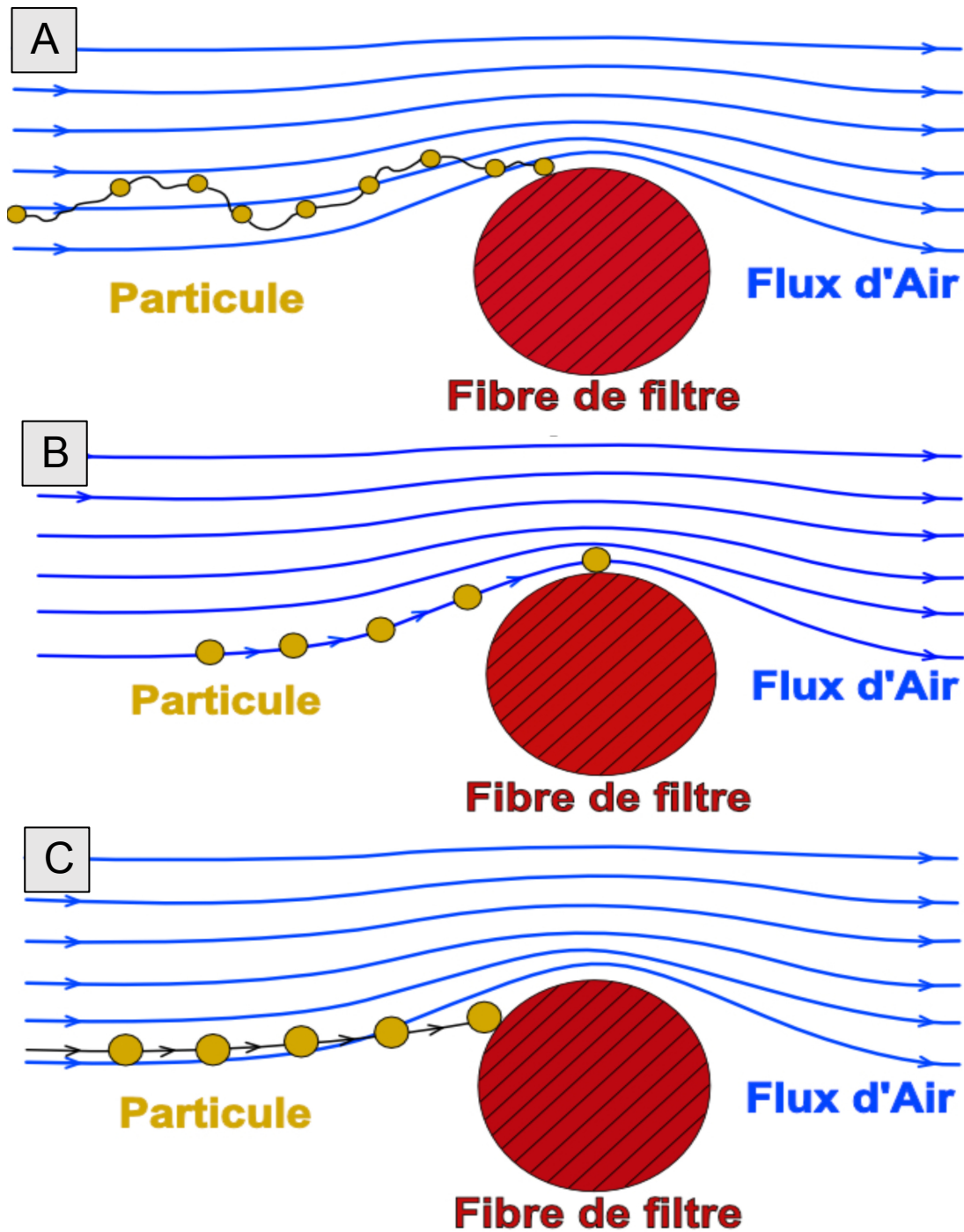


Figure 1.4 : Illustrations des dépôts de particules par [A] diffusion Brownienne, [B] interception et [C] impaction (Hinds, 1999).

Si une PM de diamètre $> 1 \mu\text{m}$ possède une masse et une force centrifuge suffisantes, elle pourra potentiellement venir impacter un obstacle et ainsi se déposer à sa surface : on parle alors d'**impaction** (Figure 1.4C). Ceci est à différencier de l'**interception** (Figure 1.4B) qui traduit le dépôt d'une PM, non influencée par l'inertie, la gravité ou la diffusion Brownienne (Hinds, 1999), et qui va rencontrer un obstacle se trouvant à une distance inférieure à celle de son rayon.

1.1.3.3 Les diamètres équivalents des PM

La plupart des lois physiques s'appliquant aux PM partent du principe que celles-ci sont sphériques. Or, les PM atmosphériques ne le sont que très rarement. C'est pourquoi, un certain nombre de techniques utilisées pour déterminer la taille des PM mesurent en réalité leurs vitesses de chute terminale ou leurs mobilités électriques. Pour cela, on définit pour les particules non sphériques un **diamètre équivalent** (Figure 1.5). Ce dernier représente le diamètre d'une sphère qui, pour un instrument donné, mesurerait la même taille que la PM considérée. Plusieurs diamètres équivalents sont reconnus. Dans un premier temps, on considère le diamètre **équivalent volumique** (D_{ve}) comme étant le diamètre d'une sphère ayant le même volume (V_p) que la PM non sphérique étudiée :

$$D_{ve} = \frac{6}{\pi} V_p^{\frac{1}{3}} \quad (1.3)$$

Pour tenir compte des variations de forme lors d'un écoulement de PM non sphériques on définit un facteur de forme (Fuchs, 1964) :

$$\chi(\%) = \frac{F_d}{F_{dve}} \quad (1.4)$$

avec F_d correspondant à la force de traînée de la particule et F_{dve} la force de traînée de la particule au diamètre équivalent volumique. Ce facteur est généralement supérieur à 1 pour les particules irrégulières et/ou des écoulements minimaux ($Re \ll 1$), et égal à 0 pour des

particules sphériques. Enfin, ce facteur varie notamment avec la pression, la taille des PM ou encore l'orientation des PM dans un champ d'écoulement aérodynamique ou électrique.

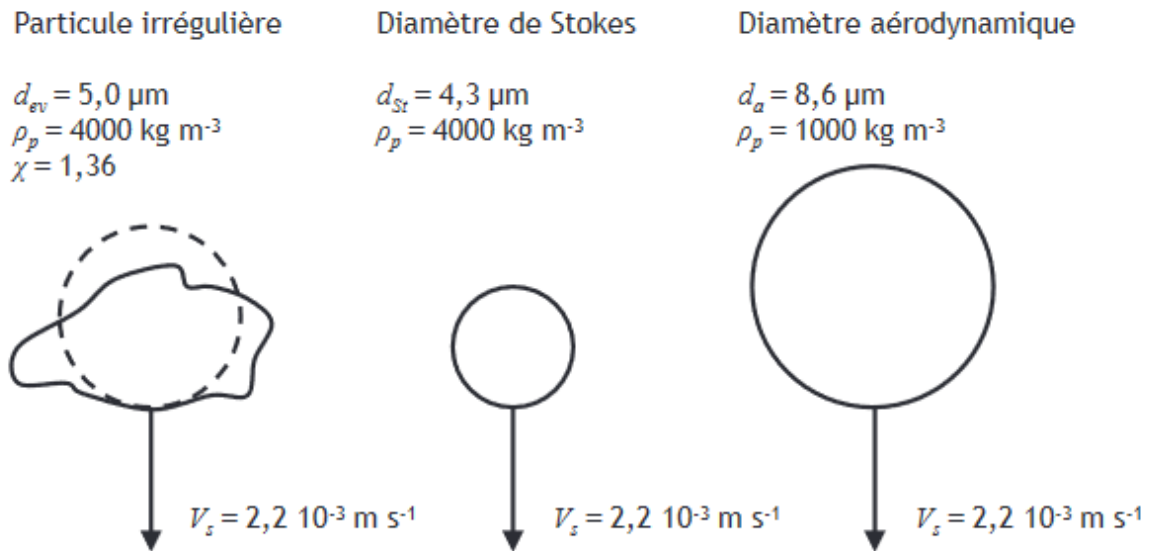


Figure 1.5 : Diamètres équivalents utilisés pour des particules non sphériques (Hinds, 1999).

Le diamètre équivalent **de Stokes (D_{st})** correspond au diamètre d'une sphère ayant la même vitesse terminale de chute et la même densité que la PM étudiée. Pour un écoulement dont $Re < 0.1$ on a :

$$D_{st} = \left(\frac{18 V_t \mu}{\rho_p g C_c (D_{st})} \right)^{\frac{1}{2}} \quad (1.5)$$

où ρ_p correspond à la densité de la particule non connue, V_t la vitesse terminale de chute et μ la viscosité de l'air. Or, dans la plupart des cas la densité n'est pas connue, ce qui rend difficile le calcul du D_{st} à partir de la vitesse terminale de chute.

Il est donc nécessaire d'introduire d'autres diamètres équivalents qui ne nécessitent pas de connaître la densité comme : le diamètre équivalent aérodynamique classique (D_{ca}). Ce dernier prend en compte le diamètre d'une sphère de densité unitaire $\rho_p^0 = 1 \text{ g/cm}^3$ et ayant la même vitesse terminale de chute que la PM considérée.

$$D_{ca} = \left(\frac{18 V_t \mu}{\rho_p \cdot C_c (D_{ca})} \right)^{\frac{1}{2}} \quad (1.6)$$

1.1.3.4 Les distributions caractéristiques des aérosols

La granulométrie d'un aérosol peut être caractérisée par sa distribution en nombre (N), en surface (S), en volume (V) ou encore en masse (M). La distribution en nombre n_i pour un intervalle de taille i étudié est souvent exprimé comme la relation entre la concentration absolue N_i et l'intervalle de taille ΔD_p , soit :

$$N_i = n_i * \Delta D_p \quad (1.7)$$

Or, l'inter comparaison des distributions discrètes de tailles entre plusieurs appareils de mesure peut être rendue compliquée, c'est pourquoi il est préférable d'utiliser de petits intervalles proches de zéro : dD_p . Ainsi, la somme de ces intervalles infinitésimaux va permettre de passer d'une distribution discrète à une distribution continue. On considère donc $n_N (D_p)dD_p$ en $\mu\text{m}^{-1}\text{cm}^{-3}$ comme étant le nombre de particule par cm^3 d'air ayant un diamètre compris entre D_p et (D_p+dD_p) . Le nombre total de particules par cm^3 d'air ayant un diamètre compris entre D_p et (D_p+dD_p) , correspondant à l'aire sous la courbe est calculé à partir de :

$$N_t = \int_0^{\infty} n_N (D_p)dD_p \quad (1.8)$$

Dans le même principe, on estime la surface totale d'un aérosol par cm^3 d'air calculée en $\mu\text{m}^2\text{cm}^{-3}$ telle que :

$$S_t = \int_0^{\infty} n_S (D_p)dD_p \quad (1.9)$$

Ainsi que la distribution des volumes en $\mu\text{m}^3\text{cm}^{-3}$ est considérée telle que :

$$V_t = \int_0^{\infty} n_V (D_p) dD_p \quad (1.10)$$

Finalement, si les particules ont la même densité ρ_p (en g.cm^{-3}), la distribution des masses en $\mu\text{g}/\mu\text{m}/\text{cm}^3$ est calculée à partir de :

$$nM(D_p) = \left(\frac{\rho_p}{10^6}\right) \frac{\pi}{6} D^3 \rho nN (D_p) \quad (1.11)$$

Cependant, les diamètres varient généralement de plusieurs ordres de grandeur dans une population de PM, rendant l'utilisation de $n_N (D_p)$, $n_S (D_p)$, $n_V (D_p)$ et $n_M (D_p)$ peu pratique (Figure 1.6A). Par conséquent, l'axe des abscisses peut être transformé en échelle logarithmique (Figure 1.6B). En revanche, cette représentation à l'échelle semi-logarithmique n'est pas non plus totalement adéquate et réaliste puisque l'aire sous la courbe ne correspond plus à la concentration en nombre, volume, surface ou masse totale de l'échantillon. C'est pourquoi, lorsque plusieurs composantes sont présentes, notamment dans les mélanges, l'hypothèse de départ implique que les distributions log-normales ou gaussiennes expliquent les distributions continues en différents modes (Figure 1.6; Aitchison and Brown, 1957; Hinds, 1999; Renoud and Boulaud, 1998). Pour une distribution en nombre celle-ci se traduit par :

$$f(dp) = \frac{1}{\ln \sigma \sqrt{2\pi}} \exp \left[\frac{(\ln dp - \ln \overline{dp})^2}{2(\ln \sigma)^2} \right] \quad (1.12)$$

Pour une concentration k d'aérosol jusqu'à M, on détermine alors le diamètre moyen des particules de la distribution tel que :

$$\overline{dp} = \frac{\sum_{k=1}^M N_k D_k}{\sum_{k=1}^M N_k} = \frac{1}{Nt} \sum_{k=1}^M N_k D_k \quad (1.13)$$

Ainsi, la dispersion de la distribution autour du diamètre moyen \overline{dp} est caractérisée par :

$$\sigma = \frac{\sum_{k=1}^M Nk (Dk - \overline{Dp})^2}{\sum_{k=1}^M Nk} = \frac{1}{Nt} \sum_{k=1}^M Nk (Dk - \overline{Dp})^2 \quad (1.14)$$

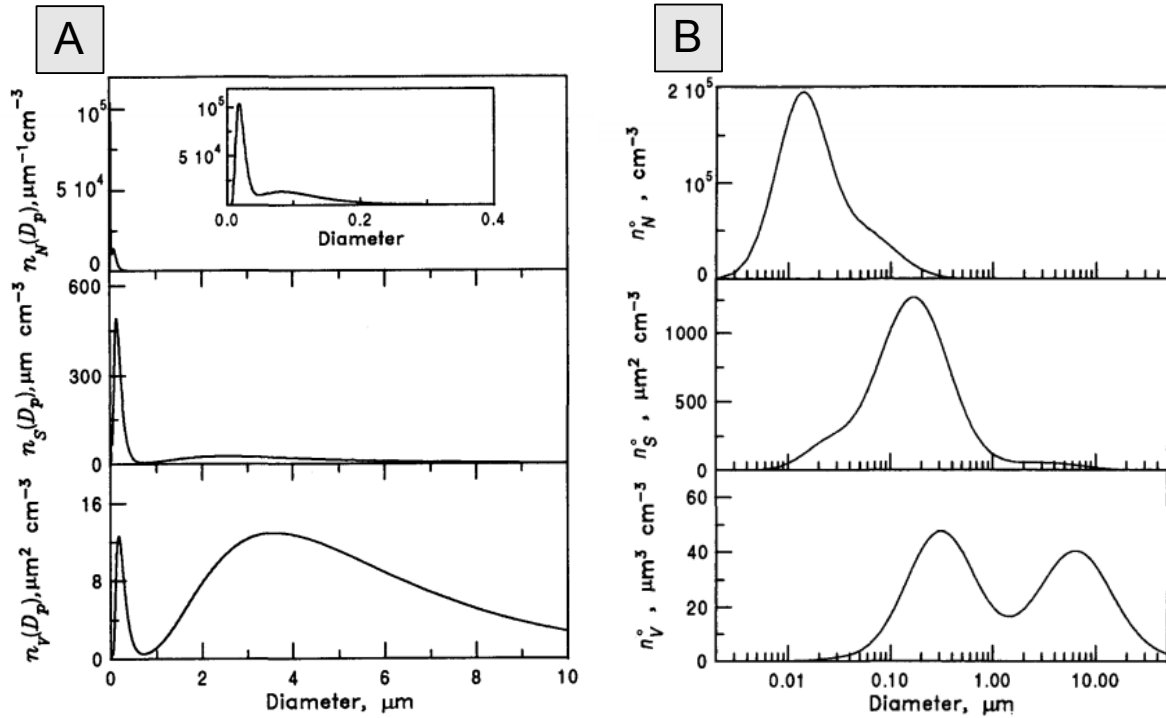


Figure 1.6 : [A] Distributions continues en nombre, surface et volume. [B] à l'échelle logarithmique (Seinfeld and Pandis, 2016).

1.1.3.5 Les modes de distributions de taille

Les PM d'origine urbaine étant composées d'un mélange complexe de PM primaires et secondaires, leurs concentrations vont dépendre principalement de la source d'émission, la proximité à la source et l'âge de la masse d'air.

Dans ce sens, les distributions massiques ou volumiques vont être principalement caractérisées par deux modes : le **mode Grossier** (pour les PM > 1 ou 2 μm ; Figure 1.7), résultant pour la plupart des processus mécaniques tels que l'érosion par le vent ou tout autre mécanisme d'abrasion. Le **mode Accumulation** (PM < 1 ou 2 μm ; Figure 1.7A), décrit les émissions primaires ainsi que la coagulation des petites PM.

Concernant les distributions en nombre de PM, deux modes vont être notamment caractéristiques en milieux urbain et rural : le **mode Nucléation** (PM < 10 nm ; [Figure 1.7A](#)) provenant de la condensation de vapeur d'eau et de la formation de noyau de nucléation sur des particules primaires et le **mode Aitken** (10 < PM < 100 nm ; [Figure 1.7A](#)), issu de la condensation et de la coagulation des particules ultra fines secondaires lors de leur transport dans l'atmosphère. Ceci étant dit, les distributions granulométriques des polluants en milieux urbains sont assez variables. Les plus fortes concentrations vont bien évidemment se retrouver à proximité des sources ([Figure 1.7B](#)), et diminuent très rapidement dès que l'on s'en éloigne ([Zhu et al., 2002](#)).

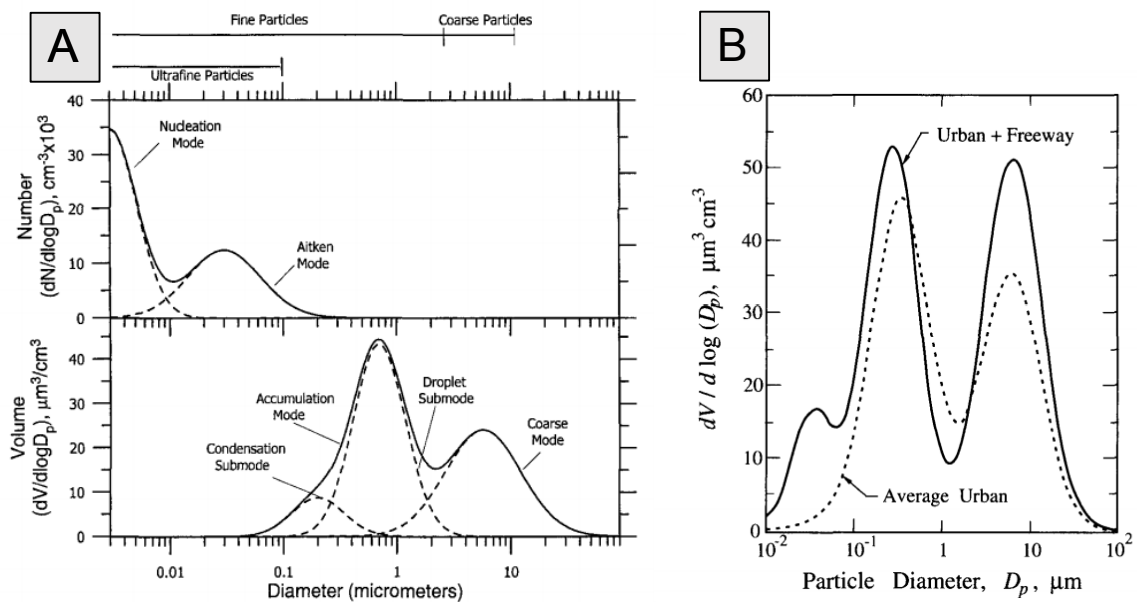


Figure 1.7 : [A] Représentation des modes caractéristiques pour des distributions en nombre et volume. [B] Distribution en volume d'un aérosol proche d'une zone de trafic et comparé au signal moyen urbain ([Seinfeld and Pandis, 2008](#)).

1.1.3.6 La vitesse de dépôt ou capacité de piégeage des PM

Dans l'atmosphère, les particules peuvent se déposer soit par dépôt sec, c'est-à-dire en absence de précipitation selon les différents processus énoncés précédemment, soit par dépôt humide, bien plus efficace. Pour quantifier le dépôt sec de PM au niveau des

différentes surfaces accumultrices (végétation, mur, sol, etc.), *Chamberlain, 1966* a introduit la notion de **vitesse de dépôt** V_d (en m/s) :

$$V_d = \frac{F}{\chi} = \frac{N_{\text{déposé}} / (A \cdot t)}{\frac{N_{\text{total}}}{Vol}} \quad \left[\frac{m^{-2} \cdot s^{-1}}{m^{-3}} \right] = [m \cdot s^{-1}] \quad (1.15)$$

Où :

i/ F est la densité de flux (quantité de mouvement massique, volumique ou en nombre) de particules transférées vers une surface accumultrice. Dans ce travail, j'utiliserai le nombre de particules déposées $N_{\text{déposé}}$ normalisé par la surface (A en m^2) de la zone d'impaction et le temps (t en seconde) d'exposition ;

ii/ χ représente la dose de particules dans l'air avant l'effet de « puits » de la surface accumultrice. Pour être homogène en terme d'unité nous exprimerons cette grandeur par le nombre de particules avant captation normalisé par unité de volume (Vol en m^3).

Dans l'environnement, les conditions de dépôt sont variables et la vitesse de dépôt dépendra alors de plusieurs facteurs tels que : le diamètre aérodynamique des PM, la vitesse du vent ou encore les propriétés spécifiques des surfaces accumultrices. Par exemple, les effets de rebond de la particule sur la surface ou les possibilités d'arrachage des particules déposées contrôlent également les vitesses de dépôt. Les différents types de surfaces accumultrices sont donc caractérisés par des vitesses de dépôt spécifiques. Une courbe caractéristique en « V » (*Figure 1.8*) met en relation la vitesse de dépôt et la taille des particules selon la vitesse du vent u_{ref} pour les différents processus de dépôt.

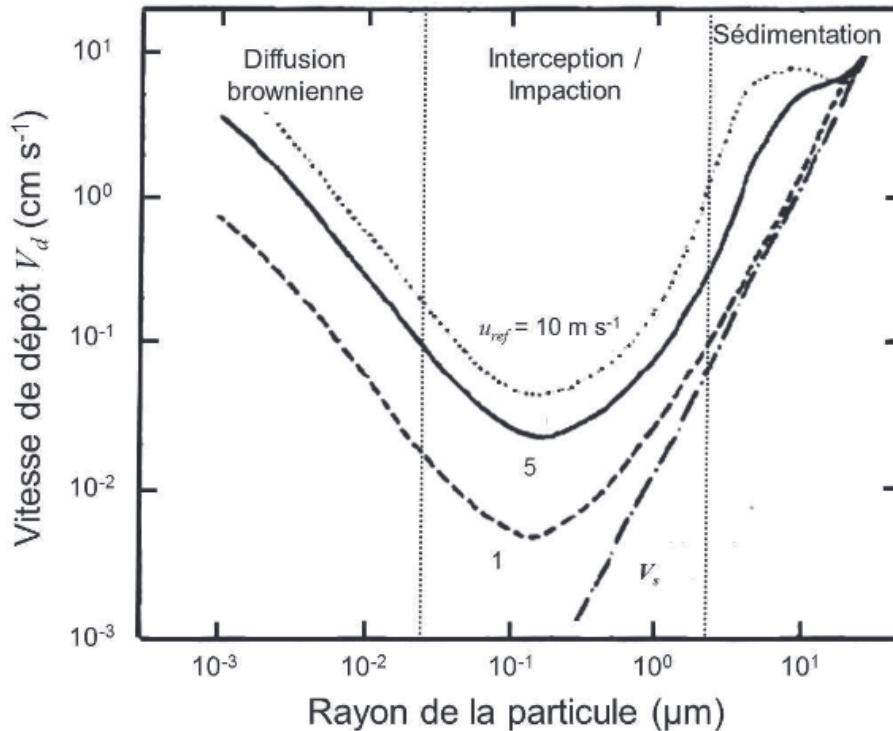


Figure 1.8: Courbes de référence mettant en relation la vitesse de dépôt V_d et le rayon des particules selon trois vitesses de vent différentes : $u_{ref} = 10, 5$ et 1 m/s (Seinfeld and Pandis, 2016 d'après Slinn, 1982).

I.1.4 La surveillance de la qualité de l'air : une mesure (très) difficile

I.1.4.1 Les principes de la mesure

La surveillance de la qualité de l'air est réalisée par différents moyens de mesure. Ces derniers permettent de mesurer les différentes caractéristiques des PM dont les plus importantes sont : leur **concentration** et leur **taille**. Dans la Figure 1.9, les instruments de comptage de particules les plus courants ont été classés selon les méthodes de mesure en concentration et en distribution de taille.

Les principes de mesure sur lesquels sont basés les divers instruments sont nombreux : gravimétrie, optique, micro-pesée ou charge électrique. Nous nous intéresserons particulièrement ici à la mesure par **impaction**, principe intégré dans les normes sanitaires et AASQA ainsi qu'aux mesures par **diffusion et diffraction optique** (généralement utilisée par les μ -capteurs low-cost comme les capteurs de chez *Alphasense* et *météomodem-LOAC* que j'ai utilisé dans le cadre de ma thèse).

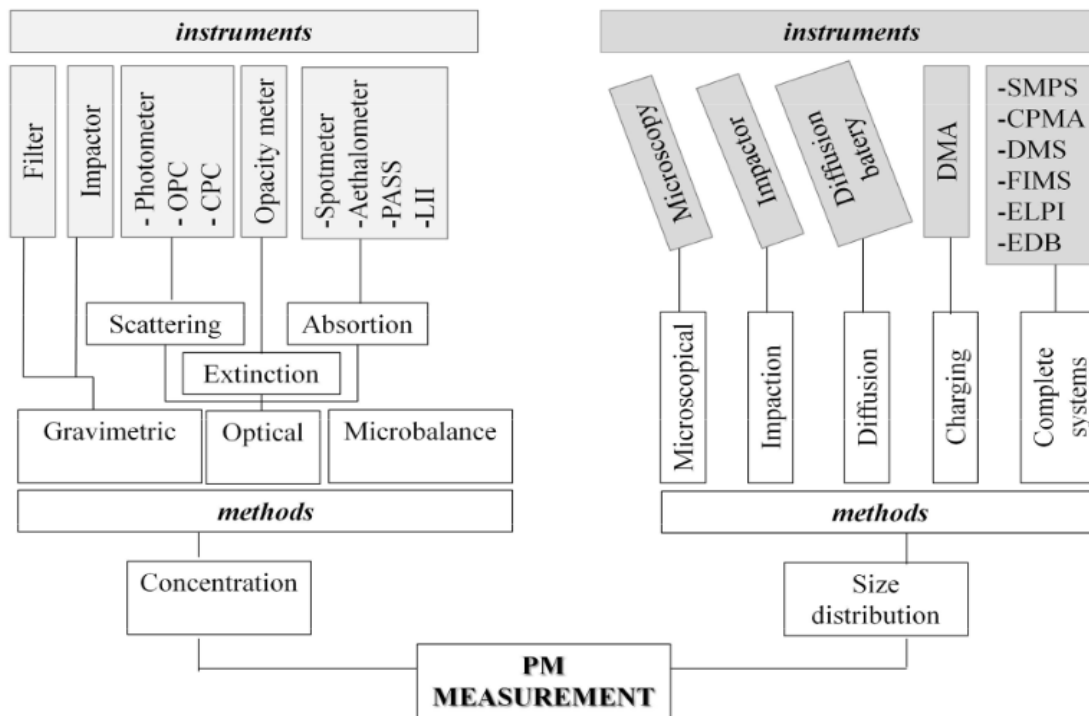


Figure 1.9 : Méthodes et instruments de comptage des PM (d'après Amaral et al., 2015).

Les impacteurs sont des instruments de mesure de la distribution granulométrique en masse dont le principe est le suivant : l'énergie cinétique d'une particule transportée par un flux d'air dépend de la densité de flux (la vitesse), de sa masse et donc, de son diamètre aérodynamique. Par effet centrifuge, il peut arriver que la particule quitte la trajectoire de l'air et qu'elle soit projetée sur une surface où elle se fixe. Il est alors possible en disposant plusieurs impacteurs en série (dispositif dit en cascade ; Hinds, 1999) d'effectuer une classification granulométrique de 30 nm à 10 µm en faisant varier la densité de flux par effet venturi à chaque étage. Si le dispositif permet à la densité de flux d'augmenter progressivement, l'aérosol passe dans une série d'étapes où les particules avec les plus grands diamètres vont être les premières à être arrêtées, tandis que les plus fines suivent les lignes de champ de vitesse jusqu'à ce que la vitesse atteinte permette l'impaction (Figure 1.10A).

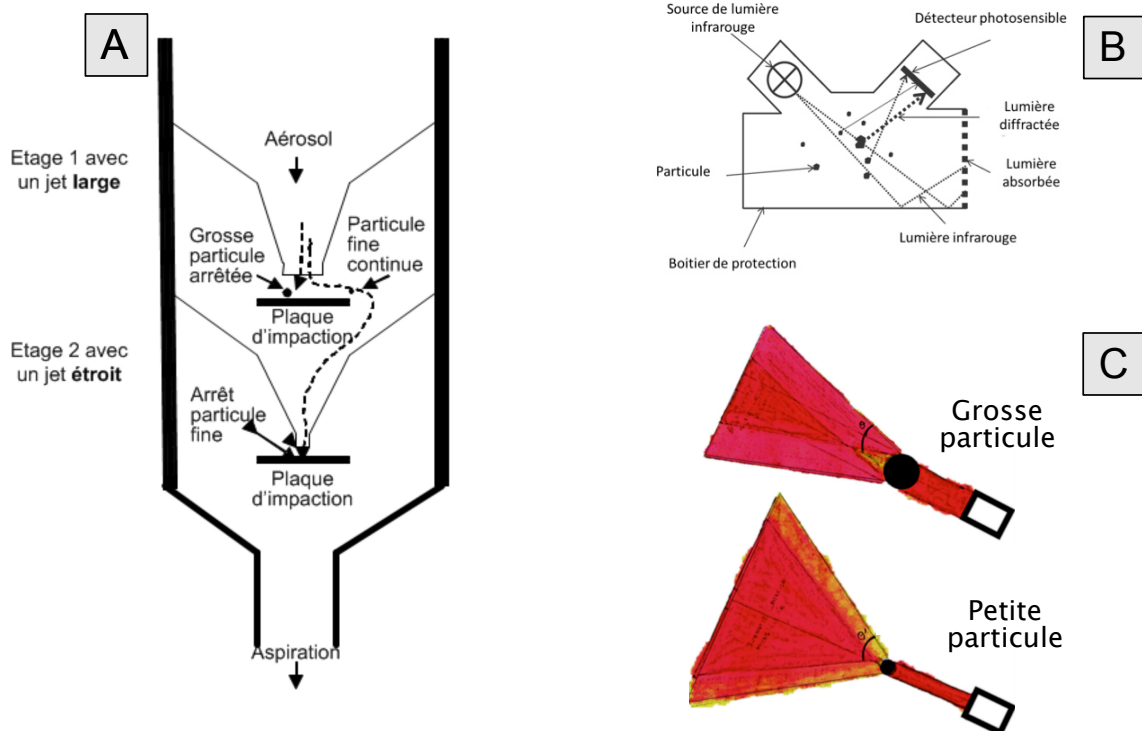


Figure 1.10 : [A] Principe de l'impacteur en cascade. [B] Variation de l'angle de diffraction d'une particule selon sa taille, la distance entre le détecteur et la particule ainsi que la longueur d'onde de la lumière à infra-rouge. [C] Exemple de la configuration d'un capteur optique de particules.

Le comptage optique utilise les propriétés de diffusion lumineuse des particules (Mie, 1908). Cette méthode va permettre un comptage des PM selon leur gamme de taille. Le principe est le suivant : dans un milieu homogène et transparent, la lumière (un faisceau laser de 25 mW et 650 nm dans le cas du LOAC par exemple, compteur utilisé dans le cadre de ce travail) va se propager en ligne droite. Lorsque celle-ci va rencontrer une particule ou un obstacle, la mesure de la quantité de lumière diffusée connaissant la quantité de lumière incidente permet de déterminer la taille de la particule (Figure 1.10B). Étant donné que l'échantillon d'air contient non pas une mais de nombreuses particules de tailles différentes, les données d'intensité lumineuse finales représentent la superposition de la lumière diffusée que l'on quantifiera dans un détecteur photosensible (Figure 1.10C). Les compteurs optiques LOAC ont deux photodiodes. La première mesure la diffusion lumineuse entre 11° et 16° par rapport à la direction de la lumière incidente. A ces angles, le faisceau diffusé ne dépend que de la taille des particules. La deuxième mesure la diffusion

lumineuse entre 55 et 65° du faisceau incident. Dans ce cas, la lumière diffusée dépend à la fois de la taille et de la nature (typologie) des particules.

1.1.4.2 Les mesures de référence vs. capteurs low-cost

En France, la mesure de la qualité de l'air est confiée aux AASQA (Associations agréées de surveillance de la qualité de l'air). Ce sont des organismes agréés et reconnus par le ministère de la transition écologique et solidaire capables de mesurer la pollution en permanence au moyen de stations fixes. Ces stations fixes sont souvent complétées par des stations mobiles déployées lors de campagnes ponctuelles et à durées limitées. Dans les stations de mesures (fixes ou mobiles), on distingue les **stations « bruit de fond »** : éloignées des sources locales de pollution connues et **les stations de proximité**, idéalement placées au plus proche de la source de pollution que l'on souhaite surveiller (trafic, traitement des déchets, domaine aéroportuaire ou portuaire, etc...).

D'un côté ces stations de référence sont capables de détecter des fluctuations temporelles de concentrations en PM mais leurs coûts, entretiens et tailles ne permettent pas d'en déployer suffisamment pour obtenir une résolution requise à l'étude des variations spatio-temporelles de concentration en PM dans les environnements urbains, qui sont fortement influencés par les sources locales de pollution (*Britter and Hanna, 2003; Vardoulakis et al., 2005; Mead et al., 2013*). L'outil et la méthode de mesure vont également varier selon le polluant étudié, par exemple : la radiométrie par microbalance pour les PM₁₀, la chimiluminescence pour les oxydes d'azote, la spectroscopie infrarouge pour le monoxyde de carbone ou encore la photométrie ou spectroscopie ultraviolette pour l'ozone.

D'un autre côté, les micro-capteurs de PM à faible coût dits « low-cost », disponibles facilement dans le commerce peuvent offrir une opportunité de compléter le réseau de surveillance déjà existant avec les stations de référence (*Velasco et al., 2016*) et ainsi améliorer la résolution de manière rentable. Mais de nombreux doutes persistent quant à la qualité de la donnée et sa validité (*Kumar et al, 2015; Lewis and Edwards, 2016; Rai et al, 2017; Morawska et al., 2018*). Sa précision est remise en cause et difficile à évaluer (*Austin et al., 2015*) car elle est influencée par la concentration en PM (*Austin et al., 2015; Kelly et al.,*

2017), leur composition (*Rai et al, 2017*), et les conditions météorologiques comme l'humidité relative (*Crilley et al, 2018; Jayaratne et al., 2018*). Il est finalement suggéré que chaque micro-capteur soit en amont testé dans des conditions proches du site de déploiement (*Rai et al, 2017*). De plus, il existe aujourd'hui énormément de micro-capteurs low-cost dans le commerce de marques différentes, un autre questionnement qui se pose donc est la comparabilité entre ces divers instruments de mesure. Plusieurs études ont déjà comparé différents capteurs (*Kelly et al., 2017; Crilley et al, 2018; Jayaratne et al., 2018; Feinberg et al., 2018*) et ne sont pas systématiquement unanimes sur leurs conclusions.

I.2 LE MAGNETISME ENVIRONNEMENTAL : UNE APPROCHE ALTERNATIVE POUR MESURER LA QUALITE DE L'AIR

Le magnétisme environnemental est une science relativement récente utilisée de prime abord dans l'étude des sédiments et reconstructions paléo-environnementales (*Evans and Heller, 2003*). Elle consiste à exploiter les paramètres magnétiques indicateurs de la concentration, la granulométrie et la minéralogie des grains magnétiques contenus dans des enregistrements naturels (e.g. sols, sédiments marins ou encore la poussière transportée par le vent) afin d'obtenir des informations concernant les changements environnementaux actuels et anciens. La [Table 1.2](#) résume les différents paramètres qui sont les plus communément utilisés.

Table 1.2 : Liste non exhaustive des paramètres utilisés en magnétisme environnemental. (D'après *Tauxe, 2016; Evans and Heller, 2003*).

	<i>Paramètre magnétique</i>	<i>Symbole</i>	<i>Unités</i>	<i>Indicateurs magnétiques</i>
Températures critiques	Température de Curie (Néel)	T_c	$^{\circ}\text{C}$ ou $^{\circ}\text{K}$	Minéralogie
	Effet d'Hopkinson	T_h	$^{\circ}\text{C}$ ou $^{\circ}\text{K}$	Domaine magnétique
	Transition de Verwey	T_v	$^{\circ}\text{C}$ ou $^{\circ}\text{K}$	Minéralogie & domaine magnétique
	Transition de Morin	T_m	$^{\circ}\text{C}$ ou $^{\circ}\text{K}$	Minéralogie & domaine magnétique
Susceptibilité magnétique	Normalisée au volume	χ	Sans dimensions	Concentration volumique
	Normalisée à la masse	κ	$\text{m}^3 \cdot \text{kg}^{-1}$	Concentration volumique
	À faible champ (initiale)	χ_{lf}		Concentration volumique
	Dépendance fréquence	χ_{fd}		Domaine magnétique
Aimantation Rémanente	Normalisée au volume	M ou J	$\text{A} \cdot \text{m}^{-1}$	Concentration & minéralogie
	Normalisée à la masse	Ω	$\text{Am}^2 \cdot \text{kg}^{-1}$	Concentration & minéralogie
	Normalisée à la surface	-	A	Concentration & minéralogie
	À saturation	M_{rs} ou SIRM		Minéralogie
	Anhystérétique	ARA ou ARM		Concentration & granulométrie
	Isotherme	ARI ou IRM		Concentration & minéralogie
	Susceptibilité d'ARA	χ_{ARM}	Sans dimensions	Granulométrie
Mesures en champs forts	Coercivité	H_c ou B_c	Am^{-1} ou T	Minéralogie & granulométrie
	Coercivité de la rémanence	H_{cr} ou B_{cr}	Am^{-1} ou T	Minéralogie & granulométrie
	Aimantation à saturation	M_s		Minéralogie
Rapports et graphiques bivariés	(Pseudo) S-ratio	$\text{IRM}_{xT} / \text{SIRM}$	Sans dimensions	Minéralogie
	-	SIRM / χ_{lf} ARM / SIRM	Sans dimensions	Granulométrie
	Day Plot	M_{rs}/M_s vs H_{cr}/H_c		Domaine magnétique & granulométrie
	King Plot	κ_{ARM} vs κ_{lf}		Granulométrie
	Diagrammes de FORC	H_u vs H_c		Minéralogie & granulométrie

I.2.1 Notions de base en magnétisme de la matière

I.2.1.1 Moment magnétique, champ magnétique et aimantation

De manière très succincte, j'introduis ici quelques notions de base sur le magnétisme. Tout d'abord, il faut bien comprendre que comme tous les autres champs en physique, le champ magnétique est une notion abstraite qui permet de décrire une force, ici la force magnétique. Par exemple, on parle de champ magnétique terrestre pour décrire la force magnétique générée dans le noyau de la terre. A la différence avec le champ gravitationnel, on n'expérimente pas directement le champ magnétique terrestre, il est non « palpable » et varie au cours du temps. Il correspond à un champ vectoriel décrit en coordonnées sphériques par une **déclinaison**, une **inclinaison**, et une **intensité**. On connaît son existence grâce à l'effet qu'il peut avoir sur certains objets contenant du fer ou du nickel. L'aiguille aimantée d'une boussole, par exemple, va être sensible au champ magnétique terrestre et va s'aligner avec les lignes de champs entrant par le pôle Nord magnétique terrestre et sortant par le pôle Sud magnétique. Cette aiguille va alors pointer en direction du Nord magnétique terrestre.

En Europe, c'est Pierre de Maricourt, connu sous le nom de *Petrus Peregrinus* qui est le précurseur en introduisant pour la première fois au XII^e siècle les notions de pôles magnétiques et aimants dipolaires (*Peregrinus, 1269*). Ce ne sera que bien plus tard, à la fin du XVIII^e siècle que le lien entre magnétisme et électricité sera fait. En effet, un champ magnétique est systématiquement créé à partir d'un courant électrique. L'existence du champ magnétique terrestre est donc une preuve de l'existence de courants électriques dans le noyau de la terre. Lorsqu'un champ magnétique est généré par une boucle de courant par exemple, on définit ce champ H comme :

$$\vec{H} = \frac{i}{2 \pi r} \cdot \vec{n} \quad (1.16)$$

Exprimé en Ampères/mètres, $||H||$ représente la magnitude du champ magnétique, i l'intensité du courant parcourant la boucle, r le rayon de la boucle et \vec{n} le vecteur unitaire normal à la boucle. On définit l'origine de la force comme le moment magnétique **m**, une grandeur vectorielle en **Am²** :

$$\vec{m} = N i \pi r^2 \vec{n} \quad (1.17)$$

avec N le nombre de boucles de la bobine, i le courant électrique et πr^2 la surface de la boucle de courant. Le moment magnétique va être proportionnel à l'intensité du champ magnétique généré qui va être lui-même proportionnel au nombre ou à la surface des boucles de courant générées par une ou plusieurs bobines.

Finalement, on définit l'aimantation \mathbf{J} d'un corps comme la somme des moments magnétiques présents dans ce corps, normalisée par le volume V (m³) ou la masse M (kg) du corps :

$$\vec{J} = \frac{\sum \vec{m}_i}{V}, \quad \vec{J} = \frac{\sum \vec{m}_i}{M} \quad (1.18)$$

Une aimantation s'exprime donc soit en Am⁻¹ ou en Am²kg⁻¹. L'aimantation permet ainsi de comparer des échantillons de volumes différents ou de masses différentes. Dans le cadre de cette thèse, pour exprimer l'aimantation des poussières déposées sur des surfaces accumulatrices, la somme des moments magnétiques mesurés sera normalisée par unité de surface. Avec cette normalisation, peu courante en magnétisme, l'aimantation peut s'exprimer en ampère (A) :

$$\vec{J} = \frac{\sum \vec{m}_i}{S} \quad (1.19)$$

1.2.1.2 Comment la matière s'aimante-elle ?

Il existe deux types d'aimantation : **l'aimantation induite** et **l'aimantation rémanente**. La première est acquise en présence d'un champ magnétique externe, elle est réversible et nulle lorsque l'on coupe le champ. La seconde en revanche se conserve en l'absence de champ.

La présence d'un champ magnétique externe sur la matière peut avoir différents effets selon de quoi cette matière se compose. Il peut avoir un impact sur le degré d'alignement des moments magnétiques individuels en fonction du champ et donc de son aimantation totale. Pour certains matériaux, la présence d'un champ magnétique externe

appliqué est requise pour obtenir un moment magnétique, on parle de comportements (I) **Diamagnétique**, et (II) **Paramagnétique**. En effet, en présence d'un champ magnétique H , les matériaux diamagnétiques vont présenter une aimantation J inversement proportionnelle à H (Figure 1.11A). C'est notamment le cas pour des atomes ne possédant pas de moments magnétiques permanents tels que : Si^{4+} , O_2^- ou encore l'eau, l'air, le quartz et la calcite.

Les matériaux paramagnétiques quant à eux, vont avoir une réponse proportionnelle et dans le sens du champ magnétique externe appliqué (Figure 1.11B). Ceci s'explique par le fait que ces matériaux sont composés d'atomes avec des moments permanents (Fe^{2+} , Fe^{3+} , Mn^{3+} et Cr^{3+}) mais qui n'interagissent pas entre proches voisins tels que la plupart des silicates. En effet, la présence d'un champ sur ces corps va faire apparaître une aimantation induite qui va augmenter à mesure que le champ dans lequel il est soumis va augmenter également, puis va disparaître lorsqu'il n'y aura plus de champ.

Contrairement aux matériaux diamagnétiques et paramagnétiques, les matériaux dits (III) **Ferromagnétiques** (*sensu lato*) possèdent un moment magnétique propre même en l'absence de champ appliqué. Ceci s'explique notamment par leurs compositions en atomes avec des moments permanents interagissant fortement entre eux (présence d'une aimantation spontanée). Dans ce cas de figure, l'aimantation ne va pas augmenter de manière linéaire mais sous forme d'un cycle d'hystérésis, impliquant que le processus est irréversible. En effet, plus le champ appliqué H augmente, plus l'aimantation va augmenter jusqu'à atteindre une saturation (un plateau) J_s . Lorsque le champ diminue pour redevenir nul, une aimantation rémanente non nulle est mesurée. Le Ferromagnétisme (Figure 1.11C) se produit dans le fer pur, par exemple. Les interactions entre atomes vont permettre une auto organisation à l'échelle moléculaire, ce qui va créer une aimantation spontanée qui va persister en absence de champ. Mais ce comportement est rarement présent dans la nature. Dans certains matériaux, les atomes magnétiques vont se répartir en deux sous-réseaux où les moments magnétiques des atomes présents sur chacun des deux réseaux vont s'orienter dans des directions opposées. Lorsque le nombre d'atomes ou l'intensité des moments diffèrent entre les deux sous-réseaux, les aimantations résultantes sont également différentes (Figure 1.11D). C'est notamment le cas pour la magnétite et la maghémite, qui sont considérées comme **ferrimagnétiques** car leurs moments magnétiques s'organisent

sous forme de deux sous réseaux dont celui s'alignant en fonction du champ étant supérieur à l'autre.

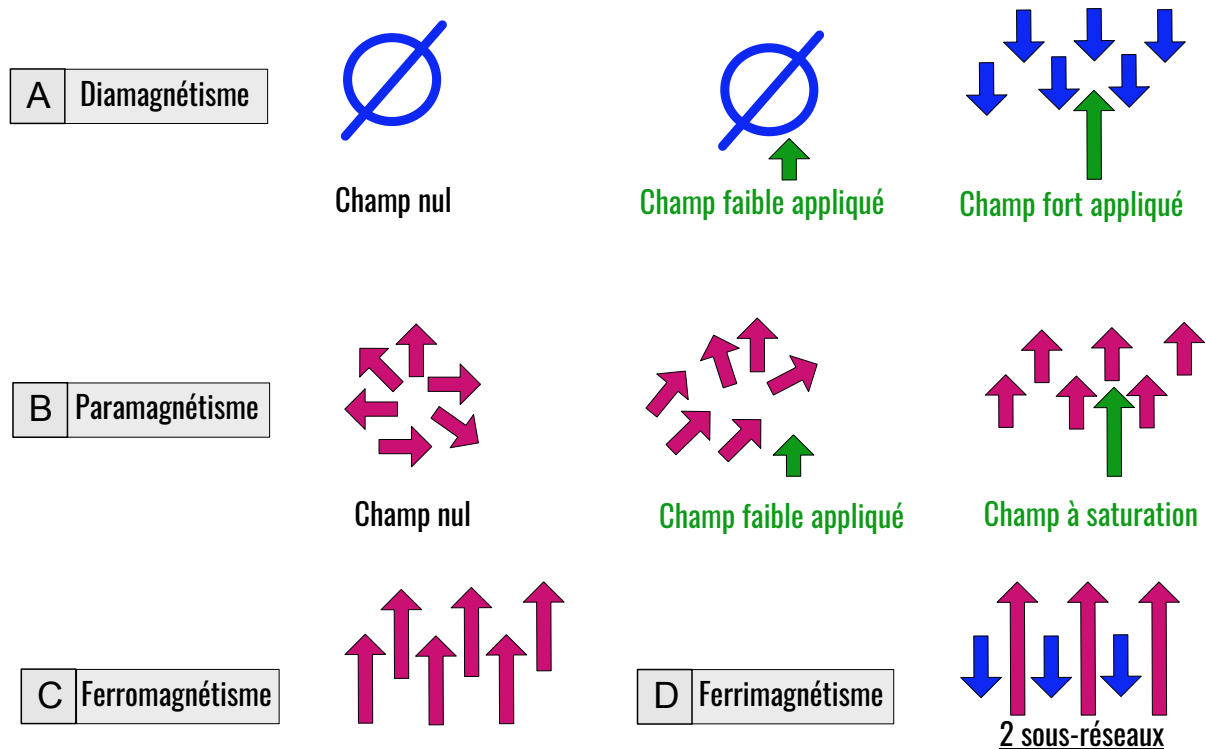


Figure 1.11 : Illustrations des différents comportements magnétiques de la matière : [A] Diamagnétisme, [B] Paramagnétisme, [C] Ferromagnétisme et, [D] Ferrimagnétisme. Les flèches roses et bleues symbolisent les moments magnétiques tandis que la flèche verte représente la direction du champ externe appliqué.

1.2.1.3 Comment la matière reste-t-elle aimantée ?

Les roches sont généralement composées d'une matrice de minéraux diamagnétiques ou paramagnétiques et d'un assemblage hétérogène de minéraux ferromagnétiques capables de garder en mémoire les caractéristiques du champ magnétique ancien durant lequel ils se sont formés. Ces particules ferromagnétiques ont diverses contributions à l'énergie magnétique qui contrôle leur aimantation.

En réalité, dans chacun des grains magnétiques il existe une direction préférentielle d'aimantation, quelle que soit la complexité des énergies magnétiques subie par le grain. Celui-ci va toujours chercher, à partir de ses propriétés anisotropes, la configuration d'aimantation qui sera le moins énergivore. On parle alors d'une **énergie d'anisotropie**, qui

va avoir tendance à créer des barrières ou des blocages à la libre rotation des directions d'aimantations dans les cristaux magnétiques lorsqu'ils sont soumis à un nouveau champ externe. L'énergie d'anisotropie peut avoir plusieurs origines : la structure du cristal lui-même (*énergie d'anisotropie magnéto cristalline*), l'état de stress dans le grain (*magnétostriction*) ou encore la forme du grain (*anisotropie de forme*).

La taille des particules magnétiques va également avoir un impact sur sa facilité à s'aimantée ou rester aimantée. Par exemple, les petites particules ferromagnétiques de forte énergie sont aimantées en permanence de manière quasi uniforme (comme la magnétite < 40 nm). Elles sont considérées comme mono-domaine (***Single Domain, SD*** ; [Figure 1.12B](#)). Ceci est dû à la présence de spins qui agissent de concert, et restent aussi parallèles (ou anti-parallèles) que possible. Au fur et à mesure que les particules grossissent, l'énergie externe peut être minimisée car les spins voisins vont avoir tendance à s'écarter un peu du parallélisme strict ; ces particules sont appelées pseudo-mono domaine (***Pseudo-Single Domain, PSD***). Pour des tailles de grain généralement supérieures à 80 nm (pour la magnétite), il est énergiquement plus favorable d'avoir plusieurs régions où la direction d'aimantation reste uniforme, on parle de **domaines magnétiques** ([Figure 1.12A](#)). Dans ces cas-là, les spins s'organisent dans ces domaines séparés de parois et les particules sont caractérisées de poly-domaines (***Multi-Domain, MD*** ; [Figure 1.12C](#)). Finalement, les très petites particules (< 30 nm), ne sont pas considérées comme magnétiquement stables à cause de l'effet trop important de l'énergie extérieure thermique sur leurs directions d'aimantation, sont dites superparamagnétiques (***SP***). Ces dernières ne sont donc pas capables de porter une rémanence mais contribuent de façon non négligeable à la susceptibilité magnétique du matériel en question.

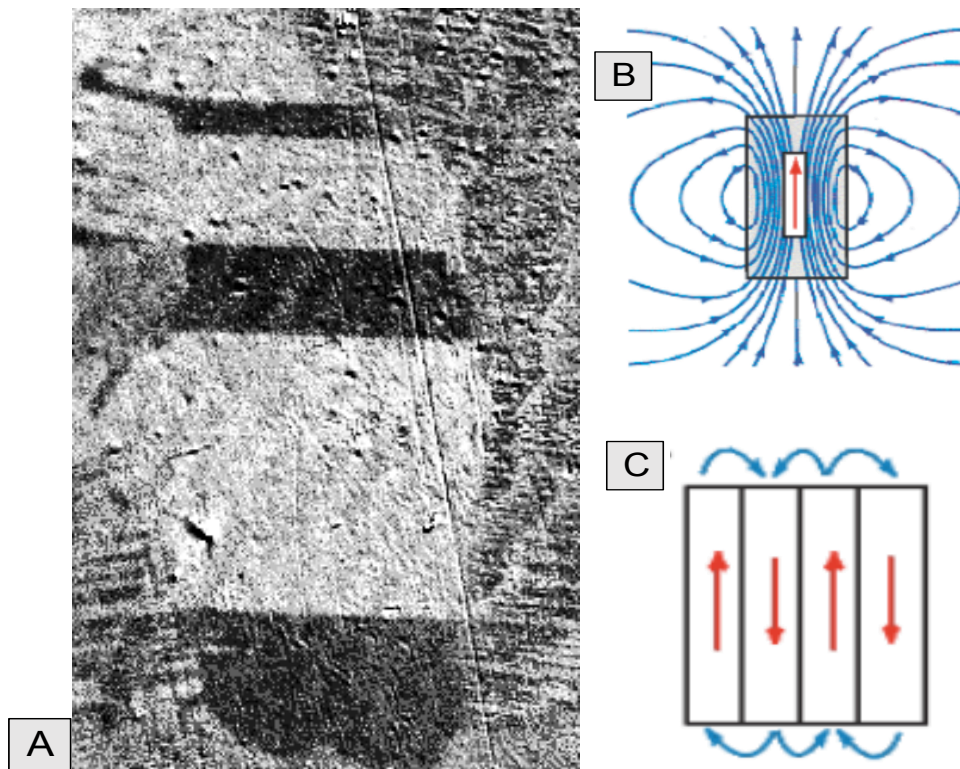


Figure 1.12 : [A] Visualisation du déplacement des parois des domaines magnétiques dans un grain d'acier au silicium causé par l'application d'un champ magnétique externe croissant « vers le bas » et observé dans un microscope optique en utilisant la technique d'effet Kerr (Zureks, Chris Vardon). Les zones blanches sont des domaines avec une aimantation « vers le haut », les zones sombres sont des domaines avec une aimantation « vers le bas ». [B] Représentation du domaine magnétique d'un grain uniformément aimanté = mono domaine (d'après Tauxe, 2016 et modifié à partir de Tipler, 1999). [C] Représentation de quatre domaines lamellaires.

Comme évoqué précédemment, l'énergie d'anisotropie va être la clef de l'acquisition de la rémanence par les grains magnétiques. Celle-ci va avoir un impact significatif sur la probabilité d'un grain magnétique à pouvoir changer la direction préférentielle de ses moments magnétiques. Sans cela, les moments pourraient constamment basculer d'une direction à une autre et ainsi, ne jamais garder en mémoire une rémanence. L'énergie d'anisotropie va également contrôler le **temps de relaxation** τ qui représente le temps nécessaire pour que l'aimantation initiale décroît de $1/e$ de sa valeur initiale. Soit, la probabilité ou le temps nécessaire pour que les moments magnétiques franchissent la barrière énergétique d'anisotropie et atteignent un nouvel équilibre dynamique ou un blocage de l'aimantation (théorie de la viscosité magnétique, Néel, 1949). C'est notamment vrai lorsque l'on applique un champ H, il est énergiquement plus facile pour les moments magnétiques de franchir la barrière énergétique et de basculer

du champ initial au champ appliqué plutôt que l'inverse. C'est le prix Nobel Louis Néel qui établit **l'équation de Néel** (1949 et 1955) valable particulièrement pour les grains mono domaine et mettant en relation le temps de relaxation τ , le volume des grains v (Figure 1.13A), une constante d'anisotropie K , la constante de Boltzmann k et la température absolue T (Figure 1.13B) :

$$\tau = \frac{1}{c} \exp \frac{Kv}{kT} \quad (1.20)$$

Le temps de relaxation est finalement dépendant de la concurrence entre l'énergie de blocage ou la barrière énergétique à la rotation des moments Kv et l'énergie thermique kT . Il sera donc constant à une température donnée pour une énergie de blocage constante. De plus, il va indirectement dépendre du champ appliqué H et de la coercivité H_c des minéraux présents :

$$\tau = \frac{1}{c} \exp \frac{Kv}{kT} \left[1 - \frac{H}{H_c} \right]^2 \quad (1.21)$$

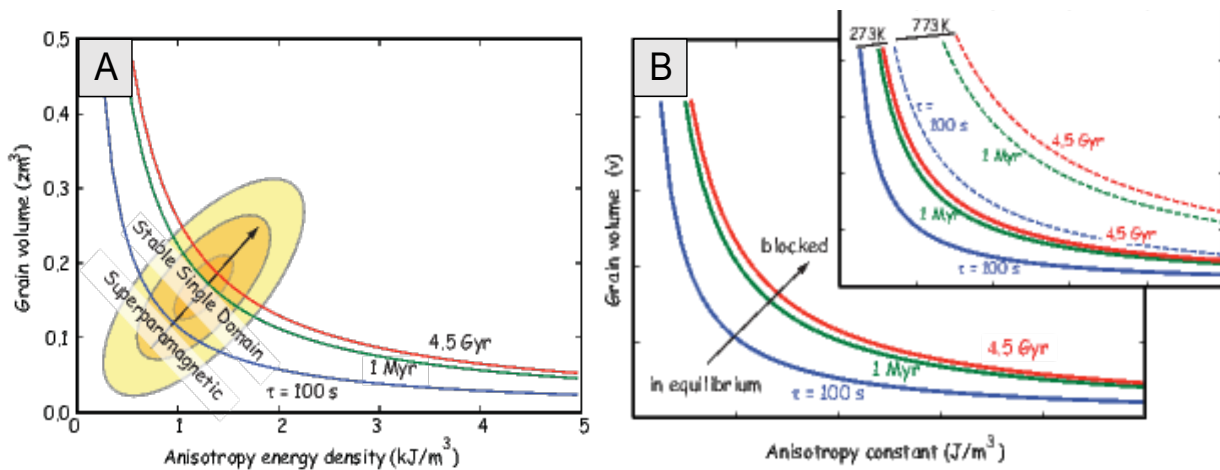


Figure 1.13 : Lignes d'égales énergies de blocage ou de temps de relaxations égaux en fonction du [A] volume de grain pour une température donnée : les grains SP ont un $\tau < 100$ s alors que les grains SD ont un $\tau > 100$ s. [B] volume de grain et l'effet de la température sur les changements de blocage de la rémanence, modifiant ainsi les équilibres énergétiques. (D'après Tauxe, 2016).

En magnétisme environnemental, ce sont surtout les aimantations artificielles (acquises en laboratoire) qui sont utilisées. Ceci étant dit, il est indispensable de comprendre les différents processus de blocage de l'aimantation pour mieux appréhender les aimantations étudiées. On différencie généralement l'aimantation primaire d'un matériel, c'est-à-dire celle acquise au moment de la formation de la roche ou du sédiment, de l'aimantation secondaire acquise après.

Dans les types d'aimantation primaires on distingue : (I) l'Aimantation Thermo-Rémanente (**ATR**) ; (II) l'Aimantation Rémanente Chimique/Cristalline (**ARC**) et (III) l'Aimantation Rémanente Détritique (**ARD**). L'ATR correspond à une diminution de la température sous la température de Curie. Ceci va considérablement réduire le temps de relaxation et permettre un blocage rapide de l'aimantation. Ce phénomène se produit notamment durant le refroidissement de laves ([Figure 1.14A](#)). L'ARC se produit notamment lors d'épisodes d'érosion d'un environnement de dépôt qui va de ce fait, altérer chimiquement les minéraux ferromagnétiques présents et/ou permettre la précipitation de nouveaux minéraux ferromagnétiques ([Figure 1.14B](#)). Par exemple, il n'est pas rare que la magnétite s'oxyde en maghémite dans ces cas-ci. La modification chimique du matériel en question va provoquer une variation du volume des grains et donc une variation du temps de blocage τ . Enfin, l'ARD correspond à une orientation mécanique des grains qui décantent dans une colonne d'eau ([Figure 1.14C](#)). Au vu de la fluctuation du milieu marin/lacustre au cours du temps et de l'influence de plusieurs facteurs auxquels va être soumise la particule, il est très difficile dans ce cas-ci de déterminer un temps de relaxation pour la particule qui va se déposer au fond de la colonne d'eau.

Aux aimantations primaires peuvent s'ajouter les aimantations secondaires comme l'Aimantation Rémanente de Viscosité (**ARV**) qui est due à la présence d'un champ faible pendant un temps très long puis, au contraire, l'Aimantation Rémanente Isotherme (**ARI**) qui correspond à la présence d'un champ fort pendant une courte durée (ex : un coup de foudre ou le « pulse » en laboratoire).

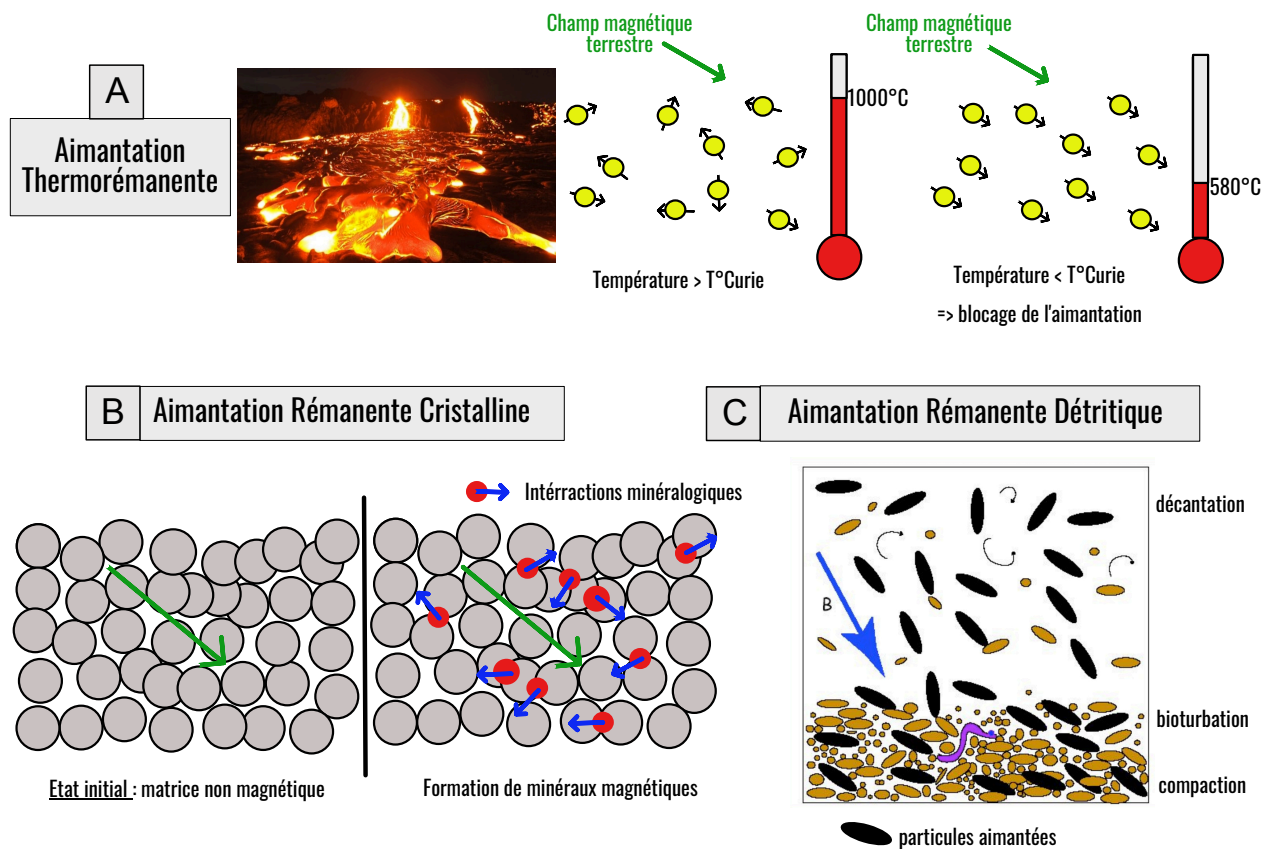


Figure 1.14 : Illustrations résumant les principales aimantations primaires lorsqu'un matériau est soumis au champ magnétique lors de sa formation : [A] Aimantation Thermorémanente, [B] Aimantation Rémanente cristalline et, [C] Aimantation Rémanente Détritique (Tauxe, 2016).

1.2.2 Principes et applications de la bio surveillance magnétique sur des capteurs biologiques tels que les végétaux

Grâce à leurs dispersions spatiales ainsi qu'à leurs grandes capacités de surfaces accumulatrices, les végétaux peuvent nous fournir des informations précieuses sur les concentrations de PM ambiantes. C'est pourquoi ils ont été envisagés d'un point de vue de bio surveillance (Matzka, 1997 ; Matzka and Maher, 1999 ; Lu et al., 2008 ; Maher et al., 2008 ; Rai, 2013). C'est une approche qui se répand de plus en plus depuis ces dernières décennies. On définit généralement la bio surveillance comme la mesure de la réponse des organismes vivants aux changements environnementaux (Nali and Lorenzini, 2007) pouvant se baser à la fois sur l'évaluation des caractéristiques anatomiques, morphologiques et physiologiques, ou sur l'analyse d'oligo-éléments dans les lichens, les mousses, les

graminées ou les feuilles des arbres (*Matzka and Maher, 1999; Mitchell and Maher, 2009; Wuytack et al., 2010; Kardel et al., 2011; Ares et al., 2012; Van Wittenberghe et al., 2012*).

Au même titre que les PM, les particules magnétiques qui vont se déposer à la surface des végétaux proviennent à la fois de sources naturelles (éruptions volcaniques et matériel érodé puis transporté par le vent) et de sources anthropiques. Ces dernières incluent les combustions provenant des transports et/ou de l'industrie, du chauffage domestique ou encore des processus d'abrasion (*Thompson and Oldfield, 1986*). Ces différentes sources libèrent dans l'atmosphère des PM mais également des particules ferro(i)magnétiques nocives dérivées du fer qui se retrouvent sous formes d'impuretés dans les carburants et l'usure des pneus et des freins. On y retrouve souvent un mélange de minéraux fortement magnétiques (type magnétite) et oxydes de fer plus faiblement magnétiques comme la maghémite et l'hématite (*Hunt et al., 1995; Maher and Thompson, 1999; Matzka and Maher, 1999; Muxworthy et al., 2001; Gómez-Paccard et al., 2004; McIntosh et al., 2007; Rai, 2013*) qui sont facilement détectables magnétiquement (**Figure 1.15**). Les émissions de gaz d'échappement sont généralement dominées par des particules fines ($< 2,5 \mu\text{m}$), tandis que celles produits par les processus d'abrasion et de remise en suspension ont tendance à être plus grossières (*McIntosh et al., 2007*). Bien que le signal magnétique des PM va dépendre de sa composition (*Hansard et al., 2011*), des études ont montré des corrélations claires entre la quantification magnétique des particules ferromagnétiques et les concentrations en PM_{10} (*Maher et al., 2008; Mitchell and Maher, 2009; Mitchell et al., 2010; Hansard et al., 2011; Maher et al., 2013; Rai, 2013*). L'utilisation des mesures magnétiques pour l'étude des systèmes environnementaux est appelée **bio surveillance magnétique** (*Thompson and Oldfield, 1986; Maher and Thompson, 1999*), une application prometteuse du magnétisme environnemental.

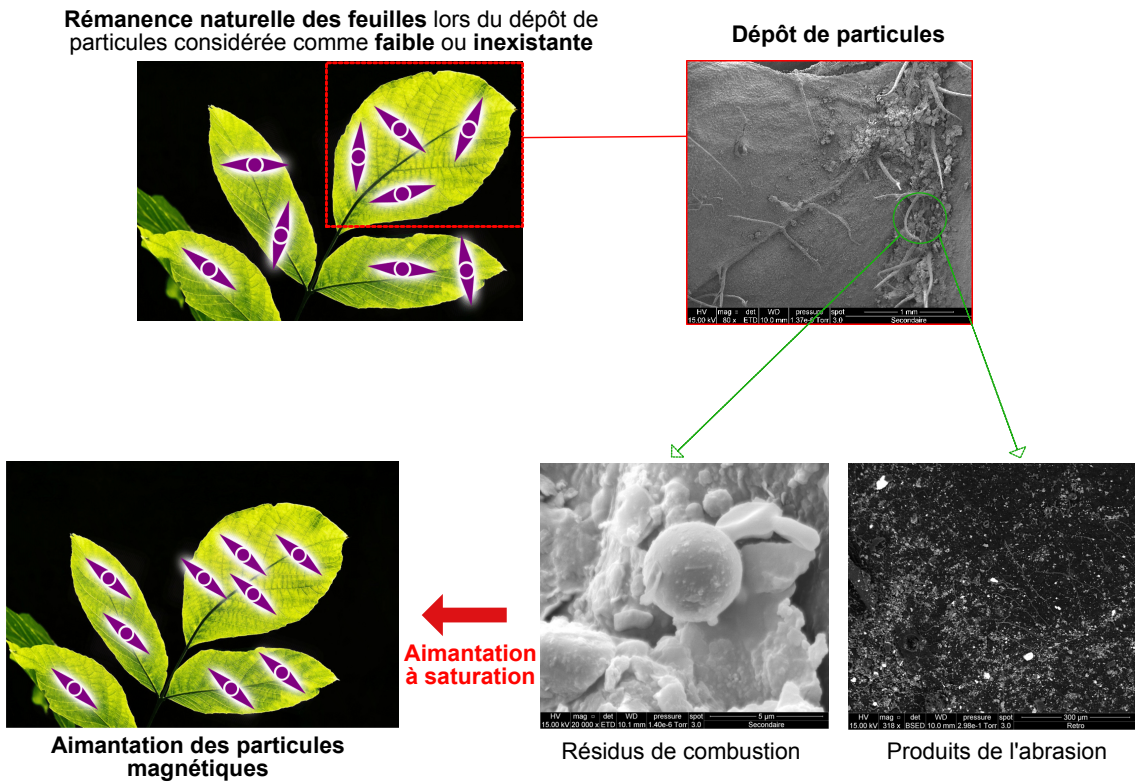


Figure 1.15 : Principes de la bio surveillance magnétique appliquée aux dépôts atmosphériques accumulés sur les végétaux en utilisant une aimantation rémanente isotherme à saturation.

Compte tenu de la **dispersion spatiale** des végétaux, la mesure magnétique des dépôts qui se sont accumulés sur les plantes de faible coût présente un réel avantage et prodigue de nombreuses données à la fois spatiales et temporelles.

La bio surveillance magnétique est une mesure de **dépôts cumulés sur plusieurs mois** (pour les espèces caduques), ce qui permet d'avoir une approximation de la charge cumulée sur toute la durée de vie de la feuille (*Kardel et al., 2011*). Étant donné que les effets néfastes sur la santé sont notamment dus à une exposition chronique sur le long terme, cette méthode pourrait être indirectement indicative des impacts sur la santé.

I.2.3 Les outils de bio surveillance magnétique utilisés dans cette étude

I.2.3.1 L'aimantation rémanente isotherme (ARI) à saturation (SIRM)

L'**aimantation rémanente isotherme** (ARI) est un très bon indicateur de la concentration des dépôts de poussière sur une surface accumulative (*Mitchell et al., 2010*). Elle représente ainsi l'aimantation conservée (rémanence) par un échantillon soumis à un champ donné. L'ARI acquise à température ambiante pour des champs successivement croissants contient une mine d'information sur la facilité/difficulté à aimanter un échantillon selon sa composition minéralogique exprimée par la distribution des coercivités de rémanence. Ce type d'aimantation peut être acquise naturellement (par un coup de foudre, par exemple) mais fait plus souvent référence à une procédure de laboratoire où un échantillon est soumis à un champ fort connu. Dans cette étude nous avons successivement donné trois ARI différentes : **100 mT**, **300 mT** et **1000 mT** à l'aide d'un aimanteur à impulsion (ASC Model IM-10-30). Si le champ utilisé pour donner l'ARI est suffisamment élevé pour concerner tous les grains magnétiques présents dans l'échantillon on parle **d'aimantation rémanente isotherme à saturation** (SIRM) pour l'échantillon. Par exemple, si on est en présence d'un ensemble de grains de magnétite, un champ de 100 mT à coup sûr alignera l'aimantation de tous les grains dans sa direction. Avec le type d'échantillon qu'on étudie, on considère qu'à 1T une aimantation à saturation est (quasi-) systématiquement acquise. L'hypothèse de travail en surveillance magnétique considère que l'aimantation à saturation d'une surface accumulative correspond à la concentration totale des particules magnétiques présentes avant ou après son exposition à la pollution atmosphérique.

Afin d'interpréter de façon plus évidente les acquisitions d'ARI et SIRM, on utilise régulièrement ce qu'on appelle le **pseudo-S ratio**. Ce dernier est calculé en divisant l'ARI donné à 100 ou 300 mT par la SIRM. Ce rapport permet de mesurer la quantité relative de minéraux de faible coercivité (« soft » comme la magnétite) par rapport à la quantité de minéraux de haute coercivité (« hard » comme l'hématite).

1.2.3.2 L'aimantation rémanente anhystérétique (ARA)

Pour compléter, une procédure d'aimantation artificielle largement utilisée consiste à placer un échantillon dans un petit champ constant (de l'ordre du champ magnétique terrestre, $80 \mu\text{T}$ ici) et en superposant un champ alternatif dont l'amplitude est régulièrement réduite d'une valeur initiale appelée valeur « pic » (100 mT dans notre étude) à une valeur finale nulle (Figure 1.16). On parle alors **d'aimantation rémanente anhystérétique** ou ARA. Tous les grains avec une coercivité rémanente égale ou inférieure à la valeur pic du champ AF vont acquérir une aimantation parallèle et proportionnelle à la direction du champ DC polarisant. Tout comme l'ARI, la procédure peut être répétée en augmentant progressivement le champ alternatif maximal. Après que l'ARA ait été mesurée à chaque étape, on obtient une courbe d'acquisition de l'ARA résultante qui sera finalement traitée de la même manière que l'ARI. Cependant, l'ARA va être sensible à la présence de particules ferromagnétiques de taille moyenne $\sim 25 \text{ nm}$ (Maher, 1988) et pas équivalente à l'ARI car son acquisition va dépendre du temps de réponse des porteurs de la rémanence dû à la fréquence du champ alternatif (Lowrie and Fuller, 1971 ; Dunlop and Özdemir, 1997 ; Egli and Lowrie, 2002).

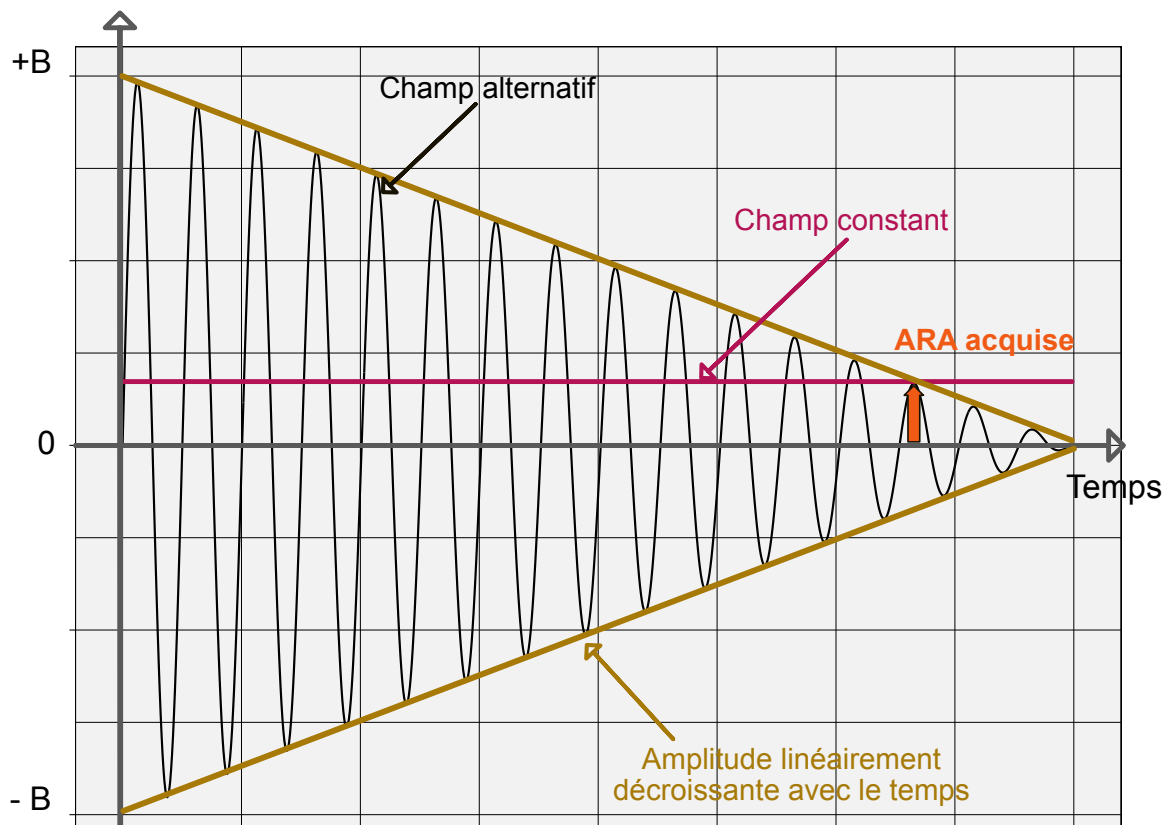


Figure 1.16 : Application de champs alternatifs décroissants. La courbe rouge est déplacée en appliquant le champ direct et constant, ce qui provoque une diminution asymétrique du champ d'une valeur initiale prédéfinie à zéro. L'aimantation rémanente anhystérétique résultante est proportionnelle et dirigée le long du champ.

La **susceptibilité d'ARA** (χ_{ARM}) est l'ARA normalisée en masse (en Am²/kg) ou en surface (A) par le champ continu (H en A/m). Ce paramètre est un des rapports les plus utilisés car il **dépend de la taille des grains magnétiques** et répond préférentiellement aux particules mono domaine qui acquièrent une rémanence plus forte et plus stable que les particules contenant des domaines magnétiques (poly domaines). Par exemple, *Maier (1988)* compile des résultats pour une série de poudre de magnétite pure et de granulométrie connue : $\chi_{\text{ARM}} \sim 8 \times 10^{-3} \text{ m}^3/\text{kg}$ pour des particules de petites tailles $\sim 0.05 \mu\text{m}$ et $\chi_{\text{ARM}} \sim 8 \times 10^{-4} \text{ m}^3/\text{kg}$ pour des particules de tailles moyennes $\sim 1 \mu\text{m}$.

1.2.3.2 Ma procédure expérimentale

Cette étude s'intéressera tout particulièrement à une des sources majeures de particules fines en milieux urbains et péri-urbains : le trafic (*Hama et al., 2017 ; Gonet and Maier, 2019*). Pour cela, il va être nécessaire d'isoler cette source des autres sources potentielles qui vont être considérées comme du « bruit de fond » (*Figure 1.17 ; Kakosimos et al., 2010*). Si on prend l'exemple de Montpellier, les particules transportées sur de longues distances vont être majoritairement des sables sahariens, qui viennent se déposer sur nos côtes quand le vent vient du sud (épisodes de Sirocco ; *Lyons et al., 2012 ; Szuszkiewicz et al., 2023*). Concernant les émissions régionales, elles vont être dominées par l'agriculture, le transport aérien et ferroviaire. À l'échelle de la ville, les sources dominantes des émissions urbaines vont provenir du chauffage résidentiel (notamment en hiver), de l'industrie et du trafic.

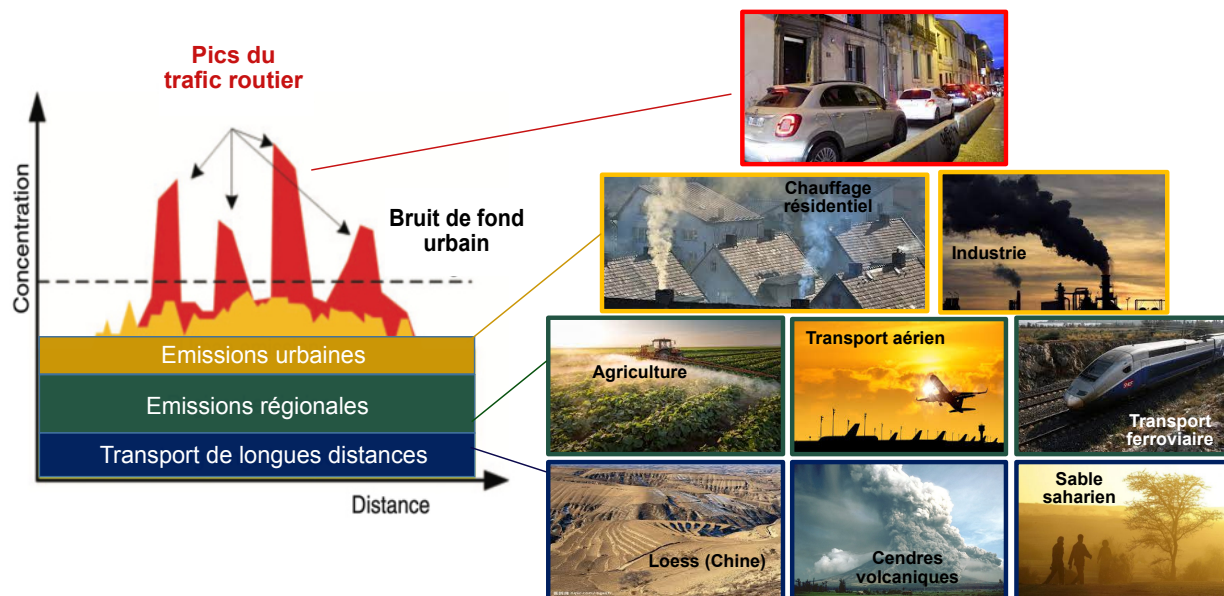
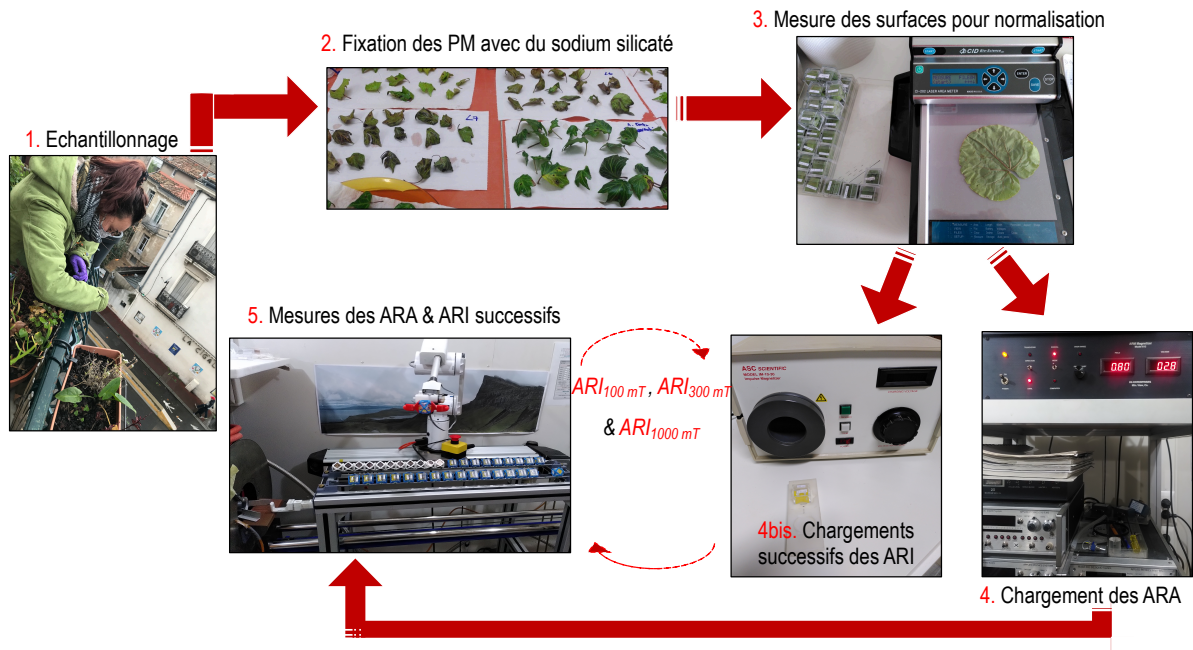


Figure 1.17 : Principales sources de particules à différentes échelles. Modifiée à partir de *Kakosimos et al., 2010*.

Une fois que les principales sources ont été identifiées, la procédure expérimentale se déroule selon les étapes illustrées ci-dessous. Après échantillonnage des filtres passifs ou des feuilles de végétaux ayant accumulés des dépôts de polluants sur trois mois, j'ai fixé ces dépôts avec une solution aqueuse de sodium silicaté afin de ne pas en perdre durant les expérimentations en laboratoire. Dans un second temps, les surfaces des feuilles ont été mesurées à l'aide d'un scanner laser (CI-202, cid Bio-Science™) alors que celles des filtres ont une surface standard, permettant une normalisation des taux d'accumulation par rapport à la surface de d'accumulation du support utilisé. Ayant échantillonné plusieurs répliques pour chacune des stations de mesure, le jeu d'échantillon a ensuite été divisé en deux : d'une part, une $ARA_{80\mu T, 100mT}$ a été donnée puis mesurée sur une partie du jeu d'échantillon et d'autre part, des ARI_{100mT} , ARI_{300mT} et ARI_{1000mT} ont été successivement données puis mesurées sur l'autre partie du jeu d'échantillon.

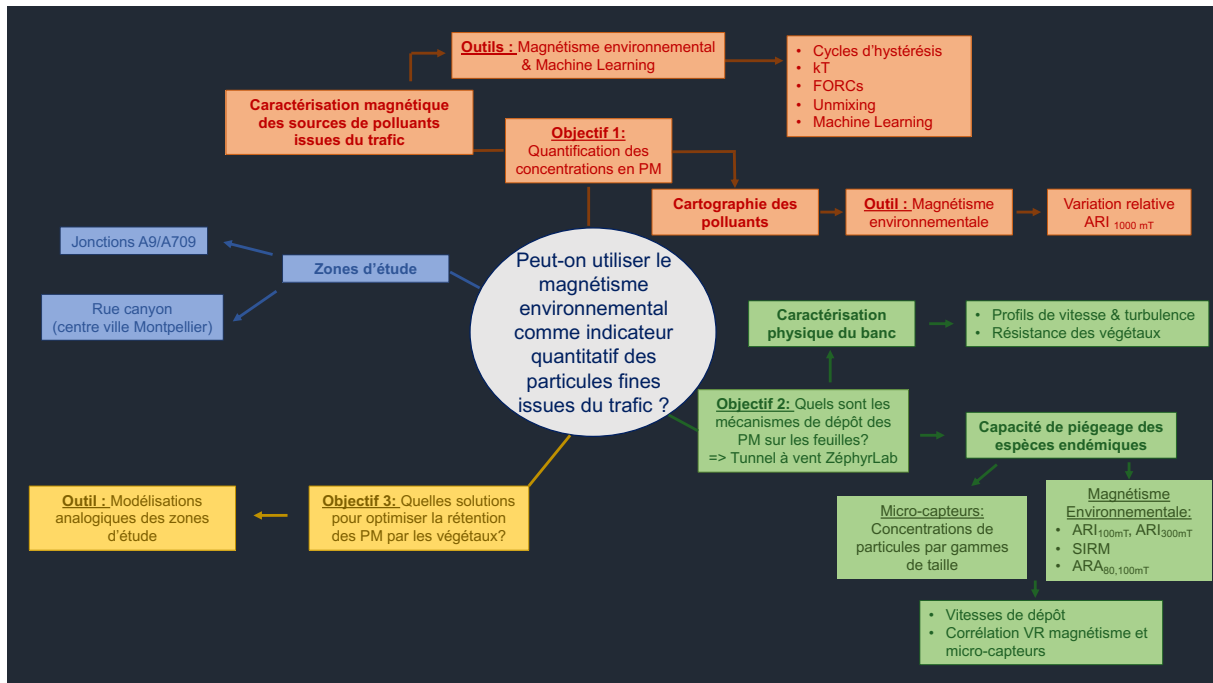


Ensuite, les données récoltées d'aimantations (ARI et ARA) seront normalisées selon la surface des feuilles et/ou filtres passifs. Finalement, tel que mentionné plus haut, nous voulons nous émanciper des autres sources potentielles de PM afin d'isoler celle du trafic. C'est pourquoi, j'ai exprimé les résultats d'aimantation en variation relative de l'Aimantation Rémanente (Isotherme ou Anhystrétique) (VR) telle que :

$$VR = \frac{AR_{trafic} - AR_{référence}}{AR_{référence}} \quad (1.22)$$

Où l' $AR_{référence}$ sont des intensités d'AR isotherme ou anhystrétique pour des stations dites de référence. Les stations de références sont situées en dehors de la zone d'étude, dans un milieu urbain ou péri urbain afin de mesurer le « bruit de fond » des émissions urbaines. Si la source que nous voulons isoler est le trafic, les stations de références vont être choisies pour être isolées du trafic. En revanche AR_{trafic} sont des valeurs d'AR pour les échantillons de la zone d'étude en cours, où le signal est connu pour être influencé de manière non négligeable par le trafic.

I.3 OBJECTIFS



Finalement, la problématique de ma thèse est très bien illustrée et résumée par l'équation d'advection-diffusion (1.23) du transport atmosphérique, décrivant les variations temporelles de concentration en polluant en un point donné :

$$\frac{\partial C}{\partial t} = \boxed{-\nabla \cdot (C\mathbf{u}) + \nabla \cdot (T_D \nabla C)} + \boxed{S_C} - \boxed{\text{Puits}} - \text{Sédimentation} \quad (1.23)$$

Avec C la concentration des PM transportées en $\mu\text{g}/\text{m}^3$ et t le temps en secondes. En effet, tout mon travail se résume par l'équation (1.23) qui a été traitée en partie dans la publication du **Chapitre II**. Dans ce premier article de ma thèse, j'ai calculé le terme d'**advection** représentant la quantité mesurée (ici la variation temporelle de concentration en particules fines) emportée par un mouvement en y injectant un profil de vitesse, une topographie et la turbulence du trafic de manière volumétrique. Le terme de **diffusion** a été calculé grâce à un coefficient de diffusion mesuré en fonction des différentes tailles de particule. Le **Chapitre III** présente une étude de cas menée sous forme de recherche participative grâce au magnétisme environnemental sur la cartographie des polluants liés au trafic dans une rue canyon du centre-ville de Montpellier (France).

Le modèle numérique présenté dans le [Chapitre II](#) reste perfectible puisque l'effet de [puits](#) n'est pas pris en compte et la [source](#) des polluants ont été simplifiés. Concernant les [sources](#), nous avons utilisé des données expérimentales venant d'un tunnel en Chine. Plutôt que de prendre des valeurs générales, l'idée est de savoir si l'outil du magnétisme environnemental permettrait de les distinguer afin de mieux paramétrer le modèle. Cette problématique fera l'objet du [Chapitre IV](#).

Enfin, l'effet puit et plus particulièrement l'effet de captation des particules fines en suspension dans l'air par les végétaux sera traité dans le [Chapitre V](#) grâce à des manipulations expérimentales réalisées dans un tunnel à vent @ZephyrLab.

L'idée générale de ma thèse est de pouvoir conclure sur la pertinence de la mesure magnétique appliquée à la problématique de la qualité de l'air. Cette dernière pourrait se définir comme un outil utile afin de paramétrer de manière plus réaliste les modèles numériques de dispersion des PM et/ou réaliser des rétro-modèles en comparant les résultats de ces derniers avec des cartographies magnétiques.

CHAPITRE II

MAGNETISME ENVIRONNEMENTAL VS. MODELISATION NUMERIQUE CFD AUX ABORDS DE LA JONCTION DES AUTOROUTES A9 ET A709 (SAINT AUNES, FRANCE)



II.1 AVANT-PROPOS

II.1.1 Contexte de l'étude

Suite à un projet de déplacement et de dédoublement des voies de circulation des autoroutes A9 et A709 par les Autoroutes du Sud de la France (ASF), une mobilisation citoyenne a émergé dans la commune de 3500 habitants de Saint-Aunès, située à une dizaine de kilomètres à l'Est de Montpellier. Au total, c'est près de 46 familles qui se sont mobilisées et organisées sous forme d'une association (ADPMA9) pour exprimer leurs préoccupations quant à la dégradation de la qualité de l'air et de l'environnement qu'engendrerait une possible augmentation du trafic. En effet, les Saint-Aunésoises et Saint-Aunésois habitent au niveau de la jonction des deux autoroutes. A partir de 2017, ils ont vu celles-ci s'étendre de 2 x 3 voies à 4 x 3 voies de circulations.

Les inquiétudes soulevées par cette association citoyenne ont fini par faire écho à la commune et au maître d'ouvrage VINCI-ASF. En réponse à cette mobilisation, ce dernier a décidé de construire un site expérimental composé de 4 merlons (ouvrage de remblais) arborés dont un surmonté d'un mur antibruit. Il s'est par ailleurs engagé à soutenir des études scientifiques sur le rôle des merlons arborés en bordure des voies de circulation sur la qualité de l'air. C'est ainsi qu'est né le projet Air9 qui s'articule autour d'une collaboration entre le laboratoire de magnétisme des roches de Géosciences Montpellier, ATMO-Occitanie, une association citoyenne (ADPMA9) et la commune de Saint-Aunès.

Le principal intérêt de cette étude était l'accès que nous avons à un site expérimental assez singulier, instrumenté de μ -capteurs et capteurs passifs de NO_2 par ATMO-Occitanie, pour tester et évaluer directement in situ les techniques du magnétisme environnemental appliquées à la surveillance de la qualité de l'air. Pour cela, j'ai mené une approche pluridisciplinaire mêlant magnétisme environnemental et modélisation numérique de dispersion des polluants basée sur les équations de la dynamique des fluides (CFD), résolue par une approche statistique (« *Reynold Averaged Navier-Stokes* ») et paramétrée avec les caractéristiques de la zone d'étude (aménagement autoroutiers, direction du vent dominant, nombre de véhicules moyens présents). Les simulations confirment ainsi les résultats expérimentaux en prédisant une asymétrie des dépôts de part et d'autre des voies de circulation avec des concentrations maximales derrière le mur antibruit qui est situé coté vents dominants. Ce travail a fait l'objet d'une publication dans la revue *Atmosphere* en 2020 reproduite dans la [partie II.2](#) et a été présentée et discutée à plusieurs reprises au comité de pilotage du site expérimental composé d'élus, de représentants des associations citoyennes, d'Atmo-Occitanie, et du directeur des opérations de chez VINCI-ASF. Ce dernier s'est engagé à organiser une journée entière d'échanges sur mes résultats et plus largement sur la qualité de l'air avec l'ensemble des acteurs de l'agglomération des Pays de l'Or (élus et citoyens), les cadres et ingénieurs des opérations de chez VINCI autoroutes à l'échelle nationale

II.1.2 Les modèles numériques de dispersion des polluants atmosphériques

II.1.2.1 Introduction

L'utilisation de la modélisation numérique pour des problématiques liées à la qualité de l'air s'est beaucoup démocratisée. De nos jours, elle est devenue un centre d'intérêt pour notamment, toutes les Associations Agréées de Surveillance de la Qualité de l'Air (AASQA). A partir de simulations mathématiques faites par ordinateur de la dispersion des polluants dans l'atmosphère, les algorithmes sont capables d'intégrer toute la complexité des équations qui gouvernent les processus physiques et chimiques mis en jeu dans des milieux à géométrie 3D parfois très complexes, comme c'est le cas en milieu urbain. La complexité de cette approche par modélisation de dispersion des polluants implique qu'elle doit relever plusieurs défis.

Dans un premier temps, il est connu que les voies d'émission, le temps de résidence dans l'atmosphère, les distances de transport et les effets sur la santé des polluants vont dépendre de paramètres tels que : leurs natures et leurs caractéristiques physiques (composition chimique, solubilité dans l'eau, taille des particules, [Figure 2.1](#)). Or ces informations sont justement très importantes pour paramétrer et contraindre les différents modèles de dispersion des polluants afin d'être en mesure de mieux anticiper leurs effets.

Dans un second temps, l'identification et la compréhension des nombreux processus de dispersion sont primordiales puisque la dispersion fait référence au devenir du polluant depuis son émission ([Figure 2.1](#)).

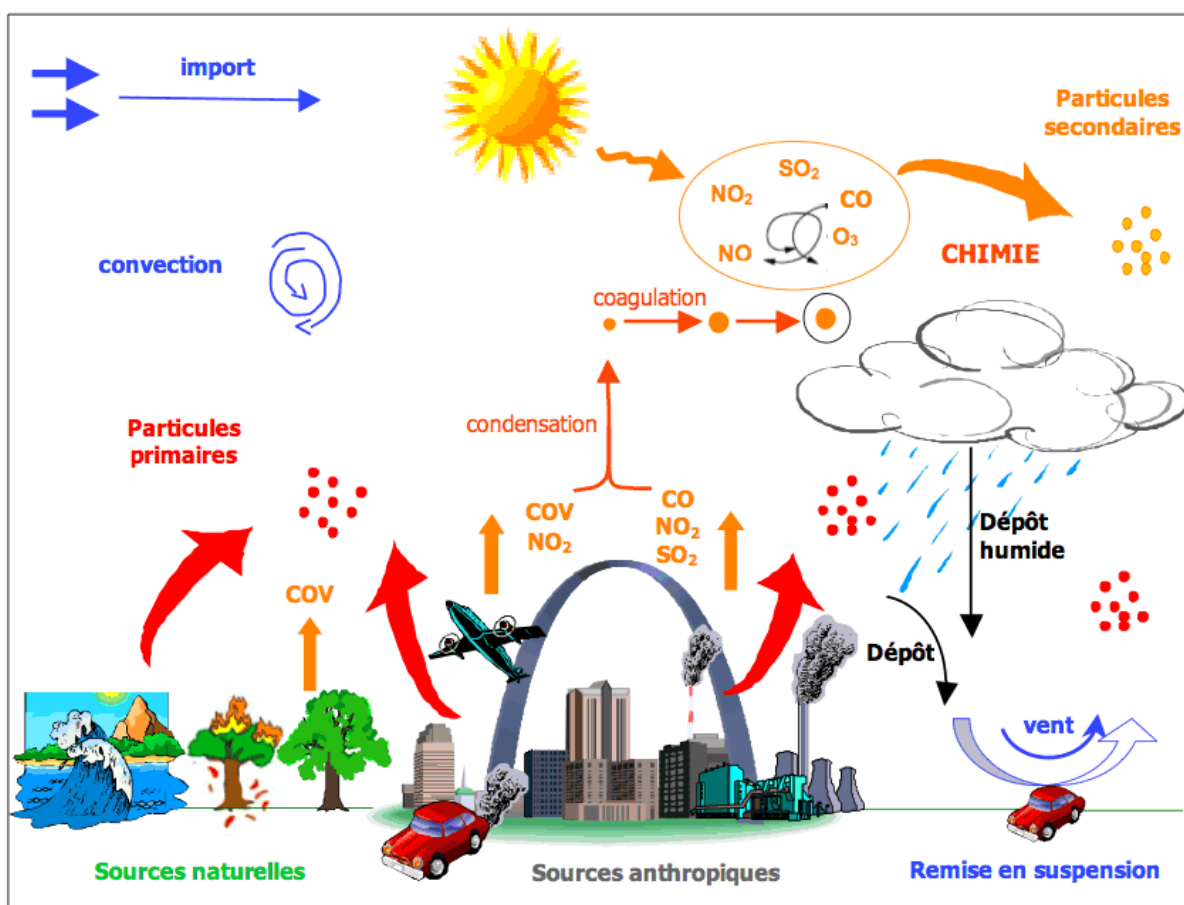


Figure 2.1 : Représentation schématique des mécanismes d'émission, transport, transformation et de dépôts de polluants atmosphériques (Figure libre de droits disponible sur le site web d'Airparif).

Finalement, on attend d'un modèle qu'il soit adapté à la problématique : rapide et fiable pour les modèles dédiés à la gestion de risque et précis en contrepartie d'un temps de calcul parfois long pour des questions de recherches en aide aux politiques publiques. De ce fait, je présente dans cette partie quatre approches différentes de modélisation de dispersion des polluants qui sont communément utilisées, partant toutes de l'équation de transport atmosphérique (1.23). Les quatre approches présentées ci-dessous décrivent *in fine*, quatre moyens de résoudre cette équation.

II.1.2.2 L'approche Gaussienne

C'est sûrement l'approche de modélisation numérique la plus ancienne (~1936 ; *Bosanquet and Pearson, 1936*) et peut être celle qui est la plus utilisée. Elle part du principe

que le processus de dispersion suit une distribution gaussienne, c'est-à-dire une distribution de probabilité normale autour d'un champ de vitesse moyen. Le temps de calcul est relativement rapide puisqu'il revient à résoudre une seule équation :

$$\bar{c}(x, y, z) = \frac{Q}{2\pi\sigma_y\sigma_z\bar{u}} \exp\left(\frac{-y^2}{2\sigma_y^2}\right) \left(\exp\left(\frac{-(z-h)^2}{2\sigma_z^2}\right) + \exp\left(\frac{-(z+h)^2}{2\sigma_z^2}\right) \right) \quad (2.1)$$

où \bar{c} est la concentration moyennée dans le temps à une position donnée, Q le terme source, x , y , et z sont les vitesses dans le sens du vent, perpendiculaire dans le plan horizontal et dans la direction verticale, respectivement. \bar{u} représente la vitesse du vent moyennée dans le temps à la hauteur h d'émission. σ_y et σ_z sont les écarts-types. Ils décrivent quant à eux les mélanges de polluants lorsque le vent est de travers ou vertical.

Cette équation décrit un processus de mélange, se traduisant par une distribution de concentration gaussienne à la fois dans les directions du vent, de travers et dans le sens vertical, centrée sur une ligne située sous le vent à partir de la source (Figure 2.2A). Elle est résolue en chaque point au lieu de résoudre des équations différentielles, ce qui augmenterait de manière significative le temps de calcul. C'est une approche souvent utilisée pour prédire une dispersion de polluant continue ou un panache de pollution flottant originaire du sol ou d'une source plus élevée. En revanche, elle devient médiocre dans les situations où le vent est faible et que par conséquent, la diffusion tridimensionnelle est significative. Des modèles gaussiens performants ont été développés principalement dans des logiciels d'aide à la prise de décision rapide (Namdeo et al., 2002) pour des incidents environnementaux graves. Comme c'est le cas par exemple du modèle britannique ADMS (« Atmospheric Dispersion Modelling System » ; Corruthers et al., 1994), largement répandu en Europe pour les études d'impact environnemental et la prévision de la qualité de l'air urbain (Corruthers et al., 2003). C'est d'ailleurs ce modèle qui est utilisé par les ASQAA en France.

Enfin, les modèles gaussiens peuvent aussi servir à prédire la dispersion de panache de polluant non continu (modèles de bouffées ou « puff models », Figure 2.2A). Le principe est de considérer la pollution comme une superposition de plusieurs « bouffées » d'un

volume donné, le modèle calcule ensuite leurs trajectoires pour finalement donner une concentration finale qui représentera la superposition de tous les champs de concentration de chaque « bouffée ». Il en résulte donc un panache gaussien transporté le long d'une trajectoire, entraîné par le vent et non sur une ligne centrale comme c'est le cas pour la modélisation gaussienne standard. La particularité de ce modèle est aussi que selon l'échelle l'approche sera différente : pour une échelle inférieure à celle d'une « bouffée », il utilisera une approche gaussienne mais pour une échelle supérieure à celle d'une « bouffée », il utilisera l'approche Lagrangienne sur les calculs de trajectoire (*Williams and Yamada, 1990*). L'intérêt de cette méthode bidirectionnelle est qu'elle est capable de prendre en compte les variations spatio-temporelles de la direction du vent tout en maintenant le temps de calcul bas.

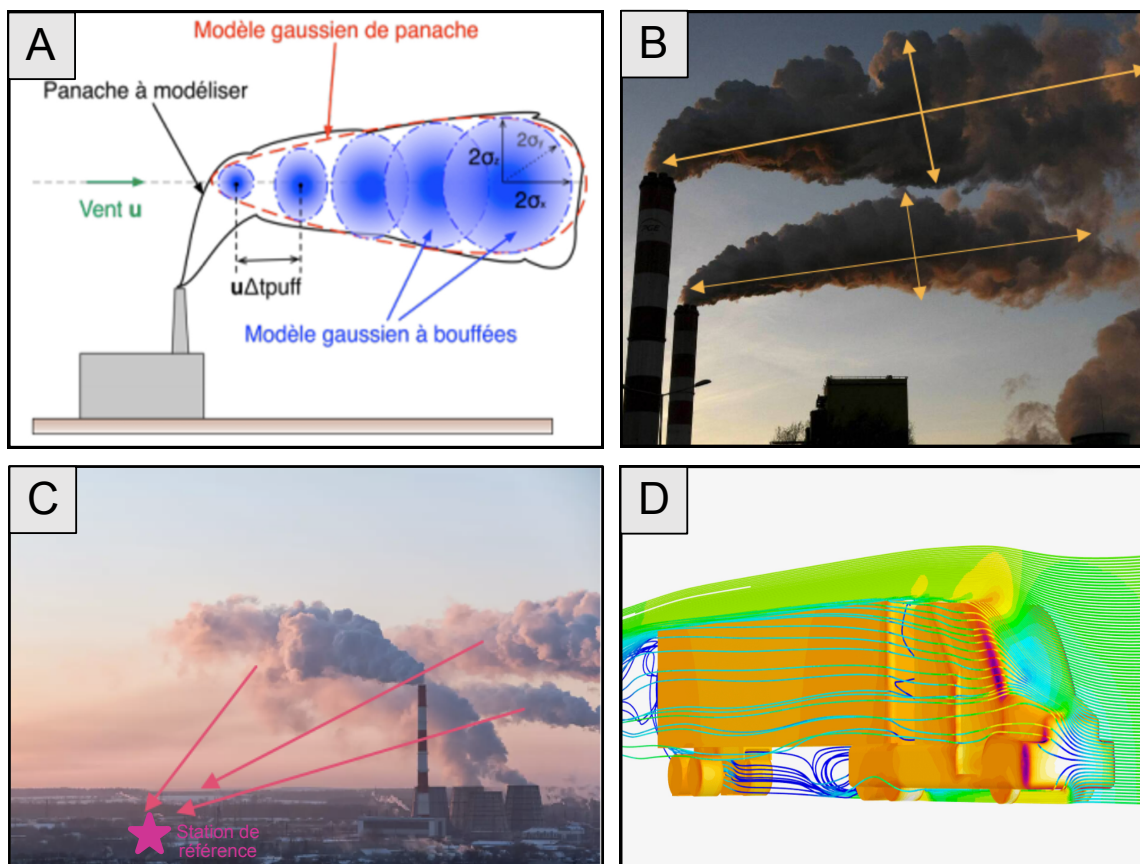


Figure 2.2 : Illustrations graphiques représentant [A] l'approche Gaussienne ; [B] l'approche Lagrangienne ; [C] l'approche Eulerienne et, [D] le principe de modélisation CFD, servant toutes à la modélisation numérique de dispersion des polluants atmosphériques.

II.1.2.3 L'approche Lagrangienne

L'approche lagrangienne consiste à suivre mathématiquement le mouvement des panaches de pollution par rapport au centre du panache (Figure 2.2B), lorsqu'ils se déplacent dans l'atmosphère selon un cadre de référence mobile. Le modèle va donc calculer des trajectoires de polluants qui sont influencées par le champ de vitesse du vent, la flottabilité du polluant et les effets stochastiques de la turbulence du panache. Les trajectoires sont alors calculées à partir d'équations différentielles ordinaires dont la distribution finale donne une estimation du champ de concentration. C'est une méthode très efficace pour une simulation à petite échelle étant donné que pour des problématiques à plus grande échelle, le calcul de nombreuses trajectoires entraînera une augmentation considérable du temps de calcul, ce qui diminuera l'efficacité du modèle. Finalement, des modèles hybrides ont été développés en utilisant une approche lagrangienne proche de la source couplée à une approche eulérienne pour interpoler les concentrations loin de la source (Brandt et al., 1996 ; Oetl and Uhmer, 2011).

II.1.2.4 L'approche Eulérienne

Similaire à un modèle lagrangien, une simulation eulérienne suit également un mouvement d'un grand nombre de panache de pollution à mesure qu'ils se déplacent de leur emplacement initial. La seule différence est qu'au lieu d'utiliser un cadre de référence mobile, le suivi du mouvement des polluants se fait par rapport à une grille cartésienne, tridimensionnelle et fixe comme une station de référence par exemple (Figure 2.2C). La résolution de l'équation de transport atmosphérique se fait donc dans un système de coordonnées fixe et sa solution, calculée à partir de conditions initiales et limites (de Dirichlet) permet de prédire la variation spatio-temporelle des concentrations en polluants. Finalement, l'approche eulérienne est largement utilisée par la communauté scientifique et de nombreux modèles ont été développés selon les problématiques comme WRF-CHEM (« Weather Research and Forecasting » ; Grell et al., 2005) qui est associé aux transformations chimiques des espèces dans l'atmosphère. Il prend ainsi en compte l'émission, le transport, la turbulence et les réactions chimiques de gaz et aérosols en plus de la météorologie.

II.1.2.5 « Computational Fluid Dynamic Modeling » ou modélisation CFD

Alors que les questionnements et analyses de la qualité de l'air en milieux urbains ont pris une part de plus en plus importante dans la protection de l'environnement et de la santé, les modèles de dispersion eulérienne ou lagrangienne ne suffisent plus. En effet, dans des problématiques de pollution typiquement urbaines avec : une géométrie et une configuration du milieu qui sont complexes et/ou une très faible distance séparant la source de pollution des récepteurs, une résolution beaucoup plus fine s'avère nécessaire (Figure 2.2D).

Dans ce sens, la modélisation CFD a été introduite avec des outils polyvalents, flexibles et efficaces pour résoudre l'équation de Navier-Stokes (Stull, 1988) en générant un maillage complexe et un modèle de turbulence précis. Comme les modèles CFD sont souvent utilisés autour d'une géométrie complexe, une résolution de grille fine est nécessaire pour calculer explicitement la turbulence jusqu'à une très petite échelle, ce qui entraîne des coûts de calcul extrêmement élevés.

Parmi les différents modèles de turbulence CFD, le système de fermeture de l'équation de Navier-Stokes $k-\epsilon$ est devenue la plus populaire pour les applications d'ingénierie et atmosphériques (Chen, 1996). Le modèle de turbulence $k-\epsilon$ utilise la moyenne de Reynolds (RANS). Cette dernière résout des équations de mouvement moyennées dans le temps et considérant les fluctuations de turbulence comme les termes de viscosité et de diffusivité des tourbillons. Pour les estimer, le système de fermeture $k-\epsilon$ introduit deux nouvelles équations de transport pour l'énergie cinétique turbulente et sa vitesse de dissipation.

Nous avons donné ici un bref aperçu des options de modélisation de la pollution atmosphérique dans l'atmosphère. Ces différentes approches peuvent être utilisées avec succès à des fins différentes, cependant, le choix d'un modèle approprié dans chaque problématique d'étude est essentiel pour gérer le problème et estimer avec succès la dispersion des polluants atmosphériques. Les approches de modélisation de la dispersion atmosphérique et leurs échelles d'application sont résumées dans la Table 2.1 (Leelőssy et

al., 2014). En se basant sur ces suggestions, la modélisation CFD était la plus pertinente dans notre cas d'étude.

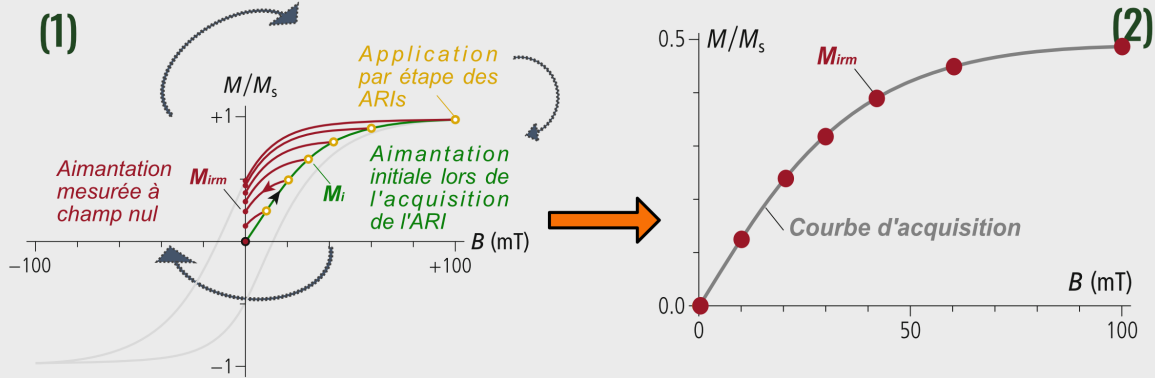
Table 2.1 : Suggestions des approches de modélisation numérique recommandées selon l'échelle et les applications.

Application	< 1km	1 – 10 km	10 – 100 km	100 – 1000 km
<i>Gestion des risques en ligne (temps de calcul court)</i>	-	Gaussien	Gaussien (bouffées)	Eulérien
<i>Terrains complexes</i>	CFD	Lagrangien	Lagrangien	Eulérien
<i>Matériaux dangereux et réactifs</i>	CFD	Eulérien	Eulérien	Eulérien
<i>Sensibilité source-récepteur</i>	CFD	Lagrangien	Lagrangien	Lagrangien
<i>Calculs moyennes à longues durées</i>	-	Gaussien	Gaussien	Eulérien
<i>Volcans (dispersion en atmosphère « libre)</i>	-	Lagrangien	Lagrangien	Lagrangien
<i>Couche limite conjonctive</i>	(CFD)	Lagrangien	Eulérien	Eulérien
<i>Couche limite stable</i>	CFD	Lagrangien	Eulérien	Eulérien
<i>Zones urbaines, rues canyon</i>	CFD	CFD	Eulérien	Eulérien

CE QU'IL FAUT RETENIR... pour caractériser la qualité de l'air



• Acquisition d'Aimantation Isotherme (ARI)



• Analyse en composantes principales (ACP)

Objectif: Analyse et visualisation d'un jeu de donnée dont les individus sont expliqués par **plusieurs variables quantitatives**. Chaque variable est considérée comme une dimension différente = **une composante**. Le but étant de synthétiser le jeu de donnée en identifiant quelques nouvelles variables = **composantes principales** où la variance est maximale.

(1) Jeu de donnée : valeurs centrées & réduites
+ transformation en matrice de covariance.

##	X100m	Long_jump	Shot.put	High_jump	X400m	X110m.hurdle
## SEBRLE	11.0	7.58	14.8	2.07	49.8	14.7
## CLAY	10.8	7.40	14.3	1.86	49.4	14.1
## BERNARD	11.0	7.23	14.2	1.92	48.9	15.0
## YURKOV	11.3	7.09	15.2	2.10	50.4	15.3

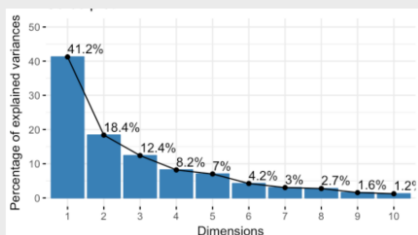


(2) Calcul des **valeurs propres** = quantité de variance pour chaque dimension (composante).

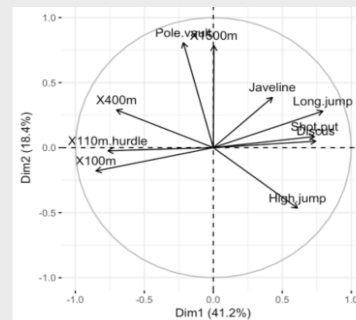
##	eigenvalue	variance-percent	cumulative-variance-percent
## Dim.1	4.124	41.24	41.2
## Dim.2	1.839	18.39	59.6
## Dim.3	1.239	12.39	72.0
## Dim.4	0.819	8.19	80.2
## Dim.5	0.702	7.02	87.2
## Dim.6	0.423	4.23	91.5
## Dim.7	0.303	3.03	94.5
## Dim.8	0.274	2.74	97.2
## Dim.9	0.155	1.55	98.8
## Dim.10	0.122	1.22	100.0



(3) Détermination du **nombre de composante** à prendre en compte à partir des valeurs propres



(4) Cercle de corrélation: visualisation de l'ACP.



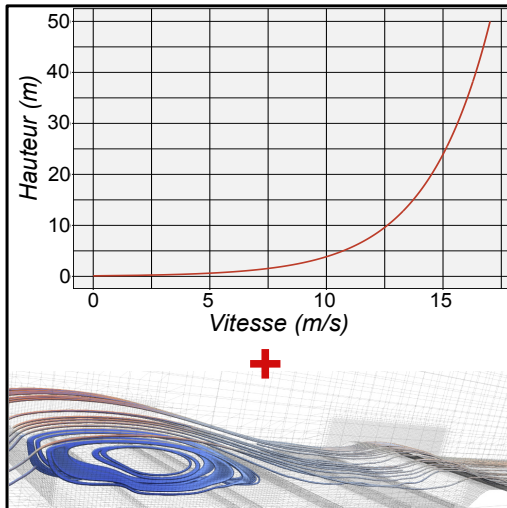
(4) Coordonnées des variables en fonction de chacune des composantes

##	Dim.1	Dim.2	Dim.3	Dim.4	Dim.5
## X100m	-0.851	-0.1794	0.302	0.0336	-0.194
## Long_jump	0.794	0.2809	-0.191	-0.1154	0.233
## Shot.put	0.734	0.0854	0.518	0.1285	-0.249
## High_jump	0.610	-0.4652	0.330	0.1446	0.403

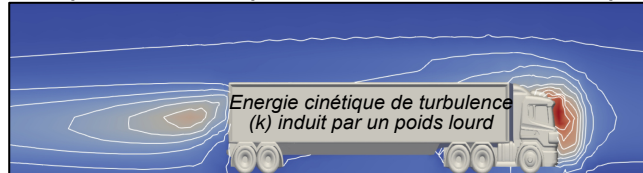
II.1.4 Synthèse de ma démarche expérimentale

Ci-dessous est présenté un synoptique illustrant et résumant mon approche méthodologique utilisée dans ce chapitre pour mieux appréhender la publication scientifique qui s'en suit :

1. Profil de vitesse & topographie



2. Moment de vitesse, énergie cinétique et sa dissipation induit par le trafic sur un terrain plat

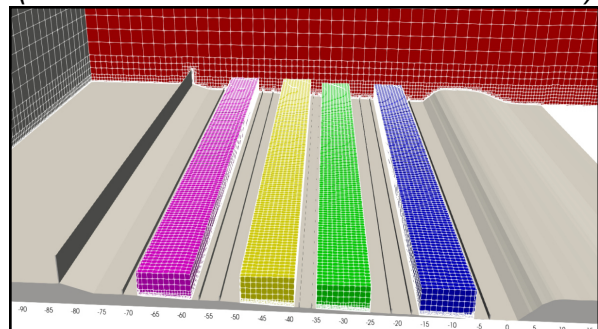


+

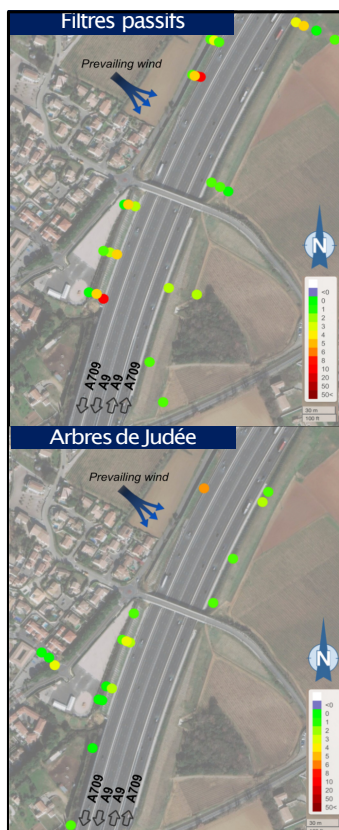
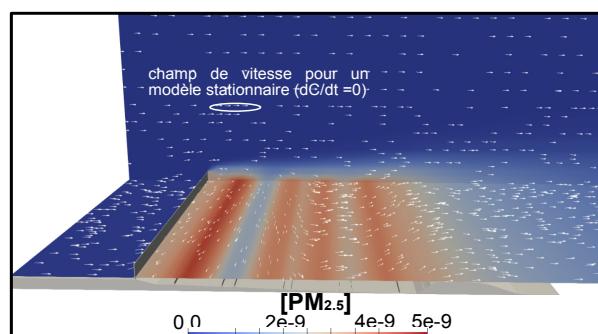
2'. nombre de particules / km / voiture



4. Injection en m³ dans les volumes une quantité connue de polluants (mesures de référence dans les tunnels)



5. Résultats du modèle CFD ramenés au nombre de véhicules sur une portion de l'A9/A709



6. Confrontation avec le magnétisme

II.2 BIOMAGNETIC MONITORING VS. CFD MODELING: A REAL CASE STUDY OF NEAR-SOURCE DEPOSITIONS OF TRAFFIC-RELATED PARTICLE MATTER ALONG A MOTORWAY (ARTICLE 1)

L'article présenté ci-dessous a été publié en Novembre 2020 dans la revue ***Atmosphere* (MDPI)** référencé : **10.3390/atmos11121285**. Les données ont été déposées dans le répertoire Zenodo au référencement : **10.5281/zenodo.6891951**. Il en est de même pour le modèle numérique disponible au lien suivant : **<https://zenodo.org/record/3961496#.X7vOTqpKiwU>**.

Article

Biomagnetic Monitoring vs. CFD Modeling: A Real Case Study of Near-Source Depositions of Traffic-Related Particulate Matter along a Motorway

Sarah Letaïef ^{1,*}, Pierre Camps ¹, Thierry Poidras ¹, Patrick Nicol ¹, Delphine Bosch ¹
and Romane Pradeau ^{1,2}

¹ Géosciences Montpellier, University of Montpellier, CNRS, 34090 Montpellier, France; pierre.camps@umontpellier.fr (P.C.); thierry.poidras@gm.univ-montp2.fr (T.P.); patrick.nicol@gm.univ-montp2.fr (P.N.); delphine.bosch@gm.univ-montp2.fr (D.B.); romane.pradeau@sfr.fr (R.P.)

² Géoressources and Environnement, Bordeaux INP and University Bordeaux Montaigne, ENSEGID, 1 allée F. Daguin, 33607 Pessac CEDEX, France

* Correspondence: sarah.letaief@umontpellier.fr; Tel.: +33-627-818-611

Received: 27 September 2020; Accepted: 20 November 2020; Published: 28 November 2020



Abstract: A test site located along a 12-lane motorway east of Montpellier, France, is used to evaluate the potential of biomagnetic monitoring on traffic-related particulate matter (PM) to parametrize a computational fluid dynamics (CFD) simulation of the local airflow. Two configurations were established on the site with three vegetated flat-top earth berms of a basic design, and a fourth one was located windward to the traffic roofed with a 4-m-high precast concrete wall. As a first step, PM deposition simultaneously on plant leaves, on low-cost passive artificial filters, and on soils was estimated from proxies supplied by magnetic and X-ray fluorescence measurements on both sides of the motorway. These latter revealed that traffic-related pollutants are present on soils samples highlighted with a clear fingerprint of combustion residues, and wears of breaks, vehicles, and highway equipment. Maximum PM accumulations were detected in the lee of the berm–wall combination, while no significant deposition was observed on both sides of the flat-top earth berms. These results are in line with measurements from PM μ -sensors operated by the regional state-approved air quality agency. Finally, we compared the experimental measurements with the outcomes of a computational fluid dynamics (CFD) modeling based on the Reynolds-Averaged Navier–Stokes (RANS) equations that consider the traffic-induced momentum and turbulence. The CFD modeling matches the experimental results by predicting a recirculated flow in the near wake of the berm–wall combination that enhances the PM concentration, whereas the flat-top berm geometry does not alter the pollutants' transport and indeed contributes to their atmospheric dispersion.

Keywords: traffic-related PM; motorway; biomonitoring; environmental magnetism; X-ray fluorescence; CFD; openFoam

1. Introduction

Nowadays, one of the growing concerns in our society is the quality of the air we breathe, which is most likely because the proportion of city dwellers in the world drastically increased from 29.6% to 55.3% between 1950 and 2018 [1], respectively. Indeed, urbanization comes with a rise in the activities damaging air quality in a close environment to the living places. Broadly, the transports, the energy production used for heating or industrial activity, as well as the knock-on effect of civil engineering and building are widely identified as major threats to the surrounding air. In addition, urbanization is often combined with a suburban sprawl, making people more car-dependent. As expected, the main

source of pollution in urban and peri-urban areas would be unequivocal road traffic [2,3], for which the combustion of fossil fuels, vehicle and road equipment wears, and resuspension processes contribute to a large part of urban particulate matter (PM) emissions including ultrafine particles (UFP) (<30 nm). It is now well established that PM is a carrier of reactive metals into the respiratory system, causing a variety of short and long-term adverse health effects because metals are not biodegradable [4]. The sizes of UFP are so small that they foster health issues, since they can pass through the lung wall to the bloodstream, affecting the cardiovascular system and possibly reach organs such as the brain [4–6]. The societal issue is important. The latest models reported by the European Environment Agency [7] assess the number of premature deaths by exposure to fine particles at 412,000 for European countries in 2016, which represents more than 4 millions of years of life lost, knowing that these numbers may have been underestimated [8]. Citizens are now well informed of this danger and increasingly try legal action as a way to ensure that the cities become a safer place to live. At the level of European actions, six countries including France are in litigation since May 2018 and referred to the European Union Court of Justice for non-compliance with the limit values of nitrogen dioxide and PM concentrations [9]. It is important to bear in mind that the European regulatory warning levels are more lenient standards than the World Health Organization air quality guidelines. Another worrying factor for the urban residents concerns the regulatory measurement protocols. Yielding concentration in $\mu\text{g}/\text{m}^3$, they do not promote the monitoring of ultrafine particles being too light to be detected.

In this context, the present work comes with a citizen mobilization in an eastern Montpellier city of 3500 inhabitants, Saint-Aunès, France, which is a riparian city of the A9 motorway. The mobilization began in response to a program intending to expand this motorway from a dual 3-lane motorway to a dual 6-lane motorway that raised concerns about the noise and the air quality. In response to the mobilization, an experimental site composed of four vegetated earth berms bordering the carriageways had been built by the motorway company (Figure 1). Earth berms are structures mainly built for noise abatement strategy [10]. Their impact on air pollution lessening is seldom studied [11] in contrast to that of alternative structures such as solid or vegetative noise barriers, e.g., [12–17]. The population expectations on the air quality issue coincide with effective ways and means of evaluating the efficiency of this local noise barrier setup. Remarkable and most likely unique, the experimental site was instrumented in July 2017 with in particular eight fixed stations equipped with e-PMTM μ -sensors. The system has been designed and operated for a 10-year monitoring by the regional state-approved air quality agency. In this project, we were mandated to assess the effectiveness of shrubs and trees present on the berms for monitoring, and subsequently for mitigating, the particulate matter released from traffic.

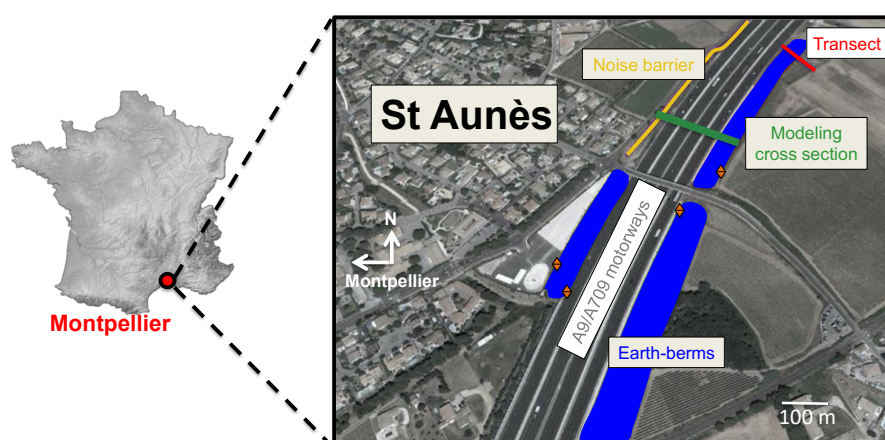


Figure 1. Map of the study area locating in blue the three flat-top berms; the one roofed with a precast noise barrier is in yellow, and the soil samples transect is in red. Orange arrows indicate the location of the regional air agency PM microsensors, and the green line illustrates the location of the modeling cross-section. Image from Google Earth V7.3.3.7721. digital Globe 10 July 2018.

The link between vegetation and air pollution has been the subject of substantial research over the past decades whether on monitoring [18] or on mitigation issues [19,20]. As yet, the mitigation by urban green is not topical, because the plants installed in 2017 on the berms are still too small to significantly influence the spatial apportionment of pollutants. Thus, we can only stay focused on the monitoring component without addressing the impact of vegetation installed on the berms on air quality. Once the pollutants deposition on plant leaves is time-integrated by accumulation, the assessment of pollution uptake by plants with analytical measurements may provide a low-cost near-source specific record supplementing the direct measurements with PM sensors. Among the different techniques of plant tissues analyses, environmental magnetism is now commonly implemented in biomonitoring approach because it yields proxies of relative concentration in trace metal on a large measuring interval with a very good resolution [21]. This cheap and rapid approach allows us to measure amounts of samples making achievable high-resolution mappings of near-source deposition. The underlying assumption is that empirical relationships exist between the trace elements deposition on plant leaves and the plant leaves' magnetic properties [22]. When applied to traffic-related sources, this link is often observed [23,24] because vehicles present concomitant emissions of trace elements and iron, either coated on the surface of spherule of carbon cores in vehicle exhaust [4] or in close association in wear products. Iron is found in the form of iron oxides such as magnetite, hematite, or maghemite, presenting a magnetic behavior [25] easily caught on accumulating surfaces. Strong correlations found between Pb, Fe, and magnetic parameters [22] may also suggest that trace elements can be directly incorporated into crystalline structure of the iron oxides.

In first part, we will report on the magnetic characterization of plant leaves, soil samples, and artificial filters together with X-ray fluorescence (XRF) measurements in order to map the near-source PM deposition along the motorway. Then, the spatial PM distribution will be compared to results of a pseudo-3D micro-scale atmospheric CFD model considering both the motorway environment (berms, curbs, and slope of the carriageways) and the fleet-induced turbulence and momentum. The key issue is whether and how precisely can the magnetic biomonitoring constrain a state-of-the-art CFD modeling of traffic pollutant dispersion. Finally, the results will be discussed and compared to the trend observed from the PM μ -sensors operated by the regional agency of air quality.

2. Materials and Methods

2.1. Study Area

The ASF motorway company, in agreement with the city of Montpellier and the French state, has carried out between 2014 and 2017 a major project to double the A9 motorway over 25 km with the objective to streamline traffic by separating the 265,000 vehicles which circulate on the daily average around Montpellier on two six-lane routes. In fact, the huge construction site has brought out two separated routes. One is used by motorists who wish to stay on the highway, and the other is used as a peripheral for services to Montpellier city. These two roads meet at the northeast end at the village of Saint-Aunès that is bordered by a 12-lane motorway. To prevent excessive noise impacts at residences and educational facilities, two configurations (Figure 1) were established: three flat-top earth berms with a vegetated roof and one roofed by a precast noise barrier. To carry out this study, we obtained from the motorway company the topographic maps of the site indicating the location of the various structures, the traffic data over 4 months, and an agreement to access the motorway domain for sampling directly on the berms.

2.2. Sampling

A prerequisite for magnetic mapping traffic-related PM deposition on accumulating surfaces is to check first the relationships between the trace element content and the magnetic parameters in a close location to pollutant emission. To this end, a first sampling was composed of 6 endemic species found on the earth berms, namely, *Cupressus sempervirens*, *Ciste monspeliensis*, *Quercus ilex*, *Salvia rosmarinus*,

Coronilla valentina, and *Cercis siliquastrum* on one hand, and on the other hand soil samples taken at the rooting depth of these same plants. Plant leaves were harvested by cutting them by the stem with a clean chisel and directly dropped into a plastic bag without being touched with a hand to avoid contamination during collection. Soil samplings were realized with clean plastic tools. In the laboratory, due to the complications of XRF measurements when water is present, plant samples were dried in an oven at 80 °C during 24 h and then placed in a desiccator during cooling down to the room temperature and finally crushed to powder with a hand agate mortar and pestle. Soil samples were firstly sieved under 2 mm grain size and then dried in the same way as the plants and ground to finally be sieved again under 0.3 mm grain size. Each sample of plants and soils was reduced to dried powder were divided in 3 and 6 aliquots in order to average the results, respectively, and placed into XRF sample cups SC-4131-0 closed on top with a polypropylene film. We used polyester fiber stuffing to fully complete the filling of the cups to prevent sample movements. Dried sample masses were estimated with an analytical microbalance (Sartorius ENTRIS 224i-1S, Sartorius, Goettingen, Germany) by means of a double weighting operation to subtract the mass of the sample holders. This design allows us to measure X-ray fluorescence and magnetic characteristics on a same preparation if care is taken to subtract the empty sample-holder signal.

A second campaign of sampling was realized in accordance with our main objective to map by means of magnetic measurements the deposition of traffic-derived PM along the motorway. To this end, we used three different types of accumulating surfaces located in the motorway near environment. The first type was natural plant leaves. Particles passive trapping and retention on plant leaves is influenced by several factors as the plant type deciduous or evergreen, the leaf surface area, the micro-surface roughness, the presence of hairiness or leaf veins, and the thickness of their waxy cuticle at the leaf surface [26–28]. Assessing the atmospheric pollutants uptake on plant leaves is further hampered by plant capacity to absorb trace metals from soil via their root system and translocation to leaves [29]. To sum up, analytical data from plant tissues are difficult to apprehend and decipher unless a single plant species is harvested close to and around the point source emission being investigated in order to reduce as much as possible adverse inputs from environmental variabilities or from undesired sources. The deciduous species *Cercis siliquastrum* was selected because it is abundant on the earth berms and nearby, it presents a large surface leaf area, and it is not known to have capacity for trace elements translocation from soils to leaves. A total of 25 *Cercis siliquastrum* trees were sampled in a single day on 2 July 2019, which represents a good spatial coverage of the study area. Their heights vary from 0.50 m on vegetated earth berms to a few meters for a tree close to the noise barrier side or the trees outside the motorway domain. About 15 leaves by tree, representing a total surface in the range of 150 to 680 cm², were collected by always keeping in mind to favor leaves of similar sizes located at the tree canopy. This way, we ensure the homogeneity and the representativeness of the sampling. Since magnetic measurements are not sensitive to the water content, fresh leaves were directly packed into 8 cm³ plastic cubes sample holders in order to reduce handling and thus minimize spurious changes of the signal, either by contaminations or cleaning. After the magnetic treatment and measurement, leaf surface areas were measured with a CI-202 laser area meter (cid Bio-Science™, Camas, WA, USA). This procedure aims to reduce the laboratory operations to keep unaltered the dust deposition on plant tissues prior to the analyses. The second type of accumulating surface used for mapping was quantitative paper filters of 2–3 µm particle retention. To prevent mechanical weathering by insects or water saturation by rainfall that could have the effect of reducing their filtering surface, they have been inserted inside the mounting design proposed by Cao et al. [30]. The assembly is composed of a plastic electrical box of a circular section of 50.6 cm² in which filters were placed between two layers of washed natural wool to absorb excess moisture. The whole is closed by a piece of 1 mm mesh canvas allowing only the entry of fine particles. A total of 30 artificial filters have been positioned on both sides of the motorway from 25 May to 25 August 2019. For some stations, filters were put as a duplicate to leaves, whereas for others, only artificial filters were analyzed. In the laboratory, the paper filters were placed also into 8 cm³ plastic cubes sample holders for magnetic measurements. Finally,

we also took 31 soil samples on a transect perpendicular to the highway on the northernmost flat-top earth berm (red line on Figure 1). Samples were taken on a surface of 30 cm by 30 cm on the first 2 to 3 cm depth after cleaning the area of vegetation and coarser materials such as gravels or pebbles. They were prepared for the analyses in the same way as those harvested in the first sampling and were divided each into three aliquots.

2.3. Elemental Analysis

Chemical elemental analyses were performed with the Niton XL3t-900 Gold X-ray fluorescence portable analyzer (Thermo Scientific®, Waltham, MA, USA) on ex situ samples reduced to powder after drying. Before specimen analyses, sample holders with their specific design were empty measured to discard if necessary the ones that may have a negative impact on measurements due to a strong signal. The interpretation of XRF spectra was processed in two steps. We have certified the presence of an element from a qualitative visual inspection of spectrum before to calculate its concentration with the NITON Data Transfer software provided by Thermo Electron Corporation™, Waltham, MA, USA. Results are obtained in µg/g (ppm).

2.4. Magnetic Treatments and Measurements

An Isothermal Remanent Magnetization (IRM_{1T}) was first imparted at 1 Tesla to all the empty sample holders, with the impulse magnetizer ASC Model IM-10-30 from ASC Scientific, and then measured with a 2G-SQUID cryogenic magnetometer. Subsequently, these operations were repeated after loading fresh plant leaves, paper filters, or soil and plant powders into their respective sample holders. Magnetic moments expressed in Am^2 were corrected by subtracting the magnetic moment of an empty sample holder, which was then normalized by the leaf area or by the sample mass, yielding the IRM_{1T} intensity of the samples in Ampère (A) or in Am^2/kg , respectively. Given the possible presence of impurity contents in the plastic molding, the sample holders could potentially carry more or less magnetization. This two-step protocol becomes required since we are unable to magnetize the samples without magnetizing the sample holders at the same time. Such a two-step protocol is applicable in the present case because the magnetic moment of the sample holders (on the order of a few $10^{-9} Am^2$) is between 1 and 3 orders of magnitude smaller than that of the samples. Furthermore, IRM intensity is a practical proxy of bulk magnetic contaminant concentration which may be in turn subject to instabilities due to the magnetic viscous effect of variable relaxation times [31] if sufficiently small magnetic nanoparticles are present as often observed in magnetic biomonitoring survey [32]. As it is routinely done in our laboratory, samples were placed in a zero-field following the IRM acquisition until the magnetization is stable enough. We checked the stability of the 1T-magnetization imparted to the empty and to the filled sample holder and found a very small magnetic viscous effect characterized by a relaxation time lower than 2 and 10 min, respectively (see Figure A1). Then, the duration of stay in zero-field following the IRM acquisition and prior to the measurements was set to a minimum of 15 min for all samples.

2.5. Numerical Simulation of Transport of Particles Emitted from Local Traffic

We have implemented a computational fluid dynamic (CFD) approach to simulate the micrometeorological characteristics that directly affect the dispersion of pollutants in the atmosphere. The purpose was to analyze the three-dimensional dispersion of fine particles emitted by the traffic at the measuring sites and in the surroundings. To this end, we used the openFoam (open Field Operation and Manipulation. Available online: <http://www.openfoam.com> (accessed on 9 September 2020)) open source toolbox that is freely available.

For the particles transport, we followed a conventional Eulerian approach that uses the advection–diffusion equation e.g., [33–35] treating the concentration of particulate matter (PM) as a passive scalar quantity C advected by an incompressible wind fluid \mathbf{u} . The general formulation of

the temporal change of C combines the advection and the diffusion equations with a source term S_c describing the creation of C and a sink term due to particle settling as following:

$$\frac{\partial C}{\partial t} = -\nabla \cdot (C\mathbf{u}) + \nabla \cdot (\Gamma_D \nabla C) + S_c - U_s \nabla C \cdot \mathbf{n}_z \quad (1)$$

where C ($\mu\text{g}/\text{m}^3$) is the transported PM concentration, t is the time in seconds, \mathbf{u} is a stationary velocity field (m/s) computed from a microscale meteorological model, Γ_D is the effective diffusion coefficient (m^2/s) of C in air, S_c ($\mu\text{g}/\text{m}^3$) is the source term of C , U_s is the particle settling speed (m/s), and \mathbf{n}_z is a vertical unit vector introduced here for homogeneity. In Equation (1), several terms require further explanations. First, the effective diffusion (Γ_D) combines the laminar (Γ_L) and the turbulent (Γ_T) diffusion components [33], $\Gamma_D = \Gamma_L + \Gamma_T$. The laminar mass diffusivity component Γ_L is assessed by means of the Stokes—Einstein equation:

$$\Gamma_L = \frac{\zeta T C_c}{3\pi\mu d_p} \quad (2)$$

where ζ is the Boltzmann's constant ($1.38 \times 10^{-23} \text{ kg m}^2 \text{ K}^{-1} \text{ s}^{-2}$), T is the absolute temperature (K), d_p is the aerodynamic diameter of particles (m), and μ is the dynamic viscosity of the air ($18 \times 10^{-6} \text{ kg m}^{-1} \text{ s}^{-1}$). C_c is the dimensionless slip correction factor given by

$$C_c = 1 + \frac{\lambda}{d_p} [2.34 + 1.05 e^{-0.39d_p/\lambda}] \quad (3)$$

where λ is the mean free path (set here to $0.066 \mu\text{m}$). The turbulent mass diffusivity component Γ_T is given by

$$\Gamma_T = \frac{\nu_\tau}{Sc_\tau} \quad (4)$$

where ν_τ (m^2/s) is the eddy viscosity, which is calculated during the resolving of the velocity field \mathbf{u} , and Sc_τ is the turbulence Schmidt number, a dimensionless constant describing the relative diffusion of momentum and mass, arbitrarily set to 0.7 in the present study. Second, the particles settling speed U_s is derived from $U_s = C_c \tau_p g$, where g is the gravitational constant ($\text{m}\cdot\text{s}^{-2}$) and τ_p is the particle relaxation time (s), which is equal to $\rho_p d_p^2 / 18\mu$ with ρ_p as the particle density ($\text{kg}\cdot\text{m}^{-3}$).

The fundamental assumptions for such modeling are that (i) the transported species within the flow does not affect the air flow, (ii) which is assumed to be incompressible and isothermal. Thereby, Equation (2) is easily resolved when both the source term S_c for a class of particles with known aerodynamic diameter and a velocity field \mathbf{u} are prescribed.

2.5.1. Assessment of the Emission Source Term (S_c)

Emissions of particulate matter induced by traffic have been steadily decreasing over the past decades thanks to technological innovations in engine design, new fuel composition, and high efficiency particulate filters at the exhaust pipe up to developments in techniques for collecting microparticles emitted by disc braking systems. The second observation we made is that the in-use motor vehicle fleet can be very heterogeneous. For example, in Europe, the motor vehicle fleet is getting older year-on-year, reaching 11 years on average in 2017 [36]. Therefore, we found it beyond the bounds of possibility to accurately estimate particulate traffic emissions directly from the traffic data. Instead, we have opted to use as the best estimate the latest measurements made in tunnels that have the advantage of characterizing real-world traffic at a given time, including particles from the resuspension of dust, from combustion products, and from vehicle and road structure wear. The survey carried out in 2015 in the Shing Mun Tunnel (Hong Kong) and Fort McHenry (Baltimore, MA, USA) [37] gives us an average emission rate for the PM2.5 of $0.025 \text{ g veh}^{-1} \text{ km}^{-1}$ for a mixed light/heavy-duty traffic. We will remain focused on PM2.5 because the direct measurement of PM10 was not carried out in this

study and the only data we found relate to ancient measurement campaigns carried out in 2006 in Hatfield Tunnel, London, UK [38] and in 1999 in Tuscarora Mountain tunnel, PA, USA [39], which may not be representative of the current fleet emissions.

2.5.2. Assessment of the Velocity Field \mathbf{u}

The experimental measurement of particle deposition on surfaces being by nature cumulative over a few months, the statistical steady Reynolds-Averaged Navier–Stokes (RANS) turbulence model was chosen to solve the fluid flow. The Reynolds decomposition adopted in steady RANS is addressed in approximating the instantaneous movement of the fluid in order to solve only the equations of the time-averaging field, which somewhere favors the duration of the observation compared to the turbulence timescale. Steady RANS is an open set of equations needing further approximations for closure commonly achieved by means of the Boussinesq hypothesis relying on the concept of the eddy viscosity (ν_τ) (see [40] for a review). We chose the standard k - ϵ first-order closure model that was proposed by Jones and Launder [41] for high Reynolds-number flows and recently validated for atmospheric boundary layer and particles dispersion [35,42]. In this closure model, the eddy viscosity is given by:

$$\nu_\tau = \rho C_\mu \frac{k^2}{\epsilon} \quad (5)$$

where the turbulence kinetic energy (k) and its dissipation rate (ϵ) are estimated from their transport equation, ρ is the air density, and C_μ is a model constant fixed to 0.09.

In the literature on near-road air pollution impact, the velocity field is generally only resolved from local atmospheric conditions. With very few exceptions [43,44], the modeling of pollutant dispersion and deposition does not include velocity momentum and turbulence generated mechanically by the traffic whether for verisimilar urban environments [45] or for different roadside barrier configurations [11,46,47] or for true road networks [48]. In the present case, it would be a rough approximation to exclude the traffic input on the mean velocity field and on turbulence for two reasons. The earth berms under consideration have a height comparable to that of the heavy goods vehicles circulating on the motorway, and the traffic density for the 12 lanes combined is rather significant with an average of 264,550 vehicles per day calculated over 4 months, from May to August 2019. One way to account for the traffic is to introduce in the atmospheric model source terms in a finite volume over the carriageways. Therefore, the velocity field was set in two steps.

In a first step, the challenge was to determine the average vehicle-induced momentum (VIM) corresponding to the velocity in the wake and the average vehicle turbulence (VIT) that comprises the turbulent kinetic energy (k) and its turbulent dissipation rate (ϵ) that could be representative as much as possible of the real average traffic. To meet this challenge, we constructed a zero-wind and flat-terrain precursor CFD model from the average traffic density calculated from May to August 2019 for a single carriageway for both A9 and A709 motorway (2×3 lanes). Four vehicle templates including one heavy goods vehicle, one motorhome, one family car, and one sport car available under the common creative license were used to mimic the fleet (Digital designs for physical objects. Available online: <https://www.thingiverse.com> (accessed on 29 June 2020)). The distance between consecutive vehicles driving on the same lane was calculated from the traffic density assuming that all vehicles move at a constant speed of $25 \text{ m}\cdot\text{s}^{-1}$ that corresponds to the speed limit. A total of 17 and 21 “stand still” vehicles were placed in the correct proportion between light-duty and heavy goods vehicles on the 3 lanes along a 620 m stretch of the A9 and the A709 motorways, respectively. The length corresponds to the minimum length, allowing us to simulate an average traffic as close as possible to that calculated from the data. To simulate a permanent and continuous traffic, we applied periodic conditions at the beginning and at the end of the modeled carriageway section. All the other computational domain boundaries have been set to moving wall condition with a constant speed of $25 \text{ m}\cdot\text{s}^{-1}$. The CFD domain extent is 620 m long \times 48 m wide \times 28 m high, presenting thus a cross-section large enough to avoid erroneous estimate due to blockage effect. Two control volumes (cross-sectional area of $5 \text{ m} \times 10 \text{ m}$)

centered on the A9 and A709 carriageways, respectively, were used to estimate the vehicle-induced average momentum and the vehicle-induced average turbulence.

In a second step, the wind velocity field in the atmospheric boundary layer affected by volume sources representative of the bi-directional 12 lanes traffic, by the road structures such as the 0.9 m high and 0.2 m wide concrete curbs separating the carriageways, and by the topography of the earth berms was resolved. A pseudo-3D CFD simulation was designed by extruding along the third dimension a 2D topographic profile transverse to the carriageways obtained from the motorway company. Doing thus, the berms are continuous throughout the lateral domain extension, limiting the simulations to scenarios with wind perpendicular to the carriageways. Furthermore, this limitation was forced by the periodic boundary conditions applied at the front and back domain boundaries to simulate continuous traffic. Such refinement nullifies the possibility for real-3D CFD simulations with slanted wind direction relative to the motorway structures.

We followed the best practice guidelines [49] to determine the size of the computational domain. The vertical extension of the domain was fixed at a minimum of 22H (176 m) to prevent an artificial acceleration of the flow over the top of the noise barrier located at 1H (5 m or 8 m when measured relative to the ground west to the motorway or to the carriage way, respectively). In that respect, the corresponding blockage in the flow direction—defined as the ratio between the noise barrier area to the free-stream cross section of the computational domain—is kept below 5% whether the wind comes from one side or from the other. The lateral extension of the domain was arbitrarily set to 120 m. This choice did not appear sensitive in our simulations because we only considered a pseudo-3D geometry for the topography and because periodic conditions have to be set up on the lateral boundaries of the computational domain. The extension of the domain in the flow direction was set up with a geographic positioning at 8H and 35H for the inflow and outflow boundaries, respectively, relative to the location of the closest earth berm of height equal to 1H. The distance of 35H appeared to be sufficient in the different tests we carried out to allow for flow redevelopment behind the berm, avoiding thus the possibility for the fluid to re-enter through the outflow boundary.

The computational domain was meshed in two steps. A coarse mesh with hexahedral cells of 8 m side length was created with the openFoam utility blockMesh and then refined in close proximity of the ground and the motorway structures with the openFoam utility snappyHexMesh. The minimum thickness of the cells was fixed to 0.03 m close to the ground level with a maximum aspect ratio of 1.2. This ensured a good overall grid resolution with at least three cells between the ground level and the monitoring site locations (Figure 2). At the end of the refinement, the total number of cells is 1349 million. Four cell zones of a theoretical volume of 6000 m³ each (cross-section 5 m × 10 m, Figure A2) were defined over each 3-lane carriageway to enable inputs of the vehicle-induced momentum, the vehicle-induced turbulence, and the particle emissions source terms into the model.

Boundary conditions were set accounting Richards and Norris [50] recommendations for the *k-ε* turbulence model applied to a neutral atmospheric boundary layer. In this context, constant properties in directions tangential to the ground were assumed. For the velocity, they call for a wind velocity profile with the elevation of the log-law type, a driving shear stress at the upper boundary, and a near wall velocity matching up approximately the inlet profile at the ground boundary. Thus, the velocity inlet profile was prescribed by means of:

$$U = \frac{U^*}{\kappa} \ln\left(\frac{z - z_g + z_0}{z_0}\right) \quad (6)$$

where U^* is the friction velocity, κ is the von Karman's constant, z is the vertical coordinate (m), z_0 is the surface roughness (m), and z_g is the ground altitude if is not equal to zero. We fixed z_0 to 0.1 m to characterize the open country with occasional obstacles present on the both sides of the motorway. Dirichlet conditions are applied at the upper and at the lower boundaries equal to the velocity in the inlet at the upper height in order to ensure the driving shear stress and equal to zero (no-slip) at the ground level to enable the viscosity-affected region to be resolved, respectively. In a neutral

atmospheric boundary layer, the turbulence kinetic energy and its dissipation rate have an analytical solution in RANS simulation that was used for inlet boundary conditions:

$$k = \frac{(U^*)^2}{\sqrt{C_\mu}} \quad (7)$$

$$\varepsilon = \frac{(U^*)^3}{\kappa(z - z_g + z_0)}. \quad (8)$$

We acknowledge that a constant value with height for the turbulence kinetic energy is debatable, since it is observed neither in field measurement nor in wind tunnel experiment [40,51]. However, the recommendations in the literature do not clearly prohibit the use of these relationships, which are selected here since they correspond to the analytical solutions of the k - ε closure model. A zero gradient in wind direction was prescribed for k and ε as the upper boundary condition by means of a free slip condition. The standard model k - ε can only be used in highly turbulent flows, which is no longer found in regions close to the walls. Then, the use of wall laws is a solution to consider the presence of viscous effects to simulate the inner region between the wall and the turbulence fully developed region. We utilized the standard rough wall functions for k and ε available in the openFoam libraries. For all the variables, the Neumann zero gradient condition was applied at the outlet boundary except for the pressure for which a Dirichlet fixed value set to zero was applied. As stated previously, periodic boundary conditions were applied at the front and at the back boundaries to consider a continuous traffic.

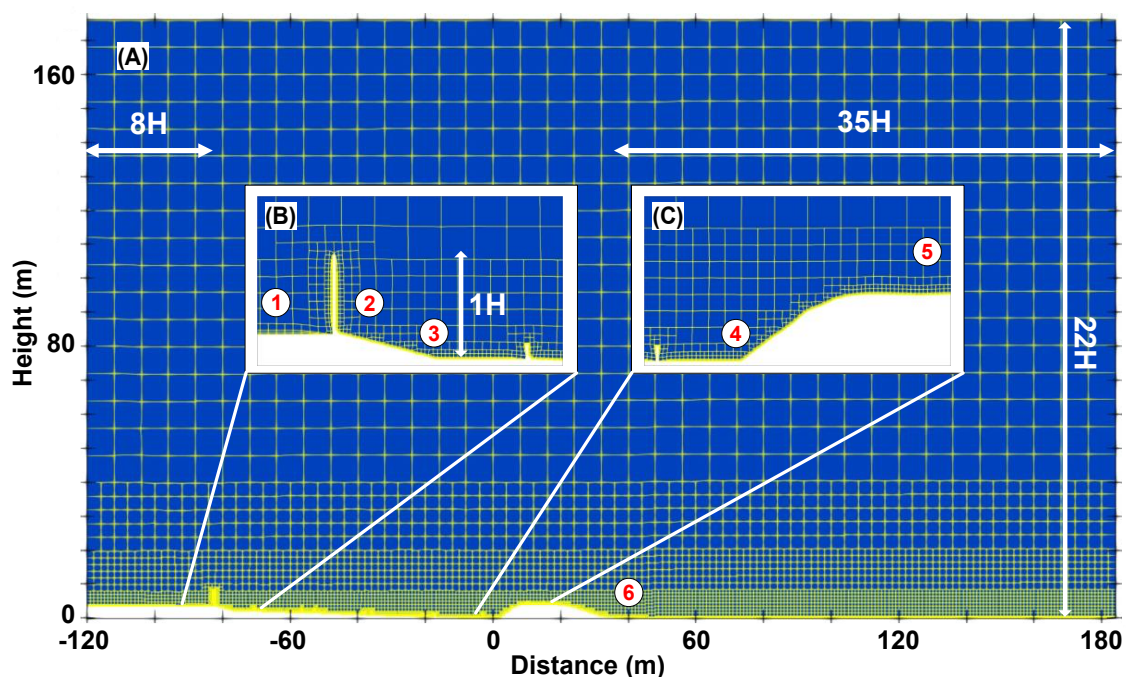


Figure 2. Overview of the meshing from the front of the domain (A), with a zoom on the precast noise barrier atop of a berm here located upwind to the source (B) and a zoom on the flat-top earth-berm located downwind to the source (C). Numbers in red show the locations of the vertical profiles at which the PM_{2.5} concentrations are monitored.

The wind velocity field was resolved by means of the pressure-correction method SIMPLE-C [52] with a very stable numerical approximation based on first-order discretization schemes for the first thousand steps, which was followed by a very accurate numerical approximation based on second-order discretization schemes ensuring 4 orders of residue falls to indicate the convergence. This technique

helps to start a solution in the presence of the thin wall noise barrier and the concrete curbs that could represent strong discontinuities in the topography, which may give rise to solver stability problems. The stability of the calculation is further secured by means of under-relaxation factors chosen as high as possible while ensuring no oscillations in the flow solution.

3. Results

3.1. Magnetic Mapping of Near-Source Depositions of Traffic-Related Particulate Matter

Prior to the magnetic mapping, the pair-wise relationship between magnetic properties and chemical contents of deposition on accumulating surfaces such as plant leaves or soils was first checked by means of a bivariate scatter plot. In Figure 3, we plot the IRM intensity imparted with a 1-T magnetic field against the total concentration of 13 main elements, namely Mo, Pb, As, Zn, Cu, Ni, Co, Fe, Mn, Cr, V, Sb, and Cd from measurements made on the same sample of plant or soils. At the first order, the form of the relationship is clearly linear. It is characterized by a concomitant increase of the two parameters that makes sense from a physical point of view if our working hypothesis is correct; the more the iron and associated metal content is high, the more the laboratory-imparted magnetization is strong. The strength of this relationship is evaluated by means of the Pearson's product-moment correlation coefficient, which is estimated to 0.80 with a p -value of 8.4×10^{-9} calculated for the alternative hypothesis that the true correlation is not equal to zero; the pair-wise positive linear relationship appears to be strong enough to validate the working hypothesis. The Spearman's rank correlation coefficient was also calculated because it is more appropriate in the present case, since the two variables are not normally distributed. Equal to 0.84 with a p -value of 1.3×10^{-7} and close to the Pearson coefficient value, it confirms a strong linear positive relationship. However, this conclusion is moderated by considering only the various plant species by excluding the soil samples from the analysis (Figure 3B). The Pearson's and the Spearman's correlation coefficients are reduced to 0.69 (with a p -value of 5.06×10^{-4}) and to 0.74 (with a p -value of 1.97×10^{-4}), respectively.

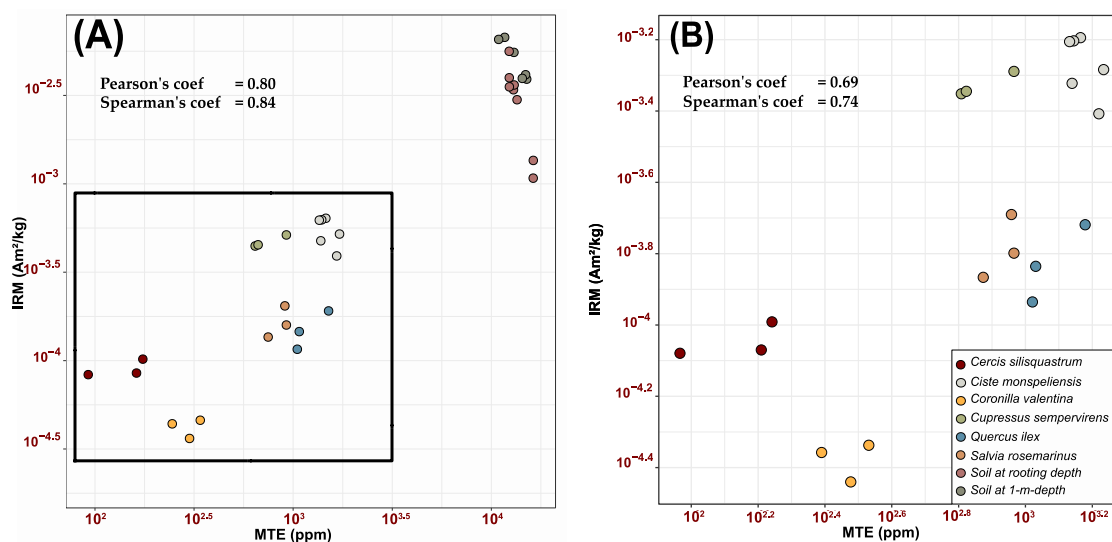


Figure 3. Relationships between Isothermal Remanent Magnetization (IRM_{1T}) and concentration in main trace elements (MTE; Mo, Pb, As, Zn, Cu, Ni, Fe, Mn, Cr, V, Sb) for soils and plant leaves (A), and only for plant leaves (B) harvested on earth-berm.

Next, we tried to verify the traffic origin of the PM deposition by identifying the vehicle-related tailpipe, non-tailpipe, and natural emissions from trace elements associations. To this end, a principal component analysis (PCA) was performed with the FactoMine R package tools [53] on selected chemical elements characteristic of traffic emissions such as Te, Cs, Ba, Sb, Ni, Sn, Zr, Sc, Sr, Zn, Pb,

Cr, U, V, Mo, Hg, As, Mn, Se, Fe, and Cu. Unfortunately, we have been able to perform such analysis solely on soil samples because many targeted chemical elements are present in soil but there are not enough concentrated on plant leaves. Principal component analysis on trace elements derived from XRF data reveals three clusters of relatedness (Figure 4). The first two components account for 42.5% of the total variance in the dataset. Cluster 1 is mainly composed of Sc, Sr, Zn, and Pb and is negatively correlated with cluster 3, which represents associations between Cr, V, As, Mn, Se, Fe and Cu elements. On the other hand, cluster 2 demonstrates associations between Te, Cs, Ba, Sb, and Zr chemical elements. The traffic origin seems clear. Elements in cluster 1 are often associated with fuel and additive residues [54–57], elements in cluster 2 are mostly linked to vehicle wear on the roadway [55,57,58], and finally, elements in cluster 3 may be linked to the vehicle and highway equipment wear [56,59,60]. This interpretation is further validated with the analysis of the ratio of Cu:Sb. This ratio is considered as highly discriminating between brake wear particles characterized by values lower than 10 [61], and natural particles characterized by much larger values, which are greater by at least one order of magnitude. All the soil samples from the earth berm yielded a Cu:Sb ratio lower than 10, with a mean value of 6.2 ± 2 supporting the hypothesis of a significant traffic input on soil surface of the earth berms.

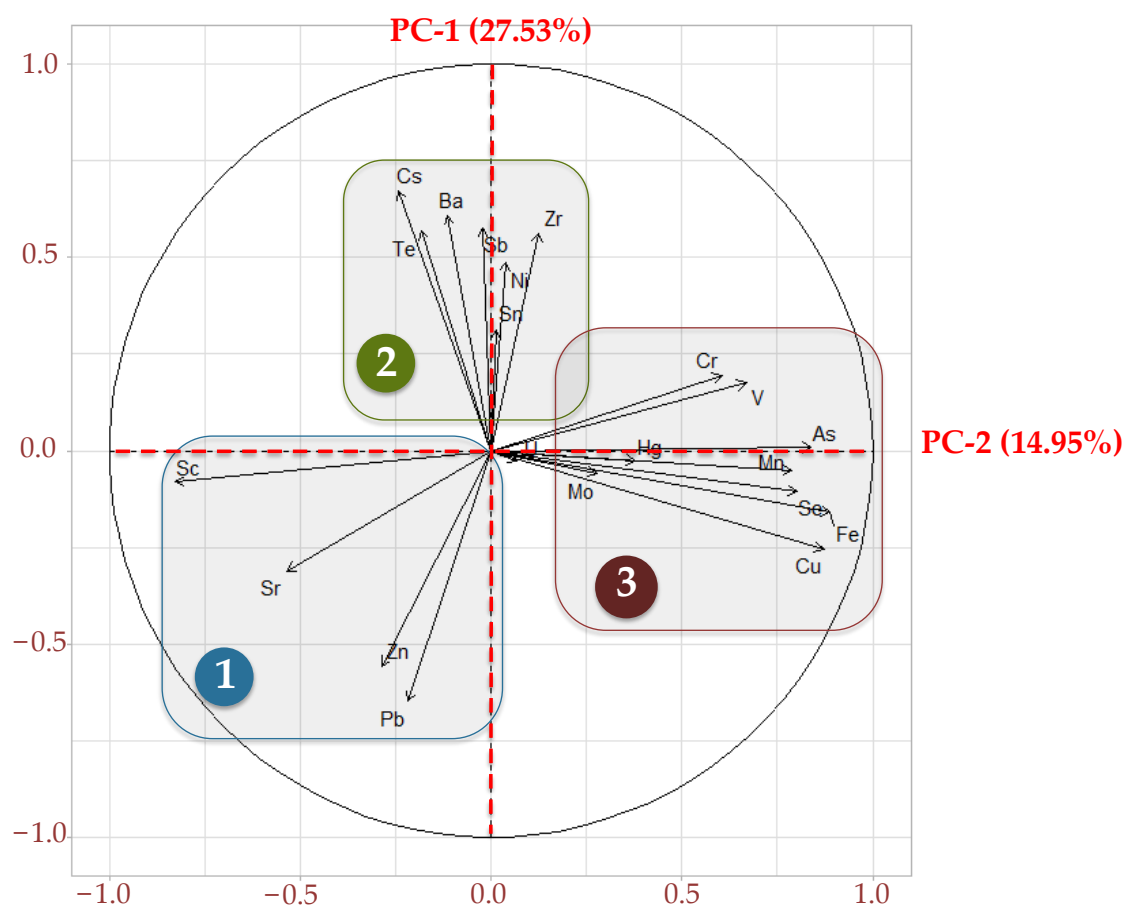


Figure 4. Principal component analysis revealing principal trace metallic sources.

Hence, the magnetic mapping of depositions of trace elements related to the local traffic seems to be soundly based in the present survey. Nevertheless, we believe that it is important to subtract from the total signal the signal from the deposition of PM related to the regional background level. This latter is assessed with reference samples taken from remote areas assumed to be non-impacted by emissions from similar sources that the ones surveyed. The choice of their location is important in

magnetic monitoring and should be wisely selected to allow meaningful comparisons. To this end, we chose reference stations for plants and filters located in a forest and in a village north of Montpellier, respectively. For soil samples, we directly drilled the top of the earth berm with an auger to take reference samples at a depth of about 1 m, assuming that no pollutant transfer occurs from the soil surface. To depict the near-source deposition, we will use the relative change (RC) parameter given by:

$$RC = \frac{IRM_{(IT,traffic)} - IRM_{(IT,reference)}}{IRM_{(IT,reference)}}. \quad (9)$$

As such, RC is a unitless number that pays attention to the amount at which the traffic-related “magnetic” PM estimated from $IRM_{(IT,traffic)}$ superimpose to the background PM estimated from $IRM_{(IT,reference)}$. Results are presented on Figure 5. A similar trend between artificial passive filters and *Cercis siliquastrum* leaf samples is observed. Roughly, higher PM concentrations are highlighted in the near wake of the earth berms located upwind of the traffic where relative change values are 4 to 10 times higher than those from the reference stations, while no significant PM deposition seems to occur to the flat-top earth berms downwind to the traffic. This observation seems to be counterintuitive. More predictably, PM concentrations are higher on the traffic side rather than the opposite side, highlighting a positive screening effect of the noise barrier structure on air quality.

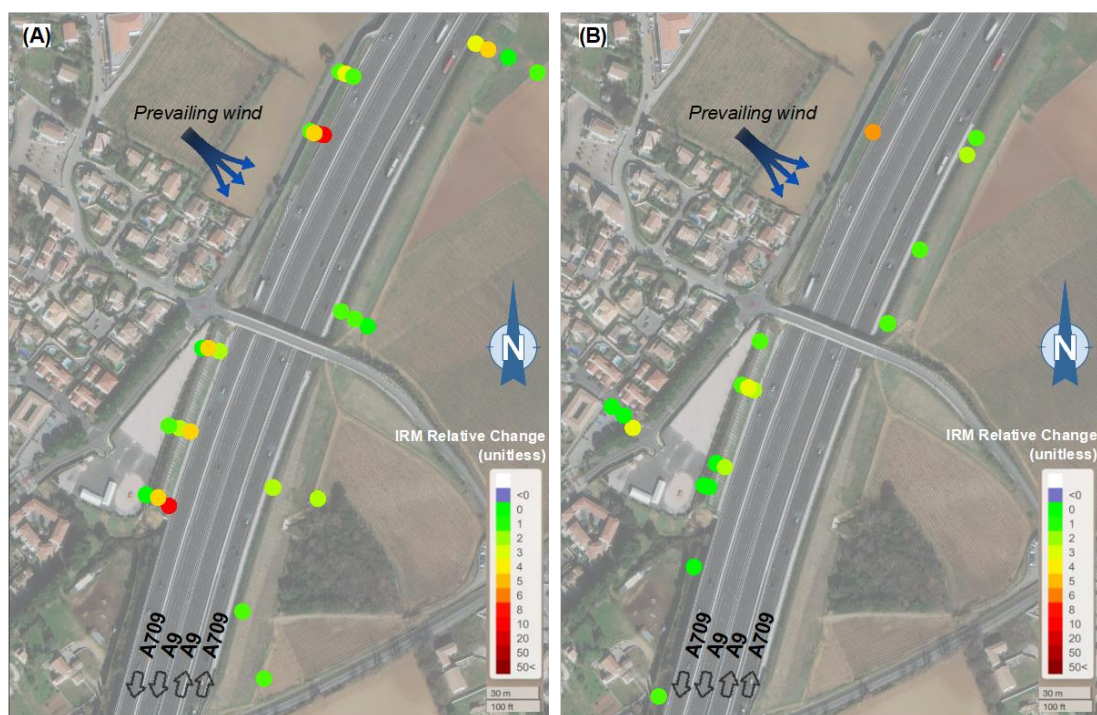


Figure 5. Maps of traffic-derived particulate matter (PM) measured by Isothermal Remanent Magnetization (IRM) relative change (RC) on: (A) artificial filters and (B) *Cercis Siliquastrum* leaf samples. Image from Google Earth V7.3.3.7721 digital Globe 10 July 2018.

The signal measured on soils taken along the transect in the lee of the carriageways (see localization on Figure 1) is more difficult to interpret (Figure 6). The relative change with the reference sample is weak with values close to zero, even showing slightly negative values. In addition, we do not observe a gradient in the magnetic signal further away from the source. This may be exactly opposite to what we might have expected for the deposition of local traffic-related PM, since the concentration of particles should decrease as a function of distance from the source due to dispersion and deposition processes.

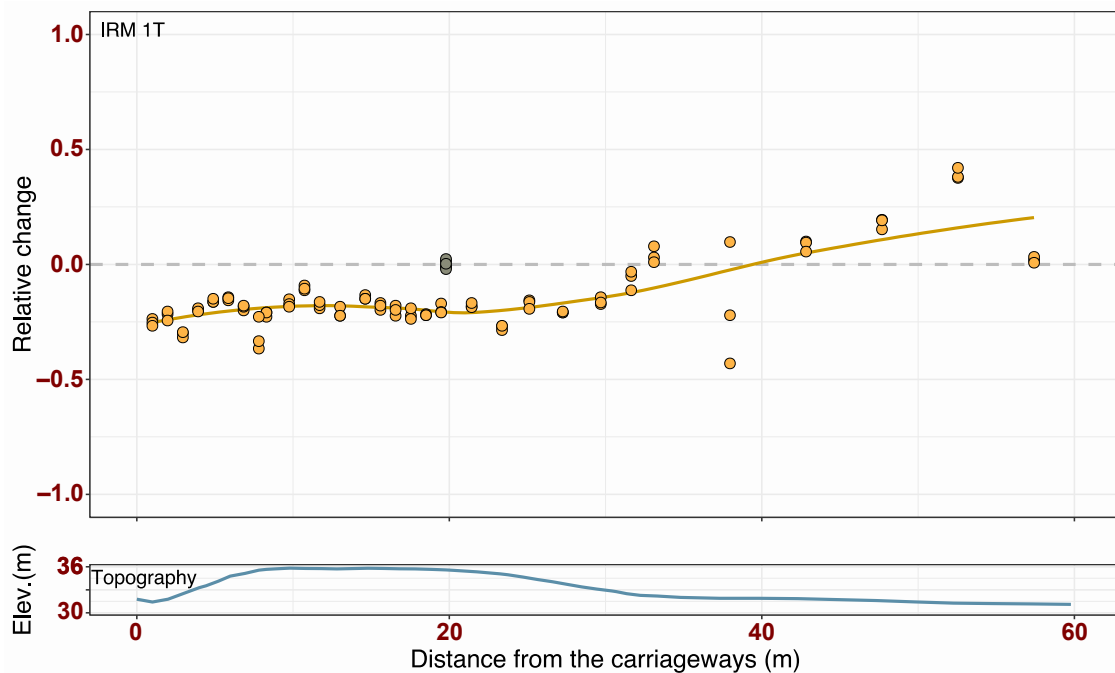


Figure 6. Relative changes from surface soil samples (yellow closed circles) along the transect shown on Figure 1. RC are calculated with a reference sample (gray circles) taken at 1-m depth with an auger from the top of the berm.

3.2. PM Dispersion Modeling Results

The openFoam test cases were uploaded to the Zenodo open-access repository [62] and are available under the Common Creative license to reproduce the results obtained in the present study.

Equation (1) was resolved with the scalarTransportFoam solver included in the open source openFoam platform tools after having made some slight modifications to the source code in order to consider the turbulent diffusivity. This modification is required, since for PM in general [33] and for PM_{2.5} in particular, the effective diffusivity (Γ_D) is mainly controlled by the turbulent diffusivity (Γ_T) rather than the laminar (Γ_L) diffusivity. In the present case, Γ_T computed from the model outcome with Equation (4) is within the range 10^{-3} to 10^1 m^2s^{-1} , which compares with 1.007×10^{-11} m^2s^{-1} for Γ_L calculated with Equation (2) applied to PM_{2.5}. The scalarTransportFoam solver also does not consider the gravitational settling term. However, no change is required in this sense because the settling speed (U_s) being equal to 2.12×10^{-4} m s^{-1} for PM_{2.5}, the gravitational settling term can be neglected without adversely affecting the results. The emission source term Sc is entered in Equation (1) as a volumetric source assuming that the vehicle pollutants are homogeneously thinned down and mixed in a volume over the carriageways by the fleet-induced turbulence and momentum. Here, Sc is distributed over four rectangular cuboids of a cross-sectional of $5 \text{ m} \times 10 \text{ m}$ area each and a length corresponding to the full width of the domain (see Figure A2 for illustration). These volumetric sources are centered on each 3-lane carriageway. We applied PM_{2.5} emission values equal to 0.35 and 0.42 $\mu\text{g m}^{-3} \text{ s}^{-1}$ for A9 and A709 motorways, respectively, which were calculated from the traffic data (Table 1) and an overall PM_{2.5} emission rate of 0.025 $\text{g veh}^{-1} \text{ km}^{-1}$ found in the bibliography for a current mixed light/heavy-duty traffic [37].

Table 1. Mean daily traffic density used to calculate fleet momentum and turbulence. LD and HD are daily numbers of light duty and heavy duty vehicles with their respective proportions used in the model (LD:HD). Distance corresponds to the distance between two consecutive vehicles. Note that only the numbers in bold characters are derived from traffic data (see text for explanation) in the north–south direction. We assumed that these values are the same for traffic in the opposite direction. U, k, and ϵ are the average velocity deficit, average turbulent kinetic energy and average turbulent dissipation rate, respectively, derived from the modeling.

Lane	LD	HD	Total	LD:HD	Distance (m)	U (m s ⁻¹)	k (m ² s ⁻²)	ϵ (m ² s ⁻³)
A9 Motorway								
right	9441	9441	18,882	3:2	114			
middle	25,176	3147	28,323	7:1	76			
left	12,742	0	12,742	4:0	170			
			59,947			7.3	2.1	1.3
A709 Motorway								
right	21,696	3616	25,312	6:1	85			
middle	32,009	0	32,009	9:0	68			
left	16,004	0	16,004	5:0	135			
			73,325			6.5	1.7	0.9

The stationary field u in Equation (1) was calculated in two steps. By means of a precursor zero-wind model, the mean fleet-induced turbulence and momentum were calculated from an average traffic configuration constructed from 4-month-averaged daily data provided by the motorway company. In the absence of precise information on traffic volume by lane, we have arbitrarily distributed the proportion of vehicle on each lane with the only constraint preventing heavy goods vehicles from using the leftmost lane reserved to the light-duty vehicles. Furthermore, care has been taken to keep the ratio between light- and heavy-duty vehicles for the 3-lane carriageways close to the data. From this vehicle density, we calculated a distance between two consecutive vehicles by considering that all vehicles travel at the maximum authorized speed of 90 km/h. Therefore, our model has a perfectly realistic but obviously not unique configuration. The model parameters and the metrics of turbulence and momentum derived from the zero-wind model are given in Table 1 and illustrated in Figure 7. These parameters are calculated over a volume of a cross-sectional area of 5 m × 10 m along the full length of the domain fixed from the vehicle density design in this precursor model at 620 m. They are subsequently used in a second step as volumetric turbulence and momentum source terms in the atmospheric wind modeling over the same volume as the one used for pollutant emissions. Five different inlet profiles were considered in the atmospheric wind modeling through different friction velocity U^* values in Equation (6): four in the prevailing wind direction and one in the opposite direction. We calculated U^* in order to obtain reference velocities of 5, 7, 10, and 12 ms⁻¹ at a height of 8.5 m corresponding to the top of the precast noise wall atop of the earth berm for the prevailing wind direction cases, and 7 ms⁻¹ at a height of 4 m corresponding to the top of the flat-top earth berm for the opposite wind direction case. Traffic-related PM2.5 concentrations are monitored along six vertical profiles that are located on Figure 2 and are illustrated in Figure 8.

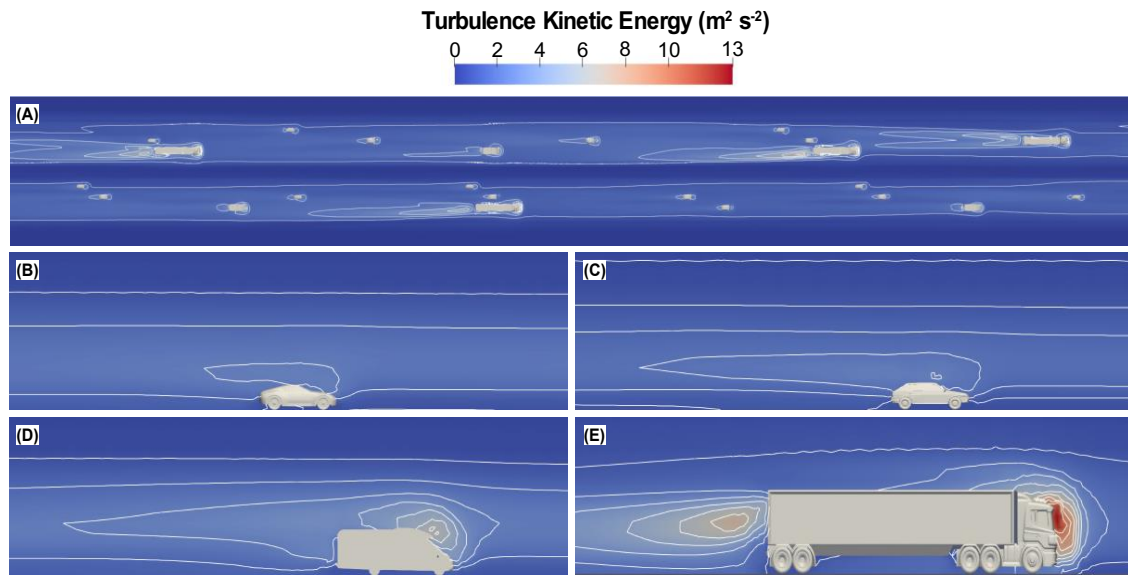


Figure 7. Turbulence kinetic energy obtained in a zero-wind flat terrain model in which all the fleet moves with a speed of 25 m/s. (A) Downward zoomed view from the top of the domain, (B–E) zoomed view from the front of the domain of the four vehicle types used in the model, which are (B) sports car, (C) family car, (D) motorhome, and (E) heavy goods.

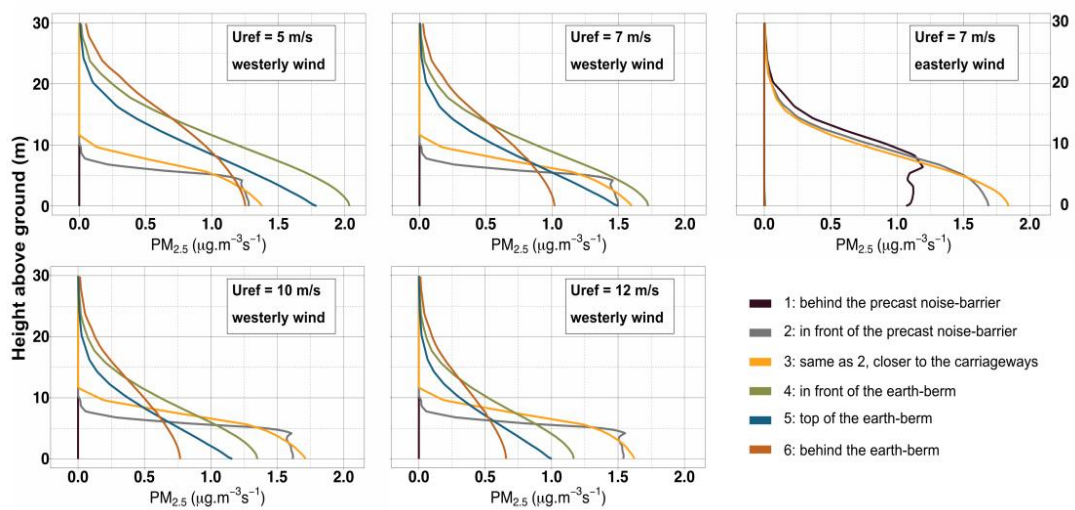


Figure 8. $PM_{2.5}$ concentration calculated along six vertical profiles localized on both sides of the berm roofed with a precast noise barrier and the flat-top earth berm (see Figure 2) with reference velocities of 5, 7, 10, and 12 m/s in the prevailing wind direction and 7 m/s in the opposite wind direction.

3.3. E-PM μ -Sensors Recording

We used the analytical data published in a public report of $PM_{2.5}$ concentrations carried out by the regional air agency from 9 August to 24 September 2019 (Figure 9) that were obtained by means of e-PM™ μ -sensors. These non-certified and not precisely calibrated micro-sensors only provide relative information with respect to each other. According to the engineers in charge of these measurements, the measured value cannot be directly interpreted. Consequently, we calculated from the daily means the relative change with Equation (9) between measurements done in front of (motorway side) and behind (opposite side) the earth berms, assuming this later as the reference measurement. Close to zero, within the limits of the precision of these devices, it would seem that the flat-top earth berm

downwind to the traffic does not play a role in retaining the pollutants, whether in terms of blockage or in terms of dispersion. These observations are in line with the CFD modeling results.

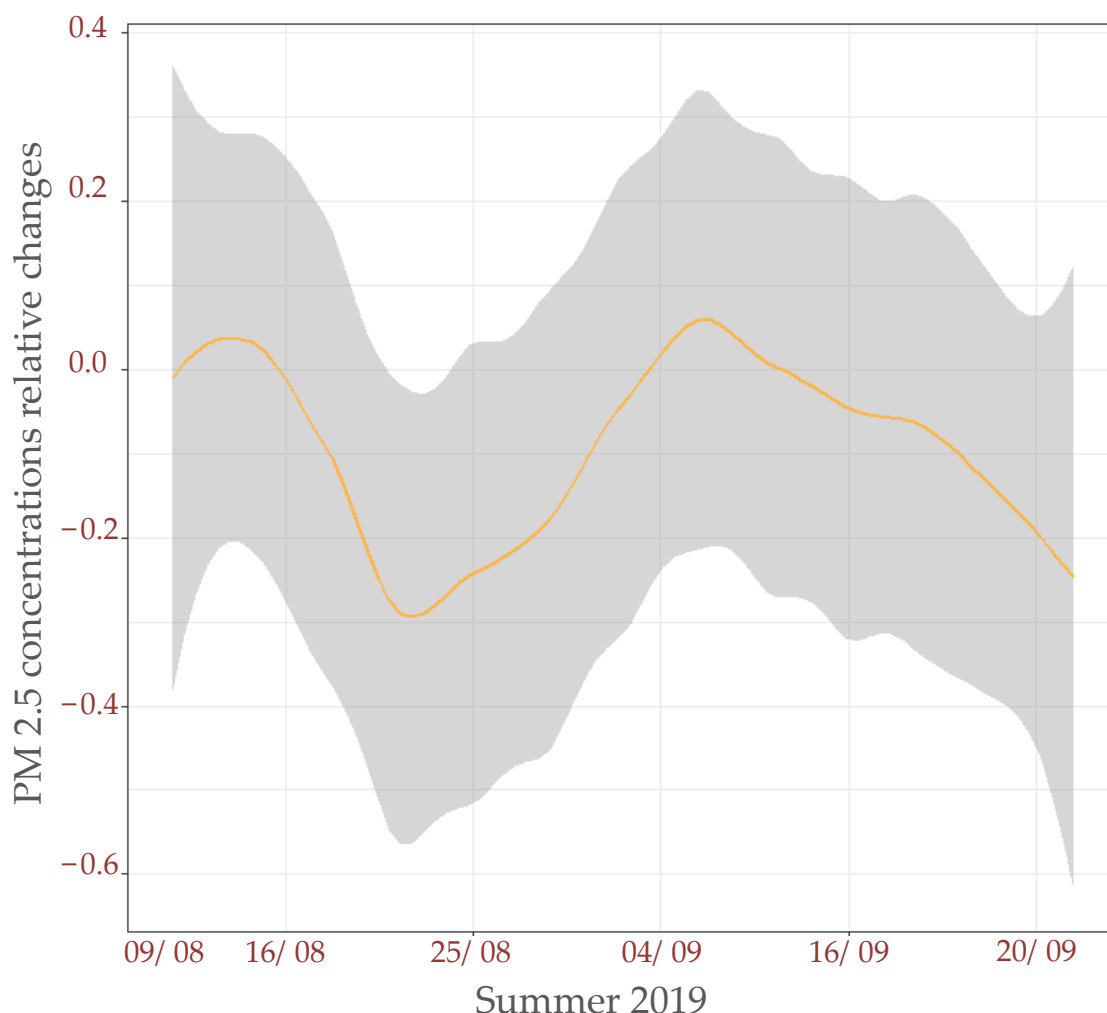


Figure 9. Relative changes calculated from e-PM μ -sensors located in front (traffic side) and behind (opposite side) the flat-top earth berm. We used Equation (9) with as the reference measure the record behind the earth berm.

4. Discussion

4.1. Quality of the Magnetic Measurements

As it has been widely discussed in numerous studies [21], our survey confirms that imparting in the laboratory and then measuring an isothermal remanent magnetization on accumulative surfaces can be a useful and reliable proxy for air quality. This inference is based on the observation of a similar pattern of near-traffic pollutant deposition yielded from measurements on both artificial filters and plant leaves corroborating the outcomes of a CFD numerical modeling. This result validates a posteriori several intrinsic hypotheses of the magnetic approach. For instance, it may indicate that the measurements on the *Cercis Siliquastrum* leaves are not biased by the phenomenon of translocation of elements from the soil to the leaves. It could also validate that the rain has no impact on featuring the spatial general trend of PM deposition. Whether wet accumulation of atmospheric particles or on the contrary leaching phenomenon, we hypothesize that a bias introduced by rain, if any, should be cancelled out by the calculation of the relative change with respect to a reference measurement assuming a constant influence of the rain at the local scale. This hypothesis needs to be further tested in the

future by simulating, for example, artificial leaching on some plants. Obviously, this question does appear to deserve a study in its own right. Of course, this remark remains valid concerning all the parameters that could cause variance in the magnetic response not linked to the surveyed source of pollutants. We think in particular on the nature and on the domain-like behavior of the magnetic oxides, assumed with no certainty to be identical over the entire study area including the reference sample. Two results require a specific comment.

The first concerns the weak strength in the pair-wise correlation observed in Figure 3B between the magnetization intensity and the concentration in main trace elements. We believe that the unexplained variance is induced by an unsuitable sample preparation chosen to be well suited for the XRF experiments. By drying and reducing samples to powder, it is quite likely that a variable and unknown quantity of pollutants might be lost during handling. Alternative protocols such as leaching and filtering the surface settling should be tested when XRF and magnetic measurements have to be carried out on the same samples. Another track to explore to address the weakness of this correlation is the normalization of magnetic measurements by the sample masses. Doing this, we included the parameter of the thickness of the leaves, which can be variable from one leaf to another and which plays no obvious role in the catchment efficiency by a leaf's surfaces. When only a magnetic measurement has to be made, we recommend reducing the handling by working on fresh samples and by normalizing the measurements per unit of area, which is similar to what we did to build the mapping of PM deposition illustrated in Figure 5. From a physical point of view, measuring fresh leaf samples does not have any impact on the magnetic measurements, since water presents a diamagnetic behavior, which is not detected as soon as a small amount of ferromagnetic (*lato sensu*) particles is included in dust composition.

The second concerns the meaning of the measurements carried out on the soil samples taken at the earth berm surface along the transect perpendicular to the traffic lanes. In one hand, the surface soil samples have clearly a traffic signature highlighted with PCA analysis (Figure 4) and a Cu:Sb ratio lower than 10. On the other hand, the magnetic signal does not provide evidence for a surface enrichment with traffic-related PM in regard to the sample reference (Figure 6), regardless of the distance from the motorway along the earth-berm transect. Without further analyses, we can tentatively imagine that our preferred scenario is the following. We know from the motorway company that the clay materials used to build the earth berm were collected during the construction along the former motorway and possibly they could have been taken from an old retention pond for storing the runoff waters on the original carriageways. Since the former motorway was built over fifty years ago, we can assume that these clays have been exposed to a significant pollution prior their present use as earth berm. Thus, the measured chemical signal would be an inherited signal. The reworking of the clays during the berm construction would explain the homogeneity of the signal. Considering that this earth berm was built in 2017, this implies that the two years during which the earth-berm surface was exposed to the present traffic are not long enough to accumulate traffic products in a sufficient quantity to be detected by magnetic and geochemical proxies. We note that this scenario is compatible with the results of the CFD modeling showing a relatively low concentration of pollutants at the earth-berm surface as well as with the μ -sensor data. A second scenario that may perhaps be considered involves a migration of pollutants from the surface to the subsoil driven by percolating water. Regardless of the possible explanation, soil samples from earth berms do not appear to be good candidates for pollutants monitoring.

4.2. Determination of the Sources of the Traffic-Related PM from Elemental Analysis

Our attempt to precisely determine the sources of trace elements from elemental XRF analysis is questionable. First of all, this approach is limited because it requires sufficient concentrations in trace elements that we have only found in soils, thereby excluding plant leaves from this analysis. In the specific case of soil samples collected on earth berms, a pollution inheritance problem such as the one we have highlighted in this study may shadow the signal being queried. Next, it should also

be recognized that the determination of the sources by means of associations between trace elements as yielded from the PCA analysis (Figure 4) is not straightforward and can be tricky to decipher. The main reason is that the correlation between elements can vary widely according to distinctive regional characteristics of the traffic and the period under consideration. The type of road and asphalt pavement, the speed limit, the ratio between light and heavy duty vehicles, the fuel type, and also the local climatic conditions are the main factors impacting the emission type and the relative contributions from exhaust and non-exhaust emissions [61]. For instance, the United States of America first forbade the leaded gasoline in 1975, followed by Europe in 2000. Even if Indian and Chinese fuel quality standards generally mimic European ones, regional features may be observed, since cities and regions in China can develop and implement their own fuel quality standards, while India currently has two fuel quality standards [63]. So, it would not be correct to compare the elemental composition of traffic emission with those from other non-European countries. In our approach, the main issue remains probably the era because most of the papers we quoted are older than ten to fifteen years, which makes the comparisons pretty complex. Indeed, a survey only based on comparison with results found in the bibliography is less suitable than a study that would have first characterized the signature of the current local traffic. Since the nature and the origin of pollutant are everchanging, a relevant approach is to jointly perform elemental or isotopic analyses in tunnel e.g., [55,64] under similar driving conditions. Unfortunately, we were not able to carry out such comparison in the present study. Finally, despite all these caveats, we believe that the widely used Cu:Sb ratio remains efficient to detect the signature of the braking system wear [61]. These two elements are easily detected by XRF measurements, and the threshold values characteristic of a natural and a traffic signal are significantly different.

4.3. Biomagnetic Monitoring vs. CFD Simulations

The mapping of traffic-related PM depositions illustrated in Figure 5 is characterized by an asymmetry between the two sides of the traffic lanes, which seems to be mainly driven, in addition to the wind direction, by the noise barrier design configuration.

Surprisingly, we did not observe a significant airborne accumulation on filters and plant leaves collected on the leeward side of the carriageways from the flat-top earth berms. The signal measured on soils, although more complex to analyze, seems in line with this observation. The same remark applies to the PM concentrations provided with the e-PM™ μ -sensors, as illustrated in Figure 9. The slope of the earth berm calculated for noise deflection while limiting sound reflection on its source side appears also in the CFD modeling very effective in creating an upward deflection of the incoming air flow promoting the dispersion of fine particles in the atmosphere. Then, the low PM concentration in the near wake of the flat-top earth berm is explained by the absence of down-flow or recirculating flow behind the berm (Figure 8). Therefore, for the case where the source is downwind of the flat-top earth berm, i.e., wind in the opposite direction of the prevailing wind, the local traffic does not contribute to the PM concentration on the berm, as shown in Figure 8. The influence of the flat-top earth berm in the pollutant concentration at greater distance away from the motorway could not be assessed here, since this study was designed to stay focused on the near-source deposition.

Just as startling, the concentration of PM appears to be more important in the near wake of the wall noise barrier atop the earth berm that is located on the windward side of the carriageways. This observation is counterintuitive, since the source is downwind to this structure for the prevailing wind. The CFD modeling indicates that such design can generate a large recirculation wake region formed on the leeward side of the wall that brings back to the wall the pollutant generated on the nearest traffic lanes. When the source is upwind of the wall noise barrier, i.e., wind in the opposite direction of the prevailing wind, this design hampers the pollutant dispersion contributing to enhance the PM deposition in front of the wall. This result is seldom described in the literature because studies are generally focused on the cases involving noise barriers downwind to the traffic in order to investigate their shielding impact off the motorway on residential areas.

The comparison between wall-top versus flat-top earth berms is only valid for the current state of the earth berms on which the vegetation is clear cut and not fully developed, because it was planted only two years before the survey. It seems important to reproduce this study when the vegetation will be woody and fully developed to check the impact of vegetated earth berms on the dispersion of the near-traffic pollution. The question on the efficiency of vegetated earth berms to remove airborne pollutants by deposition is still pending to our knowledge and deserves to be explored. For this, it will be necessary to know a detailed quantification of deposition velocities and capture efficiencies for each endemic species installed on the earth berm in order to integrate in the CFD modeling a realistic dry deposition sink term. Since these parameters are not all available in the literature, a preliminary consistent study of wind tunnel experiments will be necessary.

5. Conclusions

We have evaluated the role of magnetic biomonitoring as further information to validate and strengthen CFD simulations of the dispersion of local traffic-related PM along a 12-lane motorway east to Montpellier, France. The test site comprises three flat-top earth berms and one roofed by a precast wall that were designed and installed by the motorway company to mitigate noise pollution. The innovative feature of this study is based on the multidisciplinary approach combining dustmeter measurements (e-PM μ -sensor), environmental magnetism, and XRF measurements as a constraint for a numerical model of fluid dynamics (CFD) based on the RANS equations (Reynolds-Averaged Navier–Stokes) and parameterized with the characteristics of the study area (highway development, prevailing wind direction, number of average circulating vehicles). The special feature of the CFD modeling is to consider the average road traffic by means of a volumetric source of average fleet turbulence, momentum, and PM emissions. All the data obtained in this study, whether experimental measurements or results from the CFD modeling, provide two clear conclusions:

- An asymmetry is evidenced in PM traffic-related depositions between the both sides of the motorway carriageways. A recirculation phenomenon and a blockage effect for the opposite wind direction is clearly observed around the noise barrier wall atop of the berm, while standard flat-top earth berms seem to favor the atmospheric dispersion of pollutants. The recent revegetation of merlons (only ≈ 50 cm high shrubs) clearly has no impact today on the mitigation effect of pollution.
- The IRM intensity of PM deposition on plant leaves has proven to be a useful and relevant tool well suited for an overview of near-source deposition of traffic-related PM with the relevant following precautions. The magnetic data have to be expressed by means of relative change to pinpoint the local traffic signal by subtracting the regional background of PM concentration. Storing the samples in a null-field environment for a few dozen minutes after the acquisition of IRM and before the measurements is required in order to avoid the viscous effect inherent to this type of magnetization.

Author Contributions: Conceptualization, P.C. and S.L.; methodology, P.C., S.L., D.B.; analytical experiments, S.L., R.P., and P.C.; statistical analysis, S.L.; sampling, S.L., P.C., P.N., R.P.; Equipment maintenance, T.P. and P.N.; writing-original draft preparation, S.L. and P.C.; All authors have read and agreed to the published version of the manuscript.

Funding: This research was funded by the Agence Nationale de la Recherche (ANR) grant number ANR-19-CE04-0008 through the BREATHE project, and by a partnership agreement between the ASF/VINCI company and the CNRS, partnership number 169162, Air9 project.

Acknowledgments: We thank Mathilde Bardon, Cinderella Boyrie and Julie Faure for helping us during the soil sampling, as well as Julien Camps for his contribution in the development of the numerical topography and in the traffic simulations. We would particularly like to thank Georges Fandos from the MDPMA9 citizen association and the municipality of Saint-Aunès through its first magistrate, Alain Hugues, who have greatly contributed to the development of the experimental site along the motorway. We finally acknowledge the three anonymous reviewers for their constructive comments and discussion, which helped to improve the manuscript.

Conflicts of Interest: The authors declare no conflict of interest.

Appendix A

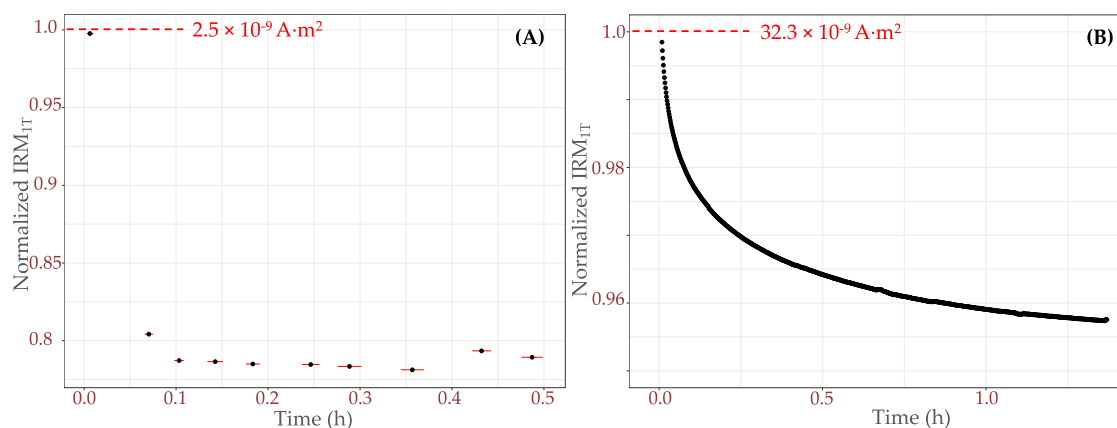


Figure A1. Normalized IRM_{1T} variations over the time for (A) sample holder and (B) holder filled with samples, illustrating the weak viscous effect due to the presence of iron-oxide impurities in the plastic molding such as superparamagnetic or a multi-domain like behavior particles.

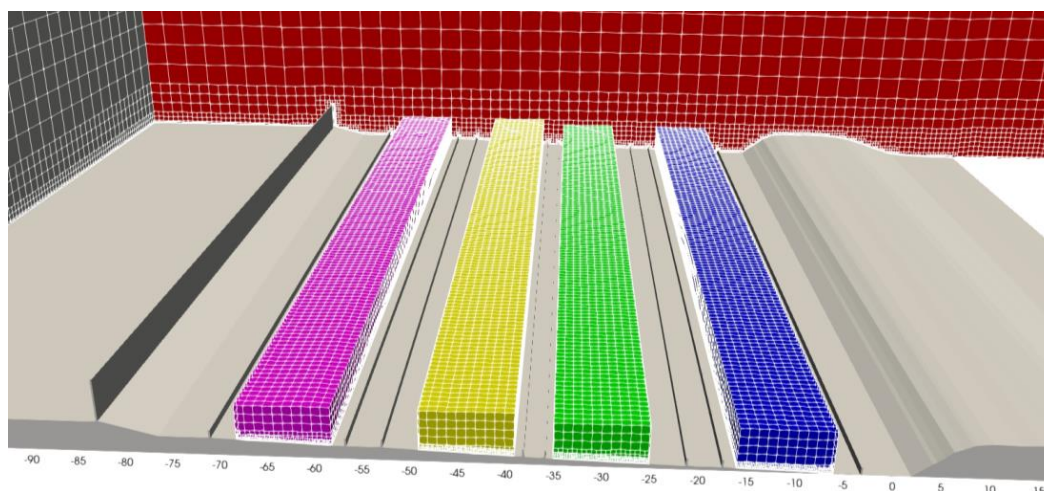


Figure A2. Four rectangular cuboids representing the traffic lanes and used as volumetric sources for the traffic momentum and turbulence in the modeling of the stationary wind velocity field and in the passive scalar equation as volumetric sources for PM emission.

References

1. Department of Economic and Social Affairs. *World Urbanization Prospects: The 2018 Revision*; UN: New York, NY, USA, 2019; ISBN 9789210043144.
2. Hama, S.M.L.; Cordell, R.L.; Monks, P.S. Quantifying primary and secondary source contributions to ultrafine particles in the UK urban background. *Atmos. Environ.* **2017**, *166*, 62–78. [[CrossRef](#)]
3. Kumar, P.; Morawska, L.; Birmili, W.; Paasonen, P.; Hu, M.; Kulmala, M.; Harrison, R.M.; Norford, L.; Britter, R. Ultrafine particles in cities. *Environ. Int.* **2014**, *66*, 1–10. [[CrossRef](#)] [[PubMed](#)]
4. Stone, V.; Miller, M.R.; Clift, M.J.D.; Elder, A.; Mills, N.L.; Møller, P.; Schins, R.P.F.; Vogel, U.; Kreyling, W.G.; Alstrup Jensen, K.; et al. Nanomaterials Versus Ambient Ultrafine Particles: An Opportunity to Exchange Toxicology Knowledge. *Environ. Health Perspect.* **2017**, *125*, 106002. [[CrossRef](#)] [[PubMed](#)]
5. Newby, D.E.; Mannucci, P.M.; Tell, G.S.; Baccarelli, A.A.; Brook, R.D.; Donaldson, K.; Forastiere, F.; Franchini, M.; Franco, O.H.; Graham, I.; et al. Expert position paper on air pollution and cardiovascular disease. *Eur. Heart J.* **2015**, *36*, 83–93. [[CrossRef](#)]

6. Maher, B.A.; Ahmed, I.A.M.; Karloukovski, V.; MacLaren, D.A.; Foulds, P.G.; Allsop, D.; Mann, D.M.A.; Torres-Jardón, R.; Calderon-Garciduenas, L. Magnetite pollution nanoparticles in the human brain. *Proc. Natl. Acad. Sci. USA* **2016**, *113*, 10797–10801. [CrossRef]
7. European Environment Agency. *Air Quality in Europe—2019 Report*; EEA: Copenhagen, Denmark, 2019; Volume 10, Chapter 10; ISBN 978-92-9480-088-6.
8. Lelieveld, J.; Klingmüller, K.; Pozzer, A.; Pöschl, U.; Fnais, M.; Daiber, A.; Münzel, T. Cardiovascular disease burden from ambient air pollution in Europe reassessed using novel hazard ratio functions. *Eur. Heart J.* **2019**, *40*, 1590–1596. [CrossRef]
9. EUROPEAN COMMISSION. A Europe that Protects: Clean Air for All. Available online: https://ec.europa.eu/environment/air/pdf/clean_air_for_all.pdf (accessed on 5 June 2018).
10. Van Renterghem, T.; Botteldooren, D. On the choice between walls and berms for road traffic noise shielding including wind effects. *Landsc. Urban Plan.* **2012**, *105*, 199–210. [CrossRef]
11. Jeong, S.J. A CFD Study of Roadside Barrier Impact on the Dispersion of Road Air Pollution. *Asian J. Atmos. Environ.* **2015**, *9*, 22–30. [CrossRef]
12. Baldauf, R.; Thoma, E.; Khlystov, A.; Isakov, V.; Bowker, G.; Long, T.; Snow, R. Impacts of noise barriers on near-road air quality. *Atmos. Environ.* **2008**, *42*, 7502–7507. [CrossRef]
13. Hagler, G.S.W.; Lin, M.-Y.; Khlystov, A.; Baldauf, R.W.; Isakov, V.; Faircloth, J.; Jackson, L.E. Field investigation of roadside vegetative and structural barrier impact on near-road ultrafine particle concentrations under a variety of wind conditions. *Sci. Total Environ.* **2012**, *419*, 7–15. [CrossRef]
14. Mao, Y.; Wilson, J.D.; Kort, J. Effects of a shelterbelt on road dust dispersion. *Atmos. Environ.* **2013**, *79*, 590–598. [CrossRef]
15. Steffens, J.T.; Heist, D.K.; Perry, S.G.; Zhang, K.M. Modeling the effects of a solid barrier on pollutant dispersion under various atmospheric stability conditions. *Atmos. Environ.* **2013**, *69*, 76–85. [CrossRef]
16. Tong, Z.; Baldauf, R.W.; Isakov, V.; Deshmukh, P.; Max Zhang, K. Roadside vegetation barrier designs to mitigate near-road air pollution impacts. *Sci. Total Environ.* **2016**, *541*, 920–927. [CrossRef] [PubMed]
17. Ozdemir, H. Mitigation impact of roadside trees on fine particle pollution. *Sci. Total Environ.* **2019**, *659*, 1176–1185. [CrossRef]
18. Ram, S.S.; Majumder, S.; Chaudhuri, P.; Chanda, S.; Santra, S.C.; Chakraborty, A.; Sudarshan, M. A Review on Air Pollution Monitoring and Management Using Plants with Special Reference to Foliar Dust Adsorption and Physiological Stress Responses. *Crit. Rev. Environ. Sci. Technol.* **2015**, *45*, 2489–2522. [CrossRef]
19. Janhäll, S. Review on urban vegetation and particle air pollution—Deposition and dispersion. *Atmos. Environ.* **2015**, *105*, 130–137. [CrossRef]
20. Abhijith, K.V.; Kumar, P. Quantifying particulate matter reduction and their deposition on the leaves of green infrastructure. *Environ. Pollut.* **2020**, *265*, 114884. [CrossRef]
21. Hofman, J.; Maher, B.A.; Muxworthy, A.R.; Wuyts, K.; Castanheiro, A.; Samson, R. Biomagnetic Monitoring of Atmospheric Pollution: A Review of Magnetic Signatures from Biological Sensors. *Environ. Sci. Technol.* **2017**, *51*, 6648–6664. [CrossRef]
22. Maher, B.A.; Moore, C.; Matzka, J. Spatial variation in vehicle-derived metal pollution identified by magnetic and elemental analysis of roadside tree leaves. *Atmos. Environ.* **2008**, *42*, 364–373. [CrossRef]
23. Castanheiro, A.; Samson, R.; De Wael, K. Magnetic- and particle-based techniques to investigate metal deposition on urban green. *Sci. Total Environ.* **2016**, *571*, 594–602. [CrossRef]
24. Wang, H.; Maher, B.A.; Ahmed, I.A.M.; Davison, B. Efficient Removal of Ultrafine Particles from Diesel Exhaust by Selected Tree Species: Implications for Roadside Planting for Improving the Quality of Urban Air. *Environ. Sci. Technol.* **2019**, *53*, 6906–6916. [CrossRef] [PubMed]
25. Maher, B.A.; Thompson, R. *Quaternary Climates, Environments and Magnetism*; Maher, B.A., Thompson, R., Eds.; Cambridge University Press: Cambridge, UK, 1999; ISBN 9780521624176.
26. Dzierżanowski, K.; Poppek, R.; Gawrońska, H.; Sæbø, A.; Gawroński, S.W. Deposition of Particulate Matter of Different Size Fractions on Leaf Surfaces and in Waxes of Urban Forest Species. *Int. J. Phytoremediation* **2011**, *13*, 1037–1046. [CrossRef] [PubMed]
27. Przybysz, A.; Sæbø, A.; Hanslin, H.M.; Gawroński, S.W. Accumulation of particulate matter and trace elements on vegetation as affected by pollution level, rainfall and the passage of time. *Sci. Total Environ.* **2014**, *481*, 360–369. [CrossRef] [PubMed]

28. Chiam, Z.; Song, X.P.; Lai, H.R.; Tan, H.T.W. Particulate matter mitigation via plants: Understanding complex relationships with leaf traits. *Sci. Total Environ.* **2019**, *688*, 398–408. [[CrossRef](#)]
29. Castanheiro, A.; Hofman, J.; Nuyts, G.; Joosen, S.; Spassov, S.; Blust, R.; Lenaerts, S.; De Wael, K.; Samson, R. Leaf accumulation of atmospheric dust: Biomagnetic, morphological and elemental evaluation using SEM, ED-XRF and HR-ICP-MS. *Atmos. Environ.* **2020**, *221*, 117082. [[CrossRef](#)]
30. Cao, L.; Appel, E.; Hu, S.; Ma, M. An economic passive sampling method to detect particulate pollutants using magnetic measurements. *Environ. Pollut.* **2015**, *205*, 97–102. [[CrossRef](#)]
31. Néel, L. Théorie du traînage magnétique des ferromagnétiques en grains fins avec application aux terres cuites. *Ann. Géophys.* **1949**, *5*, 99–136.
32. Sagnotti, L.; Taddeucci, J.; Winkler, A.; Cavallo, A. Compositional, morphological, and hysteresis characterization of magnetic airborne particulate matter in Rome, Italy. *Geochem. Geophys. Geosyst.* **2009**, *10*. [[CrossRef](#)]
33. Guo, L.; Maghirang, R.G. Numerical Simulation of Airflow and Particle Collection by Vegetative Barriers. *Eng. Appl. Comput. Fluid Mech.* **2012**, *6*, 110–122. [[CrossRef](#)]
34. Bonifacio, H.F.; Maghirang, R.G.; Glasgow, L.A. Numerical Simulation of Transport of Particles Emitted From Ground-Level Area Source Using Aermot and CFD. *Eng. Appl. Comput. Fluid Mech.* **2014**, *8*, 488–502. [[CrossRef](#)]
35. Jeanjean, A.P.R.; Hinchliffe, G.; McMullan, W.A.; Monks, P.S.; Leigh, R.J. A CFD study on the effectiveness of trees to disperse road traffic emissions at a city scale. *Atmos. Environ.* **2015**, *120*, 1–14. [[CrossRef](#)]
36. ACEA. Vehicles in Use Europe 2019. Available online: <https://www.acea.be/publications/article/report-vehicles-in-use-europe-2019> (accessed on 15 July 2020).
37. Wang, X.; Khlystov, A.; Ho, K.-F.; Campbell, D.; Chow, J.C.; Kohl, S.D.; Watson, J.G.; Lee, S.-C.F.; Chen, L.-W.A.; Lu, M.; et al. Real-World Vehicle Emissions Characterization for the Shing Mun Tunnel in Hong Kong and Fort McHenry Tunnel in the United States. *Res. Rep. Health. Eff. Inst.* **2019**. Available online: <https://www.ncbi.nlm.nih.gov/pmc/articles/PMC7282032/> (accessed on 25 November 2020).
38. Lawrence, S.; Sokhi, R.; Ravindra, K. Quantification of vehicle fleet PM10 particulate matter emission factors from exhaust and non-exhaust sources using tunnel measurement techniques. *Environ. Pollut.* **2016**. [[CrossRef](#)] [[PubMed](#)]
39. Abu-Allaban, M.; Coulomb, W.; Gertler, A.W.; Gillies, J.; Pierson, W.R.; Rogers, C.F.; Sagebiel, J.C.; Tarnay, L. Exhaust Particle Size Distribution Measurements at the Tuscarora Mountain Tunnel. *Aerosol Sci. Technol.* **2002**, *36*, 771–789. [[CrossRef](#)]
40. Blocken, B. Computational Fluid Dynamics for urban physics: Importance, scales, possibilities, limitations and ten tips and tricks towards accurate and reliable simulations. *Build. Environ.* **2015**, *91*, 219–245. [[CrossRef](#)]
41. Jones, W.; Launder, B. The prediction of laminarization with a two-equation model of turbulence. *Int. J. Heat Mass Transf.* **1972**, *15*, 301–314. [[CrossRef](#)]
42. Peralta, C.; Nugusse, H.; Kokilavani, S.P.; Schmidt, J.; Stoevesandt, B. Validation of the simpleFoam (RANS) solver for the atmospheric boundary layer in complex terrain. *ITM Web Conf.* **2014**, *2*, 01002. [[CrossRef](#)]
43. Solazzo, E.; Cai, X.; Vardoulakis, S. Modelling wind flow and vehicle-induced turbulence in urban streets. *Atmos. Environ.* **2008**, *42*, 4918–4931. [[CrossRef](#)]
44. Wang, Y.J.; Nguyen, M.T.; Steffens, J.T.; Tong, Z.; Wang, Y.; Hopke, P.K.; Zhang, K.M. Modeling multi-scale aerosol dynamics and micro-environmental air quality near a large highway intersection using the CTAG model. *Sci. Total Environ.* **2013**, *443*, 375–386. [[CrossRef](#)]
45. Buccolieri, R.; Jeanjean, A.P.R.; Gatto, E.; Leigh, R.J. The impact of trees on street ventilation, NO_x and PM_{2.5} concentrations across heights in Marylebone Rd street canyon, central London. *Sustain. Cities Soc.* **2018**, *41*, 227–241. [[CrossRef](#)]
46. Bowker, G.E.; Baldauf, R.; Isakov, V.; Khlystov, A.; Petersen, W. The effects of roadside structures on the transport and dispersion of ultrafine particles from highways. *Atmos. Environ.* **2007**, *41*, 8128–8139. [[CrossRef](#)]
47. Reiminger, N.; Jurado, X.; Vazquez, J.; Wemmert, C.; Blond, N.; Dufresne, M.; Wertel, J. Effects of wind speed and atmospheric stability on the air pollution reduction rate induced by noise barriers. *J. Wind Eng. Ind. Aerodyn.* **2020**, *200*, 104160. [[CrossRef](#)]

48. Patterson, R.F.; Harley, R.A. Evaluating near-roadway concentrations of diesel-related air pollution using RLINE. *Atmos. Environ.* **2019**, *199*, 244–251. [[CrossRef](#)]
49. Franke, J.; Hellsten, A.; Schlünzen, H.; Carissimo, B. *Best Practice Guideline for the CFD Simulation of Flows in the Urban Environment*; European Cooperation in Science and Technology: Brussels, Belgium, 2007; ISBN 3000183124.
50. Richards, P.J.; Norris, S.E. Appropriate boundary conditions for computational wind engineering models revisited. *J. Wind Eng. Ind. Aerodyn.* **2011**, *99*, 257–266. [[CrossRef](#)]
51. Richards, P.J.; Norris, S.E. Appropriate boundary conditions for computational wind engineering: Still an issue after 25 years. *J. Wind Eng. Ind. Aerodyn.* **2019**, *190*, 245–255. [[CrossRef](#)]
52. Van Doormaal, J.P.; Raithby, G.D. Enhancements of the Simple Method for Predicting Incompressible Fluid Flows. *Numer. Heat Transf. Part B Fundam.* **1984**, *7*, 147–163. [[CrossRef](#)]
53. Lê, S.; Josse, J.; Husson, F. FactoMineR: An R Package for Multivariate Analysis. *J. Stat. Softw.* **2008**, *25*. [[CrossRef](#)]
54. De Miguel, E.; Llamas, J.F.; Chacón, E.; Berg, T.; Larssen, S.; Røyset, O.; Vadset, M. Origin and patterns of distribution of trace elements in street dust: Unleaded petrol and urban lead. *Atmos. Environ.* **1997**, *31*, 2733–2740. [[CrossRef](#)]
55. Sternbeck, J.; Sjödin, Å.; Andréasson, K. Metal emissions from road traffic and the influence of resuspension—results from two tunnel studies. *Atmos. Environ.* **2002**, *36*, 4735–4744. [[CrossRef](#)]
56. Carsignol, J.; Calovi, L. *La Pollution des Sols et des Végétaux à Proximité des Routes—Les éléments Traces Métalliques (ETM)*; SETRA: Sourdun, France, 2004.
57. Birmili, W.; Allen, A.G.; Bary, F.; Harrison, R.M. Trace metal concentrations and water solubility in size-fractionated atmospheric particles and influence of road traffic. *Environ. Sci. Technol.* **2006**, *40*, 1144–1153. [[CrossRef](#)]
58. Weckwerth, G. Verification of traffic emitted aerosol components in the ambient air of Cologne (Germany). *Atmos. Environ.* **2001**, *35*, 5525–5536. [[CrossRef](#)]
59. Sarkar, B. *Heavy Metals in the Environment*; CRC Press: Boca Raton, FL, USA, 2002; ISBN 0203909305/9780203909300.
60. Veschambre, S. Caractérisation et Quantification des Eléments Traces Métalliques Dans les Dépôts et les Particules Atmosphériques de la Vallée d’Aspe-Mise en Place d’Indicateurs de la Qualité de l’Air. Ph.D. Thesis, Ecole Doctorale des Sciences Exactes et de leurs Applications, Université de Pau et de Pays de l’Adour, Pau, France, 2006.
61. Pant, P.; Harrison, R.M. Estimation of the contribution of road traffic emissions to particulate matter concentrations from field measurements: A review. *Atmos. Environ.* **2013**, *77*, 78–97. [[CrossRef](#)]
62. Zenodo Open-Access Repository. Available online: <https://zenodo.org/record/3961496#.X7vOTqKiwU> (accessed on 8 August 2020).
63. ICCT. DielselNet Transport Policy. Available online: <https://www.transportpolicy.net> (accessed on 15 June 2020).
64. Lin, Y.-C.; Tsai, C.-J.; Wu, Y.-C.; Zhang, R.; Chi, K.-H.; Huang, Y.-T.; Lin, S.-H.; Hsu, S.-C. Characteristics of trace metals in traffic-derived particles in Hsuehshan Tunnel, Taiwan: Size distribution, potential source, and fingerprinting metal ratio. *Atmos. Chem. Phys.* **2015**, *15*, 4117–4130. [[CrossRef](#)]

Publisher’s Note: MDPI stays neutral with regard to jurisdictional claims in published maps and institutional affiliations.



© 2020 by the authors. Licensee MDPI, Basel, Switzerland. This article is an open access article distributed under the terms and conditions of the Creative Commons Attribution (CC BY) license (<http://creativecommons.org/licenses/by/4.0/>).

II.3 DISCUSSION ET PERSPECTIVES

II.3.1 Évolution temporelle des dépôts de polluants

Dans l'intérêt de vouloir répliquer nos mesures aux abords des autoroutes et de confirmer nos conclusions, nous avons mené deux campagnes supplémentaires de prélèvements de feuilles d'arbres de Judée. L'année 2020 ayant été marquée par le début des mesures restrictives sanitaires, la première campagne fut réalisée au lendemain du premier confinement qui a été mis en place durant trois mois du 17 Mars au 11 Mai 2020 (Figure 2.3A). Bien que cette période se soit naturellement traduite par une diminution drastique de la circulation autoroutière, le maximum de dépôts de polluant reste tout de même présent côté mur anti-bruit et merlon communal.

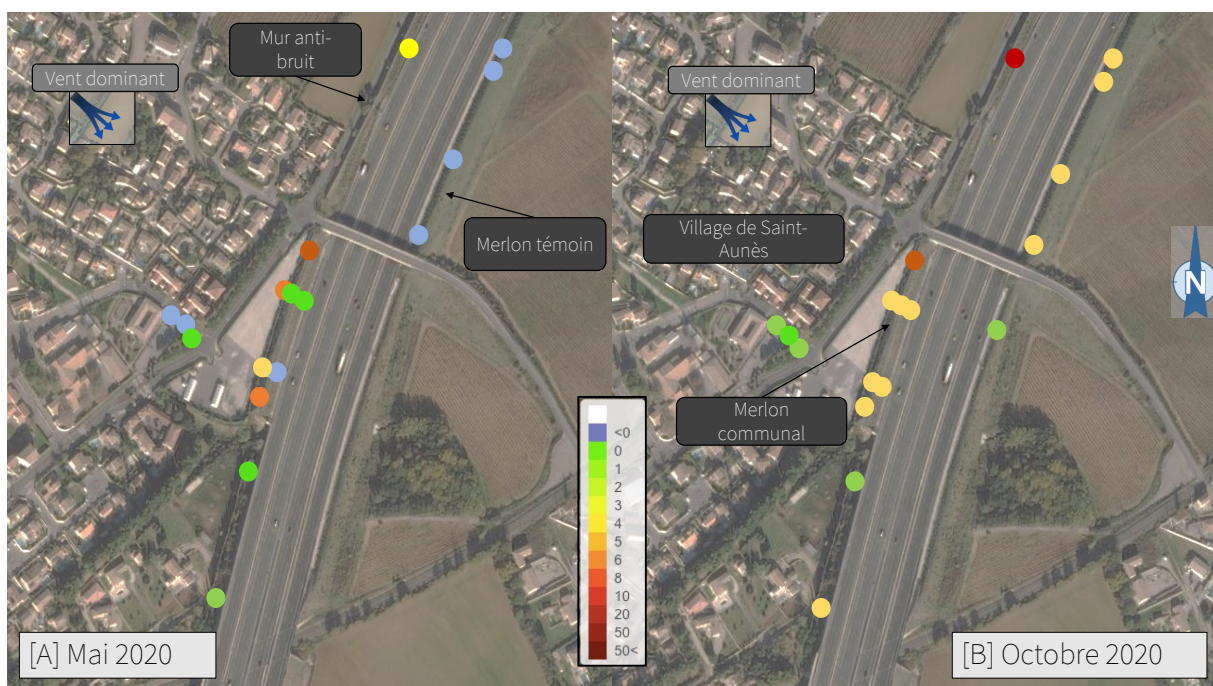


Figure 2.3 : Variation relative de l'aimantation rémanente isotherme : [A] au début du dé-confinement le 12 Mai 2020 et [B] à la reprise normale du trafic le 12 Octobre 2020.

Par ailleurs, la réduction du trafic routier durant cette période a notamment provoqué une nette diminution des dépôts du côté merlon témoin et village avec des niveaux souvent inférieurs à la station de référence « bruit de fond » ($VR < 0$). La deuxième campagne d'échantillonnage fut menée en Octobre 2020 dans une période de reprise

normale de la circulation autoroutière (Figure 2.3B) où une augmentation globale des changements relatifs de l'ARI (utilisée comme indicateur des taux de pollution) est remarquée en comparaison avec la campagne précédente. Ici encore la cartographie des taux de dépôts de polluant de la zone d'étude corrobore nos conclusions déjà établies à partir des mesures de 2019 couplées à la modélisation numérique. En effet, les phénomènes de turbulence derrière le mur anti-bruit et de dispersion des polluants par le merlon témoin sont encore mis en évidence.

L'arbre de Judée étant une espèce caduque, les feuilles ne poussent qu'à partir d'Avril et commencent à tomber à l'automne vers fin Octobre. Outre la différence d'intensité du trafic entre ces deux campagnes de prélèvement, on peut se demander si la période de prélèvement a également pu aussi jouer un rôle qui pourrait biaiser nos résultats. Ceci notamment car durant la campagne en Octobre les feuilles arrivent en fin de vie et seraient donc nécessairement plus « chargées » en particules fines que celles échantillonnées en Mai en sortie de confinement. Les mesures relatives en utilisant des mesures de références servent normalement à gérer cela. Cependant, il pourrait y avoir d'autres biais que le vieillissement des feuilles qui seraient évitables si plusieurs stations de référence avaient été mesurées.

Une autre espèce caduque a fait l'objet d'une cartographie de concentration relative en polluants (Figure 2.4). Il s'agit de *Celtis australis*, plus communément appelée Micocoulier. Cette cartographie a été réalisée avec M^{me} Catherine Delobel, représentante citoyenne et chargée de mission auprès des ASF pour le suivi des végétaux aux abords de l'autoroute. Plusieurs raisons ont motivé cette nouvelle campagne de cartographie : tout d'abord, c'est une espèce qui possède également une grande distribution spatiale le long de la zone d'étude, permettant ainsi une possible comparaison avec l'Arbre de Judée (Figure 2.3). Tout comme l'Arbre de Judée, *Celtis australis* est omniprésente en zones (péri-)urbaines. C'est pourquoi, elle a fait l'objet d'expérimentations pour mieux comprendre ses capacités de rétention des PM présentes en suspension dans l'air (Chapitre V). Cette cartographie nous montre que selon la station de référence choisie on obtient des résultats drastiquement différents. C'est une limite de la méthode qui montre toute

l'importance du choix de la station de référence. En effet, si la station de référence choisie est un arbre situé à St-Clément de Rivière (zone péri-urbaine au nord de Montpellier), les résultats exposent un sur-enrichissement en concentrations relatives de polluants captés par l'espèce végétale en question (Figure 2.4A). Ceci pourrait être expliqué par le fait que cette station de référence est sûrement bien isolée du trafic, certes, mais probablement aussi d'autres sources composant le signal de fond en zones péri-urbaines. En revanche, lorsque la station de référence est celle de la zone d'étude pour laquelle les taux de dépôts estimés sont les plus faibles (Figure 2.4B), on observe très peu d'enrichissement en polluants. Comme l'on pouvait s'y attendre, une partie du signal trafic a été incluse dans le signal bruit de fond. Ceci illustre une concentration relative variable des polluants captés par les Micocouliers aux abords des autoroutes A9/A709, avec un léger enrichissement côté mur anti-bruit.

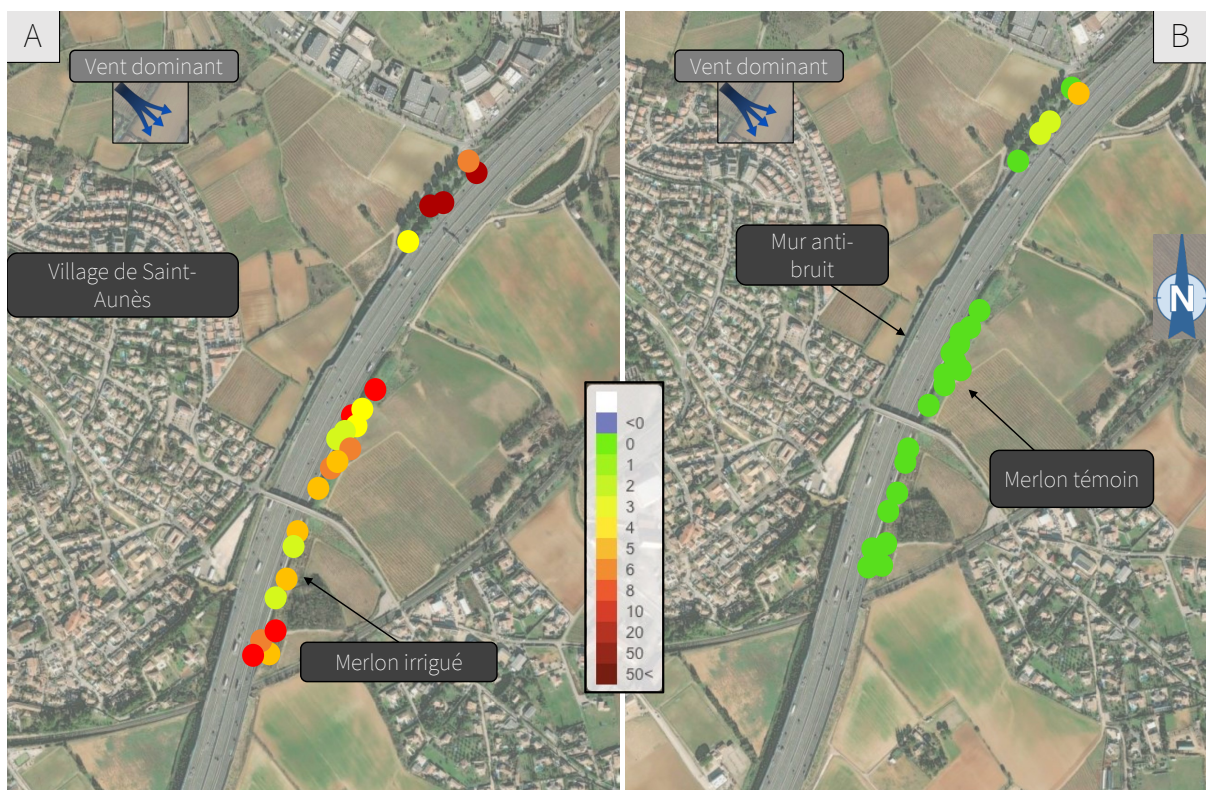


Figure 2.4 : Variation relative de l'aimantation rémanente isotherme sur une campagne de cartographie de Micocoulier réalisée le 03 Octobre 2021 avec : [A] Station de référence prise en zone péri-urbaine de Montpellier et, [B] Station la moins aimantée prise comme mesure de référence.

Une autre explication pourrait être la nature du sol qui est très différente entre les stations de mesure et celle de référence. Malheureusement ces résultats ne permettent pas de comparaisons avec les cartographies réalisées sur les Arbres de Judée, mais ne sont pas inintéressants pour autant. En effet, ceux-ci démontrent bien l'importance du choix de la station de référence, lorsqu'on mesure en relatif, mais aussi l'intérêt de multiplier et moyenner plusieurs stations de référence.

II.3.2 Comparaison des résultats aux données de micro-capteurs

L'agence de mesure gouvernementale ATMO-Occitanie a également été mandatée par les ASF afin de mener plusieurs campagnes de suivi de la qualité de l'air dans la zone d'étude et de conclure sur l'efficacité des merlons arborés dans la protection des riverains contre la pollution liée au trafic. Pour cela, ils ont déployé 5 micro-capteurs de mesure des PM_{10} et $PM_{2.5}$ (Figure 2.5A). D'après leur rapport de 2019 (ATMO-Occitanie, 2019), ils concluent que le trafic routier représente 55% des émissions totales en PM_{10} et 59% en $PM_{2.5}$ en se basant sur des statistiques de taux d'activité de la région (Atmo-Occitanie, 2020) entre 2010 et 2017 (Figure 2.5B). Or, d'après notre modèle numérique, qui a d'ailleurs surestimé de moitié la densité du trafic entre Mai et Juillet 2019 c'est-à-dire après l'extension des voies de circulation des autoroutes A9 et A709, l'impact du trafic augmenterait les concentrations en $PM_{2.5}$ de la valeur « bruit de fond » de 0.5 à 1.7 $\mu\text{g.m}^{-3}$, soit une contribution de 4 à 13% proche des voies de circulation et de 0 à 9% à l'extérieur de l'autoroute. Tout ceci en considérant une valeur de référence ou « bruit de fond » moyenne en $PM_{2.5}$ de 11 $\mu\text{g.m}^{-3}$ estimée par ATMO. Notre scénario reste tout de même proche des valeurs moyennes annuelles recommandées par l'OMS (10 $\mu\text{g.m}^{-3}$) et bien inférieures à celles recommandées par la législation européenne (25 $\mu\text{g.m}^{-3}$).

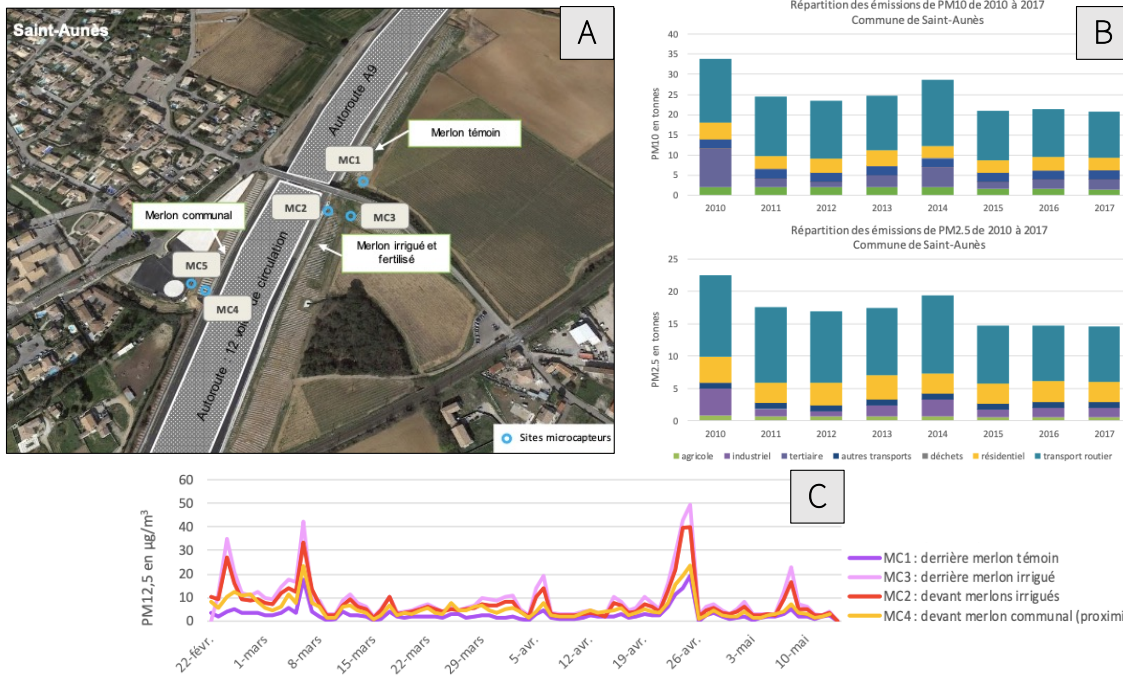


Figure 2.5: [A] Localisation des sites de micro-capteurs de mesure des PM déployés par ATMO-Occitanie. [B] Répartition des contributions d'émissions de PM sur la commune de St Aunès déterminée à partir du pourcentage des taux d'activité de la région. [C] Concentrations moyennes journalières en $PM_{2,5}$ entre le 22 Février et 14 Mai 2019.

D'autre part, les données de concentrations en $PM_{2,5}$ entre le 22 Février et le 14 Mai 2019 provenant des micro-capteurs E-PM déployés par ATMO (Figure 2.5C) montrent que globalement les concentrations sont plus élevées sur les merlons irrigués et témoins. Ils justifient cela par la provenance du vent dominant NW qui alimenterait de façon plus importante les merlons en particules provenant des émissions de l'autoroute. Ici aussi, d'après nos résultats de concentrations relatives en particules mesurées par des variations relatives de l'ARI et confrontées au modèle numérique, nos conclusions diffèrent. Dans notre cas nous trouvons des concentrations plus importantes sous le vent et une dispersion nettement plus forte au niveau du merlon témoin. C'est d'ailleurs face à ce résultat peu intuitif que nous avons entrepris de modéliser la circulation de l'air à micro-échelle afin de mieux comprendre quelle était la dynamique du flux atmosphérique qui régnait dans cette région. De plus, ATMO-Occitanie observe des différences minimes de concentrations entre devant et derrière les merlons et l'expliquent par la présence de végétation qui permettrait l'abattement des polluants et donc la protection des riverains à leur exposition. De mon

point de vue, je pense que ceci est difficile à justifier car les végétaux sont encore très jeunes et donc de petites tailles. De plus, leur hétérogénéité est telle qu'il est difficile d'arriver à cette conclusion car selon l'espèce, la capacité de captation peut varier drastiquement. Nous savons également que la forme des merlons est optimisée pour permettre une dispersion des ondes sonores. Nos résultats montrent que cette optimisation s'applique aussi à la dispersion des particules fines. De ce fait, je pense que planter des végétaux sur de telles structures aurait plutôt tendance à diminuer l'effet dispersif du merlon et ainsi bloquer les particules au niveau de l'autoroute ou même des habitations voisines. Pour conforter cette hypothèse, des micro-capteurs seront prochainement déployés sur l'autoroute et une modélisation analogique sera réalisée dans le tunnel à vent sur une maquette faite à partir des proportions de la zone d'étude.

Finalement, face à ces différentes conclusions nous pouvons en déduire que notre modèle valide nos données expérimentales bien qu'il reste tout de même encore perfectible. C'est une première étape très encourageante. Ceci pourra être fait en rajoutant notamment l'efficacité des végétaux à capter ou disperser les polluants, c'est à dire en paramétrant le modèle avec la vitesse de dépôt de chaque espèce végétale. Cette tâche représentera un des objectifs principaux du [Chapitre V](#) de ce manuscrit.

A l'issue de cette étude, je note aussi de manière très positive que même si le choix des stations de références peut se révéler problématique dans certains cas particuliers, on peut malgré tout mener une cartographie magnétique en utilisant de simples surfaces accumulatrices artificielles comme celles imaginées par [Cao et al \(2015\)](#). Finalement, il reste à bien affiner le schéma d'échantillonnage, en particulier le choix du positionnement et du nombre des stations de référence pour que la cartographie magnétique puisse être utilisée comme une contrainte fiable aux modélisations numériques. Pour cela, j'ai choisi un milieu connu pour ne pas être aussi dispersif que l'autoroute : une rue canyon. Ainsi, le chapitre suivant présente les résultats d'une étude de cartographie magnétique citoyenne réalisée dans un axe très fréquenté du centre-ville de Montpellier.

CHAPITRE III

DE LA MESURE CITOYENNE DE LA QUALITE DE L'AIR A LA PRISE DE DECISION POLITIQUE : LIMITES & APPORTS DU MAGNETISME ENVIRONNEMENTAL



III.1 AVANT-PROPOS

III.1.1 Mise en place de l'étude

Le projet BREATHE dans lequel s'inscrit ma thèse vise à amener la technique de la surveillance magnétique de la qualité de l'air à un degré de confiance tel que les données puissent servir aux citoyens et aux élus. D'un côté, ces données pourraient être utiles aux citoyens dans d'éventuelles revendications pour améliorer leur cadre de vie. D'un autre côté, ces données pourraient également être utilisées par les élus dans les décisions politiques. Pour cela, je me suis intéressée à trois cas d'étude où un important climat

conflictuel régnait entre les citoyens et les élus : aux abords des autoroutes A9/A709 ([Chapitre II](#)), autour d'une usine de valorisation des déchets (OCREAL, à Lunel-Viel) et dans une rue canyon située au centre-ville de Montpellier.

En effet, dans le [Chapitre II](#) on démontre bien la pertinence et la fiabilité de la mesure magnétique appliquée à la qualité de l'air grâce à sa comparaison avec un modèle numérique. En revanche, le milieu autoroutier est un milieu hautement dispersif et ne permet pas de tester de manière approfondie cette méthode. C'est pourquoi, à la sortie du confinement en Mai 2020, nous sommes allés à la recherche d'une zone urbaine où les PM ne se dispersent pas aussi facilement : une rue dite « canyon ». Après avoir arpenté le centre-ville de Montpellier à vélo, nous avons ciblé la rue Saint-Louis ([Partie III.2, Figure 1](#)) : une petite rue de 245 m de long et environ 6,5 m de large, reliant le boulevard des Arceaux avec le Cour Gambetta, deux axes majeurs de la ville et caractérisée par un trafic estimé à 7000 voitures par jour. Outre le trafic omniprésent dans cette petite rue, une mobilisation citoyenne a été rapidement perçue grâce à l'affichage de banderoles revendicatives aux balcons ([Figure 3.1A](#)).



Figure 3.1 [A] Banderoles affichées aux balcons, [B] Articles de presse en lien avec les problématiques de la rue Saint-Louis, et [C] Publications sur les réseaux sociaux de l'association citoyenne MVRSL.

Par la suite, nous nous sommes rapprochés des citoyens mobilisés et organisés dans une association citoyenne « Mieux Vivre Rue Saint-Louis » (MVRSL) pour leur présenter le projet de recherche. Aux moyens de plusieurs réunions organisées dans le bar du quartier ainsi que quelques demies journées à faire du porte à porte, un groupe de 60 participants s'est constitué. Selon quelques participants, comme le projet s'est amorcé pendant les élections municipales, il aurait permis de faire à nouveau parler de la problématique de la rue Saint-Louis. D'ailleurs, la démarche de science participative a été perçue comme innovante par les riverains et a donc fait l'objet de plusieurs articles dans la presse locale (Figure 3.1B, Annexe 1).

III.1.2 Montpellier et sa rue Saint-Louis au cours du temps

Au début du siècle, la culture de la vigne et le commerce du vin dominant largement sur les autres activités économiques de la ville de Montpellier. C'est donc un climat plutôt

« rural » qui règne sur la ville à cette époque-là (Figure 3.2A). La population va ensuite progressivement augmenter, jusqu'à aujourd'hui encore. Ceci, d'abord avec les apports migratoires successifs, puis grâce à la qualité de vie et l'attractivité du terroir, par la suite. Le district de Montpellier est alors créé en 1965 pour ensuite devenir une Communauté d'agglomération en 2001. Cette dernière est constituée de 31 communes et totalise aujourd'hui plus de 400 000 habitants, augmentant encore chaque année.



Figure 3.2 [A] La rue Saint-Louis, probablement au début du XIX^{ème} siècle, [B] la rue Saint-Louis dans les années 2000, [C] la rue Saint-Louis entre 2015-2020, et [D] le projet de rue piétonne à partir de 2021.

Mme Gros, membre de l'association « Mieux Vivre Rue Saint-Louis » et riveraine depuis son enfance de la rue Saint-Louis, m'a offert un témoignage sur l'historique de cette petite rue. D'après elle, la problématique de circulation dans la rue Saint Louis s'est

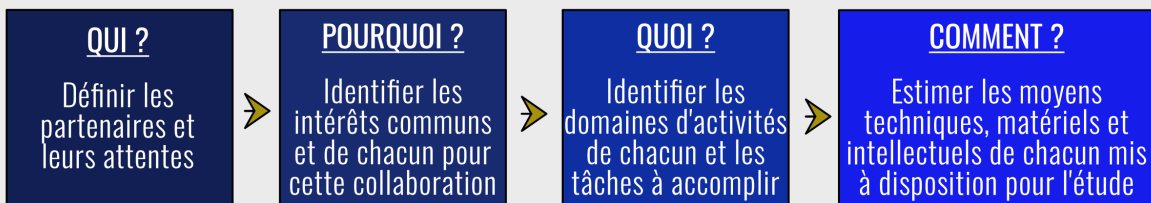
amorcée dans les années 80 lorsque le maire de l'époque, Mr Georges Frêche (1977-2004), se concentre à dynamiser la ville. Il crée alors des petites et grandes ceintures de circulation, où la rue Saint-Louis est choisie comme un axe de circulation de la petite ceinture. Le trafic se densifie progressivement dans la rue. Les habitants commencent à fermer les maisons côté rue pour se tourner vers les jardins à l'arrière. A partir des années 2000, la circulation se fait à double sens (Figure 3.2B), les tailles des voitures augmentent et les bus sont déviés par cette rue lorsque la météo ne les permet pas de passer par le Peyrou. Les incidents et accidents se succèdent entre automobilistes, cyclistes et piétons. C'est alors que l'accident d'un enfant traversant sur un passage piéton et fauché par une voiture à la sortie de l'école déclenche la mobilisation citoyenne des riverains.

Cette mobilisation permet d'enlever le second sens de circulation et la mise en place d'un muret « dangereux » sur le côté droit de la rue pour les piétons. Entre 2015-2020, malgré les remontrances des riverains sur la présence de ce muret et les accidents qu'il provoque, le maire, Mr Philippe Saurel (2014-2020), se montre absent. Les bouchons ne cessent de croître (Figure 3.2C), les accidents entre automobilistes, cyclistes, piétons, et motards qui doivent se partager la largeur d'une piste cyclable, se multiplient. C'est alors que les riverains se réunissent pour former l'association citoyenne MVRSL. Ils plaident leur cause à travers des publications régulières sur les réseaux sociaux (Figure 3.1C), des articles de presse sont écrits (Figure 3.1B), des prospectus sont distribués dans les boîtes aux lettres et des banderoles sont affichées aux balcons (Figure 3.1A). Cette mobilisation dénonce la dangerosité de la circulation établie dans la rue St-Louis, la diminution de la qualité du milieu de vie, mais également la problématique de pollution de l'air due au trafic. En Juillet 2020, Mr Mickaël Delafosse prend ses fonctions de maire et décide coûte que coûte de fermer cette rue à la circulation et travaille plus largement à enlever les voitures du centre-ville. Alors que notre étude de cartographie citoyenne bat son plein de Décembre 2020 à Mars 2021, la mairie annonce la fermeture définitive de la rue aux voitures (Figure 3.2D), avant même que les résultats de l'étude soient présentés aux citoyens et aux élus.

CE QU'IL FAUT RETENIR... pour réaliser une étude en Sciences Participatives



• Etape 1: Déterminer les acteurs et leurs intérêts



modifié d'après Carson et al., 2022

• Etape 2: Déterminer le degré de participation de chacun des acteurs

	Impact croissant sur la décision →				
	INFORMER	CONSULTER	S'IMPLIQUER	COLLABORER	AUTONOMISER
INTERETS DES PARTIES PRENANTES A INTEGRER UNE PARTICIPATION CITOYENNE	Fournir au public des informations objectives pour comprendre une problématique, les alternatives, les opportunités et/ou les solutions.	Obtenir des commentaires du public sur l'analyse des alternatives et/ou des décisions.	Travailler directement concerné par la problématique tout au long du processus pour s'assurer que les préoccupations soient toujours prises en compte.	Association avec les citoyens dans chaque aspect de la décision.	Placer la décision finale entre les mains des citoyens.
INTERETS POUR LES CITOYENS	Les citoyens sont tenus informés.	Les citoyens sont tenus informés, écoutés et dont les préoccupations seront prises en compte, ce qui peut à terme influencer la prise de décision.	Les aspirations et préoccupations du public se reflètent directement dans les alternatives développées et fourniront des commentaires qui ont influencé la décision.	Les parties prenantes se tournent vers les citoyens pour des conseils. Les recommandations des citoyens sont prises en compte dans la décision	Mise en oeuvre des décisions des citoyens.

© IAP2 International Federation 2018. All rights reserved. 20181112_v1

• Etape 3: Notre démarche d'accompagnement & d'atelier participatif



développée par les partenaires Artivistes-Atelier dans le cadre du projet ANR BREATHE

III.2 BENEFITS AND LIMITATIONS OF ENVIRONMENTAL MAGNETISM FOR COMPLETING CITIZEN SCIENCE ON AIR QUALITY : A CASE STUDY IN A STREET CANYON (ARTICLE 2)

L'article présenté ci-dessous a été soumis dans la revue **Community Science** (AGU) et se trouve actuellement « *under review* ». Les données ont été déposées dans le répertoire Zenodo au référencement : <https://doi.org/10.5281/zenodo.6573395>

1 **Benefits and limitations of environmental magnetism for completing citizen science on**
2 **air quality: a case study in a street canyon.**

3 **S. Letaïef¹, L. Scotto-D'appolonia², D. Dosias-Perla³, C. Pinero⁴, R. Perier⁵, P. Nicol¹,**
4 **and P. Camps¹**

5 ¹ Géosciences Montpellier, University of Montpellier, CNRS, Montpellier, France.

6 ² Artistes Atelier, Vendargues, France.

7 ³ PRODIG, University of Paris 1 Panthéon Sorbonne, CNRS, Paris, France.

8 ⁴ Citizen Participants representative.

9 ⁵ Air quality Montpellier Méditerranée Métropole Service.

10 Corresponding author: Sarah Letaïef (sarah.letaief@umontpellier.fr)

11 **Key Points:**

- 12 • Feedbacks from the participants to an air quality monitoring study carried out as a
13 citizen science study inside a street canyon are reported.
- 14 • A magnetic air quality index (Q_{mag}) is proposed to improve communication between
15 scientists within their community and between citizens, scientists, and elected officials.
- 16 • Benefits and limitations of the environmental magnetism technique applied to air
17 quality measurements are discussed.
- 18 • Tips to academics for conducting this type of project, and implications on societal and
19 political issues are documented.

20

21 **Abstract**

22 This paper details the operating experience about a case study carried out as a citizen
23 science approach to monitor magnetic particulate matter (PM) in a street canyon in Montpellier,
24 France. A total of 60 passive filters and 12 *Hedera Helix* pots were deployed in 29 households
25 for a period of 3 months, from December 2020 to March 2021. This street canyon was chosen
26 by the academic team because dwellers were already mobilized against the street traffic and its
27 adverse environmental effect on air quality, and because they were in conflict on this issue with
28 policy makers. Despite the project aimed to include all the stakeholders through co-
29 construction, dwellers, elected officials, and their city services were not fully embedded. The
30 closure of the street during the metrological campaign and the absence of agreement curbed
31 their involvement and motivation. However, the feedbacks from the citizen partners promote
32 the fact that this study supported their claims and brought them a deeper understanding on the

33 micro-scale air quality monitoring. Indeed, it is increasingly difficult for citizens, who seemed
34 specifically interested in what is happening right outside their front door, to understand this
35 measure with the emergence of ever more low-cost sensors. For that reason, we examined the
36 citizen's degree of confidence in magnetic monitoring of air quality and how can this technique
37 be useful in their claims. The results show that magnetism can be a measurement technique
38 favorable to citizen participation—because it provides a large amount of data at the micro-scale
39 of the street level, while the data from the certified associations for monitoring air quality
40 requires a spatial interpolation to map variations on a neighborhood scale. In this study, we
41 proposed a magnetic air quality index to standardize and democratize the magnetic monitoring
42 of air quality to facilitate the dialogue with all stakeholders.

43

44 **1. Introduction**

45 Air pollution is an environmental concern (Hopke, 2009; J. Zhang & Smith, 2003) and
46 source of social and political conflicts (Botero, 2021; Boutaric, 2007; Calvillo, 2018; Fenger,
47 1999; Joumard et al., 2007). After nine years of litigation and many discussions back and forth
48 for a positive consensus, France was finally condemned on October 24, 2019, by the Court of
49 Justice of the European Union for persistent and systematic non-compliance with the annual
50 limit values of NO₂ concentration in twelve French agglomerations (Boring, 2019). Despite
51 existing regulatory frameworks as planning tools and the directive fixed in July 2017 by the
52 French Council of State to implement strong actions, the European regulatory levels of
53 particulate matter (PM) and NO₂ concentrations are often exceeded in French urban areas
54 (EEA, 2021). One must note that these regulatory warning-levels are more lenient standards
55 than the World Health Organization air quality guidelines (Hoffmann et al., 2021).
56 Furthermore, they do not account for the ultrafine particles that constitute a serious risk to
57 ecosystems and human health by passing through the skin and blood barriers to accumulate in
58 vital organs such as the lungs, heart, and brain (Elder et al., 2006; Ferin et al., 1991; Maher et
59 al., 2016; Miller et al., 2017; Oberdörster et al., 1992, 1995). In August 2021, the inevitable has
60 happened: the French government was condemned by the French Council of State to face with
61 a 10-million-euros fine every six months until air quality is improved.

62 The BREATHE project was elaborated against this background, with as common thread a
63 citizen science approach. Studying air quality with a citizen science approach is a rapidly
64 growing practice in recent years, as illustrated by the bibliometric study shown in Figure S1.
65 BREATHE aims at outlining the co-construction basis for several decision-making tools with

66 the territories and local authorities that have jurisdiction on air quality to reduce the socio-
67 environmental risks associated with air quality. This research is developed in response to a
68 twofold expectation: from citizens on one hand and from politicians on the other. To this end,
69 two challenges were addressed. The first was to assess the effectiveness of urban greens for
70 monitoring, and subsequently for mitigating, the particulate matter air pollution in urban and
71 peri-urban areas, a very dynamic research topic in scientific literature (Zupancic et al., 2015)
72 that is increasingly making headlines in public policies (U.S. Environmental Protection
73 Agency, 2022). To reach this goal, a non-conventional approach based on environmental
74 magnetism techniques was used (Hofman et al., 2017). Thanks to the inexpensive and
75 promptness of these laboratory analyses, many measurements can be carried out allowing a
76 high spatial resolution in the monitoring. These characteristics are important for a long-term
77 survey implemented in a citizen science model. They allow for the implementation of a
78 scientific program over the long term by ensuring the involvement of citizens. The matter in
79 question within BREATHE was to jointly draft with the citizens reliable mappings of Fe-
80 bearing nanoparticles air-pollutants by means of magnetic measurements of dust deposition on
81 plant leaves or on passive artificial filters. The first challenge was to rate the extent to which
82 such citizen mappings can represent either a reliable alternative to mapping pollutants
83 dispersion from numerical models as provided by the official air quality monitoring
84 associations or at least a valuable input to complement them. The second challenge was to
85 integrate citizens from the Citizen Science up to the Participatory Action Research (Chevalier
86 & Buckles, 2019; Cooper, 2017) and more specifically in BREATHE case, from the monitoring
87 of dust deposition on accumulative surfaces up to the political decision making.

88 To achieve these objectives, BREATHE was implemented in three test cases that were
89 sources of conflict between citizens and policy makers: along a motorway (Letaïef et al., 2020),
90 around a waste energy valorization center, and in an urban street canyon. The present paper will
91 focus on the results and feedback from a part of BREATHE completed in 2021: the study
92 carried out with and for the citizens on the traffic impact in a street canyon located in an ancient
93 neighborhood of the city of Montpellier, France. This report is organized into four parts. After
94 introducing the study context, we will present the materials and methods, the results, to end
95 with a discussion around the following questions: is environmental magnetism an air quality
96 monitoring tool reliable enough for citizens and policymakers to provide useful data to be used
97 in public policies? What are the effects of such approach on the actors, political governance,
98 and decision making?

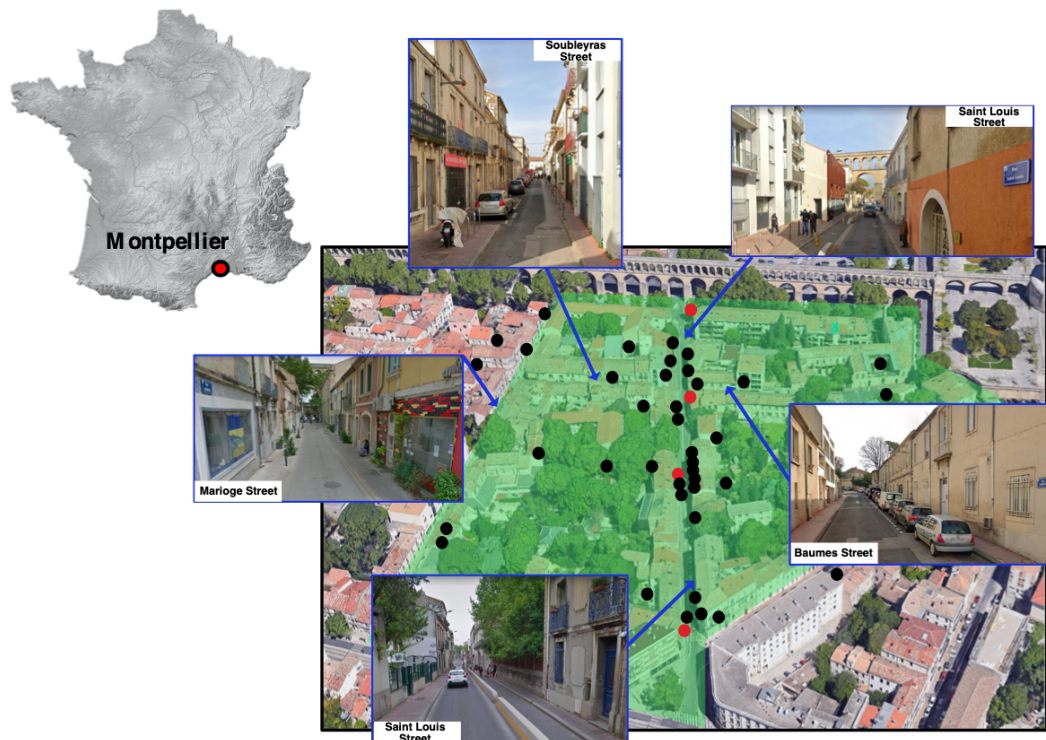
99 **2. Study context**

100 2.1. A street canyon environment.

101 The air pollution situation is particularly worrisome in urban areas where the main living
102 and activity places for urban dwellers are typically arranged in street canyons sequences. Many
103 studies have been carried out on the issue of air quality in these environments (see for example
104 Lv et al., 2021, for a review). Briefly, street canyons are composed of relatively tall buildings
105 lined up along both sides of the street, which hinder the pollutant dispersion (Jeanjean et al.,
106 2015) and where the main source of pollutant is known to be the road traffic (Hama et al., 2017;
107 Maher et al., 2013). Street canyons are characterized by their aspect ratio between the building
108 height and the street width, and their symmetry. A so-called regular street corresponds to an
109 aspect ratio close to 1, whereas a deep street canyon has an aspect ratio larger than 2 (Nicholson,
110 1975; Vardoulakis et al., 2003). A symmetric canyon is distinguished from an asymmetric one
111 when buildings have approximately the same height. Understanding the pollutant dispersion as
112 function of the geometry of the street is a major societal issue to take full cognizance of unequal
113 disease burden. For a few decades, many investigations were devoted to the analogical and
114 numerical modeling of airflow and pollutant dispersion for different configurations (Caton et
115 al., 2003; Gromke et al., 2008; Kastner-Klein & Plate, 1999; Li et al., 2019; Nazridoust &
116 Ahmadi, 2006). It was shown that pollutant dispersion is inherently complex in street canyon
117 due to unique micro-scale meteorological processes controlled by the street geometry (Hunter
118 et al., 1992; Nazridoust & Ahmadi, 2006) and the time-varying inflow (Li et al., 2019;
119 Tominaga & Stathopoulos, 2013; Y. Zhang et al., 2011).

120 Saint-Louis street is in an ancient neighbor of Montpellier, a city of about 300,000
121 inhabitants located in the south of France (Figure 1). This area, commonly referred to as the
122 "Arceaux", is a prime study area for assessing traffic impact in a street canyon environment.
123 Indeed, this 245 m long and about 10 m wide street is characterized by the presence of one to
124 four-story buildings and narrow sidewalks located on both sides of a single traffic lane (Figure
125 1). Following Nazridoust et al. (2006), Saint-Louis street can be classified as a regular and
126 asymmetric street canyon featuring an aspect ratio mostly of 1 and maximum 2 and differing-
127 height buildings, respectively. The street is characterized by a continuous heavy transit traffic

128 on the pavement of about 7000 vehicles daily and permanent conflicts between two-wheelers
 129 users (bicycles, scooters) and pedestrians sharing the sidewalks.



130
 131 **Figure 1: Location of the study area (green colored): Saint-Louis street and its**
 132 **surrounding streets are in the Arceaux district, in the city center of Montpellier, France.**
 133 **Photographs of Saint-Louis, Baumes, Soubleyras and Marioge streets allow to better**
 134 **visualize these narrow streets where the survey was carried out. Black dots represent the**
 135 **different stations where the passive filters were deployed while red dots depict the**
 136 **temporal stations (sampled each month for 3 months).**

137 2.2. A tri-partite research consortium.

138 The consortium established for this study is composed of three factions (Table 1): the
 139 academics, the citizen partners, and the metropolitan representatives.

140 **Table 1: Glossary fixed to define people involved in this study and the tools used.**

141

<i>Terms used in this study</i>	<i>Description</i>
Academics	Academic scientists who do not live in the Saint-Louis street.
Citizen partners	Dwellers of Saint-Louis district.

Metropolitan representatives	Members elected at the metropolis council and engineers from public work department.
Town Hall representatives	Members elected at the Town Hall
Participants	Group the 3 terms above-mentioned together.
Deposimeter	Combine the passive filter and Hedera Helix plant leaves, both acting as PM accumulative surfaces.
Device	Plan and method deployed in the Citizen Science part.

142

143 The academic task force dedicated to this study is transdisciplinary. It federated three
144 participants from geosciences who had expertise in environmental magnetism (a senior
145 researcher, a PhD student, and a technician), one participant from sociology (a researcher), and
146 one participant from political sciences and science and technological studies who had expertise
147 in Participatory Action Research (a PhD student). This participatory research was initiated by
148 academics with a research project funded by the French National Research Agency. Within the
149 framework of this grant, academics had proposed a program of participative sciences in which
150 they had explained their will to involve quickly and durably the citizens in an approach of
151 participative action research (ECSA, 2015).

152 The citizen partner faction is composed of dwellers of Saint-Louis district who have
153 politicized the issue of air pollution, notably by constituting an association named “Mieux Vivre
154 Rue Saint-Louis” which could be translated by “Living better in Saint-Louis street”. The citizen
155 association was consistently campaigning against the degraded living conditions caused by
156 recurrent accidents and congested traffic. The members of the association also feared traffic
157 harmful health impact. This fear is partly explained because they have no information on the
158 level of pollutant emission by the local traffic and by the street activity in general. This lack of
159 relevant information is due to the absence of proper monitoring of the pollutant by an approved
160 agency or service provider. Claiming their right to information, to live peacefully and to breathe
161 clean air, the members of the association have been mobilized since 2017 against the officials
162 of the city of Montpellier to get an answer to their fears and expectations.

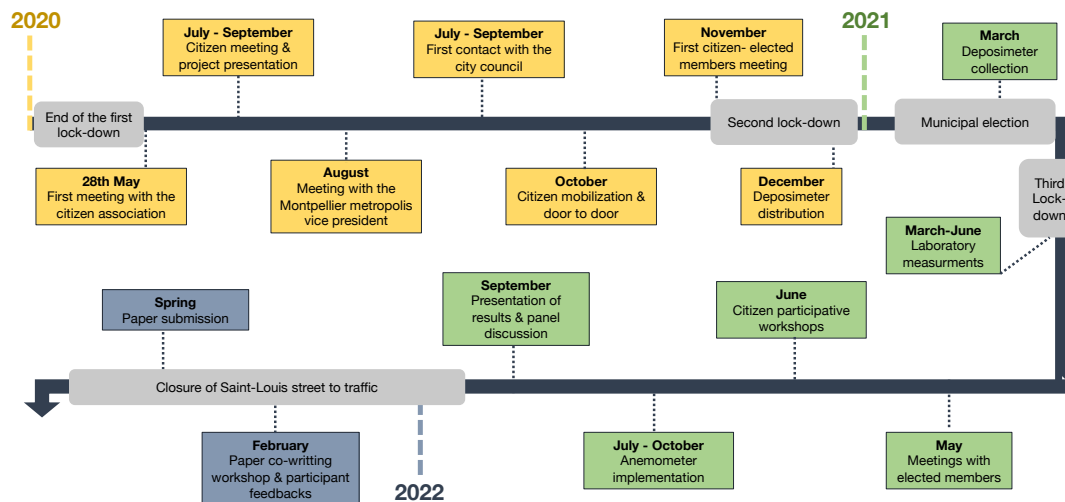
163 Metropolitan representatives were among the actors of the project. It is important at this
164 step of the article to specify some issues of political scale in France related to air quality. The
165 status of metropolis was created by the French law of December 16, 2010, to strengthen the
166 French’s territories and to affirm the role of large agglomerations as engines of growth and
167 territory attractiveness (Griffith, 2017). The metropolises are granted powers in place of its
168 member municipalities. Their competences encompass territorial mobility arrangement as well

169 as the protection and enhancement of the environment and the living environment, including
170 the fight against air and noise pollution. The city of Montpellier is one of the 15 French
171 metropolises. It acquired a metropolitan status in 2015 with the administrative grouping of 31
172 municipalities, which in 2019 represented a population of about 491,000 inhabitants to become
173 “Montpellier Méditerranée Métropole”. Thus, the political interlocutors in this study are in
174 priority the officials of the metropolitan council. However, the French political system remains
175 very complex. Indeed, the chairman of the metropolitan council is also the mayor of Montpellier
176 and political authority is articulated at two scale levels on the same street. The city elected
177 officials have the competence of police and traffic. In total, 8 elected officials showed a real
178 interest in this study. Four from the metropolis and four from the city council. However, the
179 involvement level of these elected officials has not remained the same during the survey.

180 **3. Protocol and Methods**

181 3.1. Citizen mobilization in a particular health and political context

182 The citizen implication in BREATHE began on May 28, 2020. The academics led a
183 meeting with representative members of the association “Mieux Vivre Saint-Louis”. Right after
184 the municipal elections (June 28, 2020; Figure 2) the academics started canvassing throughout
185 the neighborhood during September and October 2020. They also decided to get in touch with
186 another local association named “Arceaux Vie Active” (“Arceaux Active life”). The members
187 of the second association are close to the President of the Montpellier metropolis and mayor of
188 Montpellier. In addition, it is worth pointing out that the mobilization period fitted with the end
189 of the first Covid-19 lock-down and with the municipal elections (Figure 2) implying the
190 renewal of the metropolitan council. This represents a bias in the citizen mobilization.



191

192 **Figure 2: Timeline of the BREATHE project progress considering territorial political**
 193 **actions and health constraints related to the political decision during the COVID-19 crisis**
 194 **in France.**

195 Academics managed to reach and to involve citizens who were for some members of
 196 associations (militant or not) and for others simple local residents. They managed also to
 197 integrate the elected officials of the metropolis and the city of Montpellier. This networking
 198 and construction of a group of stakeholders is the first condition for co-constructing a project
 199 that aims at meeting the needs and expectations of everyone in a win-win project. On one hand,
 200 the researchers can test their protocols and methods to evaluate the PM concentration while
 201 analyzing the scientific legitimacy regarding the quality and robustness of the analyzes. On the
 202 other hand, citizens and policy makers obtain data at a very local level that could help decision
 203 making for air pollution control. To this end, several meetings were conducted with
 204 stakeholders on Saint-Louis Street and surrounding streets (Figure 2).

205 3.2. Experimental deposimeters deployment.

206 A kit to measure air pollution was distributed per household between December 3rd and
 207 5th, 2020. The kit comprises a filter, a pair of gloves to position and secure the filter, an
 208 explanatory note (Figure 3a), and a form to be filled out (Figure 3b). This form allowed
 209 volunteers to provide researchers with accurate information about the location, the date, and the
 210 time of filter placement and removal. Most of the filters were set up for 3 months, from

211 December 5th to March 5th, 2020, except for few stations that were sampled each month (red
212 dots in Figure 1) during the 3-months establishment.



213
214 **Figure 3: [a] Extract from the protocol designed to facilitate the deposimeters set up by**
215 **the inhabitants. [b] Protocol presentation and explanation during the kit distribution. [c]**
216 **Examples of the settled filters pictures sent by citizen partners.**

217 The passive filter design was worked out to be easy to set up and positioned outside
218 during the winter season. Paper filter of 2–3 μm particle retention was chosen as an
219 accumulating surface. To prevent mechanical weathering by insects or water saturation by
220 rainfall that could have reduced their filtering surface, they have been inserted inside the
221 mounting design proposed by Cao et al. (2015). The assembly is composed of a plastic electrical
222 box of a circular section of 50.6 cm^2 in which filters were placed between two layers of washed
223 natural wool to absorb excess moisture. The whole is closed by a piece of 1 mm mesh canvas
224 allowing only the entry of fine particles (Figure 3a). In addition to the passive filter devices,
225 twenty pots of *Hedera Helix* were distributed and dispersed on balconies. We chose *Hedera*
226 *Helix* because it is a robust plant resisting to the winter temperatures and that does not require
227 a particular maintenance. At the end of the three months of exposure, we took some leaves for
228 analysis and offered the pots to the volunteers as a memento of their participation. To simplify
229 the writing, we combined hereafter the passive filter and *Hedera Helix* leaves acting as
230 accumulative surfaces in a single term: deposimeters (Table 1). Once the deposimeters were

231 installed, the citizen partners sent a picture of them in situation (Figure 3c) with the filled form
232 to the coordinator.

233 3.3. Magnetic measurements.

234 Magnetic monitoring is increasingly used as a proxy of PM deposition on accumulative
235 surface (Hofman et al., 2017; Maher & Thompson, 1999). It consists of studying the magnetic
236 properties of accumulative surfaces after they have been exposed to a polluted air. Many studies
237 have already shown the correlation between magnetic properties of Fe-bearings nanoparticles
238 with both traffic-related PM concentrations (Hofman et al., 2017; Letaïef et al., 2020; Matzka
239 & Maher, 1999; Rea-Downing et al., 2020) and trace metals concentrations such as Pb, Co, Ti,
240 Zn, Sr (Hofman et al., 2014, 2020; Lu et al., 2016). Finally, it is also important to mention that
241 Fe-bearing nanoparticles are ubiquitous, especially in urban PM (Thorpe & Harrison, 2008),
242 and easy to detect because they show a ferromagnetic (*sensu lato*) signal (Gonet & Maher,
243 2019).

244 Magnetic measurements were performed in the laboratory following two steps. Prior to
245 the deployment, a blank correction was achieved. For that, an Isothermal Remanent
246 Magnetization (IRM; see e.g., Tauxe et al., 2018 for further physical explanations) was
247 imparted at 100, 300, and 1000 milli-Tesla to all pristine filters and few leaves collected from
248 each *Hedera Helix* pot associated to their respective sample holders (8-cm³ plastic cubes), with
249 the impulse magnetizer ASC Model IM-10-30 from ASC Scientific, and then measured with a
250 2G-SQUID cryogenic magnetometer. Note that the *Hedera Helix* pots were bought the same
251 day in the same nursery. Before the blank measurement and their deployment in the street, we
252 took care to clean all the leaves with purified water. Because we are not able to magnetize the
253 samples without magnetizing their plastic cubes, these steps are required and allow to subtract
254 in data reduction the signal of potential magnetic impurities which may be present in the pristine
255 filters, plant leaves, and in the sample holders. After the 3-months exposition to pollution in the
256 Saint-Louis street, these operations were repeated for each sample. In data reduction, magnetic
257 moments expressed in Am² were corrected by subtracting the magnetic moment of blank
258 samples and then were normalized by the filter or leaves areas in m², yielding the IRM
259 intensities in Ampere (A).

260 Furthermore, IRM intensity may be subject to instabilities due to the magnetic viscous
261 effect of variable relaxation times (Néel, 1949) if sufficiently small magnetic nanoparticles are

262 present as often observed in magnetic monitoring survey (Letaïef et al., 2020). As it is routinely
263 done in our laboratory, samples were placed in a zero-field following the IRM acquisition until
264 the magnetization is stable enough. We checked the stability of the 1000 mT-magnetization
265 imparted to the empty and to the filled sample holder and found a very small magnetic viscous
266 effect characterized by a relaxation time lower than 2 and 10 min, respectively. Then, the
267 duration of stay in zero-field following the IRM acquisition and prior to the measurements was
268 set on a conservative basis to a minimum of 15 min for all samples.

269 3.4. Citizen Science and Participatory Action Research.

270 Citizen Science is characterized by a wide range of practices developed in the last
271 decades (Strasser et al., 2019). Consequently, it remains difficult to clearly define it (Eitzel et
272 al., 2017; Haklay et al., 2021; Heigl et al., 2019). Citizen Science needs to be considered as a
273 real research field and not only as an opportunity for greater public engagement or
274 democratization of science (Göbel et al., 2021). Citizen science must control internal and
275 external biases with a critical reflexive approach and by facing epistemological challenges of
276 interdisciplinarity (Bedessem & Ruphy, 2020). The main challenges involve assessing:

- 277 • the scientific legitimacy on the quality and robustness of the analyzes produced
278 (Bœuf et al., 2012; Irwin, 2001; Strasser et al., 2019),
- 279 • the political and social shifts in the citizen empowerment (Bela et al., 2016;
280 Bonney et al., 2016; Kieffer, 2014; Ottinger, 2010),
- 281 • the effectiveness of the actions on the environmental issues (Brossard et al., 2005;
282 Kythreotis et al., 2019),
- 283 • the ethical compliance regarding both the social categories mobilized in this type of
284 participatory mechanism (Riesch & Potter, 2014) and the theoretical reference
285 framework (Grainger, 2017).

286 To address these challenges, we implemented a participatory engineering tool developed by
287 one of us: Artivists-Atelier (AA)-device (Dosias-Perla et al., 2018). Of course, AA-device
288 could be complemented by classical enquiries. It enables to intervene at all phases of the citizen
289 actions: the mobilization and the training of the citizen for the Citizen Science program, the co-
290 producing action plans on air, and the co-building of decision-making tools from participative
291 workshops with all stakeholders including officials. It was designed to support public policies,
292 decision-making, and citizen needs and expectations.

293 This device is in line with the work on the sociological Habermas-Mouffe debate
294 (Kapoor, 2002). The theory of deliberative democracy developed by Habermas is based on a
295 rational consensus, whereas the theory of agonistic democracy developed by Mouffe allows for
296 the expression of alternative positions and voices (Beaumont & Nicholls, 2008). Many authors,
297 in French research refer to a "participative turning point". In this context many democratic
298 experimentations have tried to develop democratic governance for social and environmental
299 issues (Bevir, 2010). Considering this, the AA-device enables to analyze at once (i) the changes
300 in the subjective representations of the participants, the knowledge, the speeches on air quality
301 and the participatory democracy, (ii) the sharing of the decisional and symbolic power in the
302 participatory workshops, (iii) the contribution of the citizens in the participatory workshops (we
303 can talk about empowerment), and (iv) the public action on the air quality.

304 On a critical and reflexive way, the Research device has to examine the purposes and
305 the ethics of the system that it necessarily disrupts (Dewey, 1927). It is worth pointing that
306 academics had to treat carefully bias toward the current political situation or the citizen claims.
307 Ideally, to reduce distortion, a good participatory action research practice is to ask for a
308 partnership agreement between all the stakeholders. This agreement allows all the stakeholders
309 (officials, researchers, citizen and associations in our case study) to define their role and make
310 possible to develop a participatory approach. This research posture is a normative choice that
311 strengthens the effects of the project on local participatory democracy. The research component
312 in the AA-device is therefore designed for: (1) going through the process of institutionalization
313 of the research project as far as it is possible by contracting an agreement and (2) developing a
314 permanent critical and reflexive analysis to objectify benefits and limits of the citizen research
315 project. The Participation component in the AA-device is designed for analyzing the citizen
316 empowerment with the actors' posture and citizens' role in the construction of public action.
317 To this end, the participation was developed in three stages. The first was to identify the
318 expectations and needs of all the actors. The second step was to draw up an inventory of the
319 field, as exhaustive as possible. The third step aimed at designing and facilitating participatory
320 workshops whose constructs were analyzed by the researchers. The action research component
321 in the AA-device made possible to study the direct and indirect effects of the project on
322 decision-making and on the posture of the actors involved in the project and in the public
323 decision on air quality.

324 Finally, following "The Ten Principles of Citizen Science of good practice" defined by
325 the European Citizen Science Association (Robinson et al., 2018), it is possible to identify

326 several Citizen Science and Participatory Action Research observable parameters to analyze
 327 the participatory workshops. They particularly allow measuring: the level of citizen
 328 contribution and involvement, the quality of scientific outcomes, the level of collaboration
 329 between the participants, the common benefits collected, the influence on policy makers and
 330 public action, its effectiveness and all other effects and actions carried out by non-institutional
 331 actors. First, the academics interviewed project participants after presenting them the metrics
 332 results. Second, the researchers facilitated a participatory workshop with these same volunteers.
 333 This workshop was designed to get their feedback on the project, to check if the project met
 334 their expectations and to know if their representations and knowledge on the issue of air quality
 335 have evolved during the project and if so if the project has contributed to it. To do this, the
 336 participants ranked themselves on a metric scale from 0 to 10 according to their respective
 337 experience in response to a list of questions (Table 2). Finally, academics asked the question:
 338 Based on your own experience, if you were to participate in a new similar project, what would
 339 you change to improve it?

340 **Table 2: Questionnaire during reflexive and critical participatory workshop**

#	Theme	Question
1	Expectations	How did the BREATHE project meet your expectations?
2	Interests	What is your interest in the BREATHE project?
3	Commitment	What is your level of involvement in the BREATHE project?
4	Enjoyment	What is your level of enjoyment in participating in the BREATHE project?
5.1	Air quality measurements knowledge	Did the BREATHE project provide you with knowledge on: measuring air quality?
5.2	Health knowledge	Did the BREATHE project provide you with knowledge on the health impact on air quality?
5.3	Decision making knowledge	Did the BREATHE project provide you with knowledge on decision making mechanisms?
6	Means to act	Do you think that the project has been a lever for solving problems in the neighborhood?
7	3D model workshop	Did the participatory workshop (3D model) of June 7, 2021, make it possible to influence public action within the framework of the "peaceful neighborhood" consultation?
8.1	Collaboration with researchers	What is your level of collaboration with researchers?
8.2	Collaboration with elected officials	What is your level of collaboration with elected officials and their service?

8.3	Collaboration among residents	What is your level of collaboration with other residents?
8.4	Collaboration with users	What is your level of collaboration with users?
9.1	Metrology protocol	What is your level of understanding of the research protocol regarding participatory metrology?
9.2	Appropriation of results	What is your level of ownership of the results presented?
9.3	PAR protocol	Do you know what your level of understanding of the research protocol for participatory action research (PAR) is ?

341

342 **4. Results**

343 4.1. Project institutionalization phases.

344 4.1.1. Building of the consortium.

345 Twenty-nine family homes that have been approached during the mobilization phase
346 joined the project allowing the deployment of 72 deposimeters distributed in the balconies. This
347 citizen partner group was globally representative of the Arceaux neighborhood with 75%
348 inhabitants, 25% professionals in their workplace, 55% women, 45% men, 10% less than 26
349 years old, 75% between 26-64 years old, 15% more than 64 years old, 65% of executives and
350 higher intellectual professions, 14% retired, 7% employees, 10% students, and 4% of
351 unemployed people. This low number of family homes mobilized regarding the size of the
352 neighborhood might be correlated with the regulatory constraints limiting social gatherings in
353 response to unusual sanitary conditions associated with the COVID-19 pandemic (Figure 2).
354 Given our feedbacks from previous citizen research projects, the citizen partners gauge should
355 have been greater, let say about fifty family homes, and more diversified concerning ages,
356 socio-professional categories, and genders. In addition, the electoral process is an important
357 contextual element to fully understand and analyze the posture and positions of citizens in the
358 project (Figure 2). Despite their moderate number, the volunteers' involvement was intense
359 during the municipal election. Saint-Louis street was politicized by most of the electoral
360 campaign candidates. They had promised to implement strategies toward a clean air and a better
361 living environment. During this period, the members of the association "Mieux Vivre rue Saint-
362 Louis" wrote messages (around a thousand) on social networks about the BREATHE project.

363 4.1.2. Integration of the Montpellier officials:

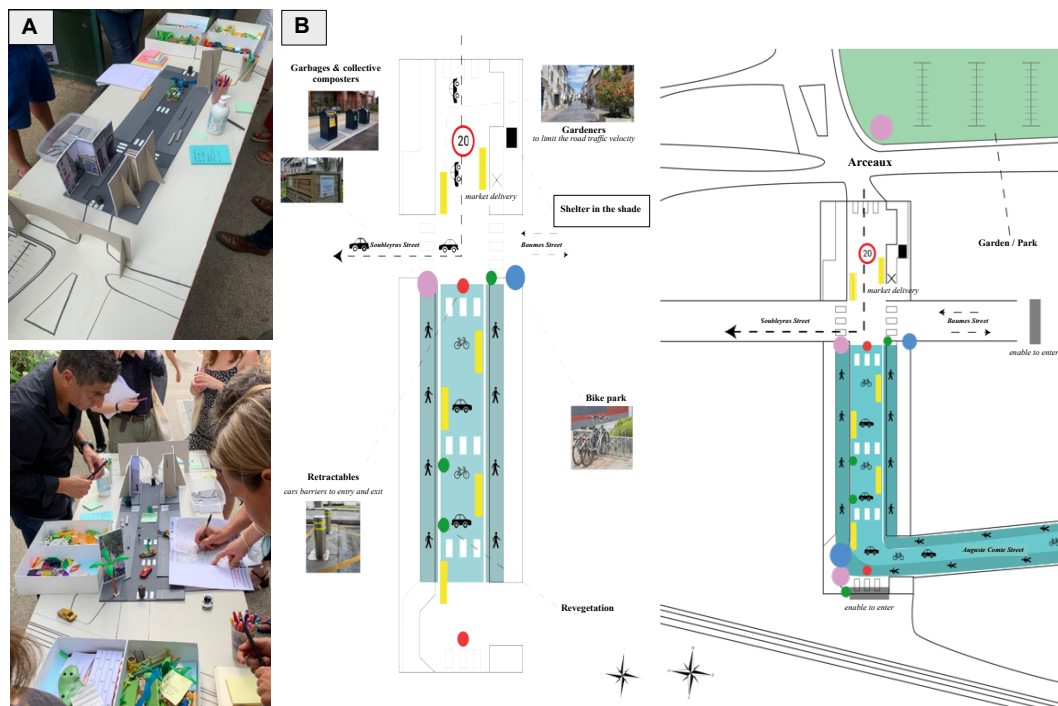
364 Academics first met the metropolitan Vice-chairwoman in charge of research,
365 development, and innovation at the University premises in August 2020. The project was very
366 well received and is still supported by this leading personality. In November 2020, a
367 videoconference was held between the research consortium (academics and citizen) and the
368 metropolitan vice-chairwoman in charge of Nature and Biodiversity due to the impossibility to
369 meet physically during the pandemic. This meeting aimed at preparing the citizen metrology
370 campaign and questioned the dwellers on their vision of the future ideal neighborhood. In
371 January 2021, the vice-chairman of the city council in charge of the City Center, who was also
372 the former AVA citizen association vice-chairman, contacted the academics to express his
373 concern over the survey and to obtain more details. Notwithstanding he showed a genuine
374 interest, he decided to stay in a wait-and-see attitude. Finally, a new meeting was held in
375 October 2021, with the two-metropolitan council vice-presidents for the Transport and Active
376 mobility, for the Environment and their technical services to discuss on how interplays between
377 the metropolitan institution and citizen science surveys could be better organized. This meeting
378 led to a positive outcome: a free of charge booth was proposed to the Saint-Louis street research
379 consortium at the urban green festival held on the Comedy square located in the pedestrian city
380 center. The objective was to highlight the project and to develop a democratization on air issues.
381 This was a crucial stage in the project institutionalization. During the festival, academics finally
382 met the metropolis chairman at the booth for a long and fruitful discussion about the project for
383 which he was surprisingly unaware of its existence. However, he showed a particular interest
384 by calling his own service to get in contact with the academics. On their demand, the latter
385 wrote a note to extend BREATHE approach in several other place in Montpellier and the
386 surrounding cities and villages included in the metropole. The discussion is still currently
387 ongoing. To this end, academics conducted a series of meetings with the metropolitan vice-
388 chairwoman in charge of transport, active mobility and on bike paths, in February 2021, and
389 another with both its namesake appointed on Environment and the deputy of Peaceful and
390 breathable city in March 2021.

391 Right after the deposimeter withdrawals in March 2021 academics organized with the
392 collaboration of the Council for Architecture, Urban Planning, and the Environment (CAUE) a
393 meeting, as requested by the vice-chairwoman in charge of mobility. This meeting aimed at
394 presenting the BREATHE project approach and to discuss on a tri-partite agreement between
395 the participants. Three metropolitan chairman advisors attended to this meeting including who

396 is appointed on “democratic renewal and social innovation”. During this meeting, one citizen
397 partner expressed the importance “to contract an agreement to make sure the citizen work would
398 be taken into account”. The municipality team did not give effect to this request because of the
399 too restrictive nature of the agreement. As a matter of fact, the vice-chairman appointed on
400 democratic renewal and social innovation vice-chairman mentioned that: “the request for an
401 agreement caused discomfort to a part of the metropolis council team” because they were not
402 able, with the town planner in charge of future developments, to conduct alone the concertation
403 with inhabitants. This reaction is clearly one of the major outcomes for this study. Taking in a
404 critical and reflexive loop, this result was the subject to further investigations. It appeared that
405 this decision of how to lead the concertation was a municipality choice. It was organized as
406 random draw of the participants. This identified limit is circumscribed at a local scale.

407 4.1.3. The closure of Saint-Louis street announcement.

408 Right after the beginning of the filter deployment campaign in December 2020, the
409 newly elected metropolis chairman decided to close the Saint-Louis street to traffic. Although
410 it is difficult to analyze his decision as a direct or indirect effect of the project, the citizen
411 partners are convinced that the project provided a great help. Shortly after, following the first
412 exchanges with the AVA association, a participatory cartography of future development of the
413 Arceaux neighborhood was organized in February 2021 during a market day to involve as many
414 residents as possible. This enabled to introduce a part of the participatory tools, provide a quick
415 overview of the inhabitants needs and expectations, and finally to obtain a cartography on the
416 propositions of citizen’s actions. Then, the city representatives initiated a citizen consultation
417 named “peaceful Arceaux neighborhood” following its continuing politic efforts of “democratic
418 renewal”. To this end, six dwellers chosen by random draw took part in a participatory
419 workshop in June 2021 based on discussions from a special 3D mockup of Saint-Louis street
420 made for the occasion (Figure 4a).



421

422 **Figure 4: [a] Arceaux neighborhood scale-down model especially made for the**
 423 **participatory workshop. [b] The ideal Arceaux neighborhood conceptualized by the**
 424 **citizen partners.**

425 This workshop aims to make a synthesis of dwellers' propositions (Figure 4b) and to support
 426 the citizen partners in the conceptualization of the potential neighborhood arrangement
 427 idealized by their own thoughts. The idea would be to influence the decision making. As we
 428 wrote this report, the citizen consultation was still in progress. The overview (Figure 4b) was
 429 sketched by the academic team to guide inhabitants during the consultation phase led by the
 430 metropolis representatives. It is important to mention that the inhabitants are the first experts of
 431 their living environment. Unfortunately, this co-produced work was not published by the
 432 metropolis representatives in the citizen consultation dedicated website. This result is
 433 particularly interesting since the mockup was drawn up based on the expertise of the inhabitants
 434 and accompanied by means of a scientific tool developed by the academics.

435 4.2. Magnetic mapping of traffic-related Fe-bearing nanoparticles.

436 As it was mentioned above, air pollution refers to many sources. Therefore, following
 437 the citizen expectations, its assessment was directly focused on the rating of the local traffic
 438 source. For that, it seems inescapable to emancipate from the other potential PM sources and

439 thus the regional background level. The solution is to use the relative concentrations of Fe-
 440 bearing nanoparticles expressed as a relative change (RC) of the IRM intensity (Letaïef et al.,
 441 2020):

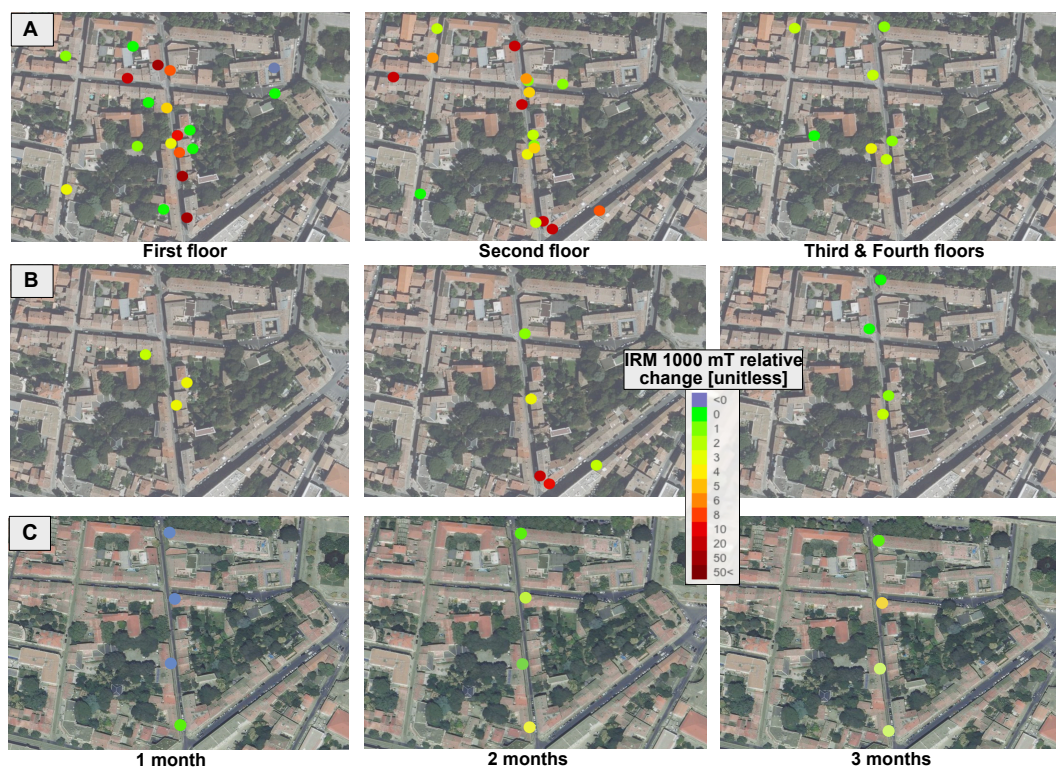
442

$$443 \quad RC = \frac{IRM_{traffic} - IRM_{reference}}{IRM_{reference}}$$

444

445 where $IRM_{reference}$ is the background IRM intensities measured from samples collected at a
 446 monitoring site not associated with the local traffic source. The location of the reference
 447 deposimeters and their positioning is essential in our approach. Here, we selected peri-urban
 448 areas in the north of the city, more specifically in backyards of family home located in
 449 residential areas that are not directly in contact with traffic. The results are presented in Figure
 450 5.

451

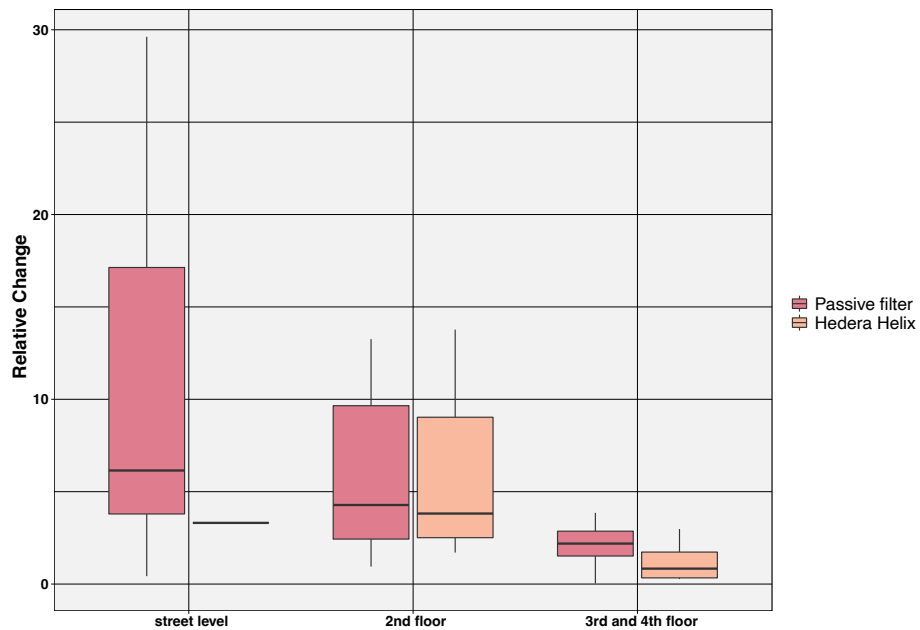


452

453 **Figure 5: Spatial magnetic mapping measured in the Saint-Louis street and its adjacent**
 454 **streets by the relative change of traffic-derived PM concentrations for [a] passive filters.**
 455 **[b] *Hedera Helix* plant leaves. [c] Gradual time exposure measurements performed on**
 456 **passive filters. The color scale from green to dark red in an ascending range from 0 to 50**
 457 **and upper indicates increases of relative concentration for PM deposition and thus makes**
 458 **clear the PM concentration enrichments compared to those measured at the reference**
 459 **stations. Data are supplied in Tables S2 to S4.**

460
461 First, a clear pattern emerges from spatial magnetic measurements both for artificial
462 filters (Figure 5a) and *Hedera Helix* leaves (Figure 5b). Lower values are found for balconies
463 located higher in the buildings, indicating that Fe-bearing nanoparticles from traffic tend to stay
464 close to traffic lanes. The inhabitants were able to directly apprehend a result in line with
465 scientific knowledge for this type of environment (Caton et al., 2003): the ones located on the
466 top floors of the buildings are less exposed to the pollutants released by the road traffic than
467 those located at the ground floor. This trend is most clearly illustrated in Figure 6. To strengthen
468 this observation, we computed unpaired two-samples Wilcoxon tests to compare the
469 distributions of the relative change parameter between floor levels. After having taken care to
470 exclude from this analysis the data of the depositors located in the backyards and thus that
471 are not in direct contact with the traffic, we can conclude at a 5 percent significance level that :
472 (i) for the paper filters, the street level median RC value is not significantly greater than the
473 first floor median RC (p-value = 0.1426) but it is greater when compared to the one of the 3rd
474 and 4th floor combined (p-value = 0.0085); The second floor median RC value is also greater
475 than the one of the upper levels (p-value = 0.0146). (ii) for the hedera helix, the second floor
476 median RC value is significantly greater than the one for the upper floors (p-value = 0.0318).
477 As evident from Figure 5, the magnetic mappings display variable Fe-bearing nanoparticles
478 relative concentrations at the housing scale, but no specific trends are found along the streets.
479 This brings a source of complexity in the citizen analysis. Furthermore, we note that the pattern
480 given by *Hedera Helix* leaves measurements (Figure 5b and Figure 6) is comparable to the one
481 given by the artificial filters. This result strengthens our approach based on magnetic
482 monitoring of dust deposition on accumulative surfaces.

483 As illustrated in Figure 5c, we can observe a gradual increase in the values of IRM_{1000mT}
484 relative variation as the exposure time of the deployed filters increases. These results reveal a
485 progressive enrichment in pollutant of about twice greater between the first and the second
486 month and up to 3 to 5 times more during the third month of exposure, and this whatever the
487 location of the dwellings.

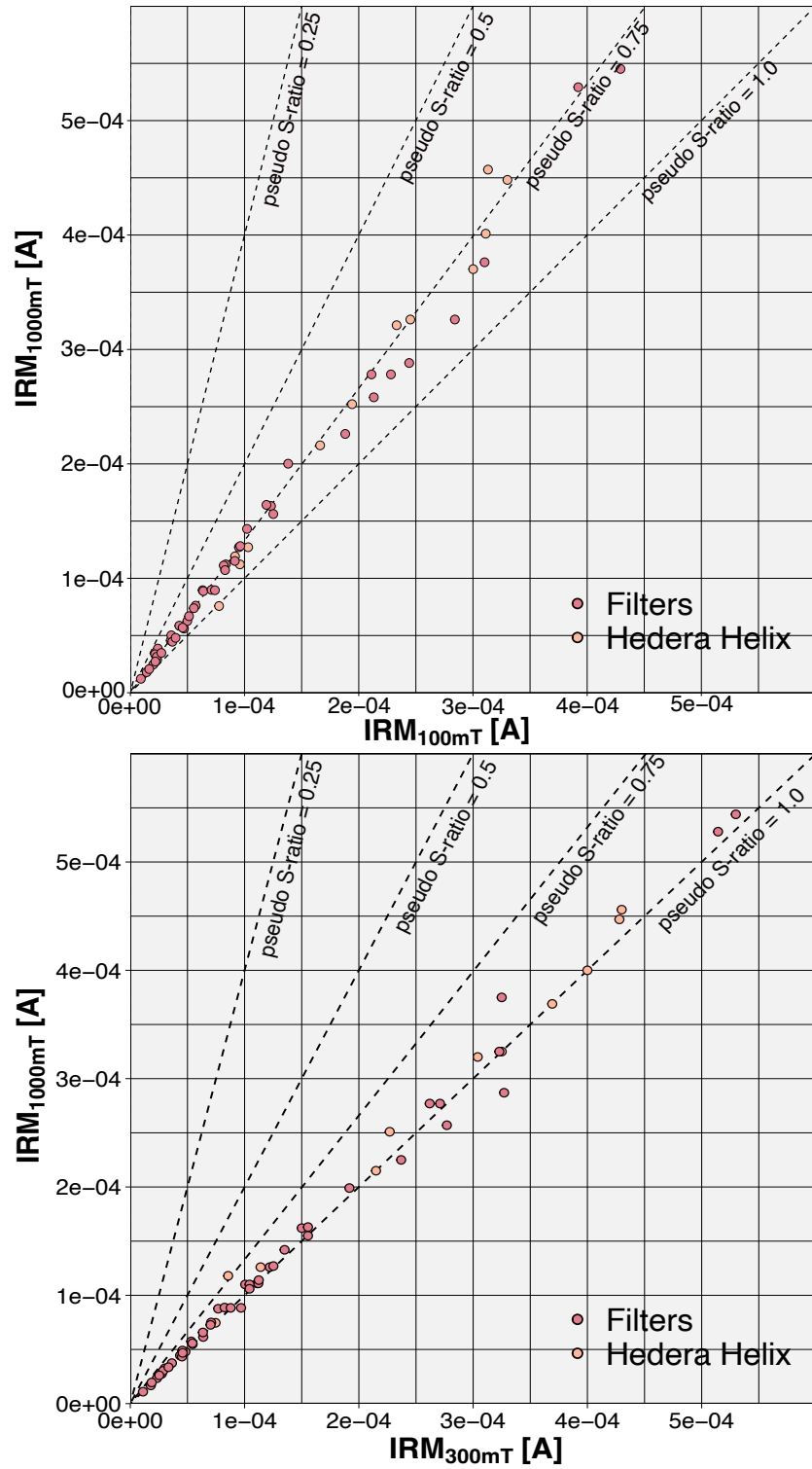


488

489 **Figure 6: Distribution of the Relative Change values as function of the floor levels. Data**
 490 **obtained from depositometers located in backyards, i.e., that are not in direct contact with**
 491 **traffic, are excluded from this analysis.**

492

493 Finally, to get a better understanding on the nature and composition of Fe-bearing
 494 nanoparticles collected, we calculated the relationship of $IRM_{100\text{ mT}}$ or $IRM_{300\text{ mT}}$ with
 495 $IRM_{1000\text{ mT}}$ values. The ratio between both values is expressed as a pseudo-S-ratio (Figure 7).
 496 Values close to 1 indicate a magnetic saturation already reached at 300 mT, which means that
 497 there is a presence of a magnetic mineral easily magnetizable (soft magnetic mineral) often
 498 associated to the presence of magnetite-like material. Values close to zero indicate the presence
 499 of hard magnetic mineral such as hematite. Here, it appears that the magnetic saturation is
 500 reached at 300 mT allowing us to conclude that the remanence of the PM traffic-related is
 501 dominated by the presence of magnetite-like material, possibly oxidized to maghemite.



502

503 **Figure 7: Correlation between IRM_{100mT} and IRM_{1000 mT} (upper plot) and between**
 504 **IRM_{300mT} and IRM_{1000mT} (lower plot) for passive filters and hedera helix leaves settled on**
 505 **the balconies of the Saint-Louis street. Four constant values of the pseudo-S-ratio are**

506 **illustrated with dashed-lines to help the interpretation. Note that pseudo-S-ratio values**
507 **greater than 1 as observed for some samples in the lower plot are theoretically impossible**
508 **to explain. We believe that this is a measurement error problem in the present case. Data**
509 **are supplied in Tables S2 to S4.**

510

511 4.3. Critical and reflexive feedbacks

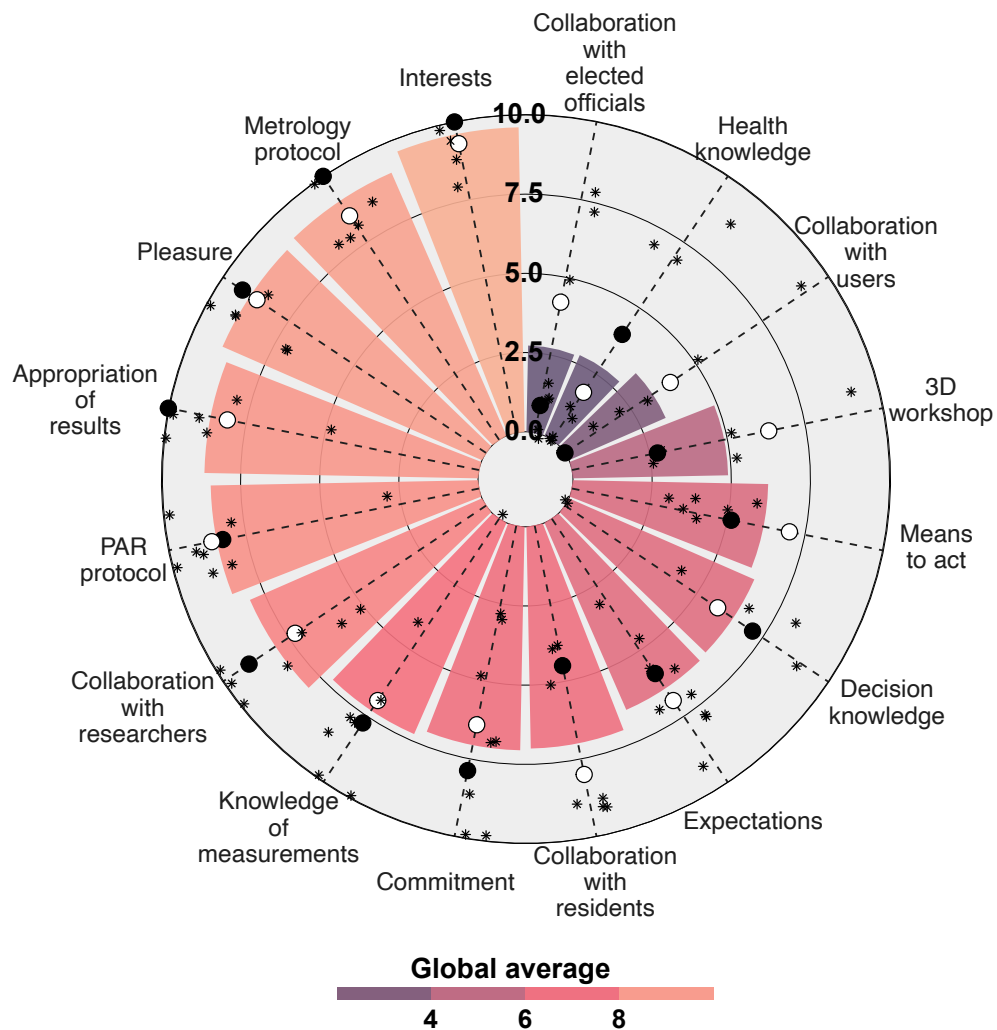
512 4.3.1. First outcomes during a public presentation

513 The academics organized in September 2021 a presentation of the first results in the
514 coffee shop “Le Gazette Café” in downtown Montpellier and a round-table discussion with two
515 non-partner academics working on public health related to air quality, a citizen partner, a
516 representative of a bicycle user association “Vélo Cité”, the metropolitan vice-chairwoman
517 appointed on environment, a representative from the state-approved air quality measurements
518 agency (ATMO-Occitanie), and the academics. Following the round-table discussion, about 30
519 citizens participated to a very fruitful debate. However, except the only representative citizen
520 partner, none of the citizen partner group member came to this event. The citizen partners
521 commitment to the project appeared clearly weaker after the street closure announcement than
522 at the beginning.

523 4.3.2. Critical and reflexive participatory co-writing workshop

524 To analyze the limits and benefits of the BREATHE approach, a critical and reflexive
525 participatory workshop was organized in February 2022 as a co-drafting process. The protocol
526 remained in the hands of the academics. The first part of the workshop was dedicated to a
527 presentation of the magnetic cartography results (Figure 5) and discussions. The discussion first
528 focused on a period of the study when the street had less traffic, *i.e.*, during the containment
529 due to COVID-19. Then, the discussions were focused on the added value and the interests of
530 having a high-definition mapping of the pollutants. We were also able to discuss the limits of
531 this map. Indeed, it would have been interesting to have more committed citizens which would
532 have allowed for more samples. The second part of the workshop was reserved for critical and
533 reflective questions. The researchers asked a series of questions for the participants and
534 themselves to answer. These questions were focused on their feedbacks (Table 2). Overall, we
535 found a great heterogeneity in the responses, except for those concerning interest in the project
536 and the understanding of the metrology protocol (Figure 8). The results of this workshop
537 highlight that: (1) questions on metrology and the need to support public action are scored
538 higher than the others - (2) contributions on knowledge were very limited - (3) collaboration

539 was easier with academics than with elected officials - (4) expectations and support for decision
 540 making were important for participants (Figure 8).



541
 542
 543 **Figure 8: Representation of the participants and academics positioning by theme. The**
 544 **global average by theme is illustrated by the color scale of the radar plot. Filled dots and**
 545 **empty dots are the average for academics and citizen partners, respectively. The stars**
 546 **represent the bulk data. Note that answering was not mandatory and participants may**
 547 **withhold their positioning. Data are supplied in Table S5.**
 548

549 The final question of the workshop was, "If you were involved in a similar project
 550 again, what would you change to improve the project and your participation?" A citizen partner
 551 of the association "Mieux Vivre Rue Saint-Louis" answered by reporting that some of the
 552 inhabitants' group feared instrumentalization by the academics. It would seem, after further
 553 discussion, that the problem lies in a lack of understanding of the researchers' objectives and

554 their research questions. They were also doubtful that this research work (mapping, policy
555 support, training) was free. Another citizen added: “I saw the project as academic research and
556 that was enough for me. It would be useful to obtain a little more collaboration with the city
557 representatives and maybe that will come”. Another citizen partner outbid by saying that “he
558 would like to involve more inhabitants”.

559 The elected officials of the metropolis and the city of Montpellier did not come to the
560 workshop. We had some assumptions about this absence. We later learned that the same day at
561 the same time and at the same place (the CAUE), the vice-chairman delegated to the City Center
562 tried to organize a meeting for the “democratic renewal” consultation. The CAUE director
563 decided not to cancel the workshop organized by the academic team despite the city
564 representative’s demand. The academics were not invited to participate at this metropolitan
565 meeting held elsewhere. After further investigations we learned that the municipality meeting
566 was very conflictual because the municipality team did not take enough into account the citizen
567 propositions at first.

568 Finally, right after the participatory workshop, one of citizen partner e-mailed the
569 metropolis chairman and asked him to participate to the BREATHE project and to the writing
570 of the article. The chairman mailed back and assured he wanted to get in touch with the
571 academics because “the choices that illustrate the improvement in air quality must be
572 highlighted”. Thereupon, academics still have received no correspondence from the chairman
573 even if this one has the phone number of the PhD student on political sciences.

574 **5. Discussion**

575 5.1. Magnetic measurements: uncertainties and relevance of the method.

576 Magnetic monitoring of traffic-related Fe-bearing nanoparticles performed on passive
577 filters and *Hedera Helix* leaves (Figures 5a and 5b) demonstrates similar trends with a decrease
578 of PM relative concentrations as the apartments are higher in the buildings. On the contrary, no
579 specific trend is found at the street level. This result could be explained by the street geometry
580 and the variation in height of buildings, which foster the creation of vertical motion and up to
581 four vortices might appear within the canyon cavity (Nazridoust & Ahmadi, 2006). Another
582 parameter to think about in these interpretations is the time-varying inflows. In this case study,
583 the prevailing wind direction, measured with an anemometer installed on the aqueduct located
584 at the beginning of the street, is parallel to the street direction (Figure S2). A fact that goes

585 against usual investigations found in the literature where the prevailing wind is perpendicular
586 to the street canyon. It must be emphasized that the data from the anemometer is of poor quality
587 because this instrument was protected to the West and to the East by the aqueduct arches. In
588 addition, temporal measurements (Figure 5c) show each month a gradual accumulation of
589 traffic-related PM during three months in which the deposimeters have been deployed in the
590 streets, as expected for accumulative PM deposition surface. These results provide a better
591 understanding of the spatial and temporal variations of pollutant deposition in a street canyon.
592 The magnetic method seems to be precise enough to detect small variations at the street-level
593 scale and this, whatever the nature of the deposimeter (plant leaves or filter). The academics
594 think important that when setting up at the start of the survey, deposimeters must be as clean as
595 possible for adequate metrological comparability of PM concentrations. Otherwise, the signal
596 could be biased by a re-emission of pre-existent PM by wind or rain, for example. With an
597 identical base level close to zero for all the deposimeters, the types of re-emissions remain
598 constant, and the PM relative change also remains constant at the scale of the study area and
599 the duration of exposure.

600 The interest of this non-conventional technique has greatly increased during the last
601 decades (Gonet & Maher, 2019; Hofman et al., 2017). First, correlations between chemical
602 compositions and various magnetic parameters have been already made. For instance, a study
603 shows meaningful associations between Saturated Isothermal Remanent Magnetization (SIRM)
604 parameter measured on plant leaves with the traffic-related Pb concentrations despite the fact
605 that leaded fuel has been forbidden in Europe since 2000 (Maher et al., 2008). Next, Castanheiro
606 et al. (2020) measured the magnetic signature and element content of the accumulation of
607 atmospheric dust depositions on leaves collected every three weeks. The accumulation was
608 observed visually by microscopy and detected magnetically, while the metal enrichments were
609 not obvious. Finally, a recent study compared the IRM_{1000mT} relative changes values with a
610 numerical modeling for $PM_{2.5}$ dispersions along a motorway (Letaïef et al., 2020). The strengths
611 of this model based on computational fluid dynamics (CFD) with the Reynolds-Averaged
612 Navier–Stokes (RANS) equations is to consider the traffic-induced momentum and turbulence.
613 Even if the model can be improved by adding the contribution of plants to remove PM from the
614 air, the results are truly encouraging. Indeed, the PM concentration follows trends forecasted
615 by the techniques of environmental magnetism.

616 For all the reasons mentioned above, the research assumption that magnetic monitoring
617 can be considered as a possible alternative or complement to state-approved air quality

618 measurements is being increasingly reinforced. Moreover, because it is a rapid and low-cost
619 method, considerable amounts of measurements can be made. It promotes the implementation
620 of studies in the form of citizen science where the citizen is involved on the entire construction
621 of the data, from the acquisition, the analysis up to the interpretation. By understanding the
622 data, it is easily accepted by the citizens. On the contrary, the conventional measurement
623 stations are often sparse at the city-scale and therefore their data needs to be interpolated by
624 modeling to obtain the spatial variations at the scale of the city. Such modeling is in most cases
625 difficult for citizens and decision makers to apprehend and therefore can be misunderstood and
626 thus can fuel social conflict. Considering that magnetic method is efficient at micro-scales, it
627 can therefore be helpful in turn for the state-approved air quality measurements agency to help
628 in calibrating their modeling.

629 Since January 2021 the national air quality monitoring agency introduced an air quality
630 index (Table S1) integrating different pollutants such as the PM (PM_{2.5} and PM₁₀), the NO₂, the
631 ozone (O₃) and the SO₂ concentrations. This index characterizes the one-day global air quality
632 for a spatial scale deemed representative for each municipality. It is calculated from the
633 mesoscale modeling points included in the perimeter of the municipality. Finally, the retained
634 index is the most degraded point of the municipal grid. Simultaneously, since an increasing
635 number of studies care about air pollution monitoring through a magnetic approach, the
636 implementation of a magnetic air quality index (Q_{mag} ; Table S1) could facilitate the
637 communication between academics, elected people, and citizens and also between researchers
638 from the same field. For this reason, we propose a first magnetic index based on the IRM
639 relative change values (Table S1). This tool is even more legitimate since with the relative
640 change, this is the local source-specific pollution that is measured. Thus, this method could
641 easily supplement the governmental agency measurements by improving the data at small
642 spatial scale. It could be progressively refined later by the community by notably integrating
643 the nature, the magnetic characterization of the pollutant sources but also their grain-size and
644 harmfulness. The smallest Fe-nanoparticles (between 3 and 30 nm), which are the most
645 dangerous for health, are easily detectable in magnetism laboratories thanks to their
646 superparamagnetic behavior. Based on Néel relaxation theory (Néel, 1949), this behavior can
647 be quantified in different ways (Tauxe et al., 2018) and it seems relevant to consider it to refine
648 the magnetic air quality index.

649 Nevertheless, this method has its limits. Because all the traffic-related pollutants are not
650 necessarily magnetic, one may wonder what we are truly measuring. For this reason, it appears

651 necessary to magnetically determine the different traffic-related sources and then, their
652 contributions by means of a source-to-sink approach (Letaïef et al., 2022). In addition,
653 environmental magnetism investigations aim at determining the magnetic mineralogy, the grain
654 size, and the concentration of magnetic material. To do so, it is needed to carry out a whole
655 battery of analyzes that could be time-consuming and difficult to put through. For example, the
656 pseudo-S-ratios calculated here for most of the PM collected are close to 1 (Figure 7),
657 suggesting a dominance of low coercivity material such as magnetite. Considering that, the
658 magnetic signal could be dominated by abrasion products like brakes (Ingo et al., 2022). Further
659 analyses reveal that brake pads are highly magnetized, with low coercivity and not mainly
660 composed of magnetite but also ferrite or other materials that could not easily traceable with
661 the analytical means available in rock magnetism laboratories (Figure S3).

662 5.2. Contributions and limits of the BREATHE project on social and political issues.

663 The integrative methodological approach used in this study provided relevant results in
664 terms of methodological, epistemic, researchers' posture, and public action. However, the
665 discussion will be strictly limited to two points which appears to be the most relevant: (1) the
666 contributions and limits about air citizen monitoring and decision making and (2) the
667 epistemological and analytical perspectives.

668 The study on the Saint-Louis street permits to support the inhabitant claims, as
669 highlighted in the workshop by one resident of the neighborhood. Nonetheless, the project is
670 still in progress and according to the different changes that will be operated after the Saint-
671 Louis street closure, the stances of the different actors might yet change. As previously
672 documented, the magnetic method applied to air quality monitoring displayed its efficiency at
673 micro-scale. Besides, it could be an effective tool to complement information given to the
674 community through the formal channels such as ATMO-Occitanie (the official air quality
675 monitoring agency). We have not been able to establish a collaboration with ATMO-Occitanie.
676 It may be explained by the fact that the BREATHE project was perceived by the CEO of
677 ATMO-Occitanie as an expertise competition and a threat to their economic development and
678 legitimacy. The academics quickly realized that ATMO-Occitanie did not have sufficient
679 resources to develop PM metrology at a street level, even though these data are of real interest
680 to the community. Indeed, the population wants to know the quality of the air they breathe in
681 their living spaces. We observe the democratization of low-cost sensors, easy to deploy
682 everywhere. Our research project BREATHE is at the core of this ecosystem of measurements

683 and citizen counter-expertise. ATMO-Occitanie is also at the core of this issue as it is the
684 official agency whose measurements are directly considered by the public authorities. This
685 institutionalization of ATMO-Occitanie has been one of the obstacles to the institutionalization
686 of the BREATHE project device. The public institution (the Metropolis and the city of
687 Montpellier) had already contracted with ATMO-Occitanie. The failure to establish a
688 collaboration agreement with the Metropolis and the city of Montpellier could be interpreted as
689 the will of the metropolitan representatives to retain their power. This hypothesis highlights a
690 paradox in the construction of local public action which claims a desire for citizen participation
691 and democratic renewal.

692 Regarding the involvement and motivation of stakeholders in the project, we noticed a clear
693 change over the course of the project. Indeed, as soon as the president of the metropolis and
694 mayor of Montpellier announced the closure of the street to traffic and thus met the expectations
695 of the citizens, the involvement of the latter largely decreased. This could be explained by the
696 fact that the primary expectation of citizens was the closure of the street rather than gaining
697 information on air quality. We have also questioned the limited effectiveness of public action
698 on air pollution control. This could be explained by the fact that political authority is articulated
699 at two scale levels: the metropolis and the city with different political and administrative
700 competences. The objects of our research, fine-particle outdoor air quality and participatory
701 democracy, are dealt separately by the metropolis and the city and are therefore subject to
702 different political arbitrations. For example, the representatives of the Montpellier city council
703 have taken the lead in developing their own form of participatory democracy called “democratic
704 renewal”. The two vice-presidents for the Environment and for Research of the metropolitan
705 council who closely followed the project agreed to co-author this article because the results are
706 of interest to the elected officials in charge of air quality. However, the latter asked us to appear
707 simply in support of the project and finally refused to coauthor this article because the
708 descriptive dimension reported here could be interpreted as critical on a social and political
709 level. Such an interdisciplinary approach is not easy to implement and takes time for the
710 establishment of a common protocol answering the different research questions of researchers.
711 In addition, the choice of the Participatory Action Research (PAR) approach requires time to
712 set up a cohort of co-researchers with citizens and to create a real collaboration with institutions
713 (the agreement issue). In BREATHE, it was the university researchers who sought out and
714 suggested that citizens join the project and not the other way around, as can be seen in the
715 literature on PAR. The issue of having an agreement signed by the local institution (Metropolis

716 or city of Montpellier) was important in our project. This would have made it possible to clarify
717 the interests of the various stakeholders and would have ensured the neutrality of the researchers
718 because the posture and expectations of each stakeholder would have been indicated in the
719 partnership agreement. This allows to provide comfort for academics in a conflictual work
720 environment. Two elements explaining the limit of collaboration could be investigated in
721 further research. The first one, surely comes from the fact that academics have decided at the
722 beginning of the project to support the citizens while trying to get at first a collaboration with
723 the Montpellier Metropolis. The second element to be explored later (this will also be the work
724 of the doctoral student in political science) is the politicization of the air quality issue, which
725 would explain the reluctance of elected officials to involve another actor in the management of
726 this social and environmental issue. Only a continuation of this project research will permit to
727 answer the hypothesis. At the time of drafting this paper, academics are still in discussion with
728 elected officials and people working for the Montpellier metropolis.

729 The analytical contributions are relevant because they allowed to precisely describe the
730 construction of public action on air quality at a local and a metropolitan scale. In this case study,
731 the results demonstrated that consultation device developed by the metropolis of Montpellier is
732 in tension between the Habermas-Mouffe conceptualization of public debate. More generally,
733 this type of “democratic experimentation”, which aims at empowering citizens, does not fully
734 redistribute the power of decision and action. Thus, the co-construction effort developed by the
735 academics from the beginning of the project did not completely integrate citizen, metropolitan
736 representatives, and their project managers into the research program itself. The participatory
737 research aspect remains limited. The work carried out by all the actors made possible to be at
738 the center of the complexity of the tensions and attempts at power asymmetries. It invites to
739 open a wider field interdisciplinary research program to cross-examine science in and for the
740 society.

741 **Conclusion:**

742 1) A real and exploratory case study carried out inside a Montpellier (France) street canyon
743 following a citizen science approach is presented. Focused on air quality monitoring, it
744 allows a deployment of 60 passive filters and 12 pots of *Hedera Helix* with a close

745 contribution of citizen partners, already mobilized against the street traffic and its
746 adverse environmental effect on air quality.

747 2) By means of the magnetic monitoring technique, this kind of citizen science survey is
748 promoted. The benefits of the approach highlight a high-resolution data at the micro-
749 scale, e.g., street level, where the formal air quality measurements from state-approved
750 agencies are often few at the city-scale necessitating modeling to obtain the spatial
751 variations at the scale of the district. The air quality magnetic monitoring method could
752 be perceived both as an alternative but also as a complement to help conventional
753 monitoring.

754 3) A magnetic air quality index is proposed to standardize the magnetic monitoring of air
755 quality. This index would attempt to democratize the magnetic data and facilitate the
756 dialogue with all the stakeholders.

757 4) From a social and political points of view, a whole set of limits are detailed and, deserve
758 to be pursued in view of its heuristic possibilities. Although, many questions remain to
759 be addressed and overcome. This study remains at an exploratory stage. It deserves to
760 be investigated in more depth by replicating it on several other districts. A major
761 outcome highlights the need to deal analytically with the research project posture to
762 supply future research work. At this stage, it seems very appropriate to reproduce the
763 study to assess the effectiveness of public action once the project to redesign the street
764 with no traffic will be completed.

765

766 **Author Contributions:** Conceptualization, S.L., LSdA; environmental magnetism
767 methodology, S.L; Citizen Science and Participative Action Research approach, LSdA, DDP;
768 analytical experiments, S.L., P.N., C.P.; Deposimeters deployment, S.L., P.N., LSdA., C.P.;
769 Magnetic equipment maintenance, P.N.; Citizen participation representative, C.P; Writing-
770 original draft preparation, S.L., LSdA, and P.C.; Role of facilitator between elected officials,

771 metropolitan services, and study participants, R.P; Principal Investigator of BREATHE project,
772 P.C.; All authors have read and agreed to the published version of the manuscript.

773 **Funding:** This research was funded by the Agence Nationale de la Recherche (ANR) grant
774 numbers ANR-19-CE04-0008 and ANRT 2020/0018 through the BREATHE project.

775 **Acknowledgments:** The authors thank all the participants in this study, but also Renaud Barres
776 the director of the Council for Architecture, Urban Planning, and the Environment (CAUE34)
777 for its support by participating in the project and by provisioning its premises for several
778 meetings. Our thanks also to Florence Brau, and Isabelle Touzard vice-chairwomen at the
779 metropolis council in charge of research and environment, respectively, who supported our
780 project from its conception to its finalization through this article. For reasons of scale of
781 delegation, they cannot be co-authors as planned at the beginning. We also extend thanks to
782 Alexandre Gouget, from the Town Hall in getting access to the Arceaux aqueduct and Jean-
783 François Ritz, CNRS research director for helping us to implement the anemometer on the
784 aqueduct. They also thank Artistes contributors Anais Bignozet, Julia Tardieu, Amandine
785 Magnin who have done the 3D Model, Camille Aurillac, Raphael Merven, Margaux Lefevre,
786 Maelis Bertrand, Lisa Voisin for their support to collect data during participatory workshop.
787 We thank Raphaël Merven for help with the English.

788

789 **References**

- 790 Beaumont, J., & Nicholls, W. (2008). Plural Governance, Participation and Democracy in
791 Cities. *International Journal of Urban and Regional Research*, 32(1), 87–94.
792 <https://doi.org/10.1111/j.1468-2427.2008.00779.x>
- 793 Bedessem, B., & Rupy, S. (2020). Citizen Science and Scientific Objectivity: Mapping Out
794 Epistemic Risks and Benefits. *Perspectives on Science*, 28(5), 630–654.
795 https://doi.org/10.1162/posc_a_00353
- 796 Bela, G., Peltola, T., Young, J. C., Balázs, B., Arpin, I., Pataki, G., et al. (2016). Learning and
797 the transformative potential of citizen science. *Conservation Biology*, 30(5), 990–999.
798 <https://doi.org/10.1111/cobi.12762>
- 799 Bevir, M. (2010). *Democratic governance. Democratic Governance*.
800 <https://doi.org/10.1093/pa/gsr009>
- 801 Bœuf, G., Allain, Y.-M., & Bouvier, M. (2012). L’apport des sciences participatives à la
802 connaissance de la biodiversité en France. *La Lettre de l’OCIM*, (144), 8–18.
803 <https://doi.org/10.4000/ocim.1119>
- 804 Bonney, R., Phillips, T. B., Ballard, H. L., & Enck, J. W. (2016). Can citizen science enhance
805 public understanding of science? *Public Understanding of Science*, 25(1), 2–16.
806 <https://doi.org/10.1177/0963662515607406>

- 807 Boring, N. (2019). France: European Court Finds France in Violation of Air Quality Rules.
808 Retrieved March 20, 2022, from [https://www.loc.gov/item/global-legal-monitor/2019-](https://www.loc.gov/item/global-legal-monitor/2019-11-25/france-european-court-finds-france-in-violation-of-air-quality-rules/)
809 [11-25/france-european-court-finds-france-in-violation-of-air-quality-rules/](https://www.loc.gov/item/global-legal-monitor/2019-11-25/france-european-court-finds-france-in-violation-of-air-quality-rules/)
- 810 Botero, N. (2021). Pollution atmosphérique à la une : visibilité médiatique d'un problème
811 environnemental. *Revue Française Des Sciences de l'information et de La*
812 *Communication*, (21). <https://doi.org/10.4000/rfsic.10230>
- 813 Boutaric, F. (2007). Les réseaux de la qualité de l'air : des associations stratégiques actrices de
814 l'action publique. *Développement Durable et Territoires*.
815 <https://doi.org/10.4000/developpementdurable.2878>
- 816 Brossard, D., Lewenstein, B., & Bonney, R. (2005). Scientific knowledge and attitude
817 change: The impact of a citizen science project. *International Journal of Science*
818 *Education*, 27(9), 1099–1121. <https://doi.org/10.1080/09500690500069483>
- 819 Calvillo, N. (2018). Political airs: From monitoring to attuned sensing air pollution. *Social*
820 *Studies of Science*, 48(3), 372–388. <https://doi.org/10.1177/0306312718784656>
- 821 Cao, L., Appel, E., Hu, S., & Ma, M. (2015). An economic passive sampling method to detect
822 particulate pollutants using magnetic measurements. *Environmental Pollution*, 205, 97–
823 102. <https://doi.org/10.1016/j.envpol.2015.05.019>
- 824 Castanheiro, A., Hofman, J., Nuyts, G., Joosen, S., Spassov, S., Blust, R., et al. (2020). Leaf
825 accumulation of atmospheric dust: Biomagnetic, morphological and elemental evaluation
826 using SEM, ED-XRF and HR-ICP-MS. *Atmospheric Environment*, 221, 117082.
827 <https://doi.org/10.1016/j.atmosenv.2019.117082>
- 828 Caton, F., Britter, R. E., & Dalziel, S. (2003). Dispersion mechanisms in a street canyon.
829 *Atmospheric Environment*, 37(5), 693–702. [https://doi.org/10.1016/S1352-](https://doi.org/10.1016/S1352-2310(02)00830-0)
830 [2310\(02\)00830-0](https://doi.org/10.1016/S1352-2310(02)00830-0)
- 831 Chevalier, J. M., & Buckles, D. J. (2019). *Participatory Action Research* (2nd Edition). Second
832 edition. | Abingdon, Oxon ; New York, NY : Routledge, 2019.: Routledge.
833 <https://doi.org/10.4324/9781351033268>
- 834 Cooper, C. (2017). *Citizen Science - How Ordinary People are Changing the Face of*
835 *Discovery*. Bloomsbury Trade, Duckworth Publishing.
- 836 Dewey, J. (1927). *The public and its problems*. (H. Holt, Ed.), Athens Ohio University Press.
837 New York.
- 838 Dosias-Perla, D., Scotto d'Apollonia, L., & Blangy, S. (2018). La fabrique participative des
839 politiques publiques sur la qualité de l'air au prisme d'un dispositif innovant : artistes-
840 atelier. *Technologie et Innovation*, 3(4). <https://doi.org/10.21494/ISTE.OP.2018.0293>
- 841 ECSA. (2015). Ten Principles of Citizen Science. Retrieved March 29, 2022, from
842 <http://doi.org/10.17605/OSF.IO/XPR2N>
- 843 EEA. (2021). *Air quality in Europe 2021*. Copenhagen. <https://doi.org/10.2800/549289>
- 844 Eitzel, M. V, Cappadonna, J. L., Santos-Lang, C., Duerr, R. E., Virapongse, A., West, S. E.,
845 et al. (2017). Citizen Science Terminology Matters: Exploring Key Terms. *Citizen*
846 *Science: Theory and Practice*, 2(1), 1. <https://doi.org/10.5334/cstp.96>
- 847 Elder, A., Gelein, R., Silva, V., Feikert, T., Opanashuk, L., Carter, J., et al. (2006).
848 Translocation of Inhaled Ultrafine Manganese Oxide Particles to the Central Nervous
849 System. *Environmental Health Perspectives*, 114(8), 1172–1178.
850 <https://doi.org/10.1289/ehp.9030>

- 851 Fenger, J. (1999). Urban air quality. *Atmospheric Environment*, 33(29), 4877–4900.
852 [https://doi.org/10.1016/S1352-2310\(99\)00290-3](https://doi.org/10.1016/S1352-2310(99)00290-3)
- 853 Ferin, J., Oberdörster, G., Soderholm, S., & Gelein, R. (1991). Pulmonary Tissue Access of
854 Ultrafine Particles. *Journal of Aerosol Medicine*, 4(1), 57–68.
855 <https://doi.org/10.1089/jam.1991.4.57>
- 856 Göbel, C., Ottolini, L., & Schulze, A. (2021). Science as a Lever: The Roles and Power of
857 Civil Society Organisations in Citizen Science. In *The Science of Citizen Science* (pp.
858 331–349). Cham: Springer International Publishing. https://doi.org/10.1007/978-3-030-58278-4_17
- 860 Gonet, T., & Maher, B. A. (2019). Airborne, Vehicle-Derived Fe-Bearing Nanoparticles in
861 the Urban Environment: A Review. *Environmental Science & Technology*, 53(17),
862 9970–9991. <https://doi.org/10.1021/acs.est.9b01505>
- 863 Grainger, A. (2017). Citizen Observatories and the New Earth Observation Science. *Remote
864 Sensing*, 9(2), 153. <https://doi.org/10.3390/rs9020153>
- 865 Griffith, J. (2017). The French Metropole: How it Gained Legal Status as a Metropolis.
866 *Journal of Comparative Urban Law and Policy*, 2(1), 20–43.
- 867 Gromke, C., Buccolieri, R., Di Sabatino, S., & Ruck, B. (2008). Dispersion study in a street
868 canyon with tree planting by means of wind tunnel and numerical investigations –
869 Evaluation of CFD data with experimental data. *Atmospheric Environment*, 42(37),
870 8640–8650. <https://doi.org/10.1016/j.atmosenv.2008.08.019>
- 871 Haklay, M., Dörler, D., Heigl, F., Manzoni, M., Hecker, S., & Vohland, K. (2021). What Is
872 Citizen Science? The Challenges of Definition. In *The Science of Citizen Science* (pp.
873 13–33). Cham: Springer International Publishing. https://doi.org/10.1007/978-3-030-58278-4_2
- 875 Hama, S. M. L., Cordell, R. L., & Monks, P. S. (2017). Quantifying primary and secondary
876 source contributions to ultrafine particles in the UK urban background. *Atmospheric
877 Environment*, 166, 62–78. <https://doi.org/10.1016/j.atmosenv.2017.07.013>
- 878 Heigl, F., Kieslinger, B., Paul, K. T., Uhlik, J., & Dörler, D. (2019). Toward an international
879 definition of citizen science. *Proceedings of the National Academy of Sciences*, 116(17),
880 8089–8092. <https://doi.org/10.1073/pnas.1903393116>
- 881 Hoffmann, B., Boogaard, H., de Nazelle, A., Andersen, Z. J., Abramson, M., Brauer, M., et
882 al. (2021). WHO Air Quality Guidelines 2021–Aiming for Healthier Air for all: A Joint
883 Statement by Medical, Public Health, Scientific Societies and Patient Representative
884 Organisations. *International Journal of Public Health*, 66.
885 <https://doi.org/10.3389/ijph.2021.1604465>
- 886 Hofman, J., Wuyts, K., Van Wittenberghe, S., Brackx, M., & Samson, R. (2014). On the link
887 between biomagnetic monitoring and leaf-deposited dust load of urban trees:
888 Relationships and spatial variability of different particle size fractions. *Environmental
889 Pollution*, 189, 63–72. <https://doi.org/10.1016/j.envpol.2014.02.020>
- 890 Hofman, J., Maher, B. A., Muxworthy, A. R., Wuyts, K., Castanheiro, A., & Samson, R.
891 (2017). Biomagnetic Monitoring of Atmospheric Pollution: A Review of Magnetic
892 Signatures from Biological Sensors. *Environmental Science & Technology*, 51(12),
893 6648–6664. <https://doi.org/10.1021/acs.est.7b00832>
- 894 Hofman, J., Castanheiro, A., Nuyts, G., Joosen, S., Spassov, S., Blust, R., et al. (2020).
895 Impact of urban street canyon architecture on local atmospheric pollutant levels and
896 magneto-chemical PM10 composition: An experimental study in Antwerp, Belgium.

- 943 Lu, S., Yu, X., & Chen, Y. (2016). Magnetic properties, microstructure and mineralogical
944 phases of technogenic magnetic particles (TMPs) in urban soils: Their source
945 identification and environmental implications. *Science of The Total Environment*, 543,
946 239–247. <https://doi.org/10.1016/j.scitotenv.2015.11.046>
- 947 Lv, W., Wu, Y., & Zang, J. (2021). A Review on the Dispersion and Distribution
948 Characteristics of Pollutants in Street Canyons and Improvement Measures. *Energies*,
949 14(19), 6155. <https://doi.org/10.3390/en14196155>
- 950 Maher, B., & Thompson, R. (1999). *Quaternary Climates, Environments and Magnetism*. (B.
951 A. Maher & R. Thompson, Eds.), *Quaternary climates, environments and magnetism*.
952 Cambridge University Press. <https://doi.org/10.1017/CBO9780511535635>
- 953 Maher, B., Moore, C., & Matzka, J. (2008). Spatial variation in vehicle-derived metal
954 pollution identified by magnetic and elemental analysis of roadside tree leaves.
955 *Atmospheric Environment*, 42(2), 364–373.
956 <https://doi.org/10.1016/j.atmosenv.2007.09.013>
- 957 Maher, B., Thompson, R., Ahmed, I., Davison, B., Karloukovski, V., & Clarke, R. (2013).
958 Impact of roadside tree lines on indoor concentrations of traffic-derived particulate
959 matter. *Environmental Science and Technology*. <https://doi.org/10.1021/es404363m>
- 960 Maher, B., Ahmed, I., Karloukovski, V., MacLaren, D., Foulds, P., Allsop, D., et al. (2016).
961 Magnetite pollution nanoparticles in the human brain. *Proceedings of the National
962 Academy of Sciences*, 113(39), 10797–10801. <https://doi.org/10.1073/pnas.1605941113>
- 963 Matzka, J., & Maher, B. (1999). Magnetic biomonitoring of roadside tree leaves:
964 identification of spatial and temporal variations in vehicle-derived particulates.
965 *Atmospheric Environment*, 33(28), 4565–4569. [https://doi.org/10.1016/S1352-
966 2310\(99\)00229-0](https://doi.org/10.1016/S1352-2310(99)00229-0)
- 967 Miller, M. R., Raftis, J. B., Langrish, J. P., McLean, S. G., Samutrtai, P., Connell, S. P., et al.
968 (2017). Inhaled Nanoparticles Accumulate at Sites of Vascular Disease. *ACS Nano*,
969 11(5), 4542–4552. <https://doi.org/10.1021/acsnano.6b08551>
- 970 Nazridoust, K., & Ahmadi, G. (2006). Airflow and pollutant transport in street canyons.
971 *Journal of Wind Engineering and Industrial Aerodynamics*, 94(6), 491–522.
972 <https://doi.org/10.1016/j.jweia.2006.01.012>
- 973 Néel, L. (1949). Théorie du traînage magnétique des ferromagnétiques en grains fins avec
974 application aux terres cuites. *Annales de Geophysique*.
- 975 Nicholson, S. E. (1975). A pollution model for street-level air. *Atmospheric Environment
976 (1967)*, 9(1), 19–31. [https://doi.org/10.1016/0004-6981\(75\)90051-7](https://doi.org/10.1016/0004-6981(75)90051-7)
- 977 Oberdörster, G., Ferin, J., Gelein, R., Soderholm, S. C., & Finkelstein, J. (1992). Role of the
978 alveolar macrophage in lung injury: studies with ultrafine particles. *Environmental
979 Health Perspectives*, 97, 193–199. <https://doi.org/10.1289/ehp.97-1519541>
- 980 Oberdörster, G., Celein, R. M., Ferin, J., & Weiss, B. (1995). Association of Particulate Air
981 Pollution and Acute Mortality: Involvement of Ultrafine Particles? *Inhalation
982 Toxicology*, 7(1), 111–124. <https://doi.org/10.3109/08958379509014275>
- 983 Ottinger, G. (2010). Buckets of resistance: Standards and the effectiveness of citizen science.
984 *Science Technology and Human Values*, 35(2).
985 <https://doi.org/10.1177/0162243909337121>
- 986 Rea-Downing, G., Quirk, B. J., Wagner, C. L., & Lippert, P. C. (2020). Evergreen Needle
987 Magnetization as a Proxy for Particulate Matter Pollution in Urban Environments.

- 988 *GeoHealth*, 4(9). <https://doi.org/10.1029/2020GH000286>
- 989 Riesch, H., & Potter, C. (2014). Citizen science as seen by scientists: Methodological,
990 epistemological and ethical dimensions. *Public Understanding of Science*, 23(1), 107–
991 120. <https://doi.org/10.1177/0963662513497324>
- 992 Robinson, L. D., Cawthray, J. L., West, S. E., Bonn, A., & Ansine, J. (2018). Ten principles
993 of citizen science. In *Citizen Science* (pp. 27–40). UCL Press.
994 <https://doi.org/10.2307/j.ctv550cf2.9>
- 995 Strasser, B. J., Baudry, J., Mahr, D., Sanchez, G., & Tancoigne, E. (2019). “Citizen science”?
996 Rethinking science and public participation. *Science and Technology Studies*, 32(2).
997 <https://doi.org/10.23987/sts.60425>
- 998 Tauxe, L., Banerjee, S. K., Butler, R. F., & van der Voo, R. (2018). Essentials of
999 Paleomagnetism, 5th Web Edition. Retrieved March 19, 2019, from
1000 <https://earthref.org/MagIC/books/Tauxe/Essentials/>
- 1001 Thorpe, A., & Harrison, R. M. (2008). Sources and properties of non-exhaust particulate
1002 matter from road traffic: A review. *Science of The Total Environment*, 400(1–3), 270–
1003 282. <https://doi.org/10.1016/j.scitotenv.2008.06.007>
- 1004 Tominaga, Y., & Stathopoulos, T. (2013). CFD simulation of near-field pollutant dispersion
1005 in the urban environment: A review of current modeling techniques. *Atmospheric
1006 Environment*, 79, 716–730. <https://doi.org/10.1016/j.atmosenv.2013.07.028>
- 1007 U.S. Environmental Protection Agency. (2022). Benefits of Green Infrastructure. Retrieved
1008 March 25, 2022, from [https://www.epa.gov/green-infrastructure/benefits-green-
1009 infrastructure](https://www.epa.gov/green-infrastructure/benefits-green-infrastructure)
- 1010 Vardoulakis, S., Fisher, B. E. ., Pericleous, K., & Gonzalez-Flesca, N. (2003). Modelling air
1011 quality in street canyons: a review. *Atmospheric Environment*, 37(2), 155–182.
1012 [https://doi.org/10.1016/S1352-2310\(02\)00857-9](https://doi.org/10.1016/S1352-2310(02)00857-9)
- 1013 Zhang, J., & Smith, K. R. (2003). Indoor air pollution: a global health concern. *British
1014 Medical Bulletin*, 68(1), 209–225. <https://doi.org/10.1093/bmb/ldg029>
- 1015 Zhang, Y., Gu, Z., Cheng, Y., & Lee, S. (2011). Effect of real-time boundary wind conditions
1016 on the air flow and pollutant dispersion in an urban street canyon-Large eddy
1017 simulations. *Atmospheric Environment*, 45(20), 3352–3359.
1018 <https://doi.org/10.1016/j.atmosenv.2011.03.055>
- 1019 Zupancic, T., Westmacott, C., & Bulthuis, M. (2015). *The Impact of Green Space on Heat
1020 and Air Pollution in Urban Communities: A Meta-Narrative Systematic Review*.
1021 Vancouver. Retrieved from [https://davidsuzuki.org/science-learning-centre-
1022 article/impact-green-space-heat-air-pollution-urban-communities/](https://davidsuzuki.org/science-learning-centre-article/impact-green-space-heat-air-pollution-urban-communities/)
1023
1024

Community Science

Supporting Information for

Benefits and limitations of environmental magnetism for completing citizen science on air quality: a case study in a street canyon.

S. Letaïef¹, L. Scotto-D'apollonia², D. Dosias-Perla³, C. Pinero⁴, R. Perier⁵, P. Nicol¹, and P. Camps¹

¹ Géosciences Montpellier, University of Montpellier, CNRS, Montpellier, France.

² Artistes Atelier, Vendargues, France.

³ PRODIG, University of Paris 1 Panthéon Sorbonne, CNRS, Paris, France.

⁴ Citizen Participants representative.

⁵ Air quality Montpellier Méditerranée Métropole Service.

Corresponding author: Sarah Letaïef (sarah.letaief@umontpellier.fr)

Contents of this file

Figures S1 to S3

Tables S1 to S5

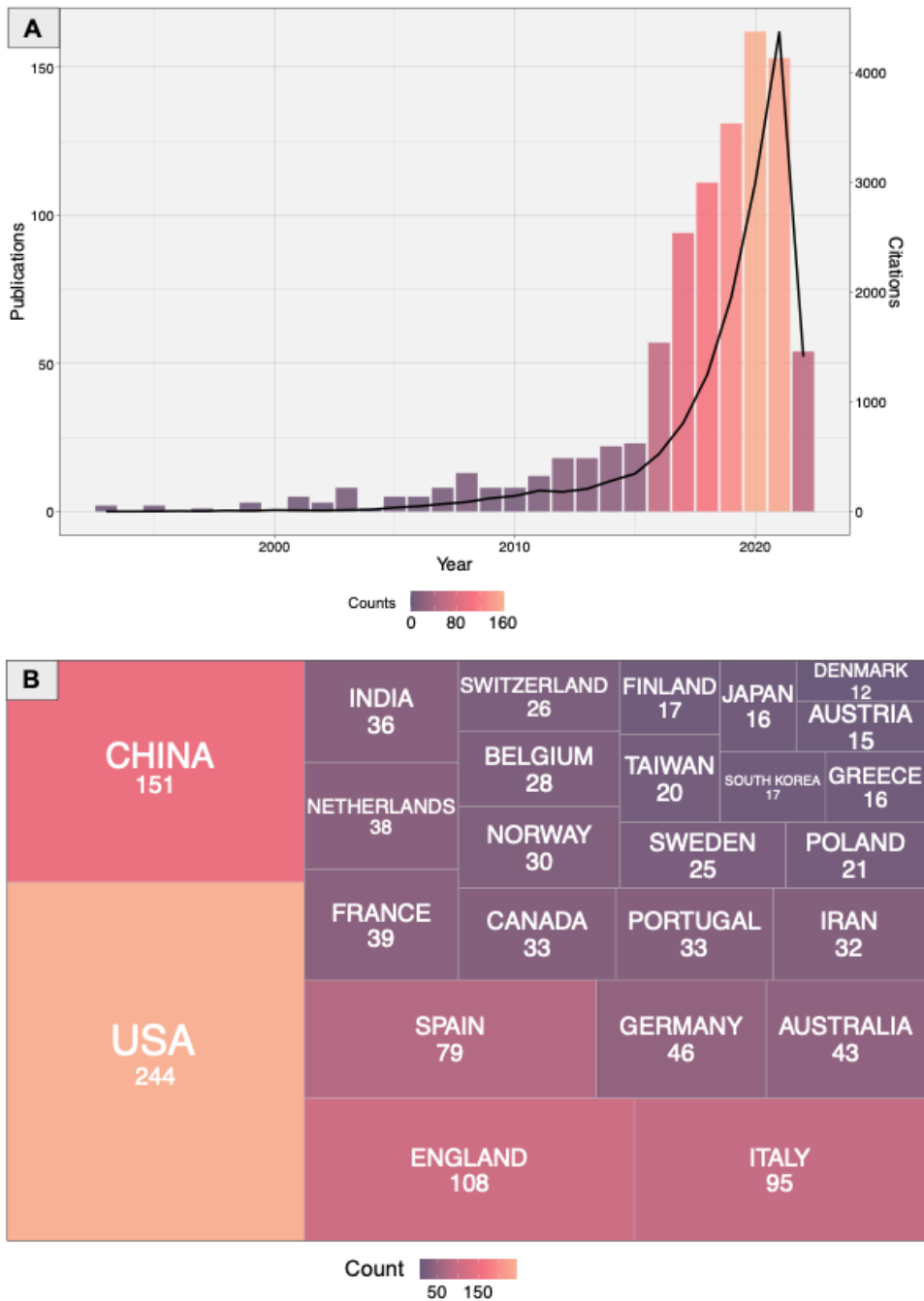


Figure S1. Bibliometric analysis performed from the "Web of Science core collection" database accessed on May 20, 2022 with the search query ((ALL=(Air quality) OR ALL=(Air pollution))) AND ALL=(citizen science). This search identifies 928 publications that are cited 12672 times. These results are illustrated with **(A)** a histogram of the number of publications (colored bars) and the number of citations (black solid line) per year since 1993 and **(B)** a "Treemap chart" where the areas on this chart are proportional to the number of publications per country as entered in the address field within the records. We have limited this graph to the 25 most represented countries

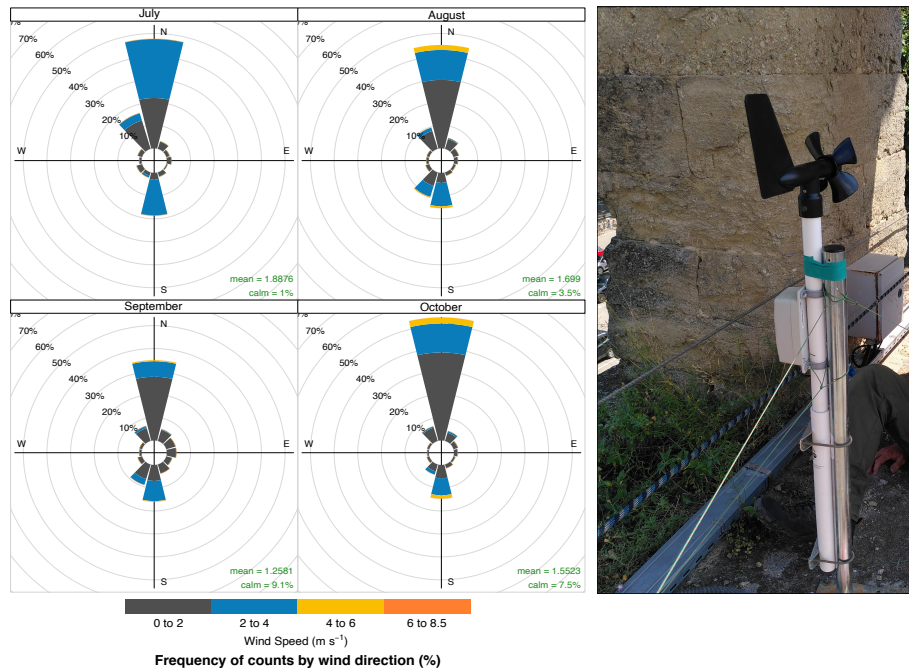


Figure S2. Wind roses for July, August, September, and October 2021, illustrating the prevailing wind speed and direction in the Saint-Louis canyon street that is oriented North-South (see Figure 1 in the main text).

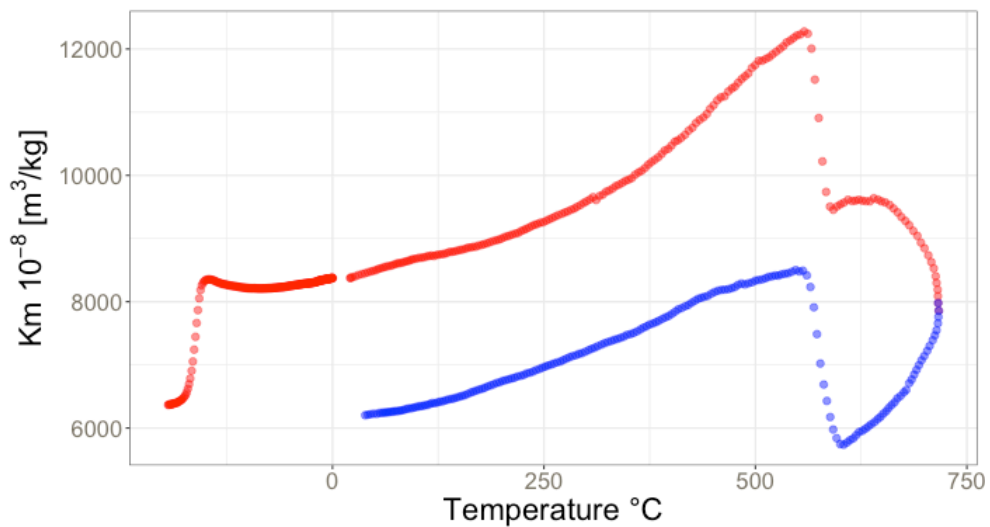


Figure S3. Magnetic susceptibility vs Temperature curves for brake pads illustrate the Hopkinson pick until 550°C and an inflexion around 600°C, suggesting the formation single domain magnetite. Also, we can see that another Curie point is not reached at 715°C, which would mean the presence of steel, pure iron or ferrite as well.

Table S1. Air quality index developed by the national air agency of France. A qualifier (good, medium, etc) is assigned for each pollutant, according to its concentration in $\mu\text{g}/\text{m}^3$. The last line of the table presents a magnetic air quality index assigned for PM relative concentrations and measured by the IRM relative changes (dimensionless).

		Good	Medium	Low	Bad	Very Bad	Extremely Bad
Daily average	PM _{2.5}	0-10	11-20	21-25	26-50	51-75	> 76
Daily average	PM ₁₀	0-20	21- 40	41-50	51-100	101-150	> 151
Maximum hourly per day	NO ₂	0-40	41- 90	91-120	121-230	231-340	> 341
Maximum hourly per day	O ₃	0-50	51-100	101-130	131-240	241-380	> 381
Maximum hourly per day	SO ₂	0-100	101-200	201-350	351-500	501-750	> 751
IRM relative change	PM	< 0-1	1-5	5-8	8-20	20-50	> 50

Table S2. Data set of magnetic measurements for filters.

Sample	Stage	Location	Surface [cm ²]	IRM _{100mT} [Am ²]	IRM _{100mT} [A]	IRM _{300mT} [Am ²]	IRM _{300mT} [A]	IRM _{1000mT} [Am ²]	IRM _{1000mT} [A]	Pseudo S-ratio
B-003	1st	Garden	50.6	1,15E-07	2,29E-05	1,83E-07	3,64E-05	1,88E-07	3,74E-05	6,11E-01
B-005	1st	Street	50.6	1,02E-07	2,04E-05	1,51E-07	3,01E-05	1,63E-07	3,25E-05	6,26E-01
B-009	1st	Street	50.6	6,12E-07	1,22E-04	7,52E-07	1,50E-04	8,15E-07	1,62E-04	7,51E-01
B-010	1st	Street	50.6	2,78E-06	5,54E-04	3,53E-06	7,04E-04	3,50E-06	6,98E-04	7,94E-01
B-011	1st	Parking	50.6	2,09E-07	4,17E-05	2,67E-07	5,33E-05	2,88E-07	5,74E-05	7,25E-01
B-013	1st	Street	50.6	1,55E-06	3,09E-04	1,63E-06	3,25E-04	1,88E-06	3,75E-04	8,25E-01
B-014	1st	Street	50.6	4,04E-08	8,05E-06	5,56E-08	1,11E-05	5,50E-08	1,10E-05	7,34E-01
B-017	1st	Street	50.6	4,71E-07	9,39E-05	6,11E-07	1,22E-04	6,31E-07	1,26E-04	7,47E-01
B-019	1st	Garden	50.6	1,12E-07	2,23E-05	1,38E-07	2,75E-05	1,38E-07	2,75E-05	8,11E-01
B-020	1st	Street	50.6	9,37E-07	1,87E-04	1,19E-06	2,37E-04	1,13E-06	2,25E-04	8,28E-01
B-022	1st	Garden	50.6	1,10E-07	2,20E-05	1,44E-07	2,87E-05	1,52E-07	3,03E-05	7,25E-01
B-025	1st	Street	50.6	4,05E-07	8,06E-05	5,24E-07	1,04E-04	5,54E-07	1,10E-04	7,31E-01
B-027	1st	Street	50.6	2,15E-06	4,28E-04	2,66E-06	5,30E-04	2,73E-06	5,44E-04	7,88E-01
B-028	1st	Street	50.6	1,96E-06	3,91E-04	2,58E-06	5,14E-04	2,65E-06	5,28E-04	7,40E-01
B-035	1st	Garden	50.6	1,90E-07	3,78E-05	2,42E-07	4,81E-05	2,41E-07	4,79E-05	7,88E-01
B-036	1st	Garden	50.6	4,10E-07	8,18E-05	5,23E-07	1,04E-04	5,32E-07	1,06E-04	7,71E-01
B-045	1st	Street	50.6	5,92E-07	1,18E-04	7,80E-07	1,55E-04	8,20E-07	1,63E-04	7,22E-01
B-046	1st	Garden	50.6	1,79E-07	3,56E-05	2,27E-07	4,52E-05	2,18E-07	4,34E-05	8,20E-01
B-054	1st	Garden	50.6	1,31E-07	2,60E-05	1,68E-07	3,34E-05	1,69E-07	3,36E-05	7,75E-01
B-057	1st	Garden	50.6	7,701E-08	1,53E-05	9,38E-08	1,87E-05	9,78E-08	1,95E-05	7,87E-01
B-058	1st	Garden	50.6	1,041E-07	2,07E-05	1,27E-07	2,53E-05	1,31E-07	2,61E-05	7,95E-01
B-059	1st	Garden	50.6	6,60E-08	1,31E-05	8,97E-08	1,79E-05	8,43E-08	1,68E-05	7,83E-01
B-002	2nd	Garden	50.6	1,14E-06	2,27E-04	1,36E-06	2,71E-04	1,39E-06	2,77E-04	8,20E-01
B-007	2nd	Street	50.6	2,30E-07	4,58E-05	2,74E-07	5,45E-05	2,76E-07	5,49E-05	8,33E-01
B-008	2nd	Street	50.6	5,09E-07	1,01E-04	6,79E-07	1,35E-04	7,15E-07	1,42E-04	7,12E-01
B-012	2nd	Street	50.6	2,45E-07	4,87E-05	3,21E-07	6,38E-05	3,09E-07	6,15E-05	7,93E-01
B-015	2nd	Street	50.6	1,05E-06	2,10E-04	1,31E-06	2,62E-04	1,39E-06	2,77E-04	7,56E-01
B-018	2nd	Street	50.6	1,06E-06	2,12E-04	1,39E-06	2,77E-04	1,29E-06	2,57E-04	8,22E-01
B-021	2nd	Street	50.6	2,81E-07	5,60E-05	3,55E-07	7,07E-05	3,76E-07	7,49E-05	7,47E-01
B-023	2nd	Street	50.6	2,24E-07	4,46E-05	2,73E-07	5,43E-05	2,80E-07	5,57E-05	8,00E-01
B-024	2nd	Street	50.6	4,13E-07	8,22E-05	5,05E-07	1,01E-04	5,51E-07	1,10E-04	7,49E-01
B-029	2nd	Street	50.6	1,22E-06	2,43E-04	1,64E-06	3,27E-04	1,44E-06	2,87E-04	8,47E-01
B-030	2nd	Street	50.6	1,42E-06	2,83E-04	1,62E-06	3,23E-04	1,63E-06	3,25E-04	8,71E-01
B-031	2nd	Street	50.6	6,88E-07	1,37E-04	9,63E-07	1,92E-04	1,00E-06	1,99E-04	6,89E-01
B-033	2nd	Street	50.6	3,51E-07	6,99E-05	4,14E-07	8,25E-05	4,45E-07	8,87E-05	7,89E-01
B-034	2nd	Street	50.6	6,23E-07	1,24E-04	7,81E-07	1,55E-04	7,77E-07	1,55E-04	8,02E-01
B-037	2nd	Street	50.6	1,72E-07	3,42E-05	2,19E-07	4,36E-05	2,23E-07	4,44E-05	7,71E-01
B-040	2nd	Street	50.6	4,53E-07	9,03E-05	5,64E-07	1,12E-04	5,72E-07	1,14E-04	7,92E-01
B-044	2nd	Street	50.6	4,78E-07	9,51E-05	6,29E-07	1,25E-04	6,36E-07	1,27E-04	7,51E-01
B-052	2nd	Street	50.6	3,66E-07	7,29E-05	4,41E-07	8,78E-05	4,44E-07	8,84E-05	8,24E-01
B-004	3rd	Street	50.6	4,13E-07	8,24E-05	5,61E-07	1,12E-04	5,55E-07	1,11E-04	7,44E-01
B-016	3rd	Street	50.6	9,49E-08	1,89E-05	1,17E-07	2,33E-05	1,18E-07	2,35E-05	8,05E-01
B-049	3rd	Street	50.6	2,73E-07	5,44E-05	3,52E-07	7,02E-05	3,65E-07	7,27E-05	7,48E-01
B-055	3rd	Street	50.6	2,52E-07	5,02E-05	3,19E-07	6,35E-05	3,30E-07	6,57E-05	7,64E-01
B-026	4th	Street	50.6	3,12E-07	6,21E-05	4,87E-07	9,69E-05	4,44E-07	8,84E-05	7,02E-01
B-043	4th	Street	50.6	1,74E-07	3,47E-05	2,29E-07	4,56E-05	2,46E-07	4,90E-05	7,07E-01
B-057	Reference Station	Garden	50.6	7,701E-08	1,53E-05	9,38E-08	1,87E-05	9,78E-08	1,95E-05	7,87E-01
B-058	Reference Station	Garden	50.6	1,041E-07	2,07E-05	1,27E-07	2,53E-05	1,31E-07	2,61E-05	7,95E-01

Table S3. Data set of magnetic measurements for *Hedera Helix* leaves.

Sample	Stage	Location	Mass [g]	IRM _{100mT} [Am ²]	IRM _{100mT} [Am ² /kg]	IRM _{300mT} [Am ²]	IRM _{300mT} [Am ² /kg]	IRM _{1000mT} [Am ²]	IRM _{1000mT} [Am ² /kg]	Pseudo S-ratio
L-017	1st	Garden	0,286485	2,09E-08	7,65E-05	2,04E-08	7,46E-05	2,04E-08	7,46E-05	1,05E+00
L-019	1st	Garden	0,3153775	2,96E-08	9,48E-05	3,49E-08	1,11E-04	3,49E-08	1,11E-04	8,56E-01
L-06	1st	Garden	0,3040225	7,43E-08	2,32E-04	9,71E-08	3,04E-04	1,02E-07	3,20E-04	7,14E-01
L-07	1st	Street	0,454	1,42E-07	3,12E-04	1,94E-07	4,30E-04	2,05E-07	4,56E-04	6,89E-01
L-09	1st	Garden	0,36455	1,11E-07	3,10E-04	1,44E-07	4,00E-04	1,44E-07	4,00E-04	7,75E-01
L-012	2nd	Street	0,5605875	3,67E-07	6,75E-04	5,06E-07	9,30E-04	5,06E-07	9,30E-04	7,24E-01
L-013	2nd	Street	0,4588825	3,30E-07	9,90E-04	5,76E-07	1,37E-03	5,76E-07	1,37E-03	7,23E-01
L-014	2nd	Street	0,498625	1,17E-07	2,44E-04	1,57E-07	3,25E-04	1,57E-07	3,25E-04	7,50E-01
L-05	2nd	Street	0,6049875	1,15E-07	1,93E-04	1,29E-07	2,27E-04	1,51E-07	2,56E-04	7,58E-01
L-08	2nd	Street	0,2732225	8,95E-08	3,29E-04	1,16E-07	4,28E-04	1,22E-07	4,47E-04	7,39E-01
L-010	3rd	Street	0,3523725	1,04E-07	2,99E-04	1,29E-07	3,69E-04	1,29E-07	3,69E-04	8,11E-01
L-016	3rd	Garden	0,46212	8,44E-08	1,65E-04	1,09E-07	2,15E-04	1,09E-07	2,15E-04	7,70E-01
L-01	4th	Street	0,3323625	3,01E-08	9,05E-05	3,77E-08	1,12E-04	3,94E-08	1,18E-04	7,80E-01
L-04	4th	Street	0,20588	2,08E-08	1,02E-04	2,34E-08	1,14E-04	2,59E-08	1,26E-04	8,04E-01

Table S4. Data set of gradual time exposure magnetic measurements performed on filters.

Sample	Stage	Location	Surface [cm ²]	IRM _{1000mT} [Am ²]	IRM _{1000mT} [A]
B-038	2nd	Street	50.6	1,03E-07	2,04E-05
B-039	2nd	Street	50.6	4,26E-07	8,48E-05
B-040	2nd	Street	50.6	5,72E-07	1,14E-04
B-050	2nd	Street	50.6	2,59E-07	5,12E-05
B-051	2nd	Street	50.6	5,56E-07	1,11E-04
B-052	2nd	Street	50.6	4,44E-07	8,84E-05
B-047	3rd	Street	50.6	6,36E-08	1,26E-05
B-048	3rd	Street	50.6	3,41E-07	6,80E-05
B-049	3rd	Street	50.6	3,65E-07	7,27E-05
B-041	4th	Street	50.6	3,33E-08	6,59E-06
B-042	4th	Street	50.6	1,72E-07	3,43E-05
B-043	4th	Street	50.6	2,46E-07	4,90E-05

Table S5. Bulk data of citizen partner feedbacks on the project.

Questions	Citizen partner 1	Citizen partner 2	Citizen partner 3	Citizen partner 4	Citizen partner 5	Academic 1	Academic 2	Academic 3	Academic 4
Expectations	8	8	4,5	7	7	9	6	3	5,5
Interests	9,5	8	9	10	10	10	10	10	10
Commitment	7	3	5	10	7	10	8,5	3	10
Pleasure	8,5	7	9	10	9	7	10	10	10
Knowledge of measurements	8	0	8,5	10	8	7	10	0	4
Health knowledge	0	0	1	7	1	7	0	0	0
Decision knowledge	10	0	0	10	9	8	6,5	0	4
Means to act	10	5	4	10	6	3	3,5	10	4
3D workshop	5			9	5	3			
Collaboration with researchers	5		6	10	8	7	2,5		
Collaboration with elected officials	7	1	8	0	5	1		1	0
Collaboration with residents	9	4	9	9	9	5	1,5	0	4
Collaboration with users	1	2	9	3	5		0		
Metrology protocol	8,5	8	8	10	8	10			
Appropriation of results	9	5	8,5	10	8				
PAR protocol	9	8	8	9	9	10	10	10	3

III.3 LE CAS DE L'USINE DE VALORISATION DES DECHETS PAR TRAITEMENT THERMIQUE : OCREAL

L'incinérateur Ocréal, piloté par le groupe Suez Environnement et situé à Lunel-Viel (25 km à l'est de Montpellier ; [Figure 3.3A](#)) traitait en 2018 entre 120000 à 130000 tonnes de déchets par an ([Figure 3.3B](#)) grâce à ses deux lignes de traitement ([Figure 3.3C](#)), dont 97 % des déchets entrants étaient valorisés en électricité (*Rapport d'activité, 2018*). Seulement, à l'approche des élections municipales de 2021, un climat conflictuel se constitue et une mobilisation des populations vivant aux alentours se met en place en dénonçant notamment les rejets de fumée des deux cheminées. C'est pourquoi, une pré-étude de cartographie magnétique citoyenne sur des feuilles de chêne blanc (*Quercus Alba*) a été réalisée en Juillet 2019, en amont du projet BREATHE (ANR ; [Figure 3.4A](#)). Celle-ci montre des concentrations relatives en polluants (via des variations relatives de l'ARI) très faibles, notamment dans la partie « au vent » de l'usine. À l'exception d'une station de mesure située au niveau de l'autoroute A9 ainsi qu'une autre station située proche de la voie ferrée. En effet, en raison de la hauteur de la cheminée de l'usine (environ 30 m), il en a été déduit que cette dernière avait l'effet de « parapluie » en favorisant la dispersion des rejets bien plus loin.



Figure 3.3 [A] Usine de traitement des déchets Ocreal, [B] Déchets ménagers pris en charge, [C] les deux cheminées représentant la fin des deux lignes de traitement.

Pour valider cette hypothèse, une seconde campagne d'échantillonnage citoyenne a été programmée en Octobre 2021. Cette fois-ci, il a été demandé aux citoyens de rayonner plus large autour de l'incinérateur. Finalement, grâce à la participation de 40 riverains divisés en deux groupes : un groupe de marcheurs et un autre de cyclistes pour les stations les plus éloignées, il a été possible de réaliser la cartographie illustrée en (Figure 3.4B). Ici encore, la hauteur de la cheminée et la vitesse de sortie des fumées font que s'il y a des retombées, elles sont bien plus lointaines que nous le pensions et donc vont nécessairement se mélanger aux autres sources de particules fines situées en proximité

(trafic routier, chemin de fer, activité des communes, etc.). En définitif, les résultats sont très intéressants car ils montrent la limite de la cartographie magnétique et soulignent de manière très claire que notre approche ne s'applique efficacement que proche des sources qui peuvent bien s'identifier.

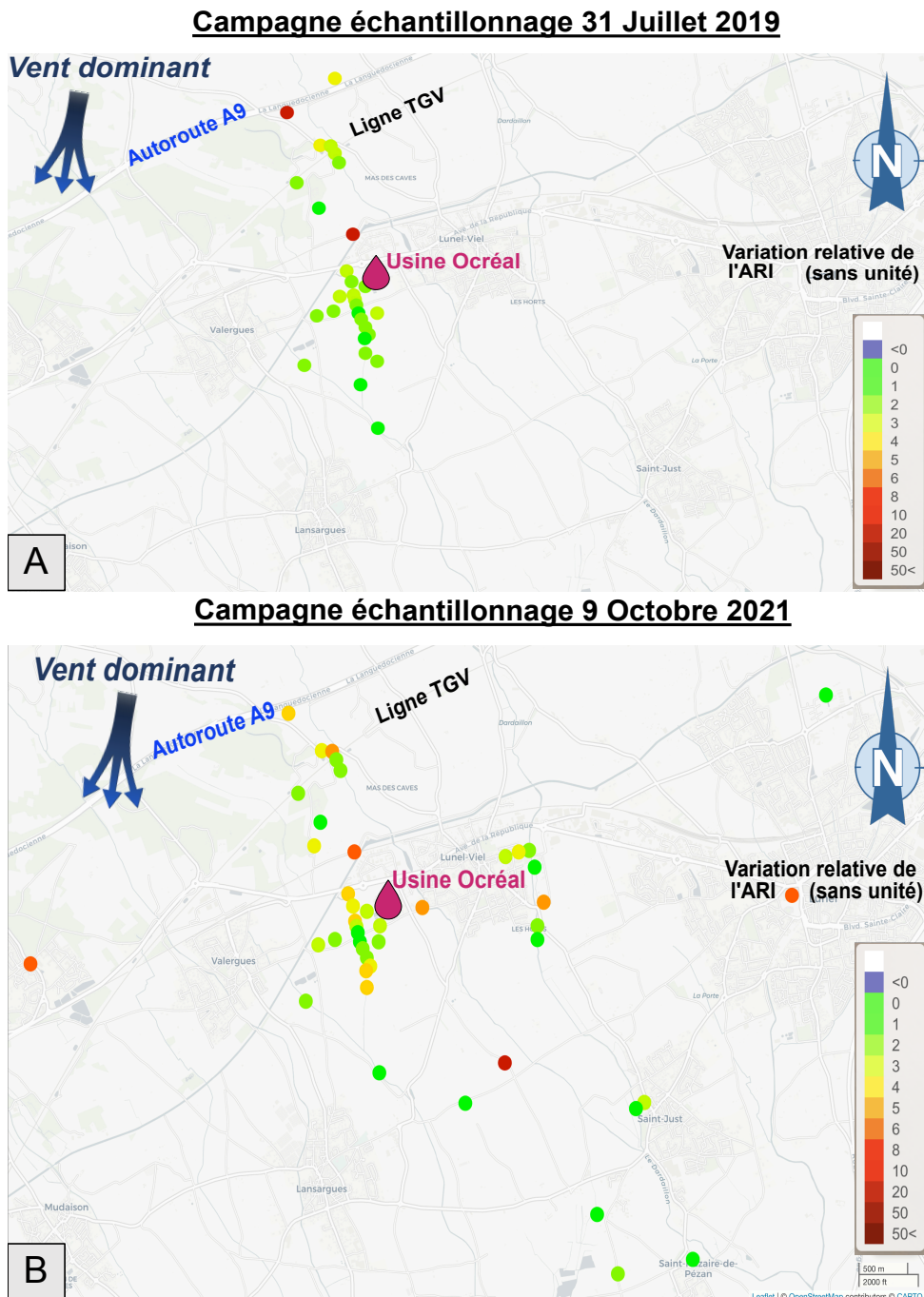


Figure 3.4 [A] Campagne d'échantillonnage citoyenne autour de l'usine d'Ocréal menée en Juillet 2019 et, [B] Seconde campagne citoyenne menée en Octobre 2021 en élargissant la zone d'étude.

III.4 DISCUSSION ET PERSPECTIVES

III.4.1 Les contributions de la science participative au service de la surveillance de la qualité de l'air

La science participative (SP) définit un travail collaboratif entre citoyens et scientifiques sur des projets élaborés en prenant en compte un rôle amateur que ce soit dans un intérêt pédagogique et/ou un intérêt pour le projet en lui-même, c'est-à-dire une question fondamentale que celui-ci cherche à élucider (*Silvertown, 2009*). La nomenclature est vaste et parfois contradictoire selon si les définitions sont appliquées par les chercheurs académiques ou les participants : science participative, science citoyenne, projet participatif, volontariat, etc. C'est justement dû à cette diversité de terminologies mais aussi de méthodes qu'il s'est avéré nécessaire de standardiser des protocoles en utilisant celui de *Conrad & Daoust, 2008* décrivant plusieurs étapes :

- (1) Identifier les parties prenantes et développement de partenariats.
- (2) Identifier les compétences et les ressources.
- (3) Créer un plan de communication : restitution des résultats et recommandations de gestion (*Cooper et al., 2007*).
- (4) Créer un plan de surveillance/monitoring : collecte et organisation des données (*Cooper et al., 2007 ; Legg & Nagy, 2006*).

La SP a souvent été associée à des mouvements de démocratisation de la science en rassemblant celle-ci avec le grand public afin de faciliter le dialogue et la prise de décision sur des problématiques environnementales (*Bonney et al., 2015*). Il est vrai que ces problématiques et celle de la pollution atmosphérique en milieux urbains, tout particulièrement, a fait l'objet de nombreux projets de recherche où le citoyen était pleinement impliqué. Tout l'enjeu de la science citoyenne est de veiller à la non-instrumentalisation d'un partenaire par un autre. Les chercheurs ne doivent pas avoir une attitude extractiviste qui considère le citoyen comme un simple capteur. Le biais inverse

existe quand les citoyens tentent d'infléchir la démarche scientifique pour arriver à leurs fins.

III.4.1.1 Les apports de la SP aux chercheurs

La pollution atmosphérique est un enjeu sanitaire et sociétal très complexe. En effet comme il a été mentionné dans le [Chapitre 1](#), les liens entre exposition chronique aux polluants et la santé sont déjà bien connus. En revanche, les sources sont difficiles à déterminer à cause des variations spatio-temporelles des concentrations en polluants. Il est également difficile d'estimer le temps de résidence de ces derniers dans les différents microenvironnements ([Snyder et al., 2013](#)). D'autant plus dans les milieux urbains, où les sources se multiplient et la population sujette à ces expositions chroniques y est plus dense.

D'autre part, les stations de mesure « statiques » installées par agences conventionnées par l'état y sont peu nombreuses, et les données doivent ainsi être interpolées sur l'étendue de la zone d'étude aux moyens de modèles numériques. Ces systèmes de mesure ne permettent alors que des estimations de faible résolution. C'est d'ailleurs en réponse à tous ces défis que la cartographie magnétique prend tout son sens. Premièrement, elle permet une donnée de haute résolution à l'échelle de la rue et/ou du quartier. Deuxièmement, en utilisant la variation relative pour exprimer les mesures, elle permet d'isoler les sources. Finalement, cette approche s'applique bien à des études de SP, qui tiennent alors un rôle majeur en augmentant la résolution spatio-temporelle des points de mesure ([Snyder et al., 2013](#)). Une autre problématique liée à la qualité de l'air à laquelle s'intéresse les chercheurs et décideurs politiques, est la mitigation de la pollution par les propriétés de filtration/captation/rétention des polluants par les végétaux ([Nowak, 2006](#) ; [Yin et al., 2011](#) ; [Setälä et al., 2013](#)). Ces propriétés vont dépendre de l'espèce végétale, ses caractéristiques physiologiques et morphologiques, et de la localisation. Les études citoyennes permettent alors de référencer toutes ces caractéristiques à l'échelle d'une ville, d'un quartier ou même d'une rue. Elles permettent également d'évaluer l'impact de la pollution atmosphérique sur ces végétaux : les effets du O₃ sur leurs feuilles ([Pellegrini et al., 2014](#)), le lien entre l'abondance des lichens et les concentrations en NOx et sulfures ([Seed et](#)

al., 2013), ou encore l'influence de leurs diversités selon les concentrations de NO₂ proche de grands axes routiers (Davies et al., 2007 ; Gadsdon et al., 2010).

III.4.1.2 Les apports de la SP au grand public

Comme il a été mentionné précédemment, l'implication des citoyens dans un projet de recherche permet d'augmenter la résolution spatio-temporelle en multipliant les stations de mesure. Ceci veut dire que le travail se fait à plus petite échelle. Et c'est justement ce qui intéresse le citoyen. En effet, ce dernier sera plus intéressé et se sentira d'avantage concerné lorsqu'on va lui parler de données ou processus se produisant dans son quartier, dans sa rue ou encore mieux : devant sa porte. Ces connaissances que le citoyen aura obtenues de source considérée comme « sûre » c'est-à-dire par le scientifique, va lui permettre de se sensibiliser et de s'engager davantage dans les prises de décision et politiques environnementales (Hedges, 1993 ; Bush, 2001 ; O'Rourke and Macey, 2003 ; Lawrence, 2006 ; Cornwell and Campbell, 2012). D'ailleurs, une évaluation d'un programme de SP (Davies, 2013) rapporte que : 43% des personnes questionnées ont changé leur manière de penser au sujet de l'environnement, 37% ont changé leur comportement vis-à-vis de l'environnement, 90% ont appris quelque chose de nouveau et 83% ont développé de nouvelles compétences. Finalement, Conrad & Hilchey, 2011 produisent un récapitulatif des avantages et challenges que doivent relever les sciences participatives.

Benefits	Challenges
Increasing environmental democracy (sharing of information)	Lack of volunteer interest/lack of networking opportunities
Scientific literacy (Broader community/public education)	Lack of funding
Social capital (volunteer engagement, agency connection, leadership building, problem-solving and identification of resources)	Inability to access appropriate information/expertise
Citizen inclusion in local issues	Data fragmentation, inaccuracy, lack of objectivity
Data provided at no cost to government	Lack of experimental design
Ecosystems being monitored that otherwise would not be	Insufficient monitoring expertise/quality assurance and quality control
Government desire to be more inclusive is met	Monitoring for the sake of monitoring
Support/drive proactive changes to policy and legislation	Utility if CBM data (for decision-making; environmental management; conservation)
Can provide an early warning/detection system	

III.4.2 Les challenges auxquels sont soumis les projets de science participative

Les études de SP soulignent plusieurs défis à relever. La multiplication des stations de mesure, cela implique davantage de données obtenues par différentes méthodes. Ce qui peut provoquer, d'une part, des difficultés quant à leur gestion par l'équipe de recherche, ainsi que leur visualisation et diffusion au grand public. En effet, si les données doivent servir aux citoyens et/ou aux politiques publiques il devient nécessaire de s'assurer que les participants aient bien compris leur signification, c'est-à-dire comment elles ont été mesurées et obtenues.

D'autre part, un développement massif de micro-capteurs low-cost a été opéré ces dernières années sur le marché. Ils permettent à tout un chacun d'obtenir, pour quelques dizaines à quelques centaines d'euros, des mesures de concentrations en polluants (particules fines, NOx, ozone, etc.) de l'air intérieur et extérieur. Généralement les citoyens s'approprient rapidement ces données mais ces dernières posent problème aux scientifiques quant à leur fiabilité. En effet, la méthode d'obtention de la donnée est discutable et dans la plupart des cas n'est pas communiquée. La précision et la reproductibilité de la mesure si deux capteurs identiques sont disposés l'un à côté de l'autre restent de mauvaise qualité.

La publication ci-dessus ([partie III.2](#)) souligne également l'importance de la complète intégration du citoyen dans le projet comme collaborateur. Pour la partie métrologie, il convient qu'il devienne acteur de l'élaboration du protocole, à l'obtention de la donnée jusqu'à sa diffusion. Il est donc indispensable de s'assurer que le citoyen ne soit pas utilisé par l'équipe de recherche comme « échantillonneur » et qu'à l'inverse, le chercheur ne soit pas utilisé par le citoyen comme moyen d'obtenir une conclusion/tendance rapide. Enfin, la posture du chercheur dans les cas où un climat conflictuel règne sur le cas d'étude est primordiale. Il est indispensable que l'équipe de recherche mette de côté ses revendications personnelles afin d'assurer une neutralité et finalement une fiabilité à la donnée.

III.4.3 Retour d'expérience

Pour ma part, cette étude de cas a été ma première expérience en recherche participative. Elle a été très formatrice grâce aux nombreux challenges qui se sont succédés. Sans aucun

doute, le premier a été la vulgarisation. En effet, nous y sommes très peu formés durant nos études. C'est pourquoi, je me suis inscrite à plusieurs formations de l'école doctorale, permettant d'obtenir les bons outils pour mieux appréhender les communications avec le grand public. Il a fallu également que je m'approprie rapidement mon sujet de thèse, ses tenants et aboutissants afin d'être en mesure de vulgariser plus facilement les intérêts scientifiques de l'étude. Le second a été le « timing ». En effet, cette étude s'est amorcée juste après le premier confinement (Mars-Mai 2020) et a subi les confinements et couvre feux successifs, ainsi que les élections municipales. Cela n'a pas été évident de « garder le cap » à cause des échéances qui ne cessaient de se déplacer dans le temps. J'avais la crainte d'une baisse de motivation des participants. Ceci a d'ailleurs été le cas lorsque la nouvelle mairie a annoncé la fermeture de la rue à la circulation. D'un point de vue de la métrologie les résultats n'étaient pas encore sortis et très peu de citoyens se sont présentés au Gazette Café en Septembre 2020 lorsque nous avons finalement présenté les résultats. Ce fut une déception pour moi et tout l'équipe de métrologie.

Néanmoins, les chercheurs en Sciences Humaines et Sociales (SHS) ont vu cela comme des données intéressantes. C'est d'ailleurs la partie SHS qui a permis de finaliser cette étude : un travail inédit, pour ma part. Ce qui m'amène au dernier challenge : l'interdisciplinarité avec les SHS. J'ai eu la chance d'accompagner les sociologues dans plusieurs réunions avec les élus, cela a été très enrichissant même si je dois l'avouer : les discussions politiques et de gestion des voiries ne faisaient pas partie de mon domaine de compétence. Mais que ce soit dans la gestion d'un petit projet ou d'une publication interdisciplinaire, j'ai beaucoup appris.

D'un point de vue plus personnel, je trouve qu'en tant que chercheuse en sciences dures je n'avais que peu de moyens pour me renseigner sur les SP. En effet, peu de publications sont disponibles visant à former les chercheurs à la façon de procéder et les moyens mis à disposition. De plus, ce sont des études comprenant des processus chronophages et difficiles à appréhender lorsque nous avons des échéances à tenir (comme une thèse, par exemple). À ce jour je ne pense pas être en mesure de gérer entièrement un projet SP. Mais j'aimerais que ce soit le cas à l'avenir car je trouve important d'ouvrir la

science et nos recherches au grand public, d'autant plus pour des projets appliqués à des enjeux environnementaux et sociétaux comme celui-ci. On peut s'imaginer que cela faciliterait également le dialogue avec les décideurs politiques et diminuerait leurs délais de réponse sur les mesures à mettre en place.

CHAPITRE IV

DES SOURCES AUX DEPOTS : QUELS APPORTS DU MAGNETISME ENVIRONNEMENTAL POUR DISCRIMINER LES CONTRIBUTIONS DES SOURCES LIEES AU TRAFIC ?



IV.1 CARACTERISATION MAGNETIQUE DES SOURCES LIEES AU TRAFIC ET DES SURFACES ACCUMULATRICES

IV.1.1 Mise en place de l'étude & problématique

Les chapitres précédents confirment la pertinence de l'utilisation du magnétisme environnemental pour évaluer la qualité de l'air. Cette technique présente de nombreux avantages. Peu coûteuse, elle permet l'obtention de nombreuses données et donc une couverture spatiale de haute résolution. Facile à mettre en œuvre, elle permet une approche sous forme de Sciences Participatives. En revanche, toutes les particules se déposant sur les surfaces accumulatrices ne sont pas nécessairement magnétiques, c'est pourquoi une question persiste : « Que mesure-t-on exactement avec cet outil ? ». Afin d'amener cette

méthode à un degré de confiance et de précision plus élevé pour servir de support à la décision politique, il devient primordial de répondre à cette question. Pour cela, un ensemble non exhaustif de sources liées au trafic (Table 4.1) a été « magnétiquement » mesuré par plusieurs techniques initialement développées pour le magnétisme des roches et utilisées par la communauté des sciences de la Terre pour déterminer la concentration, la granulométrie et la minéralogie magnétique. Ces techniques sont présentées plus en détails ci-dessous.

Table 4.1 Recensement des échantillons et techniques de magnétisme environnemental utilisées dans ce chapitre.

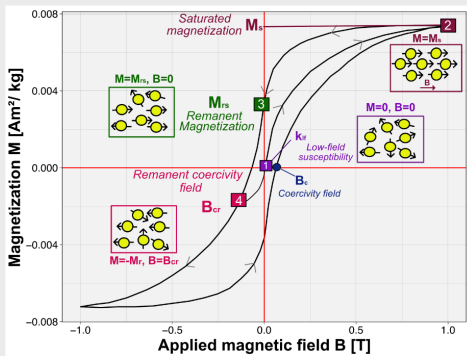
<i>Échantillons</i>	<i>Nature</i>	<i>DayPlot</i>	<i>FORC</i>	<i>k vs T°C</i>	<i>Unmixing</i>	<i>XRF</i>
BrP.1	Plaquette de frein	X	X	X	X	X
BrP.2	Plaquette de frein	X	X	X	X	X
BrP.3	Plaquette de frein	X	X	X	X	X
BrP.4	Plaquette de frein	X	X	X	X	X
BrP.5	Plaquette de frein	X	X	X	X	X
BrP.6	Plaquette de frein	X	X	X	X	X
PF	Poussière de frein	X	X		X	
Galfer	Poussière de frein	X		X	X	
DACIA	Pot d'échappement	X	X	X	X	X
KANGOO	Pot d'échappement	X	X	X	X	X
BOXER	Pot d'échappement	X	X	X	X	
WOLKS	Pot d'échappement	X	X	X	X	X
AURIS	Pot d'échappement	X	X			
BMW moto	Pot d'échappement	X	X			
C3	Pot d'échappement	X	X			
Clio	Pot d'échappement	X	X			
FOCUS	Pot d'échappement	X	X			
KIA	Pot d'échappement	X	X			
MEGAN	Pot d'échappement	X	X			
R4GTL	Pot d'échappement	X	X			
TOYOTA	Pot d'échappement	X	X			
VERSO	Pot d'échappement	X	X			
Twingo EU2	Pot d'échappement	X	X			
Twingo EU3	Pot d'échappement	X	X			
Sable	Poussière du Sahara	X	X	X	X	X
Asphalte	Asphalte	X		X	X	X
Poussière de rue	Poussière de rue	X	X	X	X	X

Good Year	Pneu	X	X	(X)	X	X
Saver	Pneu					
Alpin	Pneu					
RadialX	Pneu	X	X		X	X
Lierre	Végétal (feuilles)	X	X			
Coronille	Végétal (feuilles)	X				
Ciste	Végétal (feuilles)	X	X	X	X	
Arbre de Judée	Végétal (feuilles)	X			X	
Eleagnus	Végétal (feuilles)	X			X	
Platane	Végétal (feuilles)	X	X			
Platane	Végétal (écorces)	X	X			
EX Mexico	Masque	X	X			
EX Paris	Masque	X	X			
CH Paris	Masque	X	X			
CH Bogotá	Masque	X	X			
B-010	Filtre rue St Louis	X	X	X	X	
B-013	Filtre rue St Louis	X	X	X	X	
B-015	Filtre rue St Louis	X	X	X	X	
B-027	Filtre rue St Louis	X	X	X	X	
B-028	Filtre rue St Louis	X	X	X	X	
B-002	Filtre rue St Louis				X	
B-020	Filtre rue St Louis				X	
B-055	Filtre rue St Louis				X	
BCR-723	Standard Chimie	X	X	X	X	
ERMCZ	Standard Chimie	X	X	X	X	

CE QU'IL FAUT RETENIR... pour estimer les paramètres magnétiques



Le Cycle d'Hystérésis



Stades d'aimantation pour un assemblage aléatoire de particules magnétiques mono-domaines:

- (1) Stade initial désaimanté, puis augmentation progressive de l'aimantation M avec un champ externe B. La pente initiale représente la susceptibilité à faible champ.
- (2) Aimantation à saturation atteinte lorsque tous les moments sont parallèles au champ appliqué B.
- (3) Aimantation rémanente atteinte lorsque B retourne à zéro.
- (4) Champ magnétique appliqué en direction opposée et ré-aimantation de la moitié des moments. On appelle coercivité de rémanence la valeur du champ pour laquelle il n'y a aucune rémanence.

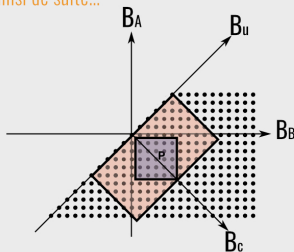
Les Diagrammes de FORCs

1 Méthode de cartographie en 2-dimensions de l'irréversibilité des hystérésis

2 Acquisition de plusieurs hystérons pour différents B_A sur l'ensemble de la surface de l'hystérésis majeur.

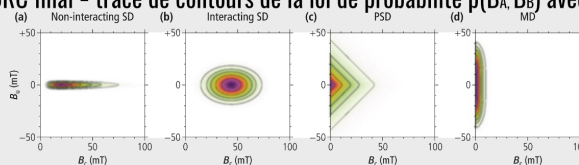
- a) Saturation de l'échantillon sous champ positif.
- b) Diminution du champs jusqu'à B_A ("reversal field").
- c) Mesure de l'aimantation avec le champ qui augmente B_B jusqu'à qu'une nouvelle saturation soit atteinte à nouveau.
- d) Et ainsi de suite...

3

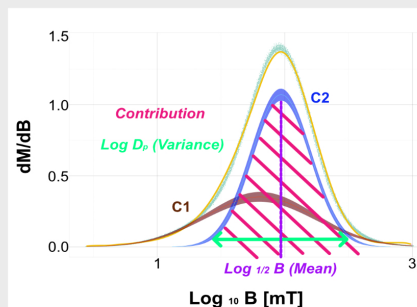
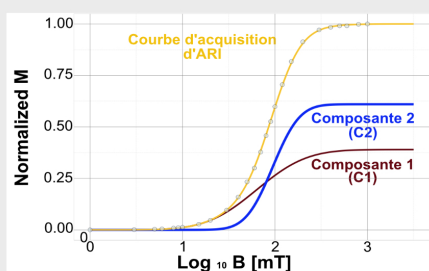


- ➔ Matrice des valeurs de champ B_A et B_B utilisées pour mesurer l'aimantation lors d'une acquisition de FORC.
- ➔ Utilisation de nouvelles coordonnées B_c et B_u obtenus lorsque la distribution de FORC a été pivoté à 45° dans le sens des aiguilles d'une montre.
- ➔ B_c = largeur de l'hystérésis = coercivité avec $B_c = (B_A - B_B)/2$
- ➔ B_u = champ de polarisation ("bias field") avec $B_u = (B_A + B_B)/2$

4 Diagramme de FORC final = tracé de contours de la loi de probabilité $p(B_A, B_B)$ avec B_c et B_u comme coordonnées.



Distribution des champs coercitifs & Unmixing



IV.1.3 Description des outils analytiques

IV.1.3.1 Les paramètres d'hystérésis

Comme cela a été présenté dans le premier chapitre, contrairement aux matériaux paramagnétiques et diamagnétiques, les matériaux ferromagnétiques au sens large sont caractérisés par une aimantation rémanente qui reste présente lorsque le champ magnétique externe appliqué est retiré. C'est justement pour examiner ce comportement que nous faisons des mesures avec la présence d'un champ externe.

Les matériaux ferromagnétiques sont caractérisés par un cycle d'hystérésis : l'application dans un premier temps d'un champ suffisamment fort (B_{max}) pour que l'échantillon atteigne une aimantation à saturation (M_s). Dans un second temps, le champ externe appliqué est réduit à zéro, laissant à l'échantillon une aimantation rémanente permanente (M_r). Ensuite, l'application d'un champ inverse mène à une aimantation nulle. On nomme ainsi le champ de coercivité (B_c), ou le champ nécessaire pour atteindre cette aimantation nulle. On détermine également la coercivité de rémanence (B_{cr}) comme le champ inverse nécessaire pour supprimer l'aimantation rémanente. Voir [Partie IV.1.2](#) pour un résumé schématique du cycle d'hystérésis. Tandis que M_s est dépendante de la minéralogie, M_r , B_c et B_{cr} dépendent de la minéralogie et de la granulométrie magnétiques. Finalement, ces quatre paramètres sont très souvent utilisés sous forme de « biplot » où le rapport M_r/M_s est représenté en fonction du rapport B_{cr}/B_c , communément nommé dans la littérature **Day plot** ([Day et al., 1977](#)).

IV.1.3.2 Les diagrammes de FORC

Lorsqu'ils ont été introduits dans le domaine des géosciences en 1990 ([Hejda and Zelinka, 1990](#)), les FORCs sont devenus un outil très souvent utilisé pour caractériser les matériaux géologiques. En effet, ils fournissent une visualisation en 2-dimensions des processus magnétiques irréversibles dans les cycles d'hystérésis, permettant ainsi d'identifier et de discriminer des mélanges complexes de particules magnétiques selon leur taille et leur nature ([Egli, 2021](#)). Cette technique est basée sur le modèle de Preisach

(Preisach, 1935), un modèle réalisé dans le but d'expliquer le comportement des domaines magnétiques dans un noyau de Fer. Il permet une description générale d'un cycle d'hystérésis en partant du principe que tous les cycles d'hystérésis peuvent être décrits par la superposition de cycles d'hystérésis élémentaires, également appelés **hystérons**. On définit alors la fonction de Preisach comme étant une loi de densité de probabilité d'une grande quantité d'hystérons décrite avec deux paramètres : $p(B_a, B_b)$. Avec, (B_a, B_b) qui sont des champs magnétiques dans le système de coordonnées de l'espace Preisach, où $B_a \geq B_b$.

La fonction de Preisach d'un ensemble magnétique obtenue par la mesure de plusieurs cycles successifs d'application de champ croissant et décroissant (hystérons) peut être ainsi utilisée pour prédire l'évolution des systèmes d'aimantation selon différents champs magnétiques appliqués (Mayergoyz, 2003).

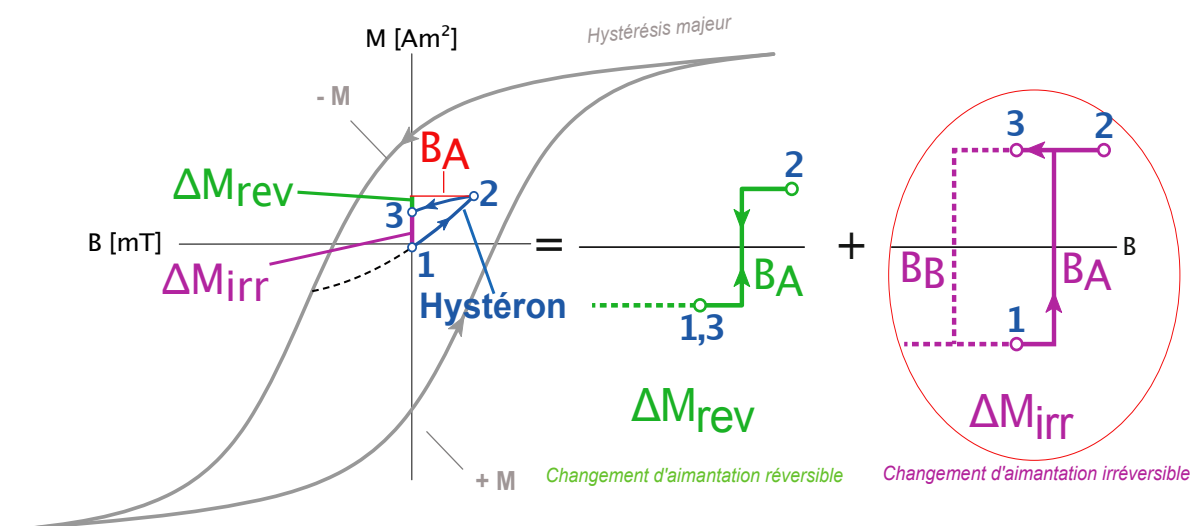


Figure 4.1 Représentation des changements d'aimantation réversibles et irréversibles avec les hystérons. $M+$ et $M-$ sont les branches descendantes et ascendantes du cycle d'hystérésis majeur. Chaque inversion de balayage de champ produit une courbe d'aimantation d'ordre supérieur, de l'ordre 0 (M_{\pm}) à l'ordre 1 (courbes d'inversion du premier ordre) et supérieur. L'irréversibilité magnétique est montrée pour une boucle d'hystérésis mineure entre les points 1, 2 et 3, où ΔM_{irr} et ΔM_{rev} sont les changements d'aimantation irréversibles et réversibles se produisant lors du balayage du champ de 1 à 2. Mathématiquement, ΔM_{irr} peut être représenté par une boucle d'hystérésis rectangulaire, appelée hystéron, à deux champs de commutation B_A et B_B : lors du balayage du champ positif de 1 à 2, l'hystéron saturé négativement change en saturation positive. Cet état est maintenu pendant le balayage final à 3, si B_B est suffisamment petit. De même, ΔM_{rev} est représenté par un hystéron fermé avec $B_B = B_A$, pour lequel l'aimantation en 1 est récupérée lors du cycle du champ vers 2 et son retour.

Malgré le fait que les mesures de FORCs ne soient pas réellement des fonctions de Preisach, un protocole de mesure sous champ, entièrement automatisé et basé sur la courbe d'inversion d'ordre supérieur (« first-order reversal curve » ou FORC) est utilisé de manière équivalente pour modéliser les hystérésis magnétiques en géosciences et reconstruire la fonction de Preisach (*Pike et al., 1999; Roberts et al., 2000; Carvallo et al., 2005*). Pour retrouver cette fonction, il suffit de mesurer à température constante un ensemble de cycles par un balayage décroissant d'un champ B_b jusqu'à obtenir $B_a \geq B_b$. Ces mesures produisent alors des changements d'aimantation irréversibles en tous points du domaine de la fonction de Preisach. La distribution de FORC est alors définie par :

$$p(B_a, B_b) = \frac{\partial^2 M(B_a, B_b)}{\partial B_a \partial B_b} \quad (4.1)$$

On utilise alors un autre système de coordonnées : B_c et B_u obtenus par une rotation de 45° dans le sens horaire de la distribution de FORC. Dans ce repère, B_c correspond à la largeur de l'hystéron et donc à sa coercivité décrite par :

$$B_c = \frac{B_a - B_b}{2} \quad (4.2)$$

Et B_u , le champ d'interaction (*bias field*) décrit par :

$$B_u = \frac{B_a + B_b}{2} \quad (4.3)$$

Ce qui permet d'obtenir comme FORC final, un tracé de contours de $p(B_a, B_b)$ avec B_c en axe des abscisses et B_u en ordonnées. Voir [Partie IV.1.2](#) pour un résumé schématique.

IV.1.3.3 Courbe d'acquisition d'ARI et étude de mélanges

En 1988, *Jakson et al.*, montrent que les mesures partielles d'ARA d'un mélange de minéraux magnétiques permettent d'identifier la coexistence de plusieurs phases

magnétiques de différentes granulométries. Or, l'ARI possède une plus grande magnitude que l'ARA, avec une facilité de saturer et donc une mobilisation de tous les grains ferromagnétiques pour tracer les concentrations en minéraux magnétiques. Une courbe d'acquisition progressive d'ARI serait-elle plus pertinente pour obtenir des informations quantitatives sur les mélanges des différentes phases magnétiques ? C'est cette question que se sont posés *Robertson and France, 1994*. En effet, les courbes d'acquisition d'ARI ont toutes une forme sigmoïde et se superposent très bien à des fonctions log-gaussiennes cumulées (« cumulative log-gaussian function » ou fonction CLG) décrites par :

$$IRM(B) = \frac{M_{ri}}{DP(2\pi)^{\frac{1}{2}}} * \int_{-\infty}^{\infty} \exp \left[\frac{\left(\log(B) - \log\left(\frac{B_1}{2}\right) \right)^2}{2(DP)^2} \right] * d(\log(B)) \quad (4.4)$$

Cette fonction est donc définie par 3 paramètres :

- (1) M_{ri} ou SIRM est l'aimantation à saturation de l'ARI établie par inférence, correspondant donc à la hauteur de la fonction ;
- (2) $B_{1/2}$ (en mT) est le champ magnétique appliqué pour lequel la moitié de la SIRM a été acquise. Ce paramètre est spécifique pour chaque phase minérale et indépendante de la concentration dans un mélange. Elle peut être apparentée à la coercivité de rémanence B_{cr} ;
- (3) DP (d'échelle logarithmique décimale) qui représente la dispersion/l'écart-type de la distribution logarithmique.

C'est pourquoi, selon *Robertson and France, 1994*, la courbe d'acquisition d'ARI pour une seule phase magnétique distribuée dans une matrice non magnétique et ne possédant pas d'interactions entre les grains magnétiques, a la forme d'une CLG. Pour un mélange de plusieurs phases magnétiques : plusieurs points d'inflexions seront visibles et marqueront l'amorce de la saturation (SIRM) pour chacune des phases. Ainsi, pour chaque phase

magnétique, on pourra y corrélérer une fonction CLG appelée composante, caractérisée par ses trois paramètres M_{ri} ou SIRM, $B_{1/2}$ et DP. À terme, ces paramètres seront utilisés pour estimer la minéralogie, la concentration et la granulométrie de chacune des composantes.

Finalement, on appelle unmixing l'identification des différentes « familles de grains », c'est-à-dire la déconvolution d'un signal mixte pour isoler une population selon ses différentes compositions et tailles de grains. En prenant comme hypothèse que les distributions en taille et en minéralogie sont à peu près stables d'un échantillon à l'autre, l'ARI va être dépendante de la concentration en minéraux magnétiques, de leur taille et de leur nature. Cette déconvolution se fait donc à partir d'une distribution statistique des champs coercitifs de l'ensemble des populations de grains magnétiques. Voir [Partie IV.1.2](#) pour un résumé schématique. Afin de déterminer le nombre de composantes présentes dans la dérivée première de la courbe d'acquisition d'ARI, j'ai choisi une approche bayésienne décrite par [Marin & Robert, 2014](#) :

- (1) On suppose que la composante de la distribution des coercivités suit une distribution normale sur les moyennes (μ_k) après avoir effectué une transformation logarithmique du champ appliqué. On choisit une loi à priori de Dirichlet pour les proportions (p_k), une loi à priori inverse gamma pour la variance (σ_k), et une distribution normale conjuguée à priori ($\mu_k | \sigma_k$) ;
- (2) On fixe des variables initiales pour les différents paramètres : le nombre de composantes (k), la proportion de chaque composante (p_k), leurs moyennes (μ_k) et leurs variances (σ_k) ;
- (3) On calcule la somme des k distributions normales et de leurs paramètres en sélectionnant de manière aléatoire les valeurs de distribution log-normale dans 3 chaînes de Monte-Carlo Markov (MCMC) au moyen d'un échantillonneur de Gibbs ;

- (4) On confronte ces lois dites à postériori en réajustant au fur et à mesure les paramètres jusqu'à ce que les chaînes convergent ;
- (5) L'estimation des lois de densité de probabilité est obtenue en moyennant les différents paramètres simulés sur les dernières 200 itérations de Gibbs.

IV.1.3.4 Mesures de susceptibilité en fonction de la température (kT)

L'aimantation induite (M) par un champ appliqué (H) suit la loi de Rayleigh selon laquelle :

$$M = k_0H + BH^2 \quad (4.5)$$

où $M=0$ pour $H=0$. k_0 est la susceptibilité initiale dans la partie réversible de la courbe d'acquisition d'aimantation. C'est-à-dire que k_0 est réversible pour un champ faible appliqué proche de zéro et B représente le coefficient associé aux processus irréversibles tels que la nucléation ou les déplacements de parois magnétiques pour les grains poly-domaines qui sont soumis à un champ externe (Néel, 1955 ; Dunlop, 2014).

Ainsi, la susceptibilité magnétique ou la capacité d'un matériel à orienter son aimantation induite en fonction d'un champ appliqué H est définie comme la limite de M/H pour $k_0 \rightarrow 0$ quand $H \rightarrow 0$:

$$k = k_0 + BH \quad (4.6)$$

La susceptibilité se mesure en appliquant un champ alternatif d'amplitude constante, relativement faible (de 100 à 400 μ T selon la sensibilité des appareils de mesure) afin de demeurer dans la partie « réversible ». La variation de la susceptibilité en fonction de la température représente un précieux outil pour identifier les minéraux ou groupement de minéraux magnétiques présents dans les échantillons. Par exemple, la susceptibilité des minéraux paramagnétiques varie en fonction de l'inverse de la température (loi de Curie-Weiss), alors que pour les minéraux ferromagnétiques (sensu lato) la courbe est plus

complexe. Elle se caractérise notamment par une diminution drastique des valeurs de susceptibilité à une température « critique » dite température de Curie. Cette dernière indique le passage du comportement ferromagnétique à un comportement paramagnétique. Il est également important de mentionner que chacun des minéraux magnétiques possède une température de Curie bien spécifique, permettant leurs identifications : T_{Curie} (magnétite) = 580°C ; T_{Curie} (maghémite) = 590-675°C ; T_{Curie} (hématite) = 675°C et T_{Curie} (goethite) = 120°C.

De plus, les variations de susceptibilité en fonction de la température sont aussi utiles pour étudier les changements de composition et/ou de phase qui se produisent pendant les processus de chauffe et de refroidissement. La connaissance de ces changements est particulièrement intéressante pour les études de paléo intensité du champ magnétique afin de vérifier que l'échantillon étudié n'ait subi aucun changement irréversible de composition et donc de nature lors de chauffes répétées.

IV.1.4 To what extent does the environmental magnetism act as a tool to characterize the traffic-related PM sources? (Article 3)

L'article présenté ci-dessous sera prochainement soumis dans la revue ***Atmospheric Environment*** (Elsevier). Les données ont été déposées dans le répertoire Zenodo au référencement : <https://doi.org/10.5281/zenodo.7197888>.

1 To what extent does environmental magnetism act as a tool to
2 characterize the traffic-related particulate matter sources?

3
4 Letaïef^{1*}, S., Carvalho², C., Franke³, C., Isambert⁴, A., Camps, P¹.

5
6 ¹ *Géosciences Montpellier, Université de Montpellier, CNRS, Montpellier, France.*

7 ² *IMPMC, Sorbonne Université, Paris, France.*

8 ³ *MINES Paris PSL, Center of Geosciences, Fontainebleau, France.*

9 ⁴ *Université Paris Cité, Institut de physique du globe de Paris, CNRS, Paris, France*

10
11
12 **Abstract:**

13 The chronic exposure to particulate matter (PM) pollution causes societal and environmental
14 issues, especially in urban areas where most citizen are notably exposed to vehicular traffic.
15 Since almost two decades, magnetic monitoring has demonstrated its efficiency to map relative
16 concentration of deposition of these airborne particles on accumulative surfaces. A better
17 understanding of the magnetic results requires discriminating the main traffic-related sources
18 of the magnetic signal measured on particles collectors. To meet this objective, we portray a
19 sample set of exhaust and non-exhaust sources together with their magnetic fingerprints inferred
20 from hysteresis cycles, FORC diagrams, temperature dependency of initial susceptibility, and
21 unmixing of the IRM acquisition curves. This source sample set comprises 14 diesel and
22 gasoline exhaust smoke residues, 12 abrasive-fatigue wear test pieces from worn brake-pads,
23 brake powders, and worn tire-tread, and three possible resuspension products that are asphalt
24 concrete, street dust, and Saharan mineral dust deposited by wet process after erosion wear and
25 long-range transport. Magnetic properties of the source samples were compared to those from
26 various type of accumulative surfaces exposed to urban traffic (passive collectors, filters of
27 facemasks for cycling, plant leaves, and tree barks). We found on these samplers clear
28 fingerprints of exhaust pipes and brake wear products, amongst others. This finding highlights
29 the relevance of environmental magnetic tools to characterize and discriminate different traffic-
30 related source signals.

31

32 **1. Introduction**

33 The European Agency of air Quality reported that in 2019, nearly 307,000 premature
34 deaths were related to chronic exposure to particulate matter (PM) in Europe, as well as 40,400
35 to nitrogen dioxide and 16,800 to ozone exposure (EEA, 2021). This makes particulate matter
36 (PM) air pollution one of the major environmental, societal, and health concerns (Lelieveld et
37 al., 2020). Chronic exposure to fine PM (aerodynamic diameter $< 2.5 \mu\text{m} = \text{PM}_{2.5}$) is known to
38 be a disease-specific hazard both to the cardiovascular-respiratory system (Konduracka and
39 Rostoff, 2022), and to the neurocognitive development (Costa et al., 2020). Little is known
40 about the ultrafine PM fraction (aerodynamic diameter $< 0.1 \mu\text{m} = \text{PM}_{0.1}$) that is potentially
41 more hazardous. In fact, PM concentrations are measured in $\mu\text{g}/\text{m}^3$ by the state-approved air
42 quality measurement agencies following a regulatory directive imposed by the European Union.
43 This directive is objectively ill-suited for monitoring the ultrafine particles due to the low mass
44 they represent although they are by far the most numerous (Seinfeld and Pandis, 2016).
45 The fight to cut down PM pollution is a high priority public health issue, especially in the
46 context of sustainable urban developments. While on June 8, 2022 the European Parliament
47 lawmakers voted to support a proposed ban on the sale of new gas-powered cars by 2035 to
48 diminish greenhouse gas emissions and improve air quality, there is growing evidence that PM
49 emitted through combustion engines is only part of the vehicular origin PM (Charron et al.,
50 2019; Grange et al., 2021), which might temper the relevance of these policies. Nevertheless,
51 besides the industrial activities and residential heating fired with biomass, road traffic is known
52 to be the main source of anthropogenic PM exposure in European urban areas (Hama et al.,
53 2017; Maher et al., 2013). PM emissions originating from vehicle engine fuel combustions and
54 emitted from the tailpipes are called “Exhaust emissions”. “Non-exhaust emissions” are
55 composed of particles generated from abrasive-fatigue wear processes occurring mainly in the
56 vehicle braking system or in the contact of tires with the road surfaces, and from road dust
57 resuspension produced with the movement of vehicles. Several studies attempted to
58 characterize the elemental composition of the exhaust and non-exhaust emissions. For instance,
59 Fe, Cu, Ba, and Pb are the most important constituents of brake wear (Grigoratos and Martini,
60 2015) and Zn for tire fatigue wear (Baensch-Baltruschat et al., 2020; Thorpe and Harrison,
61 2008a), while Cr, Zn, S, Cu, Mn, Fe, Ba, Sn, Sb, Br elements are found in gasoline combustion
62 residues. Ni is also present as a product of engine oil combustion, and Br, Ba, Zn, Sb, Cr, Cu
63 are found in diesel combustion residues (Liu et al., 2019; Pant and Harrison, 2013; Sagnotti et
64 al., 2009).

65 Magnetic measurements on dust depositions may provide efficient proxies to map
66 traffic-related pollutants. Indeed, most of Fe-bearing PM released by traffic are ferromagnetic
67 (*sensu lato*) metallic Fe or Fe-oxides, such as magnetite, hematite, or maghemite (Hansard et
68 al., 2012; Maher et al., 2008; Muxworthy et al., 2002; Sanderson et al., 2016). Iron has the third
69 traffic emission factor, expressed in $\mu\text{g veh}^{-1} \text{ km}^{-1}$, after elementary and organic carbon,
70 respectively (Charron et al., 2019). Fe-rich particles often absorb trace metals by affinity in
71 their structure, such as C, Ni, Cu, Zn, Ba, Cd, Pb, and Mn (Harrison and Jones, 1995; Maher et
72 al., 2008; Muxworthy et al., 2003; Yang et al., 2016). In combustion residues, Fe-bearing
73 nanoparticles can be incorporated together with various trace metals in carbon spherules (Stone
74 et al., 2017). The environmental magnetic methods applied to air quality monitoring is based
75 on a range of concentration, nature, and size dependent parameters to quantify Fe-bearing PM,
76 their associated oxides and trace metals. Originally, these techniques have been developed for
77 the study of rocks and soils for (paleo)environmental applications (Maher and Thompson,
78 1999). Moreover, studies have shown that Pb, Cu, Zn, and ferromagnetic minerals are
79 commonly associated in industrial and traffic-related emissions (Beckwith et al., 1986; Hanesch
80 and Scholger, 2002; Li et al., 2001). In many cities, the measurement of magnetic proxies has
81 proven to be a useful tool to map the relative concentration of PM depositions on accumulative
82 surfaces. As a matter of fact, the use of plant (tree leaf, bark), moss or lichen as passive samplers
83 has been popularized because they are omnipresent in cities. They allow sampling at breathing
84 height and provide high resolution records of spatial and time-integrated information on local
85 air quality (see Hofman et al., 2017, and references therein). Recently, Letaïef et al. (2020) have
86 shown that the distribution of particle deposition on accumulating surfaces obtained with
87 magnetic measurements was remarkably consistent with that obtained from numerical
88 modeling of the atmospheric dispersion of traffic-related particles. This work provides a novel
89 argument reinforcing the relevance of the magnetic approach as a tool for mapping the near-
90 source deposition of particulate pollutants.

91 Identifying the sources of the measured magnetic signal is a prerequisite to begin using
92 this technique in comprehensive source-to-sink surveys. The identification of the PM origin
93 solely based on elemental analysis is ambiguous because the same element may stem from
94 different sources. The purpose of the present work is to determine distinct magnetic properties
95 with a wide variety of techniques commonly employed in rock magnetism laboratories, namely,
96 hysteresis measurements, First-Order Reversal Curve (FORC) diagrams, variation of initial
97 susceptibility with temperature, and acquisition curves of Isothermal Remanent Magnetization
98 (IRM). To this end, we analyzed samples selected from about 30 potential PM sources linked

99 to vehicular traffic in urban areas (exhaust and non-exhaust emissions) checking for specific
 100 pattern in each of them. We also compared the magnetic signal of these potential sources with
 101 the magnetic signal of PM deposited on accumulative surfaces: tree leaves, tree barks, as well
 102 as passive filters, and pollution mask filters used by cyclists in urban environments.

103

104 2. Materials and Methods

105 2.1 Samples

106 2.1.1 Traffic-related source samples

107 Exhaust pipe samples were taken either by wiping the inside of the tube end of different
 108 vehicle models with a non-magnetic cellulose tissue or by directly removing the powder inside
 109 the tailpipe with a plastic spatula (Table 1). We chose cars with various registration dates to
 110 study the possible influence of the European emission standards on magnetic characterization
 111 (Appendix 1). We collected between one and four samples from the following types of cars:
 112 Euro-1 (1993- 1996), Euro-2 (1996-2000), Euro-3 (2001-2003), Euro-4 (2004-2010), Euro-5
 113 (2011-2015), and Euro-6 (past sept. 2015), including for this latter category one specimen from
 114 a hybrid car. **Table 1: A comprehensive list of samples used in this study according to their
 115 specific methods of sampling and measurement. For the IRM acquisition experiments, the
 116 apparatus used is also specified: “VSM” is the Vibrating Sample Magnetometer at IPGP;
 117 “2G-Cryo” indicated experiments performed at Géosciences Montpellier using an
 118 impulse magnetizer to generate IRMs and a 2G-SQUID or a JR-5 spinner magnetometer
 119 to measure them.**

SAMPLES	Type	Day Plot	FORC diagrams	<i>k_o</i> vs Temperature	IRM acquisition
Diesel Euro-3	Powder	X	X	X	VSM
Diesel Euro-4.1	Powder	X	X	X	2G-Cryo
Diesel Euro-4.2	Powder	X	X	X	VSM
Gasoline Euro-1	Cellulose tissue	X	X		
Gasoline Euro-2.1	Cellulose tissue	X	X		
Gasoline Euro-2.2	Cellulose tissue	X	X		
Gasoline Euro-3	Cellulose tissue	X	X		
Gasoline Euro-4	Cellulose tissue	X	X		
Gasoline Euro-5	Powder	X	X	X	2G-Cryo
Gasoline Euro-6.1	Cellulose tissue	X	X		
Gasoline Euro-6.2	Cellulose tissue	X	X		
Gasoline Euro-6.3	Cellulose tissue	X	X		
Gasoline Euro-6.4	Cellulose tissue	X	X		
Hybrid Euro-6	Cellulose tissue	X	X		
BrP1	Worn brake pad	X	X	X	VSM
BrP2	Worn brake pad	X	X	X	JR5-A
BrP3	Worn brake pad	X	X	X	VSM
BrP4	Worn brake pad	X	X	X	JR5-A
BrP5	Worn brake pad	X	X	X	VSM
BrP6	Worn brake pad	X	X	X	VSM

Brake dust 1	Powder	X	X	X	JR5-A
Brake dust 2	Powder	X	X	X	VSM
Asphalt	Fresh	X	X	X	2G-Cryo
Tire	Tire thread	X	X		VSM
Mineral dust	Saharan wet-deposition	X	X	X	VSM
Street dust	Canyon street dust	X	X	X	VSM
Bark	<i>Platanus</i> bark	X	X		
Plant leaf	<i>Platanus</i> leaves	X	X		
Charcoal_Paris	Pollution masks for cyclists	X	X		
Charcoal_Bogotá	Pollution masks for cyclists	X	X		
Electromagnetic_Mexico	Pollution masks for cyclists	X	X		
Electromagnetic_Paris	Pollution masks for cyclists	X	X		
<i>Cercis</i> leaves	Plant leaves	X	X		2G-Cryo
<i>Eleagnus</i> leaves	Plant leaves	X	X		2G-Cryo
Passive filter	Paper filter	X	X		VSM

120

121 Regarding vehicle wear products (Table 1), we obtained six types of worn brake pads
122 and one worn tire from a car mechanic shop. Although tire wear PM is considered to be
123 responsible for a negligible portion of road dust mainly in the nanometer size (Dahl et al., 2006;
124 Foitzik et al., 2018), we were interested to characterize the magnetic properties from this type
125 of source. We sampled worn brake pads and tire because the increase in temperature due to heat
126 generation from shear and frictional forces may alter the chemical composition of these
127 materials from their original state. Thus, our samples correspond as close as possible to the car
128 traffic context. The brake pads were cut in millimetric-size pieces and were analyzed as such,
129 whereas the tire treads were cut into small cubes. We removed the surface layer of the tire tread
130 to suppress the material incorporated by the contact of the tire with the road surface. In addition,
131 two samples of brake powder released by abrasive-corrosive wear were collected from the
132 whole braking system of a diesel Euro-4 and a gasoline Euro-3 cars by removing and scraping
133 the dust powder around the wheel rim, the brake disks, and pads. Besides, fresh asphalt concrete
134 was recovered on a construction site in the city of Montpellier, France.

135 Finally, we chose to sample street and mineral dusts as products of traffic related PM-
136 resuspension. The street dust sample was recovered with a small portable vacuum cleaner in a
137 street in the center of Montpellier where traffic is 7000 veh.day⁻¹. A priori, we assume that at
138 least all sources of traffic-related PM (exhaust and non-exhaust) will be found in the street dust
139 (Vlasov et al., 2022a). The mineral dust sample was collected after a Saharan wet-deposition
140 episode in May 2020, by wiping accumulative surfaces such as car windshields or garden tables
141 with cleaning wipes. Such eolian mineral dust is frequently deposited by precipitation over
142 Europe (Szuszkiewicz et al., 2023), and it is a non-negligible but episodic source of PM that

143 can be resuspended by traffic. We admit that by sampling a single rain event, this sample cannot
144 be representative for all potential dust sources that may have different magnetic signatures
145 (Lyons et al., 2012). Note that to simplify the writing, we will call this sample mineral dust as
146 it can just as well come from the Sahel zone.

147

148 *2.1.2 Accumulative surface samples*

149 We selected tree leaves and bark samples that are part of a larger magnetic-monitoring
150 study in the city of Paris (Isambert et al., 2019; EcorçAir; Table 1). Magnetic susceptibility and
151 isothermal remanence magnetic moment of biological samples are usually quite weak, in the
152 order of $10^{-7} \text{ m}^3 \text{ kg}^{-1}$ and 10^{-9} Am^2 , respectively. Therefore, we chose samples carrying the
153 strongest magnetic signal to compare them with source signatures. Tree leaf samples from
154 *Platanus × acerifolia* and *Populus nigra* were collected in May 2012 at heights around 2 m, at
155 the edge of busy traffic roads riparian the Seine River and close to major road intersections.
156 The tree bark samples were collected in February 2016 from a plane tree also situated along a
157 busy road along the Seine River, around ~1.5 m height.

158 To make the most comprehensive comparison with sources, we characterized four
159 pollution masks filters wore by cyclists in Paris, Bogotá, and México City. There are two
160 different types of filters: either electromagnetic (according to the manufacturing company
161 documentation, the filter uses electrostatically charged fibers to attract airborne particulates
162 down to $0.3 \mu\text{m}$ in size) or active charcoal (95% pure charcoal weave, laminated with medical
163 grade non-woven polypropylene material). The masks were worn for 2-3 weeks during the year
164 2019, after which they were visibly dirty. For magnetic measurements, the filters were cut open
165 and the inside layer was tightly packed into gelatin capsules. Therefore, mass normalization
166 was not possible for these samples.

167

168 *2.2 Measurement methods*

169 *2.2.1 Hysteresis properties and FORC diagrams*

170 Measurements of magnetic properties were performed on samples tightly packed in
171 gelatin capsules with a Lakeshore Vibrating Sample Magnetometer (VSM), which is part of the
172 Mineral Magnetism Analysis Platform at IPGP-IMPIC laboratories. Magnetic hysteresis
173 curves, i.e., the variation of the magnetization with an applied field, were measured in a
174 maximum applied fields between 0.5 and 1.8 T and enabled us to obtain the values of the major-
175 loop hysteresis parameters that are the coercive field B_c , the saturation magnetization M_s , and
176 the remanent magnetization M_{rs} , respectively. Coercivity of remanence B_{cr} was obtained with

177 the backfield curves, which monitor the decrease of the remanent magnetization after saturation
178 with an increasingly negative laboratory field (up to 45 mT). The hysteresis loop parameters
179 were directly corrected from diamagnetism and paramagnetism contribution and are used to
180 calculate the ratios: M_r/M_s and B_{cr}/B_c , that are plotted subsequently on a two-variable scatter
181 plot (Day et al., 1977). The mixing curves for pure magnetite particles of different domain sizes
182 (Dunlop, 2002) are superimposed to the observed hysteresis data plot to obtain further
183 indications on the domain states of the magnetic carriers present in our samples.

184 First-Order Reversal Curve (FORC) diagrams, calculated from multiple minor
185 hysteresis curves, provide in first approximation an information about the distribution of micro
186 coercivities (along the horizontal axis) and interaction fields (along the vertical axis) in a sample
187 (e.g. Carvallo et al., 2006, 2005; Pike et al., 1999; Stancu et al., 2003). For the weakest
188 magnetized samples, between 10 and 20 individual diagrams were measured and then averaged
189 to further decrease the noise on the final FORC diagrams. Averaging times were set at 0.1 or
190 0.2 s. Magnetic particles with different domain states plot in different areas of the FORC
191 diagram (Roberts et al., 2000). Therefore, it is a powerful tool to characterize magnetic domain
192 states for samples containing a mixed domain-size assemblage and/or a range of different
193 coercivities. The resulted diagrams were then analyzed using the FORCinel software (Harrison
194 and Feinberg, 2008), with a variable smoothing factor depending on the type of sample (Egli,
195 2013). Applying larger smoothing factors to the background reduces considerably the noise
196 level, while preserving the areas along the axes with relatively small smoothing factors. To
197 compare the diagrams between sources sample, the same smoothing factor was used for all:
198 vertical and central ridge = 10; and horizontal and vertical smoothing = 15.

199

200 2.2.2 Scanning Electron Microscopy (SEM)

201 SEM observations were carried out at the IMPMC using a FEG Zeiss Ultra55 Scanning
202 Electron Microscope. Tree leaves, tree bark and car brake samples were deposited as dry
203 powders in thin layers on carbon tape mounted on SEM stubs. All other samples were left on
204 the cellulose tissue mounted on a stub and observed as is. Stubs were coated with a thin carbon
205 layer (10 nm) to increase electrical conductivity during the observation. Observations were
206 carried out using a backscattered electron (BSE) mode. A Bruker QUANTAX X-ray detector,
207 coupled to the microscope system, was used to perform semi-quantitative elemental analysis
208 through Energy Dispersive X-ray Spectroscopy (EDXS) on individual particles. Data were
209 recorded at 15 kV.

211 2.2.3 Initial low-field magnetic susceptibility vs. temperature

212 The magnetic susceptibility (k) quantifies the proportion of how magnetizable a material
213 is (Dearing, 1999), thus reflecting variations in nature and/or in volumetric concentration of
214 magnetic minerals. Its temperature dependence is typically investigated to determine the Curie
215 temperature of ferromagnetic (*sensu lato*) materials. In this study, we use the normalized initial
216 susceptibility (k_0), which is the initial reversible susceptibility normalized to the k_0 values
217 measured at 20°C during the heating (Dunlop, 2014). The temperature dependency of low-
218 field magnetic susceptibility (k_0 -T) was investigated with the Agico KLY-3S Kappabridge
219 coupled with a CS-L low temperature apparatus and a CS-3 furnace temperature control unit at
220 Geosciences Montpellier laboratory. The CS-L apparatus has been designed for continuous
221 susceptibility measurements in the range from -194°C to room temperature. The apparatus is
222 composed of a non-magnetic cryostat with a special platinum thermometer. A small quantity of
223 powder (0.04 to 0.4 g) is put in a silicon glass measuring tube, and then cooled down to -194°C
224 by liquid nitrogen. Then, the same specimen is placed in the CS-3 non-magnetic furnace to
225 measure a heating-cooling cycle from room temperature up to 700°C. The raw susceptibility
226 data were corrected for the empty sample holder. Assuming that Curie temperature(s) detected
227 for a given sample follow a normal distribution, the mean Curie temperature is determined by
228 the inflection point method (Prévoit et al., 1983), corresponding to the second derivative of the
229 k_0 -T curve is zero. The dispersion of the Curie temperature(s) around their mean temperature is
230 characterized by the temperature interval determined by the minimum and the maximum of the
231 second derivative bracketing the mean Curie temperature. Unfortunately, due to a small amount
232 of material in exhaust specimen, only three samples from this category (one diesel Euro-3, one
233 diesel Euro-4, and one gasoline Euro-5) were used to perform initial magnetic susceptibility vs.
234 temperature measurements and unmixing analyses.

235

236 2.2.4 IRM acquisition and unmixing analysis

237 Isothermal remanent magnetization (IRM) cumulative acquisition is commonly used to
238 identify mixtures of magnetic materials (Robertson and France, 1994). Prior to the acquisition,
239 all samples and their sample holders were demagnetized with a 170 mT alternating field.
240 Subsequently, the representative source samples were measured at zero-field to set the baseline.
241 Finally, stepwise IRMs were manually imparted to the sample with an impulse magnetizer ASC
242 Model IM-10-30 in 30 increments ranging from 1 up to 2800 mT. To prevent any bias due to
243 viscous effects, the samples have been placed in a zero-field during 24 h right after each IRM
244 acquisition step and prior to measurement. The magnetic moment was measured with a 2G-

245 SQUID magnetometer and an AGICO JR5A spinner magnetometer at the Geosciences
246 Montpellier laboratory for one sample of diesel, gasoline, and asphalt (Table 1), and for strongly
247 magnetized samples such as brake pads, respectively. The measurement steps were chosen to
248 be approximately equidistant on a log-scale. To enrich our dataset, we performed additional
249 IRM acquisition curves with the VSM (Table 1). This was made possible by first checking that
250 the IRM acquisition curves obtained with the VSM at zero magnetic field are identifiable to
251 those obtained with the 2-G and the JR5A.

252 Unmixing is a technique used on a mixture of at least two magnetic components to
253 estimate the contribution of each population to the bulk sample coercivity distribution. By
254 hypothesis, this distribution follows a log-normal distribution as long as no magnetic
255 interactions are present (Egli, 2004; Kruiver et al., 2001). In this case, the progressive IRM
256 acquisition curve acquired by the magnetic assemblages can be approximated by a cumulative
257 log-gaussian (CLG) function of the magnetizing field (Robertson and France, 1994), where
258 each CLG function (or component) is described by three parameters (Robertson and France,
259 1994): (1) the height of the CLG function or its saturation (\sim SIRM); (2) the mean of the applied
260 field at which half the SIRM is acquired ($B_{1/2}$), corresponding also to the remanence coercivity
261 (B_{cr}) and, (3) the standard deviation of the log-distribution, also named the dispersion parameter
262 (DP). We thereafter determine the mineralogy, domain-size, and concentration by fitting a
263 superposition of two or more CLG functions to match the IRM acquisition curve. The
264 inflections observed on the latter curve clearly indicate the successive SIRM onsets for each
265 component. Finally, unmixing analysis of the individual log-normal populations that contribute
266 to an IRM bulk distribution were modeled by means of a Bayesian approach with a Monte-
267 Carlo-Markov Chains (MCMC) algorithm (Marin and Robert, 2014). For further details, the
268 Bayesian method is explained in Appendix 2.

269

270 **3. Results and Discussion**

271 *3.1 Elemental and morphological characterization of PM*

272 Figure 1 presents representative examples of images obtained by SEM microscopy with
273 a BSE detector. The semi-quantitative elemental analysis performed with EDXS corresponding
274 to these images are summarized in Table 2.

275

276 *3.1.1 Exhaust emission samples*

277 The PM emitted from car exhaust are often constituted of rounded, micro- to nanosphere
278 Fe-bearing particles (Abdul-Razzaq and Gautam, 2001; Yang et al., 2016) depending on the

279 combustion conditions. However, the images display various particle types, mostly clustered
 280 and often irregularly shaped. They are well below the PM_{2.5} size limit in all source samples
 281 from vehicles (Figure 1). The PMs observed in the motorbike exhaust emission sample
 282 (Figure 1a) show both isolated and cluster of particles, ranging from 2 to 10 μm. Ten particles
 283 were submitted to a semi-quantitative elemental analysis. They all show the presence of Fe, and
 284 most of them contain some Ni up to a few wt%. The other metallic elements detected are Cu
 285 and Zn in two and three particles, respectively. We identified one particle rich in Cr, and another
 286 one rich in Ce, Zr and Pt which may originate from an exhaust gas purifying catalyst (Engler et
 287 al., 1989). Other elements identified is almost analysis are Al, Si, Mg, P, Ca and S.

288

289 **Table 2. Semi-quantitative EDXS analysis results for the particles indicated with arrows**
 290 **in Fig.1. Euro-4: gasoline Euro-4 exhaust sample; Euro-6: gasoline Euro-6 exhaust**
 291 **sample; Brake: brake powder sample; Pl: plane tree leaf sample; Bark-b: bulk plane tree**
 292 **bark; Bark-p: powdered plane tree bark; Filter-p: electromagnetic pollution mask filter**
 293 **from Paris; Filter-b: electromagnetic pollution mask filter from Bogotá. Because of the**
 294 **presence of Carbon in stubs and coating, C is not included in the analysis.**

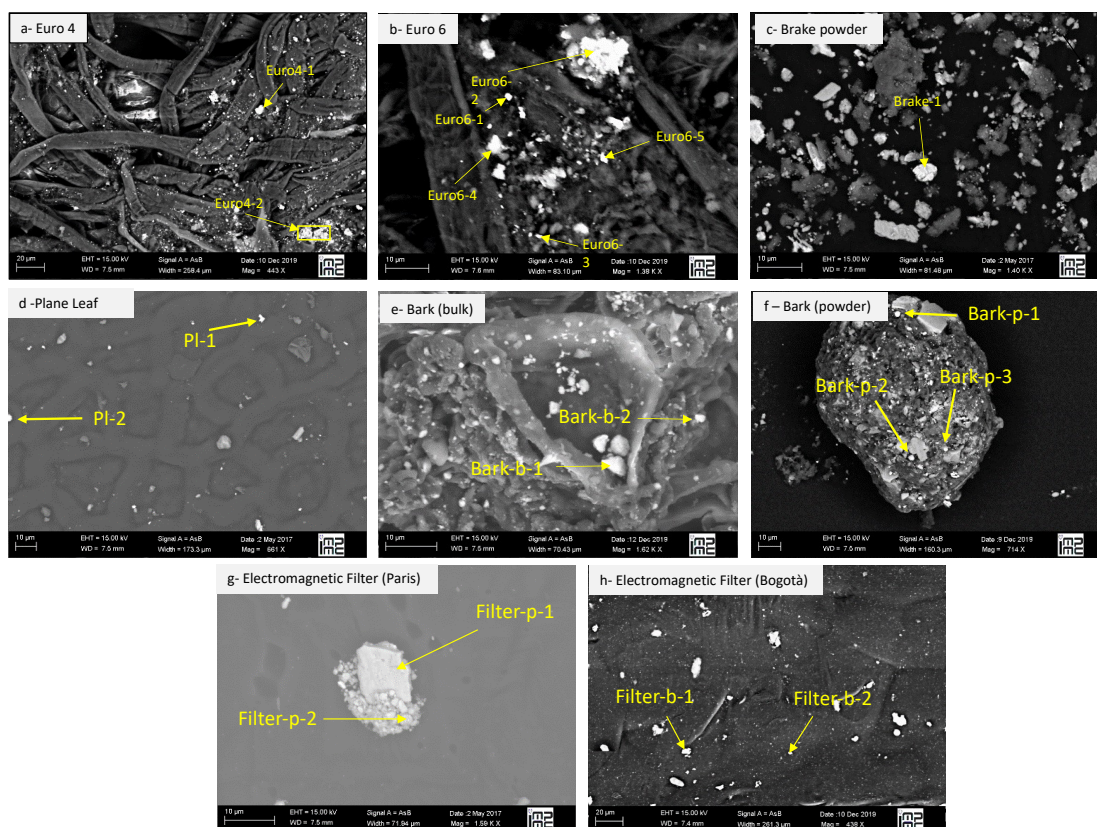
	O	Na	Mg	Al	Si	P	S	Cl	K	Ca	Ti	Cr	Mn	Fe	Ni	Cu	Zn	Zr	Sn	Sb	Ba	Ce	Pt	Size (μm)	
Euro4-1	24.97			18.49	0.85	2.23	0.46			1.94		2.36		3.26	0.93		0.82	15.32				23.31	5.06	10	
Euro4-2	35.43		0.56	3.30	10.11	1.26	0.25		0.43	2.64		3.72		36.66	4.99		0.64								2
Euro6-1	29.32		0.34	0.52	1.58		0.27							65.33		1.23		0.61	0.55						1
Euro6-2	23.30		0.56	7.59	0.38	0.42	2.39	0.45		0.76		1.18		12.59	3.36	8.47									15
Euro6-3	83.39						0.99		1.05	1.40				8.48		3.22									1
Euro6-4	48.05		0.45	0.54	0.47	0.63	0.31							47.30	0.33	1.17									5
Euro6-5	10.05		0.64	0.82	0.61		0.35	0.35				12.44		72.79		1.15									2
Brake-1	8.47			0.45	2.94									86.55		1.59									5
Pl-1	39.67		1.27	1.10	2.42		0.67			0.72				47.23		3.29		2.13		0.71					3
Pl-2	33.84	0.72	0.46	0.78	2.73		0.40	0.14	0.18	0.32			0.47	59.93											5
Bark-b-1	24.22		0.61	0.55	2.30					0.39				71.00		0.61									8
Bark-b-2	16.29			1.03	16.32	0.36	0.71		0.54	3.03				61.54											3
Bark-p-1	39.39				0.57									1.25				58.32							3
Bark-p-2	8.21		0.38	3.52	24.96		0.27		0.53	18.07	25.32			13.65		0.67									3
Bark-p-3	38.05		1.26	1.75	1.46		0.51					1.03		42.10		4.96	3.84		2.86						3
Filter-p-1	24.57	0.45	0.39	1.49	1.85		0.58	0.29				0.46	0.43	63.79		3.83		0.54	1.27						15
Filter-p-2	21.33	0.94			1.15		0.44	0.76	0.24	0.43				70.82		2.32	0.63				0.24				1
Filter-b-1	45.84	0.62	0.47	11.19	13.98			0.28	2.25	0.57	0.88			23.84											5
Filter-b-2	59.95	0.85	0.40	1.14	0.92			0.22		0.23				35.67											1

295
296

297 The images of our gasoline Euro-6 exhaust sample all show a mix of isolated particles
 298 and clusters (Figure 1b). Iron is present in all of the 11 particles studied with EDXS, Cu in 10
 299 particles (0.3 to 8 wt%) and Cr in 6 particles (0.4 to 7.2 wt%). We also detected Ni in 4 of them,
 300 and Zn and Zr up to 3 wt% in two different particles. Like in the Euro-4 sample, Mg, Al, Si, P
 301 and S are also present, often in small quantities. Individual particles observed on images are
 302 frequently smaller than 1 μm.

303 The presence of Cr, Zn, Cu and Ni in exhaust and exhaust-related emissions is consistent
 304 with other studies (e.g., Pant and Harrison, 2013). However, because samples were collected
 305 by wiping the inside of the exhaust pipe, it is possible that some elements originate from the
 306 pipe itself and not from the combustion/exhaust processes.

307
308



309

310 **Figure 1: Representative examples of SEM images (using Backscattered Electron**
311 **detector) for: a) gasoline Euro-4 exhaust sample; b) gasoline Euro-6 exhaust sample; c)**
312 **brake powder sample; d) plane tree leaf sample; e) and f) plane tree bark; g)**
313 **electromagnetic pollution mask filter from Paris; h) electromagnetic pollution mask filter**
314 **from Bogotá. EDXS analysis of PMs indicated with arrows are summarized in Table 2.**
315

316 3.1.2 Wear product samples

317 The microscopy images from brake powder sample (Figure 1c) also show numerous
318 individual or clusters of particles with an angular shape, characteristic of the particles derived
319 from abrasive wear, and with sizes ranging from 1 to 10 μm . The 7 Fe-rich particles analyzed
320 with EDXS also show the associated presence of Cu between 0.5 and 2.2 wt%, and Al and Si
321 between 0.5 and 5.6 wt%. The presence of Cu is in agreement with most studies (Grigoratos
322 and Martini, 2015; Pant and Harrison, 2013). However, the elemental composition of brake
323 pads can be very diverse. Here, we only analyzed one type of brake powder, which is probably
324 not representative of the actual impact of this wear product in the urban PM composition.

325

326 *3.1.3 Accumulative surface samples*

327 It is very likely that a part of the detected elements is from a natural origin, and not
328 anthropogenic, and represent a mineral background urban signal. However, it is difficult to
329 separate the natural and anthropogenic signal. For instance, Si could have a geological origin,
330 as well as industrial or vehicular, as it was detected in both exhaust emissions and brake powder.
331 Selected images of tree leaf and bark samples are presented in Figure 1d-f. Isolated Fe-rich
332 particles ranging from few microns to $< 1 \mu\text{m}$, are visible on the surface of the plane leaf surface
333 structure (Figure 1d). Copper is detected in 3 of the 5 particles analyzed in this sample (2.8 to
334 6.7 wt%), Zr (2.1 wt%), Sb (0.8 wt%) and Ba (1.2 wt%) in one particle. Plane tree bark samples
335 were investigated as intact bark surface sample and (Figure 1e) as homogenized dry powder
336 (Figure 1f). On the intact surface, we observe the individual particles trapped within the fiber-
337 rich structure of the plane tree bark. Both bark samples show very small particles ($< 1 \mu\text{m}$) as
338 well as larger particles embedded into the bark fragments. These images demonstrate very well
339 the natural efficiency of tree bark to trap airborne PM. Again, Cu is associated with Fe in these
340 particles (0.6 to 3.7 wt% in 15 out of 22 studied particles) and more occasionally with Ti (0.4
341 to 24.6 wt% in 4 particles), Zn (0.5 to 2.9 wt% in 3 particles), Sn (0.4 to 2 wt% in 3 particles),
342 Ba (1.4 to 2.3 wt% in 2 particles) and Cr and Sb (0.8 – 1.3 wt% respectively, each in one
343 particle). One Zr-rich (44 wt%) was also identified. Most of the particles analyzed on these
344 accumulative surfaces also contain some Al, Si, Mg, Ca and S.

345 Figure 1g. shows a particle cluster deposited on the cyclist mask filter used in Paris, that
346 is composed of one large angular particle ($\sim 10 \mu\text{m}$) nested in a cluster of much smaller particles
347 ($< 1 \mu\text{m}$ corresponding the PM_{10} fraction. Fourteen individual particles were analyzed with
348 EDXS. They are all Fe-rich, with some contribution of Al, Si and Mg up to a few wt%. Copper
349 (2-5wt%) is also present in 7 of them, Sn ($\sim 1 \text{ wt}\%$) in 4 of them, Zn ($\sim 1 \text{ wt}\%$) in 3 of them, and
350 Cr and Zr (0.5 wt%) in 2 particles. Finally, the SEM image of the cyclist mask filter used in
351 Bogotá (Figure 1h) shows similar particles with sizes from about $20 \mu\text{m}$ down to the μm ($\text{PM}_{2.5}$)
352 and nm ($\text{PM}_{0.1}$) size range, with some of them even smaller belonging rather to the $\text{PM}_{0.1}$ range.
353 EDXS analyses on 15 PMs shows that they are mostly composed of Fe and Si. Calcium, Al, K,
354 Na and Cl are also present (not shown on figures). Unlike for the Paris filter, other metallic
355 elements appear only seldom: Zn, Cu and Cr are identified in only one particle.

356 Almost all the accumulative surface samples show the presence of Cu, Zn and Cr, which were
357 also identified in our source samples. Other elements that were not detected in our source
358 samples are Sn, Ba and Sb. Those elements can nevertheless be found in brake wear as well as
359 exhaust-related products (e.g., Pant and Harrison, 2013). However, it seems difficult to

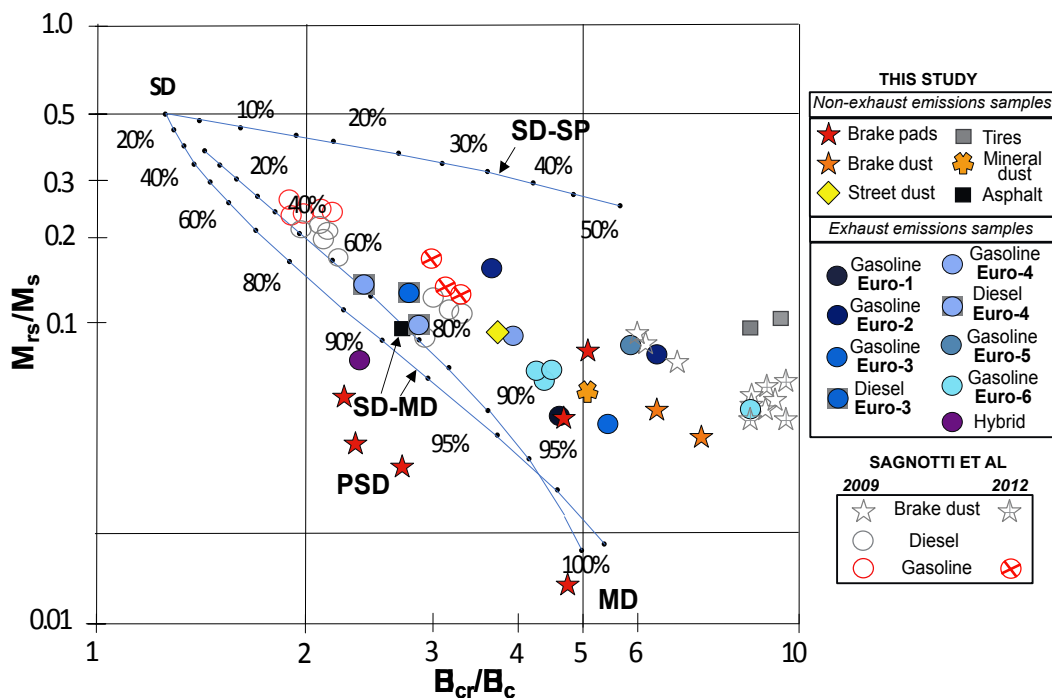
360 discriminate the origin of PM based solely on the elemental composition and PM size, as many
 361 elements can be emitted by various sources, and PM sizes are generally very diverse, ranging
 362 in all samples from sub- μm to several tens of μm .

363

364 3.2 Magnetic domain behavior

365 3.2.1 Exhaust emission samples

366 The Day-plot (Figure 2) allows to separate the samples according to their European
 367 norms and their fuel type. The three diesel samples are tightly grouped close to the SD-MD
 368 mixing line, suggesting a contribution equivalent to a mixture of about 70% MD magnetite vs
 369 30% SD magnetite (Dunlop, 2002). This result fits well with the specific bimodal particle size
 370 distribution for exhaust emissions showing two peaks at 20-40 nm and 50-90 nm described by
 371 Kumar et al. (2008) and Liati et al. (2012). In contrast, the gasoline samples plot in a large range
 372 between the two SD-SP and SD-MD mixing lines, somewhat closer to the MD range. This is
 373 different from the results of Sagnotti et al. (2009), who found that gasoline samples have a
 374 higher contribution of SD magnetite grains than diesel samples, along the mixing line.

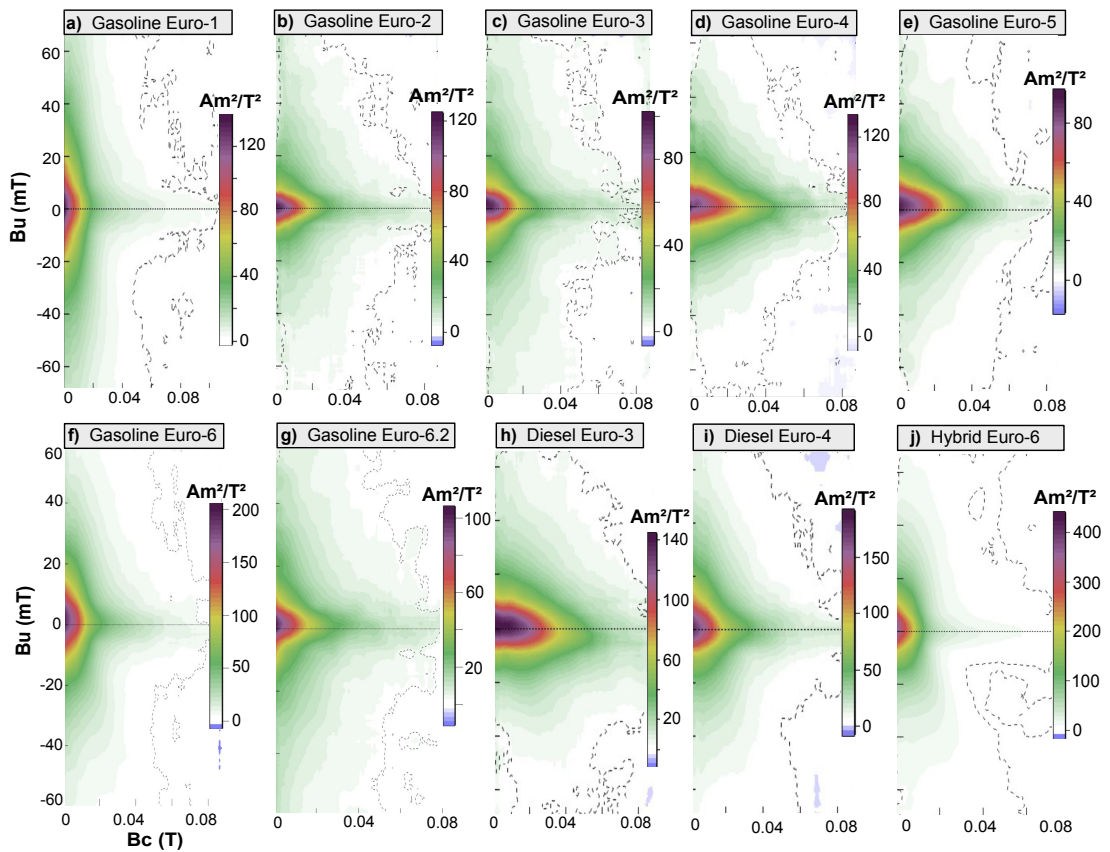


375

376 **Figure 2: Day plot for: exhaust and non-exhaust emission samples; (compared**
 377 **respectively to data from Sagnotti et al., 2009; Sagnotti and Winkler, 2012). SD: single-**
 378 **domain; MD: multi-domain; PSD: pseudo-single-domain. Mixing lines for pure magnetite**
 379 **are plotted as continuous blue lines (Dunlop, 2002).**

380

381 As shown by (Sheikh et al., 2022), the FORC diagrams of the exhaust-pipes are
 382 described by a signal extending slightly along the horizontal B_c axis and some vertical spreading
 383 around the SP-SD ridge (Figure 3). Nevertheless, some differences between the Euro norms
 384 and the type of fuel may be noticed: gasoline Euro-1, Euro-6, and hybrid tailpipe samples are
 385 characterized by MD-like behaviors with a wide vertical profile of FORC distribution and a
 386 horizontal profile that does not extend to coercivities higher than 20-25 mT, although this same
 387 trend is not notable on the Day plot (Figure 2). On the contrary, gasoline Euro-2, 3, 4 and 5 and
 388 diesel Euro-3 and 4 tailpipe samples signatures are less extended along the vertical axis and
 389 more along the horizontal axis, to various extents. This could be explained by the contribution
 390 of finer SD magnetic particles. However, even if some different diagrams patterns are noticed
 391 within the same exhaust emission source, the precise distinction between samples by using only
 392 FORCs diagrams remains difficult as illustrated by the signal heterogeneities between the two
 393 gasoline Euro-6 samples.
 394



395
 396 **Figure 3: FORCs diagrams for the exhaust pipe samples classified according to the fuel**
 397 **type and their respective Euro-norm**
 398

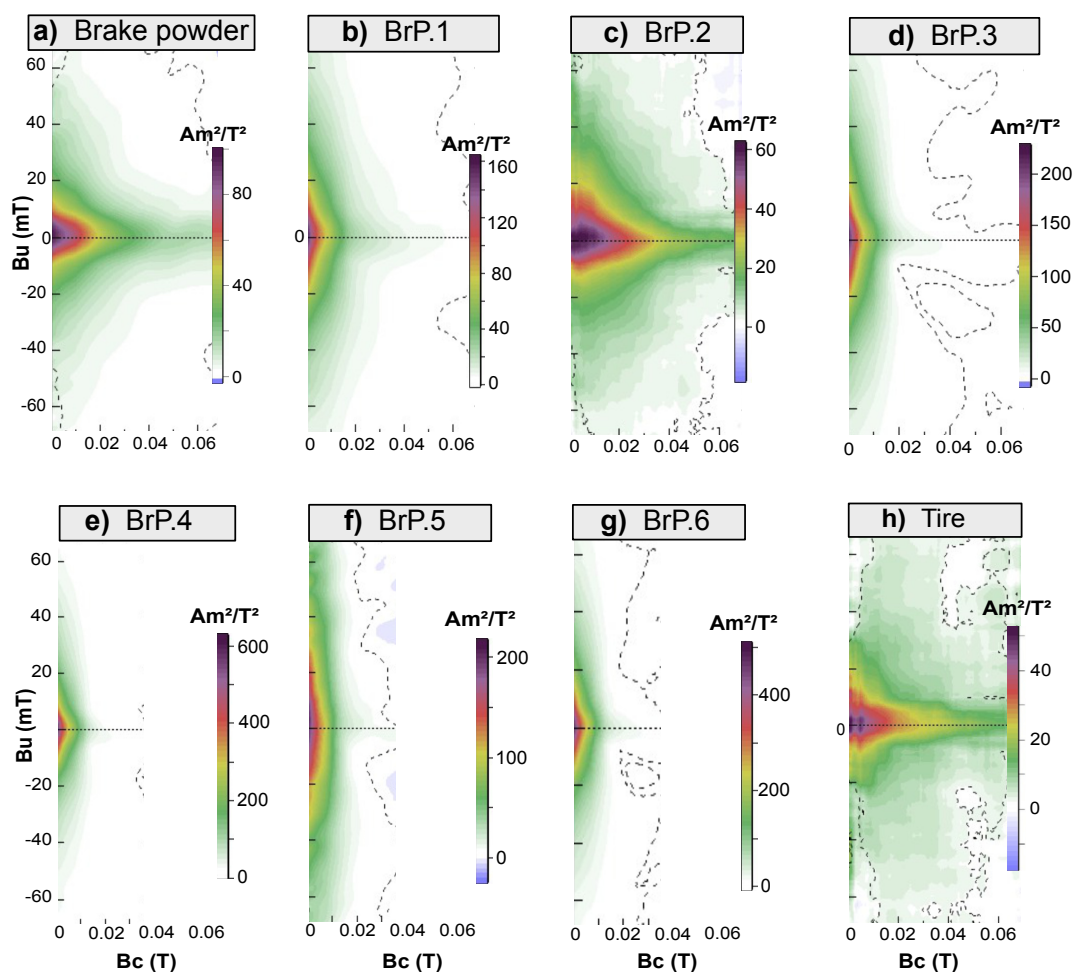
399 3.2.2 *Wear product samples*

400 Hysteresis parameters for brake pads, whether powder or bulk, display a large variability
401 (Figure 2), suggesting that their composition is heterogenous. They are mainly characterized by
402 a strong M_s , a small B_c , and a M_{rs}/M_s ratio around 0.03. These observations are in line with a
403 previous study which estimated the Fe-content in abrasive wear-derived PM of more than
404 50 wt% (Garg et al., 2000), explaining their high contribution to the total measured magnetic
405 signal. In addition, brake pads are known to be a predominant source of non-exhaust PM
406 emissions by contributing to the level of $55.3\% \pm 7.0\%$ with particle masses in the range of
407 $0.9\text{-}11.5\ \mu\text{m}$ aerodynamic diameter (Harrison et al., 2012).

408 Regarding our results on the Day plot (Figure 2), it appears that the brake pad samples
409 could be segregated into two groups: one defined by a high B_{cr}/B_c ratio (for BrP.3, BrP.4, and
410 BrP.6) and the second by a lower B_{cr}/B_c ratio (for BrP.1, BrP.2, and BrP.5). The latter group is
411 clearly distinguishable from the brake pad powder samples which plot further on the theoretical
412 trends for SD-MD and SD-SP magnetite grains (Figure 2). This is consistent with the
413 measurements on brake dust previously reported by (Sagnotti et al., 2009; Sagnotti and Winkler,
414 2012). Nevertheless, the hysteresis parameters for two brake pads (BrP.1 and BrP.2) are close
415 to those for the brake powder samples on the Day plot.

416 In addition, the FORC diagrams for brake pads (Figures 4) mainly show a mixture of
417 PSD/MD-like behaviors (Roberts et al., 2014) with a large spreading on the B_u axes, except for
418 BrP.2 sample, which is more PSD-like (Figure 4c). The difference between brake pads and
419 brake powder from the Day plot is also visible on FORC diagrams: the brake powder is more
420 PSD-like (Figure 4a) with a trace of horizontal ridge which could be attributed to a SD
421 contribution with possibly a horizontal ridge visible when smoothing is decreased, which could
422 possibly be attributed to a SP component (Sheikh et al., 2022). In any case, the brake powder
423 sample seems to have less MD contribution than most brake pads. This could be explained by
424 the fact that the MD particles would be mechanically reduced during abrasion into finer grains
425 with a behavior that would tend towards that of PSD or SD grains.

426 Tire samples also plot in between the SD-MD and SP-SD mixing lines on the Day-plot,
427 in the region with high B_{cr}/B_c ratios between 6 and 10 (Figure 2). Only one sample had a
428 magnetization strong enough to measure a FORC diagram (resulting from the average of 12
429 diagrams). It shows a PSD-like behavior with a high coercivity tail (Figure 4h). The asphalt
430 sample plots on the SD-MD theoretical mixing line, suggesting a contribution equivalent to
431 75% of MD magnetite grains (Figure 2), but its magnetization was too low to perform a FORC
432 diagram.



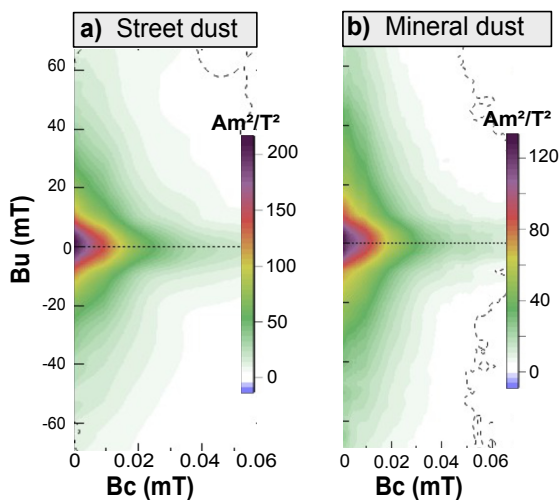
434

435 **Figure 4: FORC diagrams for vehicle wear products: (a) brake powder and brake pad**
 436 **samples (b) BrP.1, (c) BrP.2, (d) BrP.3, (e) BrP.4, (f) BrP.5, (g) BrP.6, and (h) tire sample.**

437

438 3.2.3 Resuspension product samples

439 Road surface wear is responsible for emission of coarser PM ($PM > 10 \mu m$; Gustafsson et al.,
 440 2008; Kupiainen et al., 2005). The mineral and the street dust samples plot in the PSD-range
 441 on the Day plot, between the two theoretical line trends (Figure 2). Both FORC diagrams
 442 (Figures 5a and 5b) show the presence of a range of magnetic domain sizes, from SD to MD,
 443 with a contribution of SD magnetite grains that is slightly more important for the urban dust
 444 than for the mineral dust sample. The higher contribution of SD in the street dust sample ties
 445 with the observations reported in the literature about the predominance of PM fractions $> 1 \mu m$
 446 (Duong and Lee, 2011; Kupiainen et al., 2005; Muxworthy et al., 2002; Pant and Harrison,
 447 2013) and submicrometric particles (Kupiainen et al., 2005).



449

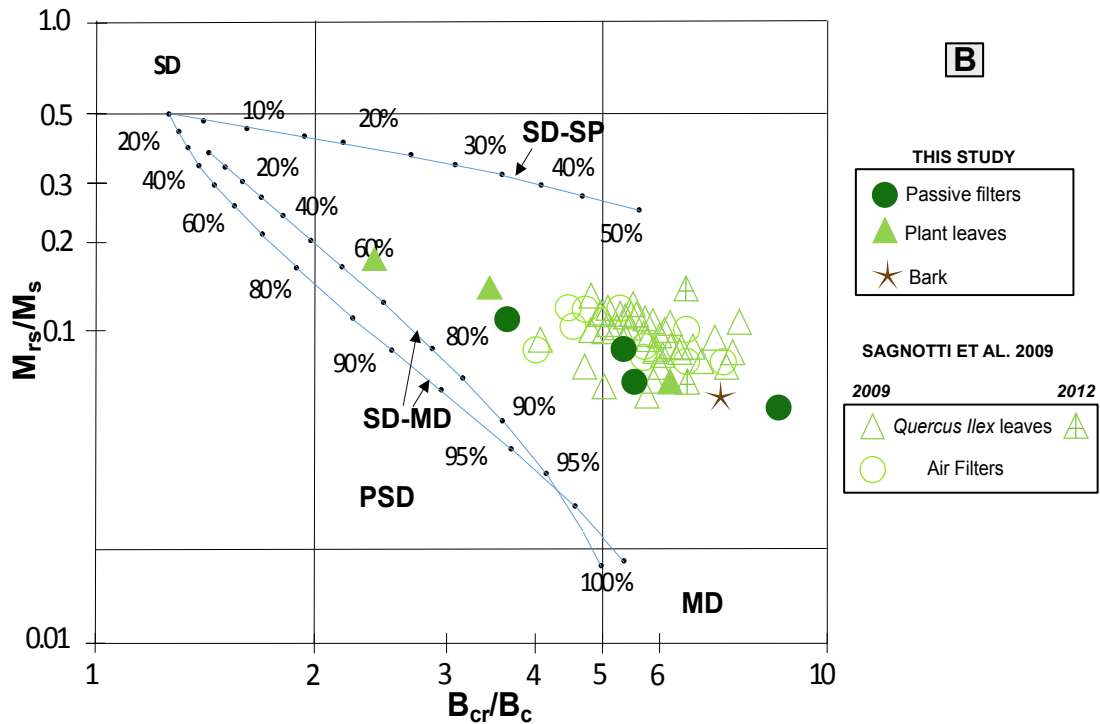
450 **Figure 5: FORC diagrams for resuspension products: (a) street dust, and (b) mineral dust.**

451

452 **3.2.4 Accumulative surface samples**

453 All passive samplers fall into the PSD area (Figure 6), which is consistent with the
 454 results already published (Sagnotti et al., 2009; Sagnotti and Winkler, 2012). The two FORC
 455 diagrams for plane tree leaf and plane tree bark (Figures 7a and 7b) show similar patterns,
 456 which is intermediate between the average patterns of FORC diagrams of brake pads and those
 457 of exhaust pipe samples, as it was also highlighted by (Sheikh et al., 2022). The general patterns
 458 of our passive collector samples agree with those reported by Sagnotti and Winkler (2012) on
 459 *Quercus Ilex* leaves in Rome, Italy.

460

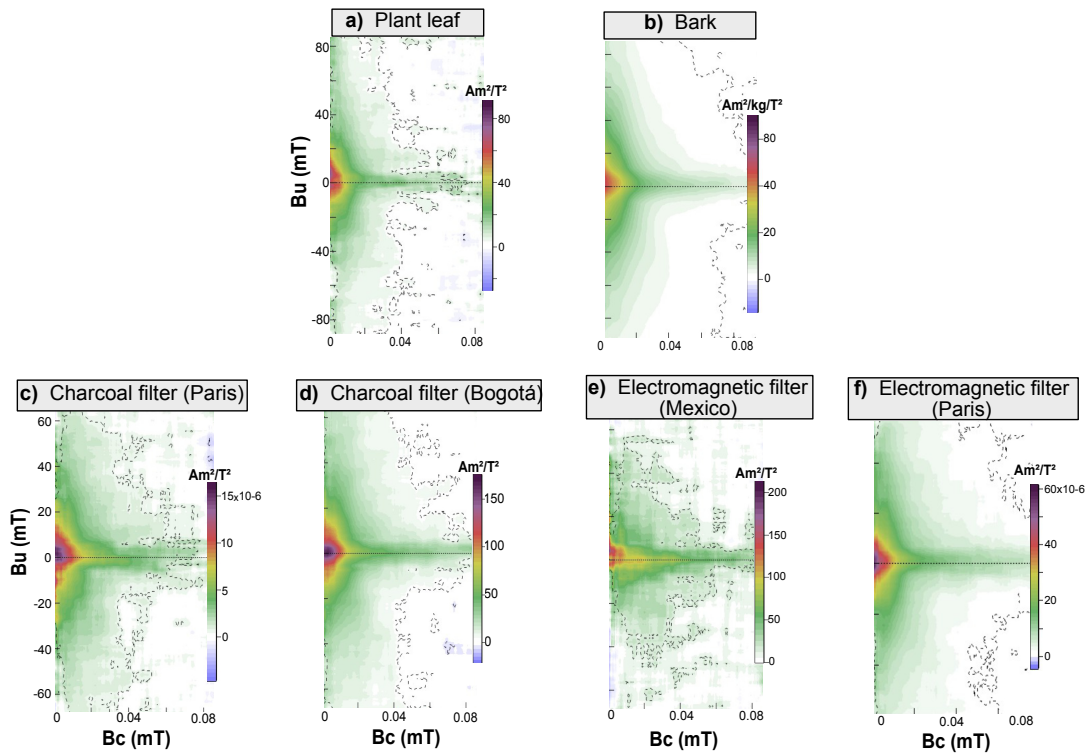


461

462 **Figure 6: Accumulative surface samples compared to data from Sagnotti et al., 2009;**
 463 **Sagnotti and Winkler, 2012). SD: single-domain; MD: multi-domain; PSD: pseudo-single-**
 464 **domain. Mixing lines for magnetite are plotted as continuous blue lines (Dunlop, 2002).**
 465

466 The two active coal cyclist filters used in Paris and Bogotá display similar FORC
 467 diagrams (Figures 7c and 7d) with the same amount of spreading along both axis as the FORC
 468 diagram of the biological samplers (plant leaves and tree bark). The FORC diagram of the
 469 electromagnetic cyclist filter sample from Mexico (Figure 7e) is different as it extends towards
 470 higher coercivities and the spread along the vertical axis is smaller. Finally, the FORC diagram
 471 of the electromagnetic cyclist filter from Paris extends slightly less along both axes (Figure 7f),
 472 even if the general aspect is similar as that of the active coal filter. We can notice that the high
 473 coercivity component observed for the filter worn in Mexico, is similar to the component in the
 474 Euro-2 to Euro-4 exhaust pipe identified in the FORC diagrams. This could be representative
 475 of the older vehicles still active in Mexico with less well filtering engines (International
 476 Organization of Motor Vehicle Manufacturers). The average age of the vehicle fleet in France
 477 is about 10 years (European Automobile Manufacturer’s Association, Vehicles in use report,
 478 2022), against ~16 years in Mexico (S&P Global Mobility) and ~17 years in Colombia
 479 (Asociacion Nacional de Movilidad Sostenible). However, it is possible that in the center of
 480 Bogotá, where the respective mask was used, this age is likely to be younger because of the

481 higher living standards in this area. On the opposite, the mask used in Mexico was used in a
 482 mixed area combined of countryside and small cities. It must be kept in mind that the climatic
 483 and environmental conditions in these three cities are different, in terms of humidity, wind. The
 484 composition of the natural minerals present in soils (lithologic background) deposited on the
 485 filters can also have different magnetic compositions and thus hysteresis behavior.
 486
 487



488
 489 **Figure 7: FORC diagrams for (a) plane leaf, (b) plane bark, (c) electromagnetic cyclist**
 490 **filter from Mexico, (d) electromagnetic cyclist filter from Paris, (e) active coal cyclist filter**
 491 **from Paris, and (f) active coal cyclist filter from Bogotá.**
 492

493 *3.3 Magnetic mineralogy*

494 *3.3.1 Exhaust emission samples*

495 Because we were unable to perform temperature dependency of initial magnetic
 496 susceptibility for the exhaust samples collected with cellulose tissues, we solely compare the
 497 thermal behaviors of the diesel Euro-3, diesel Euro-4.1, diesel Euro-4.2, and gasoline Euro-5
 498 samples (Figure 8). Diesel Euro-3 and diesel Euro-4.2 samples display a very weak signal
 499 before reaching the Curie point measured at 588°C and a thermo-chemical transformation that
 500 causes the susceptibility to double during the cooling (Figures 8a and 8c). This transformation

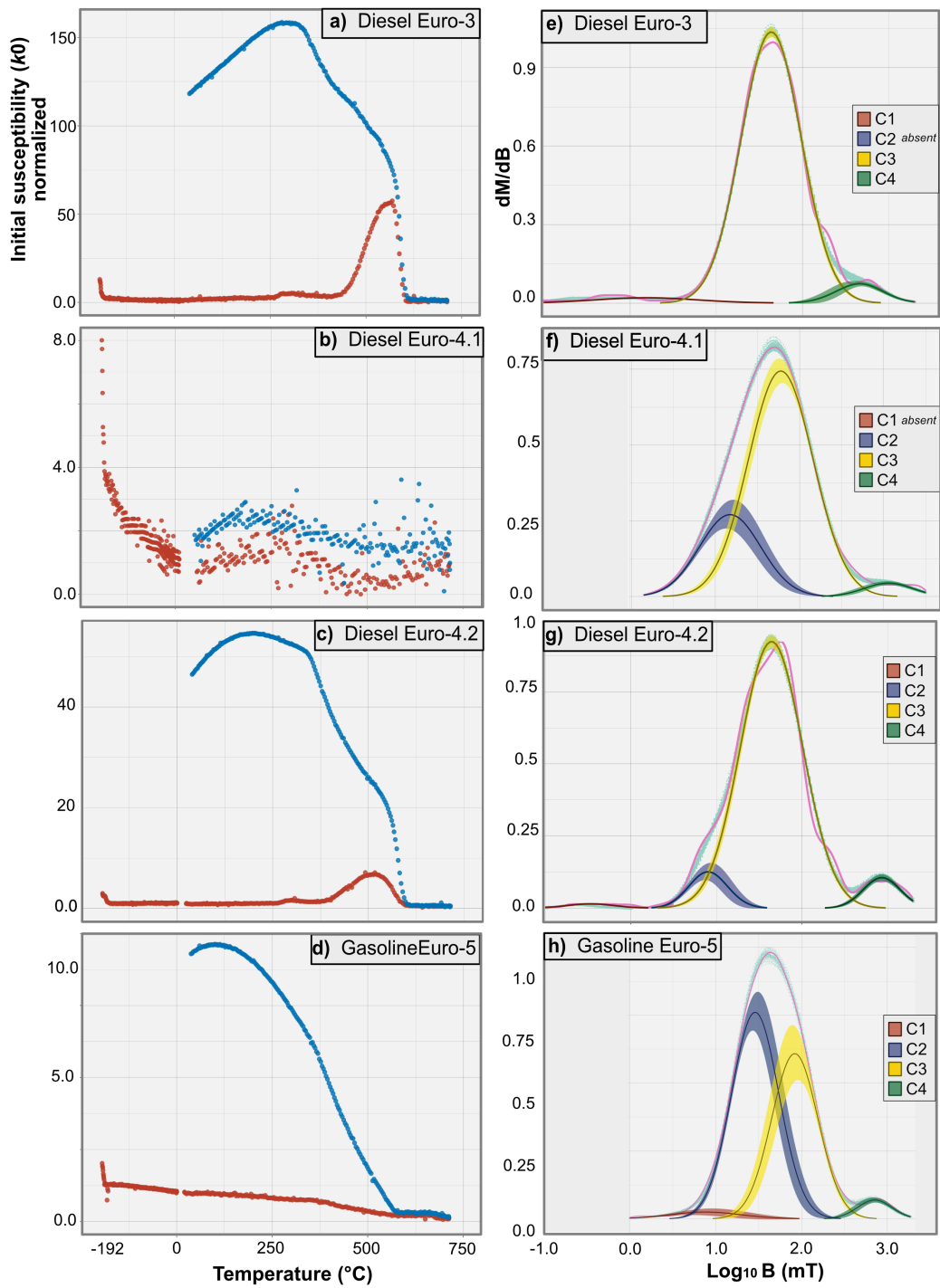
501 during the cooling was also observed for the gasoline Euro-5 sample (Figure 8d) for which two
502 Curie points were crossed: one at $\sim 500^{\circ}\text{C}$ (probably substituted magnetite) and another at
503 675°C , suggesting the presence of hematite. However, this transformation is not seen for diesel
504 Euro-4.1 sample (Figure 8b), for which the signal seems reversible. To sum up, our results show
505 a wide variety of k - T behaviors, therefore a larger number of such measurements on various
506 exhaust pipe samples (from different Euro-standards and from different type of fuel) would be
507 needed to establish discriminatory criteria based on the variation of susceptibility with
508 temperature.

509 The magnetic mineralogy was further investigated with IRM unmixing experiments.
510 The coercivity field distribution signals for the diesel Euro-3 (Figure 8e), diesel Euro-4.1
511 (Figure 8f) and diesel Euro-4.2 (Figure 8g) exhaust pipe samples are all explained at more than
512 90 % by a main component (C3) located around 50-60 mT, while another major component
513 around 20 mT is needed to explain the gasoline Euro-5 signal (C2; Figure 8h). These
514 observations suggest the presence of PSD-MD magnetite-like material as main magnetization
515 carrier for the diesel samples and the additional presence of SD magnetite-like material for the
516 gasoline sample.

517 Besides, a minor contribution of a higher coercivity component (C4) is observed around
518 500 mT for all the exhaust pipe samples, suggesting the presence of high coercivity material,
519 such as hematite, with a contribution to the total signal of about 4%. Finally, the component C1
520 component located at very low coercivity (< 1 mT) might be difficult to interpret since it could
521 explain the slight skewness of the IRM acquisition curve first derivative only, that might be
522 caused by magnetic interaction of the C2 component (Egli, 2004).

523 To sum up, the differences between Euro-norms and type fuel, the IRM acquisition
524 signal of these four exhaust pipe samples show two common components: the dominant C3
525 component between 30 and 60 mT and another high coercivity component C4 at ~ 560 mT.
526 These observations are consistent with the k_0 - T curves that show a magnetite Curie point after
527 a mineralogy transformation during heating (particularly for diesel Euro-3 and gasoline Euro-
528 5) suggesting the presence of hematite in an oxidizing environment.

529



530

531 **Figure 8: Magnetic mineralogy studied from Temperature dependency of magnetic**
 532 **susceptibility (k -T curves): (a) diesel Euro-3 exhaust pipe; (b) diesel Euro-4.1; (c) diesel**

533 **Euro-4.2; and d) gasoline Euro-5 exhaust pipes. Unmixing of the IRM acquisition curves**
534 **for: (e) diesel Euro-3, (f) diesel Euro-4.1; (g) diesel Euro-4.2; and h) gasoline Euro-5; red**
535 **line corresponds to heating and blue line to cooling curves.**

536

537 *3.3.2 Wear product samples*

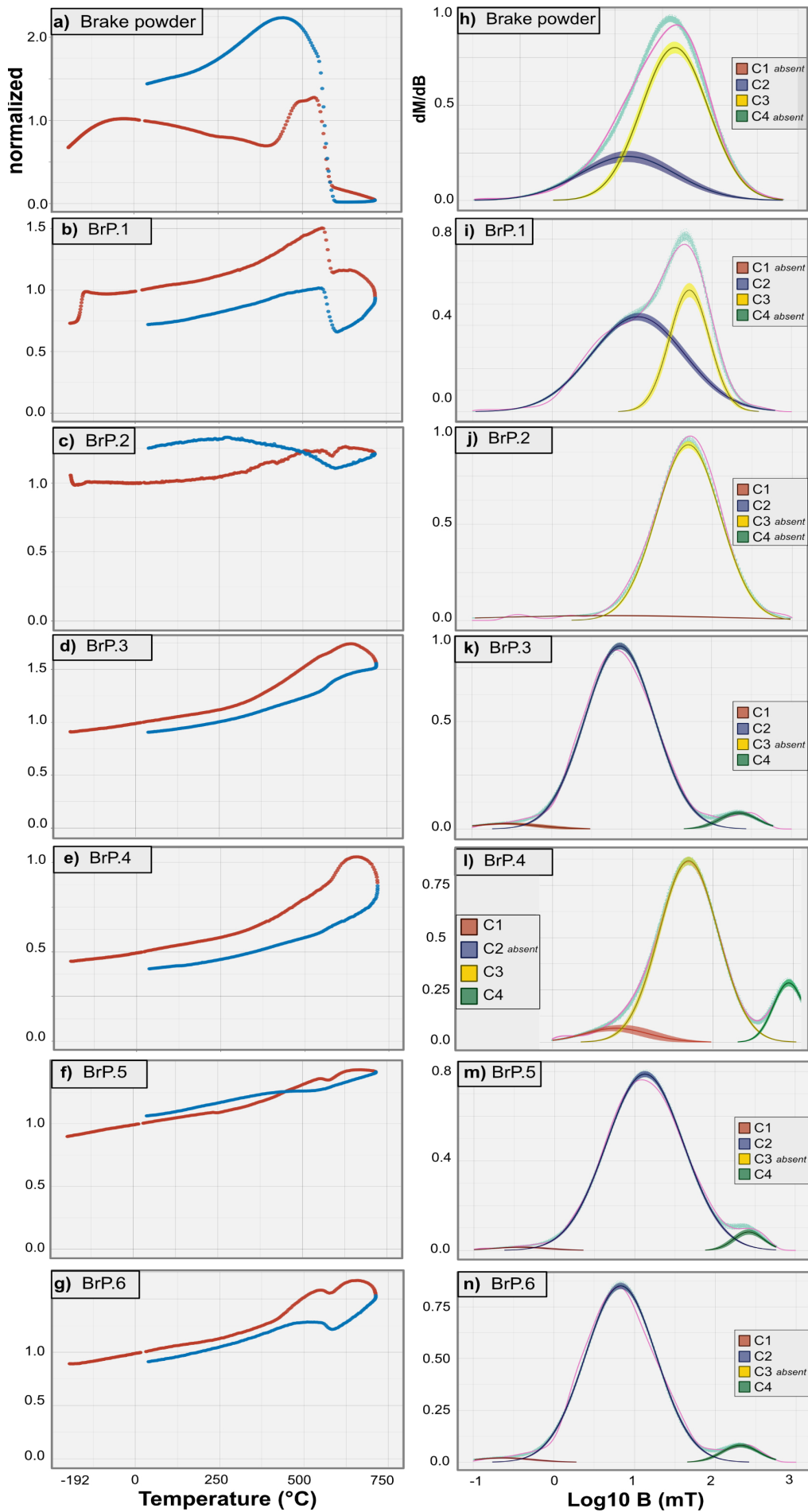
538 The susceptibility temperature dependency curve for brake powder sample (Figure 9a)
539 indicates the presence of SD/PSD magnetite-like as suggested by the large Hopkinson peak at
540 low temperatures and a Curie temperature around 566°C (Dunlop, 2014). In addition, another
541 mineralogical phase characterized by a Curie temperature above 700°C is present. Regarding
542 the brake pads, we can divide the susceptibility thermomagnetic behavior into two different
543 groups: one group for samples where magnetite was observed (BrP.1, BrP.2, BrP.5, BrP.6), and
544 another one for samples where magnetite was not observed (BrP.3, BrP.4).

545 Samples BrP.1 (Figure 9b) and BrP.2 (Figure 9c) show the presence of the Verwey
546 transition at -152°C, which is more pronounced for PSD/MD magnetite grains. Here, it suggests
547 the presence of PSD-MD magnetite. In addition, a Curie point close to 560°C and a flattened
548 Hopkinson peak are observed, indicating the presence of PSD magnetite. Samples BrP.5
549 (Figure 9f) and BrP.6 (Figure 9g) are similar to BrP.2 with a more flattened Hopkinson peak.

550 Samples BrP.3 (Figure 9d) and BrP.4 (Figure 9e) do not display any Verwey transition
551 and the low inflexion at 565°C suggests a much lower amount of substituted magnetite
552 compared to the other brake pad samples. Nonetheless, a Hopkinson peak is still present as well
553 as a Curie point above 700°C. The nature of the Hopkinson peak is questionable because it is
554 normally associated with the presence of SD magnetite, which is not the case here, since the
555 Curie temperatures above 700°C indicates the presence of an iron, ferrite, or steel-type
556 materials rather than magnetite.

557 The coercivity spectra for the brake samples, are different depending on whether the
558 sample is a brake powder (Figures 9h) or a piece of brake pad (Figures 9i to 9n), as was also
559 shown on their broad spatial distribution in the Day plot (Figure 2). The coercivity field
560 distribution for all wear-derived product samples may be explained by the presence of about
561 80% of a component around 50 mT, which can be related to the presence of PSD magnetite-
562 like material. Notice a difference of trends between brake powder, BrP.1, BrP.2 on one side and
563 BrP.3, BrP.4, BrP.5 and BrP.6 on the other side. Indeed, the presence of a high coercivity
564 component (C4) around 1 T is found for the latter samples, suggesting the presence of a high
565 coercivity-phase with a large proportion, which is not the case for the brake powder, BrP.1, and
566 BrP.2 samples (Figure 9i and 9j). ~~The coercivity field distribution trends from the brake powder~~

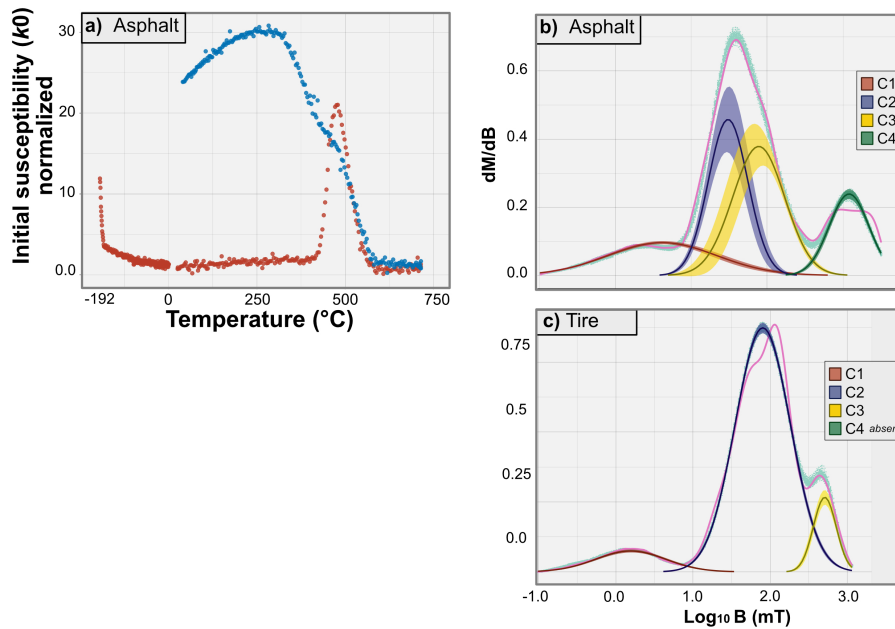
567 and BrP.1 samples are not completely similar. The brake pad signal shows a strong skewness
568 in the lower coercivity range, explained by the presence of component C1. To summarize, it
569 seems that all brake pads present different magnetic properties, highlighting the compositions
570 and manufacturing techniques variety from one brand to another. Nevertheless, they all show
571 the presence of iron-steel-like materials as suggested by Curie temperatures above 700°C.
572



574 **Figure 9: Magnetic mineralogy studied from Temperature dependency of magnetic**
 575 **susceptibility (k -T curves) and unmixing of the IRM acquisition curve (dM/dB vs $\text{Log}_{10}B$)**
 576 **for: (a,h) Brake powder; (b,i) BrP.1, (c,j) BrP.2, (d,k) BrP.3, (e,l) BrP.4, (f,m) BrP.5, and**
 577 **(g,n) BrP.6.**

578

579 The asphalt sample is characterized by a very low initial magnetic susceptibility (Figure 10a)
 580 monitored from room temperature to the sudden increase of susceptibility at 350°C followed
 581 by a rapid decrease around 470°C. This phenomenon can be attributed to the formation of
 582 magnetite during the laboratory heating s. Besides, in the cooling curve, the lower values
 583 between 700 and 520°C suggest the ongoing oxidation of the secondary/newly formed
 584 magnetite towards maghemite that is expressed in a second transition at ~350°C. This ties in
 585 with the presence of three components (Figure 10b) around 50 mT (C2 and C3) and one other
 586 higher than 1 T (C4). Finally, the absence of saturation above 1 T (Figure 10b) might be
 587 associated with a contribution from goethite.



588

589 **Figure 10: k -T curves and IRM unmixing analysis for wear products: (a,b) asphalt sample**
 590 **and IRM unmixing analysis for (c) tire 1 sample. For the k -T analysis, heating (cooling)**
 591 **curves are represented in red (blue).**

592

593

594 In addition, tires are known to be composed of 47% rubber, 21.5% of black carbon, and 16.5%
595 of metals including Cu, Cd, and especially Zn (Milani et al., 2004; Thorpe and Harrison,
596 2008b). Thus, they are characterized by low concentrations of Fe-bearing nanoparticles, as also
597 highlighted by magnetite hysteresis analyses (Figure 2). Although we were not able to obtain
598 any k -T measurements on tires due to the risk of heating such rubber samples at high
599 temperatures, we performed IRM acquisition experiments. These analyses allow the
600 identification of three components (Figure 10c): the first one (C1), with a coercivity around
601 6 mT is difficult to interpret, whereas the dominant component C2 is located around 50 mT and
602 suggests the contribution of MD-magnetite-like materials. Finally, the third component at
603 around 600 mT indicates the presence of high coercivity of non-identified nature.

604

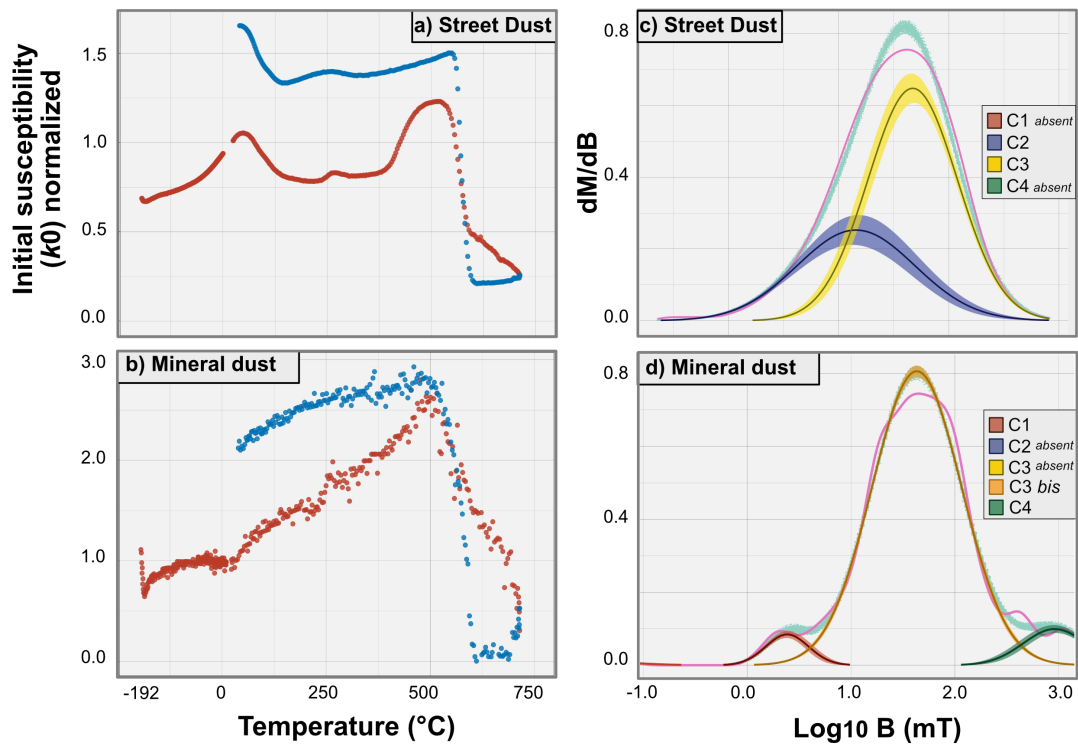
605 3.3.3 Resuspension product samples

606 The resuspension of street dust is a major source of urban PM (Lawrence et al., 2013;
607 Pant and Harrison, 2013; Vlasov et al., 2022b) and can be described as a complex mixture of
608 natural soil and traffic-derived PM including both exhaust and non-exhaust emissions (Gonet
609 and Maher, 2019). The k_0 -T curves for street (Figure 11a) and mineral dust (Figure 11b)
610 samples show a high magnetic susceptibility during the heating phase with a Hopkinson effect.
611 In addition, the presence of three successive Curie points at 80°C, 290°C, 567°C, and an
612 unreachd one above 700°C, for the street dust sample. These temperatures suggest the presence
613 of an assemblage of goethite, a non-reversible maghemite phase, a substituted magnetite
614 supported by a slight Verwey transition at -152°C, and the presence of iron-cast or steel,
615 respectively. Finally, we also notice that the shape of the k_0 -T curve of the street dust sample
616 is very similar to that of the brake powder sample, suggesting that brake powder could be an
617 important component of street dust.

618 The unmixing curve for street dust (Figure 11c) appears very similar to the one for brake
619 powder (Figure 9h) with the presence of two low coercivity components (C2 and C3) at around
620 10 and 30 mT, respectively, suggesting the presence of PSD-like magnetite. These observations
621 tie with several studies, which have shown that roadside submicrometric fractions of PM are
622 characterized by high-Fe concentrations in the range between 11,000 and 94,000 ppm (Yang et
623 al., 2016). This Fe may come in a number of different minerals such as: magnetite, metallic Fe,
624 hematite, and others (Xie et al., 2001, 1999).

625 Regarding the mineral dust sample (Figure 11d), we observe a very low coercivity
626 component (C1 <1 mT), and a mixture of the two components C2 and C3 illustrated in the street

627 dust sample as a C3bis component around 30 mT, suggesting the presence of PSD-like
 628 magnetite. Also, we notice the presence of a third high coercivity component around 630 mT.



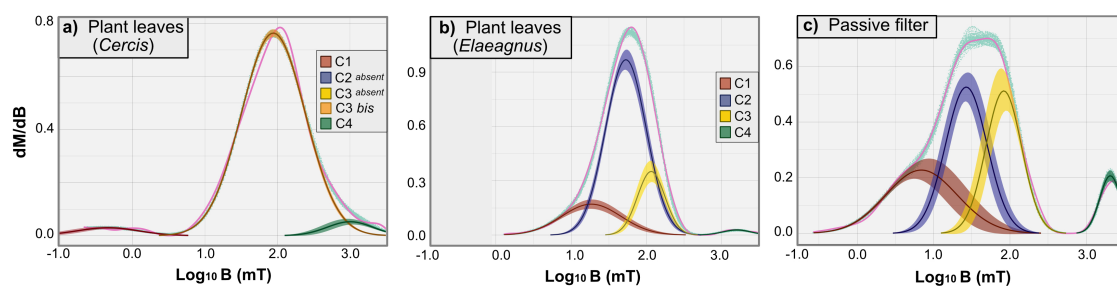
629
 630 **Figure 11: Magnetic mineralogy studied from temperature dependency of magnetic**
 631 **susceptibility (k - T curves) (left panels) and unmixing of IRM acquisition curves (right**
 632 **panels): (a, c) street dust sample; (b, d) mineral dust sample. For the k - T analysis heating**
 633 **(cooling) curves are represented in red (blue).**

634

635 3.3.4 Accumulative surface samples

636 The passive samples (filters and biological sensors) have a magnetic signal composed
 637 of a combination of different potential sources. Indeed, the FORC diagrams of these samples
 638 (Figure 7) display a high coercivity component in the range of 60-80 mT, similar to that
 639 obtained from the gasoline Euro-2, 3, 4 exhaust pipes samples. A strong peak at the origin of
 640 the diagram with a vertical spread is also observed, and is comparable to what is observed for
 641 gasoline Euro-1 and Euro-6 exhaust pipe residuals and brake powder samples. Moreover, the
 642 coercivity field distribution from passive samples is explained by three to four magnetic
 643 components for plant leave samples (Figures 12a and 12b), while it was necessary to fit five
 644 components for the passive filter (Figure 12c) sampled in a street canyon. Since the two plant
 645 leave samples display a similar distribution shape, while a dissymmetry of the distribution by
 646 two inflexion points are observed for the passive filter sample, which might explain the need of

647 five components instead of four. These slight differences between the samples might be
648 attributed to the nature of the accumulative surfaces themselves.
649



650
651 **Figure 12: Magnetic mineralogy studied from the unmixing of the IRM acquisition curves**
652 **for: (a) plant leaves (*Cercis silisquatum*); (b) plant leaves (*Elaeagnus*), and (c) passive**
653 **paper filter.**

654
655
656 *3.5 Is environmental magnetism methodology efficient to characterize a worsening in urban air*
657 *quality?*

658 In many cities, the measurement of magnetic proxies has proven to be an efficient and
659 useful tool to map PM pollution. However, magnetic methods are limited to the detection of
660 magnetic particles. This study is a source to sink approach, in which we combine different
661 techniques from environmental magnetism to characterize the potential traffic-related sources
662 of PM and evaluate the contribution of each of them to the total magnetic signal measured on
663 accumulative surfaces. The Day plot (Figure 2) is efficient on one hand in discriminating diesel
664 from gasoline exhaust pipes magnetic signals. On the other hand, the contribution of exhaust
665 pipes and brake powders in the magnetic signal measured on sensors, especially plants, may be
666 determined from a qualitative standpoint since they are found in the same location on the Day
667 plot. Regarding the FORC diagrams, the results show distinctive magnetic fingerprints between
668 the various sources, which is in line with (Sheikh et al., 2022). The latter study presented this
669 method as a way to identify and quantify the relative contributions from exhaust and brake pad
670 emissions. Unfortunately, this interpretation is based on one sample from each source only.
671 Nevertheless, the results from our exhaustive inventory source categories show a high
672 heterogeneity between samples belonging to the same source type and the difficulty of defining
673 clear trends at the first order.

674 The initial susceptibility variation with temperature showed that diesel and gasoline
675 exhaust pipes (Figure 8a to 8c) have very low magnetic susceptibility at room temperature

676 (around 10^{-8} m³/kg). This reveals that low field magnetic susceptibility measured at room
677 temperature is probably not the ideal proxy parameter to determine exhaust emissions
678 contribution in the signal measured on sensors. However, it is a good parameter for
679 discriminating contributions from brake pads from exhaust PM, since our results reveal high
680 magnetic susceptibility values (between 400 to 40000 10^{-8} m³/kg) at room temperature and the
681 presence of Curie temperatures above 700°C. Finally, the analysis of the coercivity field
682 distributions derived from IRM acquisition curves provides preliminary results from both
683 different magnetic mineralogy assemblages and grain size, as well as their contributions in the
684 total magnetic signal measured.

685 The use of accumulative surfaces (passive filters, tree leaves, tree bark, lichens, moss,
686 and any other type of accumulative surfaces) to monitor particle airborne pollution has been
687 popularized because they are low-cost, easy to deploy, plants are widely distributed in cities,
688 and these studies could be easily conduct as citizen science studies (*Letaief et al., submitted;*
689 *Leite et al., 2022*). These accumulative surfaces allow sampling at the breathing height and can
690 provide a high-resolution record of location-specific and time-integrated information on local
691 air quality. For example, (Castanheiro et al., 2020) measured the magnetic signature and
692 element content of the accumulation of atmospheric dust depositions on leaves in Edegem
693 (Belgium) collected every three weeks throughout a period of three months. Indeed, our results
694 strengthen these conclusions since the magnetic signatures of masks (especially FORC
695 diagrams) is very similar to that of bark and leave samples. Therefore, the use of biological
696 sensors magnetic signal for air quality monitoring is a realistic proxy of the air we breathe.
697 Besides, measurements of plants are often performed on endemic species to the studied
698 environment, and have a much greater spatial dispersion at the city scale. Thus, they allow
699 comparisons between major axes and neighborhoods and remain a future solution for mitigating
700 particulate air pollution in urban areas.

701

702 **4. Conclusion**

703 In total of 14 tailpipes, six brake-pads, two brake powders, one Sahara mineral dust, one
704 street dust, four tires, one asphalt concrete, three plant leaves, one bark, and four passive filters
705 samples were analyzed using a wide range of environmental magnetism techniques. This
706 study's major results show the strengths and limits of environmental magnetism techniques to
707 characterize various types of traffic-related sources. As the traffic-related sources are composed
708 of varied specimens with heterogenous magnetic signals, it is difficult to highlight a
709 representative trend for each source and individual magnetic approaches are not necessarily

discriminatory. Thus, it is crucial to combine the different magnetic techniques to outline specific magnetic parameters (summarized in Table 3) and general patterns capable of discriminating source signals. Finally, by comparing the magnetic parameters from accumulative surfaces (passive filters, plant leaves and bark) with those from exhaust and non-exhaust emission sources, it appears that their total magnetic signals are characterized by a combination of source signals (mostly exhaust pipes and brake abrasive-fatigue wear products).

Table 3: Magnetic parameters characterizing the different sources.

	Day plot & FORC diagrams	Temperature dependency of susceptibility (kT)	Unmixing of IRM acquisition curve
<i>Tailpipes</i>	<u>Diesel</u> : ~70% MD et 30% SD- magnetite ; <u>Gasoline</u> : increase of MD-like behavior .	- Very low susceptibility at room T°C; - Transformation of magnetic mineral during cooling.	Whether Euro norms, diesel or gasoline: 3 components with a main one (~30-60 mT) and a high coercivity (~ 1T).
<i>Brake pads</i>	Two clusters: (1) 4 mT < B _{cr} < 8 mT- MD-like behavior ; (2) B _{cr} > 14 mT- more PSD-like behavior .	Two clusters: (1) Hopkinson peak - SD/PSD magnetite + magnetite Curie point; + T _c > 700°C iron/steel ; (2) Verwey transition - PSD/MD magnetite + magnetite Curie point, + T _c > 700°C - iron/steel .	Two clusters: (1) 2 components: low coercivity-like material ; (2) 3 components including a major one around 50 mT and a high coercivity one around 1T.
<i>Brake powder</i>	Similar to cluster (2) of brake pad: B _{cr} = 30,79 mT- PSD-like behavior .	- Hopkinson peak - SD/PSD magnetite - A slightly lower than magnetite Curie point ~550°C.	2 components: - C1 ~ 20 mT- PSD-like magnetite , - C2 ~ 60 mT- MD-like magnetite .
<i>Street dust</i>	PSD range + slight contribution of SD.	- High susceptibility at room temperature; - Hopkinson effect; - Successive Curie points: diverse magnetic mineralogy; - T _c > 700°C - iron/steel .	2 components: - C1 ~ 10 mT, SD-like magnetite - C2 ~ 30 mT, PSD-like magnetite
<i>Mineral dust</i>	PSD range	- High susceptibility at room temperature; - Hopkinson effect.	3 components: - C1 < 5 mT, - C3bis (major) ~ 40 mT- PSD-like magnetite , - C4 around 1T – hematite-like
<i>Tires</i>	- High B _{cr} . - Low M _s and M _r ; - PSD-like behavior FORCs with a high coercivity tail	None	3 components: - C1 = < 1 mT, not interpretable - C2 (major) ~50 mT -MD-like magnetite , - C3 ~500 mT.
<i>Asphalt concrete</i>	Contribution of ~ 75% MD magnetite .	- Low susceptibility at room temperature; - Magnetite experimentally found during heating;	4 components: - C1 < 1mT- not interpretable ; - C2 and C3 ~50 mT -MD-like magnetite ;

719

720

721 **CRedit authorship contribution statement**

722 **S. Letaïef:** Conceptualization, Methodology, Formal analysis, Data curation, Visualization,
723 Writing – original draft, Writing – review & editing.

724 **C. Carvallo:** Conceptualization, Formal analysis, Investigation, Data curation, Writing –
725 original draft, Writing – review & editing.

726 **C. Franke: sampling,** Investigation, Writing – review & editing.

727 **A. Isambert: sampling** Investigation, Writing – review & editing.

728 **P. Camps:** Conceptualization, Supervision, Resources, Project administration, Funding
729 acquisition, Writing – review & editing.

730 **Declaration of competing interest**

731 The authors declare that they have no known competing financial interests or personal
732 relationships that could have appeared to influence the work reported in this paper.

733 **Data availability**

734 All data will be stored in a Zenodo repository.

735

736

737 **Acknowledgments**

738 This research was funded by the Agence Nationale de la Recherche (ANR) grant numbers
739 ANR-19-CE04-0008. We wish to thank all our colleagues who participated in the sampling of
740 exhaust pipe powder, and Julián Waked for the mask filter from Bogotá. We also thank Imène
741 Estève and Stéphanie Delbrel for their help with SEM measurements.

742

743 **Appendix**

744

745 **Appendix 1: European vehicle standards according to their limit PM concentration where**
746 **the types of fuel have been distinguished: blue for diesels, black for gasolines and, orange**
747 **for hybrids. Note that the car feet proportions are those for France.**

748

	Euro-1	Euro-2	Euro-3	Euro-4	Euro-5	Euro-6
Issuance date	before December 31 1996	January, 1st 1997	January, 1st 2001	January, 1st 2004	January, 1st 2011	September 2015
Sample models	Renault 4 GTL	- Renault Clio - Renault Twingo	- Renault Twingo - Volkswagen Transporter	- BMW moto - Renault Kangoo - Peugeot Boxer	Dacia Lodgy	- Citroën C3 - Kia - Ford Focus & Verso - Toyota Auris
Sample type of fuel	Gasoline	Gasoline	Gasoline Diesel	Gasoline Diesel	Gasoline	Gasoline Hybrid
Euro-norms car fleet proportions	9 %	7 %	11 %	19 %	22 %	32 %
[PM]_{lim}	-	-	- 50	- 25	5	4.5

749
750

751 **Appendix 2: Details of the Bayesian approach used for Unmixing analysis**

752 The Bayesian approach is preferred here to the EM algorithm-based approach (Maxbauer et al.,
753 2016) generally used in rock magnetism, for two reasons. First, the special feature of using a
754 Bayesian approach is to touch the problem by testing the underlying hypotheses included in the
755 physics of the analyzed processes. Second, EM algorithm always ends up to a local maximum
756 of the likelihood that could be a lower mode while a MCMC approach will converge more
757 easily to a global maximum (Marin and Robert, 2014). Inference about the parameters of the
758 elements of the mixtures was processed by writing a R-program according to the following
759 scheme:

- 760 (1) We assume that the component of the coercivity distribution follow normal
761 distributions on the means (μ_k) after logarithmic transformation of the applied field.
762 We choose a Dirichlet prior for the weights (p_k), an inverse gamma prior for the
763 precision variance (σ_k), and a normal distribution for the conjugate prior ($\mu_k | \sigma_k$).
- 764 (2) Initial values are fixed for the various parameters: the number of component (k),
765 the proportion of each component (p_k), their means (μ_k), and their variances (σ_k).
- 766 (3) Calculation of the k normal distributions sum and their parameters set by randomly
767 selecting the log-normal distribution values in 3 Monte-Carlo Markov chains
768 (MCMC) by means of the Gibbs sampler.
- 769 (4) Confrontation of these a posteriori laws with the data readjustment of initial
770 parameters until the chains converge.
- 771 (5) Estimate of the density is obtained by averaging the simulated densities over the
772 last 200 Gibbs iterations.

773

774 **References**

775

- 776 Abdul-Razzaq, W., Gautam, M., 2001. Discovery of magnetite in the exhausted material from
777 a diesel engine. *Appl. Phys. Lett.* 78, 2018–2019. <https://doi.org/10.1063/1.1358357>
- 778 Baensch-Baltruschat, B., Kocher, B., Stock, F., Reifferscheid, G., 2020. Tyre and road wear
779 particles (TRWP) - A review of generation, properties, emissions, human health risk,
780 ecotoxicity, and fate in the environment. *Sci. Total Environ.* 733, 137823.
781 <https://doi.org/10.1016/j.scitotenv.2020.137823>
- 782 Beckwith, P.R., Ellis, J.B., Revitt, D.M., Oldfield, F., 1986. Heavy metal and magnetic
783 relationships for urban source sediments. *Phys. Earth Planet. Inter.* 42, 67–75.
784 [https://doi.org/10.1016/S0031-9201\(86\)80009-7](https://doi.org/10.1016/S0031-9201(86)80009-7)
- 785 Carvallo, C., Dunlop, D.J., Özdemir, Ö., 2005. Experimental comparison of FORC and
786 remanent Preisach diagrams. *Geophys. J. Int.* 162, 747–754.
787 <https://doi.org/10.1111/j.1365-246X.2005.02688.x>
- 788 Carvallo, C., Roberts, A.P., Leonhardt, R., Laj, C., Kissel, C., Perrin, M., Camps, P., 2006.
789 Increasing the efficiency of paleointensity analyses by selection of samples using first-
790 order reversal curve diagrams. *J. Geophys. Res. Solid Earth* 111.
- 791 Castanheiro, A., Hofman, J., Nuyts, G., Joosen, S., Spassov, S., Blust, R., Lenaerts, S., De
792 Wael, K., Samson, R., 2020. Leaf accumulation of atmospheric dust: Biomagnetic,
793 morphological and elemental evaluation using SEM, ED-XRF and HR-ICP-MS. *Atmos.*
794 *Environ.* 221, 117082. <https://doi.org/10.1016/j.atmosenv.2019.117082>
- 795 Charron, A., Polo-Rehn, L., Besombes, J.-L., Golly, B., Buisson, C., Chanut, H., Marchand,
796 N., Guillaud, G., Jaffrezo, J.-L., 2019. Identification and quantification of particulate
797 tracers of exhaust and non-exhaust vehicle emissions. *Atmos. Chem. Phys.* 19, 5187–
798 5207. <https://doi.org/10.5194/acp-19-5187-2019>
- 799 Costa, L.G., Cole, T.B., Dao, K., Chang, Y.-C., Coburn, J., Garrick, J.M., 2020. Effects of air
800 pollution on the nervous system and its possible role in neurodevelopmental and
801 neurodegenerative disorders. *Pharmacol. Ther.* 210, 107523.
802 <https://doi.org/10.1016/j.pharmthera.2020.107523>
- 803 Dahl, A., Gharibi, A., Swietlicki, E., Gudmundsson, A., Bohgard, M., Ljungman, A.,
804 Blomqvist, G., Gustafsson, M., 2006. Traffic-generated emissions of ultrafine particles
805 from pavement–tire interface. *Atmos. Environ.* 40, 1314–1323.
806 <https://doi.org/10.1016/j.atmosenv.2005.10.029>
- 807 Day, R., Fuller, M., Schmidt, V.A., 1977. Hysteresis properties of titanomagnetites: Grain-
808 size and compositional dependence. *Phys. Earth Planet. Inter.* 13, 260–267.
809 [https://doi.org/10.1016/0031-9201\(77\)90108-X](https://doi.org/10.1016/0031-9201(77)90108-X)
- 810 Dearing, J., 1999. *Environmental Magnetic Susceptibility - Using the Bartington MS2*
811 *System.*
- 812 Dunlop, D.J., 2014. High-temperature susceptibility of magnetite: a new pseudo-single-
813 domain effect. *Geophys. J. Int.* 199, 707–716. <https://doi.org/10.1093/gji/ggu247>
- 814 Dunlop, D.J., 2002. Theory and application of the Day plot (M_{rs} / M_s versus H_{cr} / H_c) 2.
815 Application to data for rocks, sediments, and soils. *J. Geophys. Res.* 107, 2057.
816 <https://doi.org/10.1029/2001JB000487>
- 817 Duong, T.T.T., Lee, B.-K., 2011. Determining contamination level of heavy metals in road
818 dust from busy traffic areas with different characteristics. *J. Environ. Manage.* 92, 554–
819 562. <https://doi.org/10.1016/j.jenvman.2010.09.010>
- 820 EEA, 2021. *Air quality in Europe 2021.* Copenhagen. <https://doi.org/10.2800/549289>
- 821 Egli, R., 2013. VARIFORC: An optimized protocol for calculating non-regular first-order
822 reversal curve (FORC) diagrams. *Glob. Planet. Change* 110, 302–320.

823 <https://doi.org/10.1016/j.gloplacha.2013.08.003>

824 Egli, R., 2004. Characterization of Individual Rock Magnetic Components by Analysis of
825 Remanence Curves, 1. Unmixing Natural Sediments. *Stud. Geophys. Geod.* 48, 391–446.
826 <https://doi.org/10.1023/B:SGEG.0000020839.45304.6d>

827 Engler, B., Koberstein*, E., Schubert, P., 1989. Automotive exhaust gas catalysts: Surface
828 structure and activity. *Appl. Catal.* 48, 71–92. [https://doi.org/10.1016/S0166-9834\(00\)80267-5](https://doi.org/10.1016/S0166-9834(00)80267-5)

830 Foitzik, M.-J., Unrau, H.-J., Gauterin, F., Dörnhöfer, J., Koch, T., 2018. Investigation of ultra
831 fine particulate matter emission of rubber tires. *Wear* 394–395, 87–95.
832 <https://doi.org/10.1016/j.wear.2017.09.023>

833 Garg, B.D., Cadle, S.H., Mulawa, P.A., Groblicki, P.J., Laroo, C., Parr, G.A., 2000. Brake
834 Wear Particulate Matter Emissions. *Environ. Sci. Technol.* 34, 4463–4469.
835 <https://doi.org/10.1021/es001108h>

836 Gonet, T., Maher, B.A., 2019. Airborne, Vehicle-Derived Fe-Bearing Nanoparticles in the
837 Urban Environment: A Review. *Environ. Sci. Technol.* 53, 9970–9991.
838 <https://doi.org/10.1021/acs.est.9b01505>

839 Grange, S.K., Fischer, A., Zellweger, C., Alastuey, A., Querol, X., Jaffrezo, J.L., Weber, S.,
840 Uzu, G., Hueglin, C., 2021. Switzerland’s PM10 and PM2.5 environmental increments
841 show the importance of non-exhaust emissions. *Atmos. Environ.* X 12.
842 <https://doi.org/10.1016/j.aeaoa.2021.100145>

843 Grigoratos, T., Martini, G., 2015. Brake wear particle emissions: a review. *Environ. Sci.*
844 *Pollut. Res.* 22, 2491–2504. <https://doi.org/10.1007/s11356-014-3696-8>

845 Gustafsson, M., Blomqvist, G., Gudmundsson, A., Dahl, A., Swietlicki, E., Bohgard, M.,
846 Lindbom, J., Ljungman, A., 2008. Properties and toxicological effects of particles from
847 the interaction between tyres, road pavement and winter traction material. *Sci. Total*
848 *Environ.* 393, 226–240. <https://doi.org/10.1016/j.scitotenv.2007.12.030>

849 Hama, S.M.L., Cordell, R.L., Monks, P.S., 2017. Quantifying primary and secondary source
850 contributions to ultrafine particles in the UK urban background. *Atmos. Environ.* 166,
851 62–78. <https://doi.org/10.1016/j.atmosenv.2017.07.013>

852 Hanesch, M., Scholger, R., 2002. Mapping of heavy metal loadings in soils by means of
853 magnetic susceptibility measurements. *Environ. Geol.* 42, 857–870.
854 <https://doi.org/10.1007/s00254-002-0604-1>

855 Hansard, R., Maher, B.A., Kinnersley, R.P., 2012. Rapid Magnetic Biomonitoring and
856 Differentiation of Atmospheric Particulate Pollutants at the Roadside and around Two
857 Major Industrial Sites in the U.K. *Environ. Sci. Technol.* 46, 4403–4410.
858 <https://doi.org/10.1021/es203275r>

859 Harrison, R.J., Feinberg, J.M., 2008. FORCinel: An improved algorithm for calculating first-
860 order reversal curve distributions using locally weighted regression smoothing.
861 *Geochemistry, Geophys. Geosystems* 9, n/a-n/a. <https://doi.org/10.1029/2008GC001987>

862 Harrison, R.M., Jones, A.M., Gietl, J., Yin, J., Green, D.C., 2012. Estimation of the
863 Contributions of Brake Dust, Tire Wear, and Resuspension to Nonexhaust Traffic
864 Particles Derived from Atmospheric Measurements. *Environ. Sci. Technol.* 46, 6523–
865 6529. <https://doi.org/10.1021/es300894r>

866 Harrison, R.M., Jones, M., 1995. The chemical composition of airborne particles in the UK
867 atmosphere. *Sci. Total Environ.* 168, 195–214. [https://doi.org/10.1016/0048-9697\(95\)04536-A](https://doi.org/10.1016/0048-9697(95)04536-A)

869 Hofman, J., Maher, B.A., Muxworthy, A.R., Wuyts, K., Castanheiro, A., Samson, R., 2017.
870 Biomagnetic Monitoring of Atmospheric Pollution: A Review of Magnetic Signatures
871 from Biological Sensors. *Environ. Sci. Technol.* 51, 6648–6664.
872 <https://doi.org/10.1021/acs.est.7b00832>

- 873 Isambert, A., Franke, C., Macouin, M., Rousse, S., 2019. Tracing urban metallic pollution in
874 the Seine River (Paris, France) using environmental magnetism., in: European
875 Geophysical Union. p. vol 21.
- 876 Konduracka, E., Rostoff, P., 2022. Links between chronic exposure to outdoor air pollution
877 and cardiovascular diseases: a review. *Environ. Chem. Lett.*
878 <https://doi.org/10.1007/s10311-022-01450-9>
- 879 Kruiver, P.P., Dekkers, M.J., Heslop, D., 2001. Quantification of magnetic coercivity
880 components by the analysis of acquisition curves of isothermal remanent magnetisation.
881 *Earth Planet. Sci. Lett.* 189, 269–276. [https://doi.org/10.1016/S0012-821X\(01\)00367-3](https://doi.org/10.1016/S0012-821X(01)00367-3)
- 882 Kumar, P., Fennell, P., Langley, D., Britter, R., 2008. Pseudo-simultaneous measurements for
883 the vertical variation of coarse, fine and ultrafine particles in an urban street canyon.
884 *Atmos. Environ.* 42, 4304–4319. <https://doi.org/10.1016/j.atmosenv.2008.01.010>
- 885 Kupiainen, K.J., Tervahattu, H., Räisänen, M., Mäkelä, T., Aurela, M., Hillamo, R., 2005.
886 Size and Composition of Airborne Particles from Pavement Wear, Tires, and Traction
887 Sanding. *Environ. Sci. Technol.* 39, 699–706. <https://doi.org/10.1021/es035419e>
- 888 Lawrence, S., Sokhi, R., Ravindra, K., Mao, H., Prain, H.D., Bull, I.D., 2013. Source
889 apportionment of traffic emissions of particulate matter using tunnel measurements.
890 *Atmos. Environ.* 77, 548–557. <https://doi.org/10.1016/j.atmosenv.2013.03.040>
- 891 Leite, A. d. S., Rousse, S., Léon, J. -F., Trindade, R.I.F., Haoues-Jouve, S., Carvalho, C., Dias-
892 Alves, M., Proietti, A., Nardin, E., Macouin, M., 2022. Barking up the Right Tree: Using
893 Tree Bark to Track Airborne Particles in School Environment and Link Science to
894 Society. *GeoHealth* 6. <https://doi.org/10.1029/2022GH000633>
- 895 Lelieveld, J., Pozzer, A., Pöschl, U., Fnais, M., Haines, A., Münzel, T., 2020. Loss of life
896 expectancy from air pollution compared to other risk factors: a worldwide perspective.
897 *Cardiovasc. Res.* 116, 1910–1917. <https://doi.org/10.1093/cvr/cvaa025>
- 898 Letaïef, S., Camps, P., Poidras, T., Nicol, P., Bosch, D., Pradeau, R., 2020. Biomagnetic
899 Monitoring vs. CFD Modeling: A Real Case Study of Near-Source Depositions of
900 Traffic-Related Particulate Matter along a Motorway. *Atmosphere (Basel)*. 11, 1285.
901 <https://doi.org/10.3390/atmos11121285>
- 902 Li, X., Poon, C., Liu, P.S., 2001. Heavy metal contamination of urban soils and street dusts in
903 Hong Kong. *Appl. Geochemistry* 16, 1361–1368. [https://doi.org/10.1016/S0883-2927\(01\)00045-2](https://doi.org/10.1016/S0883-2927(01)00045-2)
- 904
- 905 Liati, A., Spiteri, A., Dimopoulos Eggenschwiler, P., Vogel-Schäuble, N., 2012. Microscopic
906 investigation of soot and ash particulate matter derived from biofuel and diesel:
907 implications for the reactivity of soot. *J. Nanoparticle Res.* 14, 1224.
908 <https://doi.org/10.1007/s11051-012-1224-7>
- 909 Liu, H., Yan, Y., Chang, H., Chen, H., Liang, L., Liu, X., Qiang, X., Sun, Y., 2019. Magnetic
910 signatures of natural and anthropogenic sources of urban dust aerosol. *Atmos. Chem.*
911 *Phys.* 19, 731–745. <https://doi.org/10.5194/acp-19-731-2019>
- 912 Lyons, R., Oldfield, F., Williams, E., 2012. The possible role of magnetic measurements in
913 the discrimination of Sahara/Sahel dust sources. *Earth Surf. Process. Landforms* 37, 594–
914 606. <https://doi.org/10.1002/esp.2268>
- 915 Maher, Barbara Thompson, R., 1999. Quaternary Climates, Environments and Magnetism,
916 Quaternary climates, environments and magnetism. Cambridge University Press.
917 <https://doi.org/10.1017/CBO9780511535635>
- 918 Maher, B.A., Ahmed, I.A.M., Davison, B., Karloukovski, V., Clarke, R., 2013. Impact of
919 Roadside Tree Lines on Indoor Concentrations of Traffic-Derived Particulate Matter.
920 *Environ. Sci. Technol.* 47, 13737–13744. <https://doi.org/10.1021/es404363m>
- 921 Maher, B.A., Moore, C., Matzka, J., 2008. Spatial variation in vehicle-derived metal pollution
922 identified by magnetic and elemental analysis of roadside tree leaves. *Atmos. Environ.*

- 923 42, 364–373. <https://doi.org/10.1016/j.atmosenv.2007.09.013>
- 924 Marin, J.-M., Robert, C.P., 2014. Mixture Models, in: Bayesian Essentials with R, Springer
- 925 Texts in Statistics. Springer New York, New York, NY, pp. 173–207.
- 926 <https://doi.org/10.1007/978-1-4614-8687-9>
- 927 Maxbauer, D.P., Feinberg, J.M., Fox, D.L., 2016. MAX UnMix: A web application for
- 928 unmixing magnetic coercivity distributions. *Comput. Geosci.* 95, 140–145.
- 929 <https://doi.org/10.1016/j.cageo.2016.07.009>
- 930 Milani, M., Pucillo, F.P., Ballerini, M., Camatini, M., Gualtieri, M., Martino, S., 2004. First
- 931 evidence of tyre debris characterization at the nanoscale by focused ion beam. *Mater.*
- 932 *Charact.* 52, 283–288. <https://doi.org/10.1016/j.matchar.2004.06.001>
- 933 Muxworthy, A.R., Matzka, J., Davila, A.F., Petersen, N., 2003. Magnetic signature of daily
- 934 sampled urban atmospheric particles. *Atmos. Environ.* 37, 4163–4169.
- 935 [https://doi.org/10.1016/S1352-2310\(03\)00500-4](https://doi.org/10.1016/S1352-2310(03)00500-4)
- 936 Muxworthy, A.R., Schmidbauer, E., Petersen, N., 2002. Magnetic properties and Mössbauer
- 937 spectra of urban atmospheric particulate matter: a case study from Munich, Germany.
- 938 *Geophys. J. Int.* 150, 558–570. <https://doi.org/10.1046/j.1365-246X.2002.01725.x>
- 939 Pant, P., Harrison, R.M., 2013. Estimation of the contribution of road traffic emissions to
- 940 particulate matter concentrations from field measurements: A review. *Atmos. Environ.*
- 941 77, 78–97. <https://doi.org/10.1016/j.atmosenv.2013.04.028>
- 942 Pike, C.R., Roberts, A.P., Verosub, K.L., 1999. Characterizing interactions in fine magnetic
- 943 particle systems using first order reversal curves. *J. Appl. Phys.* 85, 6660–6667.
- 944 <https://doi.org/10.1063/1.370176>
- 945 Prévot, M., Mankinen, E.A., Grommé, S., Lecaille, A., 1983. High paleointensities of the
- 946 geomagnetic field from thermomagnetic studies on Rift Valley pillow basalts from the
- 947 Mid-Atlantic Ridge. *J. Geophys. Res.* 88, 2316.
- 948 <https://doi.org/10.1029/JB088iB03p02316>
- 949 Roberts, A.P., Heslop, D., Zhao, X., Pike, C.R., 2014. Understanding fine magnetic particle
- 950 systems through use of first-order reversal curve diagrams. *Rev. Geophys.* 52, 557–602.
- 951 <https://doi.org/10.1002/2014RG000462>
- 952 Roberts, A.P., Pike, C.R., Verosub, K.L., 2000. First-order reversal curve diagrams: A new
- 953 tool for characterizing the magnetic properties of natural samples. *J. Geophys. Res. Solid*
- 954 *Earth.* <https://doi.org/10.1029/2000JB900326>
- 955 Robertson, D.J., France, D.E., 1994. Discrimination of remanence-carrying minerals in
- 956 mixtures, using isothermal remanent magnetisation acquisition curves. *Phys. Earth*
- 957 *Planet. Inter.* 82, 223–234. [https://doi.org/10.1016/0031-9201\(94\)90074-4](https://doi.org/10.1016/0031-9201(94)90074-4)
- 958 Roux, E., Carvallo, C., Moreno, E., 2012. Utilisation des propriétés magnétiques des feuilles
- 959 de platane en application à la biosurveillance.
- 960 Sagnotti, L., Taddeucci, J., Winkler, A., Cavallo, A., 2009. Compositional, morphological,
- 961 and hysteresis characterization of magnetic airborne particulate matter in Rome, Italy.
- 962 *Geochemistry, Geophys. Geosystems.* <https://doi.org/10.1029/2009GC002563>
- 963 Sagnotti, L., Winkler, A., 2012. On the magnetic characterization and quantification of the
- 964 superparamagnetic fraction of traffic-related urban airborne PM in Rome, Italy. *Atmos.*
- 965 *Environ.* 59, 131–140. <https://doi.org/10.1016/j.atmosenv.2012.04.058>
- 966 Sanderson, P., Su, S.S., Chang, I.T.H., Delgado Saborit, J.M., Kepaptsoglou, D.M., Weber,
- 967 R.J.M., Harrison, R.M., 2016. Characterisation of iron-rich atmospheric submicrometre
- 968 particles in the roadside environment. *Atmos. Environ.* 140, 167–175.
- 969 <https://doi.org/10.1016/j.atmosenv.2016.05.040>
- 970 Seinfeld, J.H., Pandis, S.N., 2016. Properties of the Atmospheric Aerosol, in: Atmospheric
- 971 Chemistry and Physics: From Air Pollution to Climate Change. John Wiley & Sons,
- 972 Hoboken, New Jersey, pp. 325–359.

973 Sheikh, H.A., Maher, B.A., Karloukovski, V., Lampronti, G.I., Harrison, R.J., 2022.
 974 Biomagnetic Characterization of Air Pollution Particulates in Lahore, Pakistan.
 975 Geochemistry, Geophys. Geosystems 23. <https://doi.org/10.1029/2021GC010293>
 976 Stancu, A., Pike, C., Stoleriu, L., Postolache, P., Cimpoesu, D., 2003. Micromagnetic and
 977 Preisach analysis of the First Order Reversal Curves (FORC) diagram. *J. Appl. Phys.* 93,
 978 6620–6622. <https://doi.org/10.1063/1.1557656>
 979 Stone, V., Miller, M.R., Clift, M.J.D., Elder, A., Mills, N.L., Møller, P., Schins, R.P.F.,
 980 Vogel, U., Kreyling, W.G., Alstrup Jensen, K., Kuhlbusch, T.A.J., Schwarze, P.E., Hoet,
 981 P., Pietroiusti, A., De Vizcaya-Ruiz, A., Baeza-Squiban, A., Teixeira, J.P., Tran, C.L.,
 982 Cassee, F.R., 2017. Nanomaterials Versus Ambient Ultrafine Particles: An Opportunity
 983 to Exchange Toxicology Knowledge. *Environ. Health Perspect.* 125, 106002.
 984 <https://doi.org/10.1289/EHP424>
 985 Szuszkiewicz, M.M., Łukasik, A., Petrovský, E., Grison, H., Błońska, E., Lasota, J.,
 986 Szuszkiewicz, M., 2023. Magneto-chemical characterisation of Saharan dust deposited
 987 on snow in Poland. *Environ. Res.* 216, 114605.
 988 <https://doi.org/10.1016/j.envres.2022.114605>
 989 Thorpe, A., Harrison, R.M., 2008a. Sources and properties of non-exhaust particulate matter
 990 from road traffic: A review. *Sci. Total Environ.* 400, 270–282.
 991 <https://doi.org/10.1016/j.scitotenv.2008.06.007>
 992 Thorpe, A., Harrison, R.M., 2008b. Sources and properties of non-exhaust particulate matter
 993 from road traffic: A review. *Sci. Total Environ.* 400, 270–282.
 994 <https://doi.org/10.1016/j.scitotenv.2008.06.007>
 995 Vlasov, D., Ramírez, O., Luhar, A., 2022a. Road Dust in Urban and Industrial Environments:
 996 Sources, Pollutants, Impacts, and Management. *Atmosphere (Basel)*. 13, 607.
 997 <https://doi.org/10.3390/atmos13040607>
 998 Vlasov, D., Ramírez, O., Luhar, A., 2022b. Road Dust in Urban and Industrial Environments:
 999 Sources, Pollutants, Impacts, and Management. *Atmosphere (Basel)*. 13, 607.
 1000 <https://doi.org/10.3390/atmos13040607>
 1001 Xie, S., Dearing, J.A., Bloemendal, J., Boyle, J.F., 1999. Association between the organic
 1002 matter content and magnetic properties in street dust, Liverpool, UK. *Sci. Total Environ.*
 1003 241, 205–214. [https://doi.org/10.1016/S0048-9697\(99\)00346-0](https://doi.org/10.1016/S0048-9697(99)00346-0)
 1004 Xie, S., Dearing, J.A., Boyle, J.F., Bloemendal, J., Morse, A.P., 2001. Association between
 1005 magnetic properties and element concentrations of Liverpool street dust and its
 1006 implications. *J. Appl. Geophys.* 48, 83–92. [https://doi.org/10.1016/S0926-](https://doi.org/10.1016/S0926-9851(01)00081-7)
 1007 [9851\(01\)00081-7](https://doi.org/10.1016/S0926-9851(01)00081-7)
 1008 Yang, Y., Vance, M., Tou, F., Tiwari, A., Liu, M., Hochella, M.F., 2016. Nanoparticles in
 1009 road dust from impervious urban surfaces: distribution, identification, and environmental
 1010 implications. *Environ. Sci. Nano* 3, 534–544. <https://doi.org/10.1039/C6EN00056H>
 1011

IV.2 LA PRINCIPALE SOURCE DE PM LIEE AU TRAFIC ESTIMEE A PARTIR DE LEURS PROPRIETES MAGNETIQUES INTEGREES DANS UN ALGORITHME DE MACHINE LEARNING

IV.2.1 Avant-propos

L'étude menée sur la caractérisation magnétique des sources montre finalement que le magnétisme est difficilement discriminant au premier ordre. En effet, malgré un certain nombre d'échantillons appartenant à la même source, une hétérogénéité non négligeable d'un échantillon à l'autre a été identifiée.

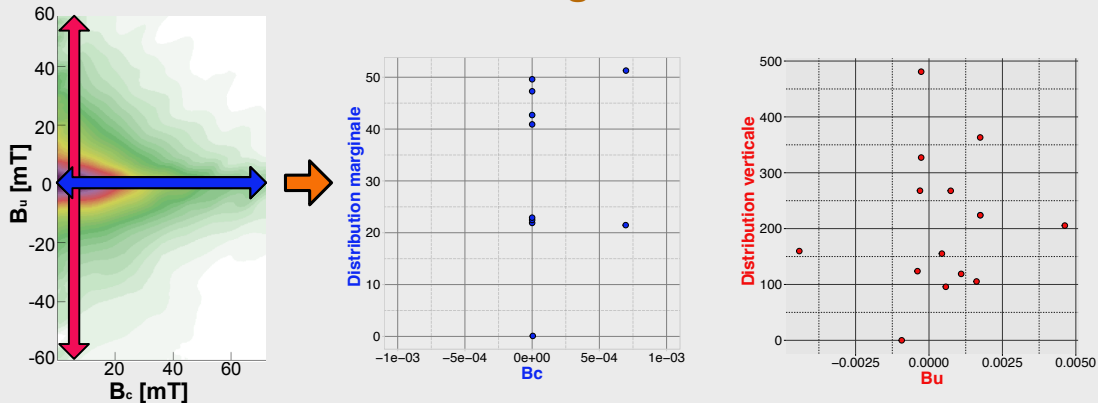
Ceci m'interpelle : « est-on véritablement représentatif de la réalité ? » Si non, comment nous en rapprocher ? La réponse est simple : mesurer les propriétés magnétiques pour d'avantage d'échantillons source. Or, il arrive souvent que plus on multiplie les résultats, moins on arrive à déceler de tendances claires. Ajouté à ceci, les paramètres magnétiques mesurés sont souvent dépendants de plusieurs variables (minéralogie, granulométrie et concentrations magnétiques). On se confronte donc à une problématique où il y a autant de dimensions que de variables, voir plus encore, ce qui rend impossible une interprétation directe.

C'est pourquoi, on a recours à des outils statistiques tels que des analyses multivariées ou encore de l'intelligence artificielle tel que le Machine Learning (ML). Dans le cadre de cette étude j'ai choisi la modélisation par Machine Learning, dans lequel un algorithme *k-Nearest Neighbor* (kNN) est utilisé afin de classifier les échantillons en plusieurs catégories selon leur source. Dans cet algorithme, j'ai inséré les paramètres magnétiques mesurés dans l'étude précédente, cette fois-ci sous forme réduite. La méthode et les résultats sont présentés dans la publication qui suit.

CE QU'IL FAUT RETENIR... pour réduire les mesures magnétiques



Distributions verticale et marginale de FORCs

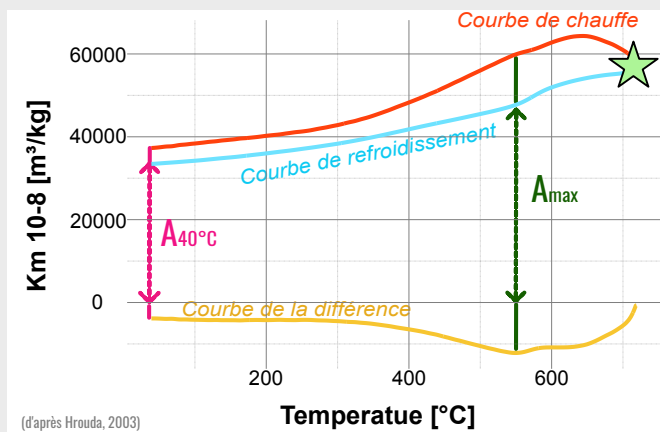


Paramètres d'altération

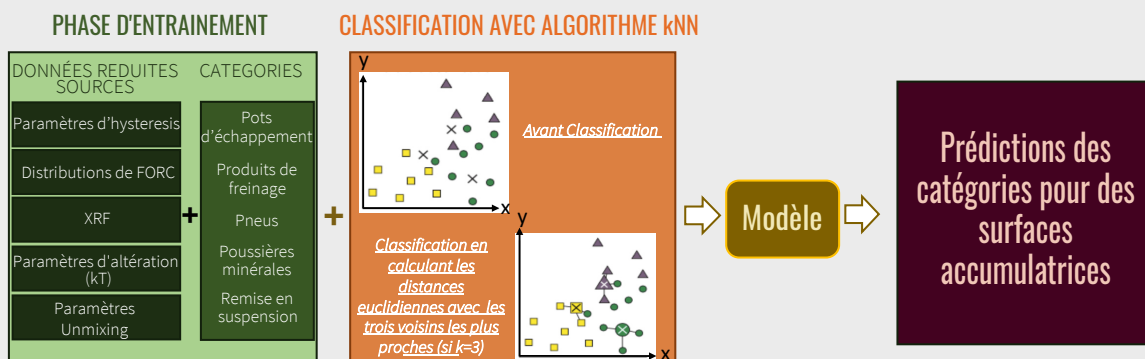
$$A_{40^\circ\text{C}} = 100 \times \frac{(K_{\text{refr}} - K_{\text{chauffe}})_{40^\circ\text{C}}}{K_{40^\circ\text{C}}}$$

$$A_{\text{max}} = 100 \times \frac{(K_{\text{refr}} - K_{\text{chauffe}})_{\text{max}}}{K_{40^\circ\text{C}}}$$

★ Température de Curie > 700°C



Machine Learning k-Nearest Neighbour (kNN)



IV.2.3 A supervised Machine Learning approach to classify traffic-derived PM sources based on their magnetic properties (Article 4)

L'article présenté ci-dessous a été soumis dans la revue ***Environmental Research*** (Elsevier).
Les données ont été déposées dans le répertoire Zenodo au référencement :
<https://doi.org/10.5281/zenodo.7198329>.

1 A supervised Machine Learning approach to
2 classify traffic-derived PM sources based on their
3 magnetic properties.

4 *Sarah Letaïef^{a,*}, Pierre Camps^a, and Claire Carvalho^b*

5 ^a Géosciences Montpellier, Université de Montpellier, CNRS, Montpellier, France.

6 ^b Sorbonne Université, UMR 7590, Institut de Minéralogie, de Physique des Matériaux et de
7 Cosmochimie, F-75005, Paris, France.

8 KEYWORDS

9 Magnetic properties, kNN classification, machine learning, traffic related PM.



10

11

12 ABSTRACT

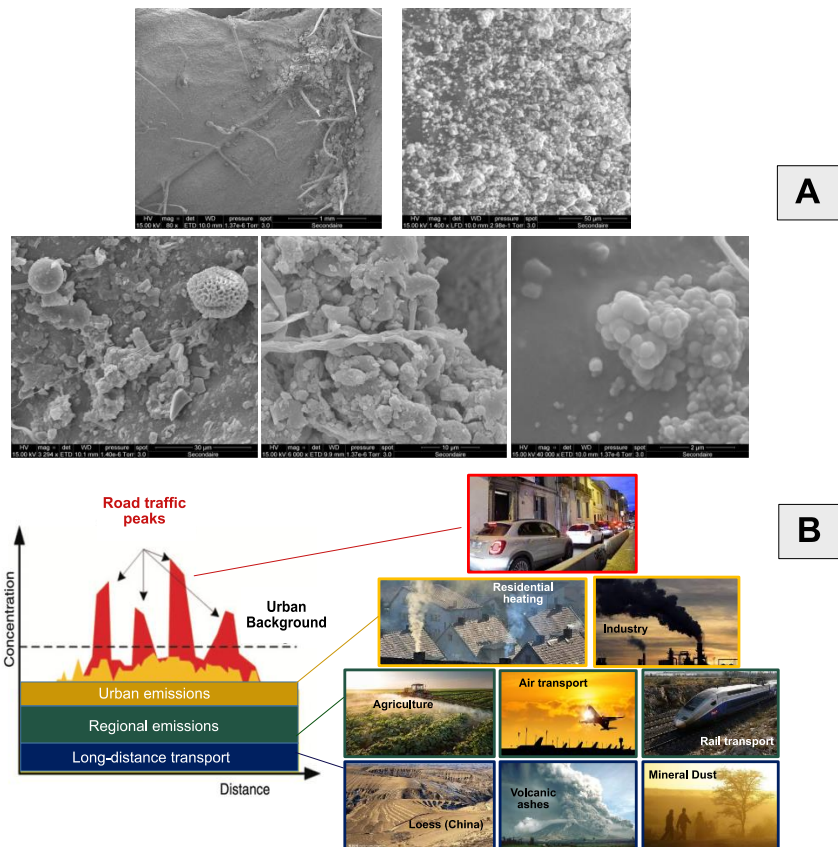
13 Environmental magnetism techniques are increasingly used to map the deposition of
14 particulate pollutants on any type of accumulative surfaces. The present study is part of a
15 collective effort that begun in recent years to evaluate the efficiency of these techniques
16 involving a large range of measurements to trace the source signals. Here we explore the
17 possibilities provided by the very simple but robust k-near-neighbors algorithm (kNN) for
18 classification in a source-to-sink approach. For this purpose, in a first phase, the magnetic
19 properties of the traffic-related sources of particulate matter (tire, brake pads, exhaust pipes,
20 etc.) are used to parameterize and train the model. Then, the magnetic parameters measured on
21 accumulating surfaces exposed to a polluted air as urban plant leaves and passive filters are
22 confronted to the model. The results are very encouraging. The algorithm predicts the dominant
23 traffic-related sources for different kinds of accumulative surfaces. The model predictions are
24 generally consistent according to the sampling locations. Its resolution seems adequate since
25 different dominant sources could be identified within one street. We demonstrate the possibility
26 to trace traffic-derived pollutants from sources to sinks based only on magnetic properties, and
27 to eventually quantify their contributions in the total magnetic signal measured. Because
28 magnetic mapping has a high-resolution efficiency, these results open the opportunity to
29 complement conventional methods used to measure air quality and to improve the numerical
30 models of pollutant dispersion.

31 1. INTRODUCTION

32 Despite various actions set up by governments and a record number of more than 6,000
33 cities in 117 countries that are now continuously monitoring air quality, nearly all the world's
34 population (99%) still breathe air that exceeds the limits prescribed by the World Health
35 Organization (World Health Organization, 2022). Indeed, the increase of urban population

36 (Department of Economic and Social Affairs, 2019) leads to an increase of human activities
37 and consequently, an increase of various types of atmospheric pollutants emissions,
38 including particulate matter (PM) and ultrafine particles (UFP <30 nm). Since the
39 anthropogenic particulate matter often contains Fe-bearing nanoparticles (Gonet and Maher,
40 2019; Hofman et al., 2017; Hunt et al., 2013) magnetic monitoring of air pollution by
41 measuring dust depositions on accumulative surfaces are more and more used over the past
42 20 years. As a matter of fact, this approach provides a high-resolution mapping of magnetic
43 pollutants, including the UFPs (Hofman et al., 2017; Maher et al., 2008; Matzka and Maher,
44 1999) It can be very precise and consequently useful for citizens and policy makers if the
45 survey is carried out at a micro-scale as was done for highway infrastructures (Letaïef et al.,
46 2020) or canyon streets (Muxworthy et al., 2022) in order to pinpoint the major sources of
47 pollution. Thus, it could be perceived as an alternative but also as a complement to help
48 conventional air-monitoring by state-approved agencies. Magnetic measurements could be
49 performed on various types of exposed accumulative surfaces: passive filters (Cao et al.,
50 2015), plant leaves (Hofman et al., 2014; Letaïef et al., 2020; Sagnotti et al., 2009), lichens
51 (Winkler et al., 2022, 2020) or moist paper swabs taken from television/computer screens to
52 evaluate outdoor or indoor PM pollution (Maher et al., 2013), respectively. These
53 accumulative surfaces are generally sampled after few months of polluted air exposure to
54 collect enough dust to be measured. Therefore, this technique provides information on the
55 chronic exposure, which is an important parameter in the public health issues. Environmental
56 Scanning Electronic Microscopy images (Figure 1A) of plant leaves illustrate well the
57 heterogeneity of dust deposition, in terms of nature and shape. This is in relation to the
58 variety of PM sources (Figure 1B), which have been sorted based on the nesting emission
59 stratification levels including long-range transport, regional and urban sources, right down
60 to the street level (Kakosimos et al., 2010). Because many sources exist, Letaïef et al. (2020)

61 proposed to isolate the main source of the study area by expressing magnetic measurements
 62 as the relative change between the measurements of the accumulative surfaces concerned
 63 and several other measurements from an area not impacted by the targeted pollutant source.
 64 In urban areas, the main source is undoubtedly vehicular traffic (Gonet and Maher, 2019;
 65 Hama et al., 2017) via exhaust (Liati et al., 2012) wear products (Ingo et al., 2022;
 66 Kukutschová et al., 2011; Rahimi et al., 2021) from vehicle and pavement (Mathissen et al.,
 67 2011) or road dust resuspension (Vlasov et al., 2022; Yang et al., 2016) induced by moving
 68 vehicles. Because not all the pollutants are specifically magnetic, it is essential to understand
 69 what is responsible for creating the magnetic signal measured on the accumulative surfaces.



70

71 **Figure 1.** Illustrations for (A) Natural and anthropogenic deposits accumulated on plant leaves
 72 and observed on SEM images at different scales from 1 mm to 2 μm. These images were taken
 73 at the microscopy department of the University of Montpellier with a Quanta 200 Scanning

74 Electron Microscope (SEM) (B) the stratification levels of PM sources in street canyon. The
75 bottom left diagram is redrawn from Kakosimos et al.(Kakosimos et al., 2010)

76

77 One question that emerges from these results is whether environmental magnetic
78 techniques can provide more refined knowledge about the nature of pollutants. For instance,
79 for a given location, do traffic-related particulate emissions come from the braking system
80 or from exhaust fumes? To this date, this level of analysis with only magnetic parameters
81 has not been investigated. Therefore, an appropriate classification of dust depositions by
82 means of magnetic parameters and performed with a machine learning algorithm could be
83 tested, as it was done in a recent study (Colangeli et al., 2022) to classify PM emissions as
84 anthropogenic or natural by means of deep-machine learning technique on PM grain size.

85 In this study, we use a machine learning approach to generate an algorithm with labeled
86 data (i.e., magnetic data from known pollutant sources) to establish from a pattern
87 recognition a set of rules that composes a model. Unlabeled data (i.e., magnetic data from
88 unknown pollutant sources) are then passed into the model to infer the predicted source. In
89 a first part, we will present the labeled and unlabeled samples used for the training and the
90 prediction phases, respectively. Then, the magnetic parameters given to the algorithm are
91 presented with details on how they were obtained from the reduction of the raw data.

92 2. MATERIALS

93 **2.1 Labeled samples for the model training phase.** A total of 16 samples related to traffic
94 sources were collected and classified according to one of the three identified categories of
95 source. The exhaust fumes category comprises three diesel, and one gasoline combustion
96 residues, all collected by removing the powder inside the tailpipes with a plastic spatula. The
97 wear source category comprises abrasive, and surface-fatigue wear products. The abrasive wear

98 products include six worn-out brake pads obtained from a mechanic shop, two brake powder
99 samples collected from two different cars by removing and scraping the brake powder around
100 the wheel rim, brake disks and pads, and a fresh asphalt concrete sample recovered from a
101 construction site in Montpellier, France. The surface-fatigue wear product is represented by one
102 tire thread collected by removing the surface layer of a worn-out tire. Lastly, resuspension
103 category comprises a mineral dust sample collected after a Sahara wet-deposition episode by
104 wiping car windshields and garden tables, and one street dust sample collected with a portable
105 vacuum cleaner in a street canyon located in the city center of Montpellier, France, where the
106 traffic is 7000 vehicles/day.

107 **2.2 Unlabeled samples for the model prediction phase.** To test the model after the
108 training period of the machine learning algorithm, we used a variety of accumulative surface
109 samples from different urban areas to estimate the main category source. First, plant leaves
110 from *Cistus monspeliensis* trees were collected in January 2020, around 1m-height on vegetated
111 earth-berms along a dual 6-lanes motorway located in south-east of Montpellier, France (Letaïef
112 et al., 2020). Then, five passive filters (B-010, B-013, B-015, B-027 and B-028) were deployed
113 on the first and second floor balconies in a busy street canyon (around 7000 vehicles/day)
114 during a period of 3 months (from December 2020 to March 2021). Lastly, we used two
115 certified reference material dedicated to chemical analysis in isotopic, trace and major elements
116 contents: BCR-723 (Institute for Reference Materials and Measurements; IRMM) is a certified
117 and homogenized road dust material with a particle size of less than 90 μm ; ERM-CZ120
118 (IRMM) is a certified fine dust sample which was processed in a way to resemble PM_{10} as close
119 as possible.

120 3. METHODS AND BACKGROUND

121 The choice of data type is the central issue that must be addressed in a well-thought-out
122 manner for a machine learning approach. We used a set of magnetic parameters derived from
123 environmental magnetism techniques complemented by concentrations of chemical elements
124 that are summarized in Table 1.

125

126 **Table 1:** Summary of magnetic and chemical experiments performed to obtain the parameters
 127 which are included in the machine learning algorithm.

<i>Magnetic experiments</i>	<i>Magnetic parameters</i>
Hysteresis loops	<ul style="list-style-type: none"> • M_{rs}/M_s • B_{cr}/B_c
First order reversal curves (FORCs)	<ul style="list-style-type: none"> • Marginal distribution ($\rho_c B_c$) • Coercive field ($B_{c,max}$) • Vertical distribution ($\rho_u B_u$) • Bias field ($B_{u,max}$)
Unmixing of IRM acquisition curves	<ul style="list-style-type: none"> • Number of components • Mean field ($B_{1/2}$) of the two main components • Variance (DP) of the two main components • Contribution (height) of the two main components
Temperature dependency of susceptibility (kT curves)	<ul style="list-style-type: none"> • A_{max} • A_m • A_{cr} • Presence of the Verwey transition • Maximal Curie temperature (for samples which have more than one Curie temperatures)
<i>Chemical experiments</i>	<i>Elemental concentrations</i>
XRF	<ul style="list-style-type: none"> • [Zn] • [Fe] • [Ba]

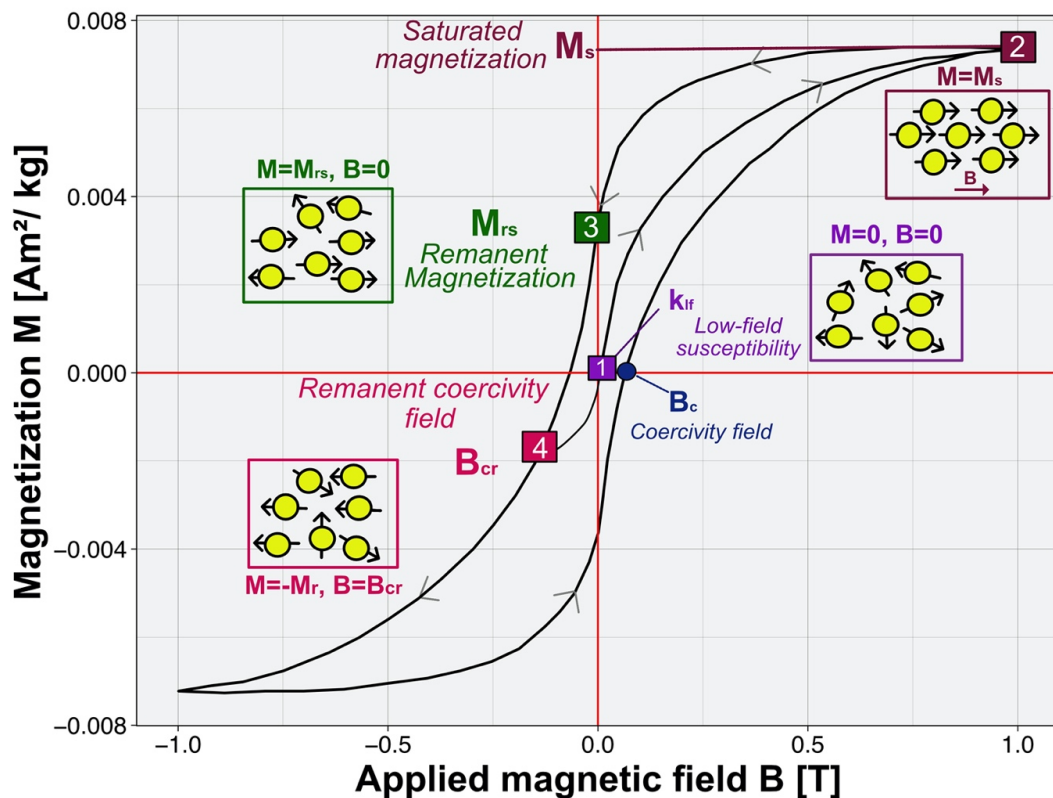
128

129

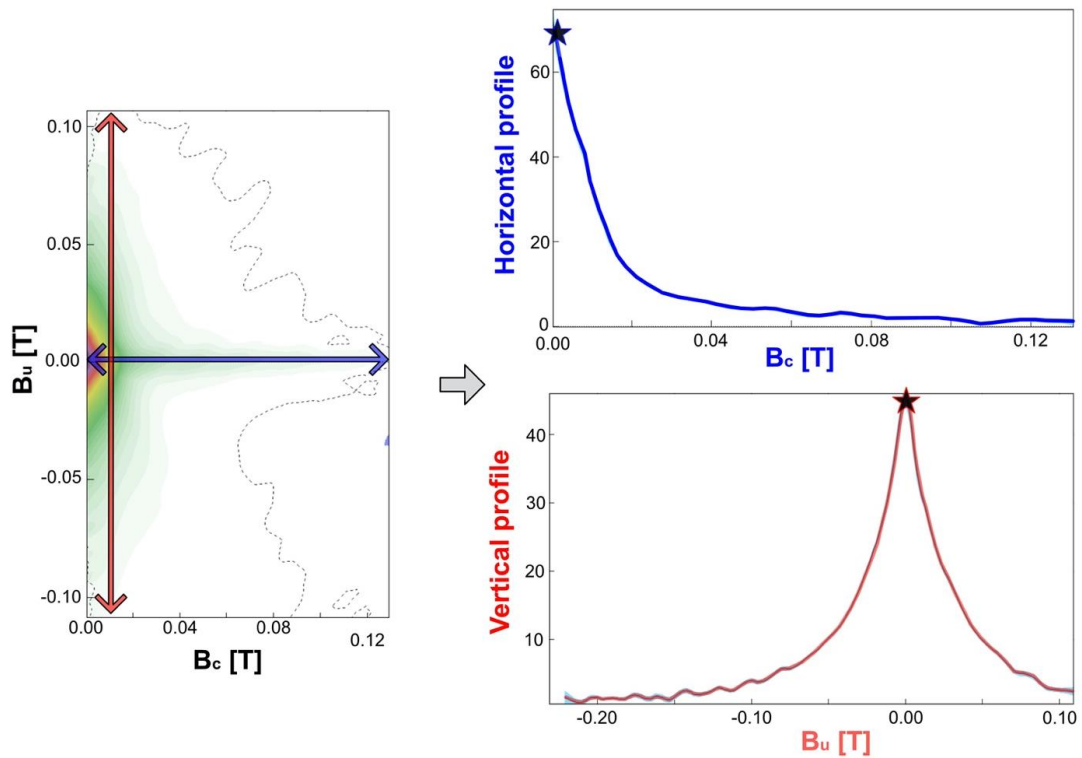
130 3.1 Magnetic parameters.

131 **3.1.1 Hysteresis parameters.** Hysteresis loops were performed on samples tightly
 132 packed in gelatin capsules with a Vibrating Sample Magnetometer (VSM) from Princeton
 133 Measurements Corporation, which is part of the Mineral Magnetism Analysis Platform of
 134 Institut de Physique du Globe de Paris and Institut de Minéralogie, de Physique des Matériaux
 135 et de Cosmochimie. Magnetic hysteresis curves, i.e., the variation of the magnetization with an
 136 applied field, were measured in a maximum applied field up to 1.8 T (Figure 1b). The data
 137 obtained from this technique are routinely reduced to four main parameters. The saturation

138 magnetization M_s , the remanent magnetization M_{rs} , and the coercive field B_c are obtained
 139 directly from the main hysteresis loop. The coercivity of remanence B_{cr} is obtained with the
 140 backfield curves, which monitor the decrease of the remanent magnetization after saturation
 141 with an increasingly negative laboratory field. The values of the hysteresis parameters derived
 142 from the major hysteresis loop were linearly corrected from diamagnetism and paramagnetism
 143 effects. Finally, these parameters are commonly used as ratios: M_{rs}/M_s and B_{cr}/B_c , and plotted
 144 on a two-variable scatter (Day) plot (Day et al., 1977) Data trends in Day plot are often
 145 interpreted in terms of grain size or domain state variations (Dunlop, 2002). However, these
 146 ratios measure an average of the magnetic properties of all the particles, which is especially
 147 true for dust samples containing a complex mixture of magnetic minerals with different grain
 148 sizes (Heslop and Roberts, 2012a, 2012b; Roberts et al., 2014).



149 **Figure 2. Schematic example of a hysteresis cycle illustrating the magnetization stages of a**
 150 **random assembly of single domain magnetic grains and its resulting parameters (M_s , M_{rs} , B_c**
 151 **and B_{cr}).**
 152



170

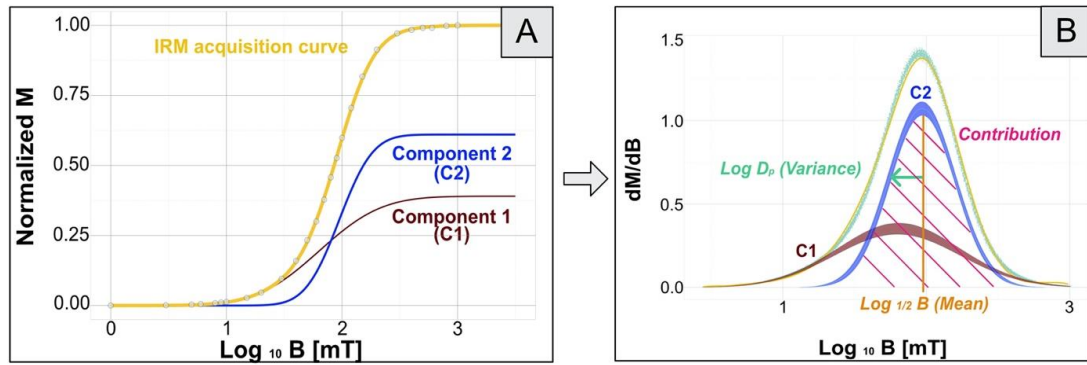
171 **Figure 3.** Visualization of marginal and vertical distributions calculated from a FORC diagrams
 172 of several source samples. The red and the blue stars illustrate points from coordinates: $B_{u,max}$;
 173 $\rho_u B_u$ and $B_{c,max}$; $\rho_c B_c$, respectively, which were incorporated in the machine learning.

174

175 **3.1.3 Distribution of coercive fields.** Another way of discriminating between different
 176 magnetic components within a sample is deconvoluting the cumulative Isothermal Remanent
 177 Magnetization (IRM) curves by means of unmixing techniques (Figure 4a; Egli, 2004; Heslop
 178 et al., 2002; Kruiver et al., 2001; Robertson and France, 1994) Before IRM is acquired, all the
 179 samples were demagnetized with a 170 mT alternating field and then measured in zero field.
 180 This measurement was used to set the baseline. For brake pad samples, stepwise IRMs were
 181 manually imparted to the sample with an impulse magnetizer ASC Model IM-10-30 in 30
 182 increments ranging from 1 up to 2800 mT. The magnetization steps were specifically chosen
 183 to be approximately equidistant in a log-scale. After waiting for 24h to prevent any viscous
 184 effect, their magnetic moments were measured with an AGICO JR5A spinner magnetometer.

185 For these samples, IRM acquisition and measurement were carried out at the Géosciences
186 Montpellier laboratory. The IRM acquisition curves for the other samples were directly
187 imparted and measured with the VSM at IPGP. Subsequently, unmixing analyses performed on
188 IRM acquisition curves allow to describe the distribution of the coercive fields within a sample,
189 by assuming that the distribution of the coercive fields for each magnetic component present in
190 a mixture sample is a log-normal distribution. Here, the cumulative log-normal (CLN) functions
191 are parameterized (Robertson and France, 1994) with: (1) the height of the CLN function
192 corresponding to the saturation of the IRM (SIRM); (2) the mean of the applied field at which
193 half the SIRM is acquired ($B_{1/2}$), corresponding also to the average remanence coercivity (B_{cr})
194 and, (3) the standard deviation of the log-distribution, also named the dispersion parameter
195 (DP). Finally, inference about the parameters for each component was performed by means of
196 a Bayesian approach. The prior specifications in our modeling are the following: (i) the
197 components of the coercivity distribution follow normal distributions on the means (μ_k) after
198 logarithmic transformation of the applied field, (ii) a Dirichlet distribution is assigned for the
199 heights of the CLN, (iii) an inverse gamma function is assigned for the standard deviations, and
200 (iv) a normal distribution is assigned for the conjugate prior ($\mu_k | \sigma_k$). Initial values such as the
201 number of components, their means, proportions and variances are fixed arbitrarily before the
202 modeling. We calculated the k normal distributions sum and their parameters (Figure 4b) by
203 randomly selecting the log-normal distribution values in 3 Monte-Carlo Markov chains
204 (MCMC) by means of the Gibbs sampler. The confrontation of these a posteriori laws with the
205 data allows a readjustment of initial parameters until the chains converge.

206



207

208 **Figure 4.** Example of IRM curve unmixing performed on one source sample: [A] linear
 209 acquisition plot (LAP) illustrating the two components needed to explain the IRM acquisition
 210 curve; [B] posterior densities observed from the last 200 Gibbs iterations when MCMC
 211 algorithm has converged.

212

213 **3.1.4 Temperature dependency of initial susceptibility.** The temperature variations of
 214 bulk magnetic susceptibility (k_0 -T curves) depend on the magnetic mineralogy, and it is
 215 therefore a useful characterization tool (Dunlop, 2014). To perform the measurements, samples
 216 were crushed as powder and placed in a non-magnetic silicon glass measuring tube. This
 217 technique provides a continuous measurement of susceptibility, which is measured with the
 218 Agico KLY-3S Kappabridge, while the sample is heated from -194°C to 700°C and
 219 subsequently cooled down to room temperature. This measurement allows to identify specific
 220 Curie temperatures of magnetic minerals but also their possible alteration during heating and
 221 cooling processes. When a large set of specimens are processed and need to be compared, it is
 222 useful to characterize the alteration of the magnetic fraction with numerical indices calculated
 223 from the curves (Hrouda, 2003). In our case, five parameters derived from the k_0 -T curves
 224 (Figure 5) will be used for the machine learning:

- 225 (1) The highest Curie temperature (T_c), determined when the second derivative of k_0 -T
 226 curve is zero (Prévoit et al., 1983). We arbitrarily chose to take the highest Curie
 227 temperature since not all the samples display several Curie temperatures.

228 (2) The Verwey transition, a drastic increase of magnetic susceptibility found around
229 -152°C that is distinctive of the magnetite presence.

230 (3) The mean alteration index (A_m ; Hrouda, 2003) which quantifies the susceptibility
231 differences between the heating and the cooling phases. This index is calculated for i
232 temperatures as:

$$233 \quad A_m = \frac{100}{NK_{40^\circ\text{C}}} \sum_{i=1}^N (k_i - K_i)$$

234 Where $K_{40^\circ\text{C}}$ is the susceptibility at 40°C during the heating, the k_i and K_i pairs were
235 obtained from susceptibilities measured in the cooling and the heating phases,
236 respectively at a regular step of 1°C by means of a linear interpolation of the cubic
237 splines smoothing curves. N is the number of pairs considered. The positive index
238 indicates higher cooling than heating susceptibilities while the negative index indicates
239 the opposite.

240 (4) The maximum alteration index (A_{max} ; Hrouda, 2003) which corresponds to the
241 maximum difference between the heating and the cooling curves referred to $(k-K)_{\text{max}}$.
242 Thus, A_{max} is calculated as:

$$243 \quad A_{\text{max}} = 100 * \frac{(k - K)_{\text{max}}}{K_{40^\circ\text{C}}}$$

244 Where k and K are the susceptibilities measured at the same temperature during the
245 cooling and the heating phases, respectively, and $K_{40^\circ\text{C}}$ is the susceptibility at 40°C
246 obtained from the heating curve.

247 (5) The crossed index (A_{cr} ; Hrouda, 2003) was established to indicate when the heating and
248 cooling curves cross each other:

249

$$A_{cr} = \frac{\sum_{i=1}^N (k_i - K_i)}{\sum_{i=1}^N (|k_i| - |K_i|)}$$

250

Where $|K_i|$ and $|k_i|$ are the absolute values of K_i and k_i . $A_{cr} = 1$ when the heating and

251

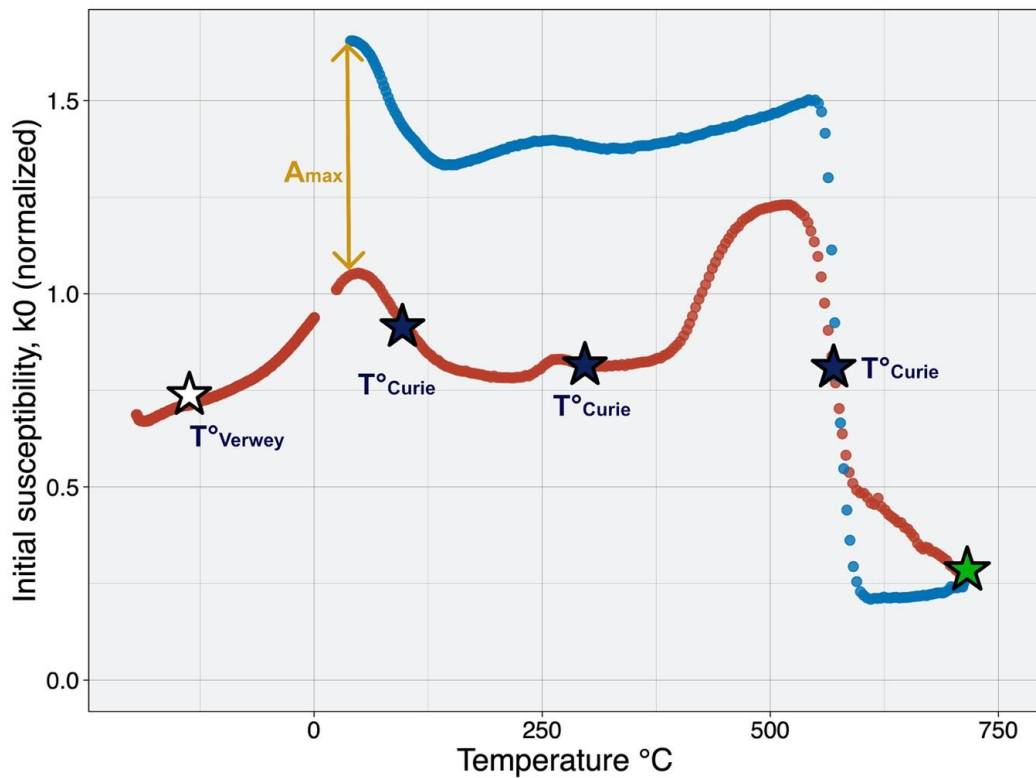
cooling curves do not cross each other, $|A_{cr}| < 1$ when they cross each other while a

252

prevailing part of the heating curve shows higher susceptibility than the cooling curve,

253

and $|A_{cr}| > 1$ when the opposite is true.



254

255

Figure 5. Illustration of alteration parameters (Hrouda, 2003) from a street dust sample. The green star represents a non-reached Curie Temperature above 700°C. The susceptibility is normalized with the value of the susceptibility measured at room temperature ($K_{0,20^\circ\text{C}}$).

256

257

258

259

3.2 Elemental analysis. Chemical elemental analyses were performed with a Niton XL3t-

260

900 Gold X-ray fluorescence (XRF) portable analyzer (Thermo Scientific[®], Waltham, MA,

261

USA) on ex-situ samples reduced to powder after drying. Before analysis, sample holders were

262 measured empty to discard the ones that showed a strong signal. The interpretation of XRF
263 spectra was processed in two steps: first, we assessed the presence of an element from a
264 qualitative visual inspection of spectrum and then calculated its concentration with the NITON
265 Data Transfer software provided by Thermo Electron CorporationTM, Waltham, MA, USA.
266 Results were obtained in $\mu\text{g/g}$ (ppm). For the purpose of this study, we particularly used
267 concentrations in zinc (Zn), iron (Fe), and barium (Ba), as these elements are known to
268 discriminate of traffic-related PM sources.

269

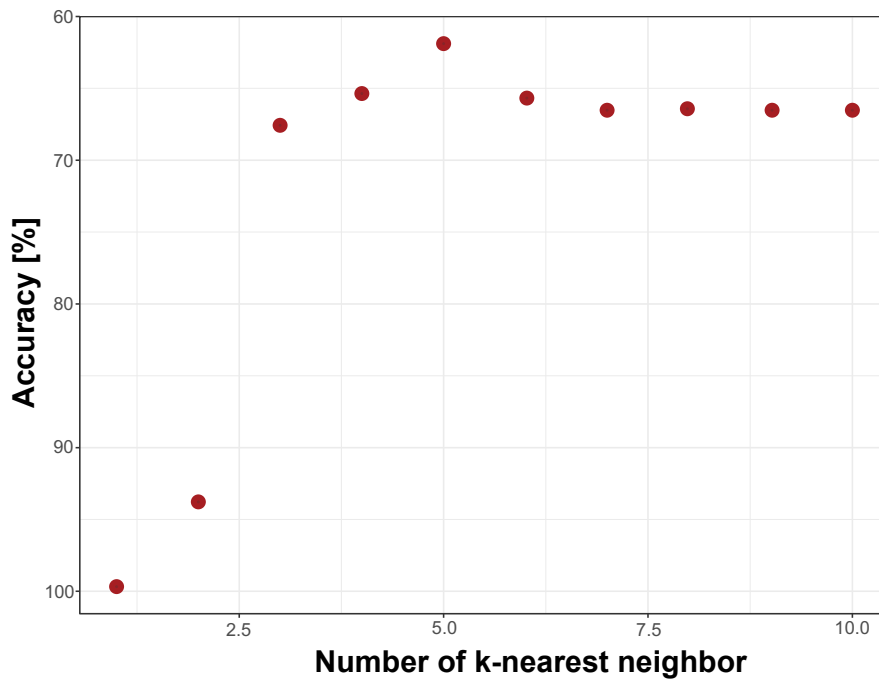
270 **3.3 Supervised-Classification Machine Learning.** A machine learning algorithm is
271 described as supervised when the user guides the learner. In our case, the aim is to classify data
272 in several categories based on their similarities. We performed this classification by means of
273 a k-nearest neighbor (kNN) algorithm included in the *mlr* R library.(Rhys, 2020) This is a two-
274 phase process: (1) The training phase, during which the discriminating magnetic parameters for
275 the different categories of sources are inserted. We first tell the algorithm which source belongs
276 to which category (see section 2.1) and call them labeled data. Then, the model trains by
277 progressively learning the data trends and rules. (2) The prediction phase, where the unlabeled
278 data (the accumulative surface samples) are put into the algorithm. The algorithm will classify
279 the unlabeled data between their nearest and their least similar neighbors by calculating
280 Euclidian distances between the labeled and the new unlabeled data.

281 Because a model will perform better when tested with data from which it was already
282 trained on, we performed k-fold cross validation to verify the accuracy of the model. During
283 this process, the dataset is randomly split into approximately equal-sized sub datasets called
284 folds. One of the folds is put aside as a test set and the remaining data are used as the training
285 set. Then, we iteratively pass the test set through the model with different folds until all the

286 folds have been used once as the test set and we make a record of the relevant performance
287 metrics.

288 4. RESULTS AND DISCUSSION

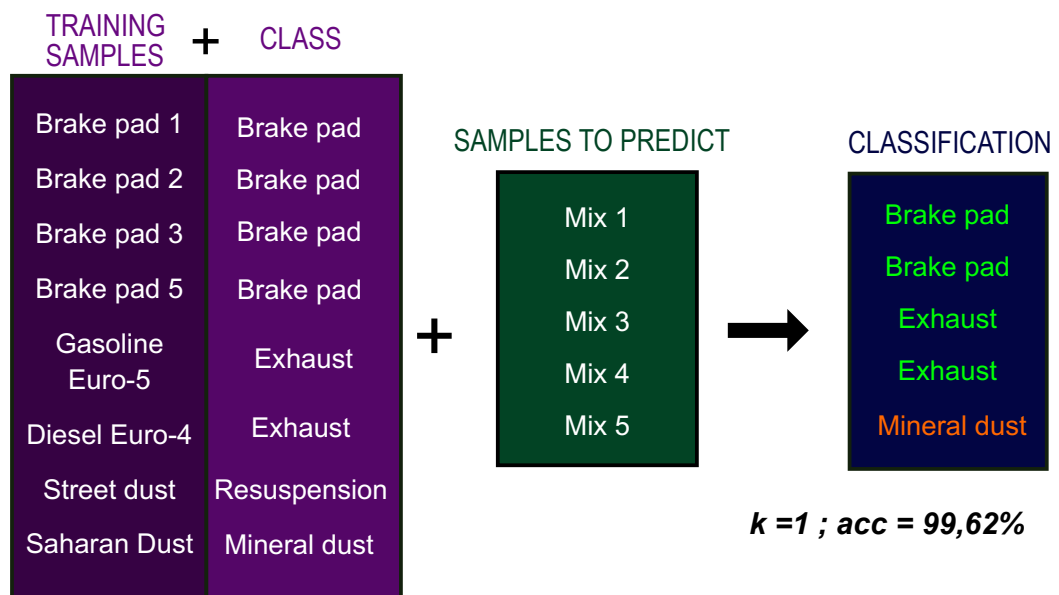
289 **4.1 Model optimization.** In the kNN algorithm, k (or the number of near neighbors) is not
290 considered as a parameter because it is not directly estimated from data by the algorithm itself.
291 However, k is known as a hyperparameter: it controls how the model will make predictions and
292 it is up to the user to choose its best value. This can be done either manually or automatically
293 by a procedure called hyperparameter tuning. During this process, the algorithm tries different
294 values of k between 1 and 10 and finds the best-performing value of k (Figure 6). In our case,
295 the best estimated value of k is always 1, which implies that the model will take the nearest
296 neighbor category as the sample predicted category. Finally, after including the hyperparameter
297 tuning in the cross-validation process, the model accuracy is estimated by 99.62 %, which
298 basically represents the proportion of cases that were correctly classified by the model.



299

300 **Figure 6.** Model accuracy estimated with different values of k-nearest neighbor. For this study,
 301 the best k value implying the best model performance is 1.

302 **4.2 Testing the model with unlabeled source data.** Some source samples (one sample of
 303 gasoline, diesel, BrD1, BrD2 and, asphalt concrete) could not be measured with all techniques
 304 for various reasons such as the lack of sample amount availability, technical difficulties, or a
 305 magnetic signal that was too low. Therefore, we used them as “fake source samples” by mixing
 306 their complementary magnetic properties between two samples known to be part of the same
 307 source category. Five “fake” samples were made: Mix1 and Mix2 are composed of a mix
 308 between BrD1 and BrD2; Mix 3 and Mix 4 are made of a mixture with one diesel and one
 309 gasoline exhaust pipe sample; and Mix 5 is a mixture of street dust and asphalt concrete
 310 samples. Since we know the category of each mixture sample, this offers the opportunity to test
 311 the model on data that was unknown to it, even during the training phase. Results are presented
 312 on Figure 7. Ultimately, the model predicted categories that are the expected ones for Mix 1,
 313 Mix2, Mix3 and Mix 4, which is very encouraging. However, the classification for Mix 5 came
 314 out as “mineral dust” instead of resuspension.



315 **Figure 7.** Model testing performed on mixed samples that the model did not train with and for
 316

317 which the classifications are known. Classifications in green represent a good prediction while
318 the one in orange illustrates an inaccurate prediction.

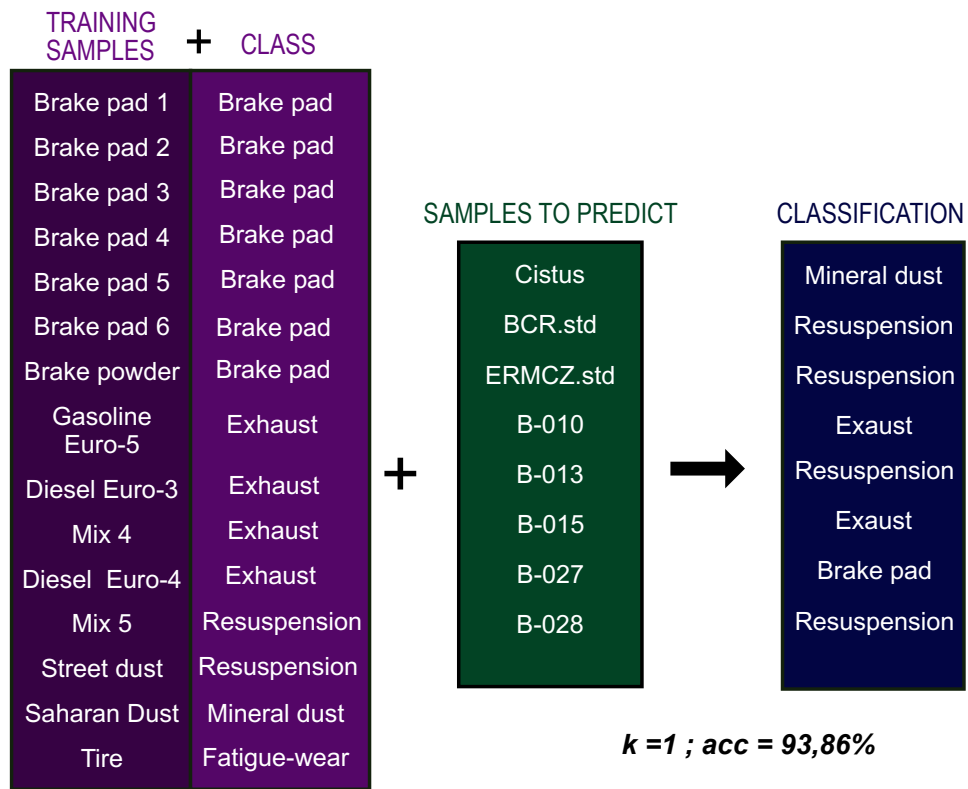
319

320 **4.3 Estimation of the main source on accumulative surface samples.** In this application
321 of the model, we used all the sources and the Mix samples, which were predicted before to train
322 the model. We asked the model to predict two types of accumulative surfaces (plant leaves and
323 passive filters) and the two certified standards (ERM-CZ120 and BCR-723) usually used for
324 isotopic chemical analysis in urban PM pollution. The tree leaf samples collected from the
325 motorway are identified as having a magnetic signal with a mineral dust origin (Figure 8). This
326 result is consistent, considering that the leaves were sampled along a motorway on a flat-top
327 earth berm(Letaïef et al., 2020). Indeed, a magnetic mapping was performed in the study area
328 and showed very low magnetic signals due to the high dispersion potential for traffic pollutants
329 of these earth berms (Letaïef et al., 2020)

330 ERM-CZ120 and BCR-723 are identified as coming from the resuspension category.
331 Giving the nature of these certified standards (PM₁₀ and road dust) and the fact that the
332 resuspension class is composed of street dust sample and a mixture between street dust and
333 asphalt samples (Mix 4), the results from the model are also consistent.

334 The results for the five passive filters deployed in the street canyon located in the city center
335 of Montpellier show different source categories. B-010 and B-015 are predicted to come from
336 to the exhaust class. This is consistent with the fact that these filters were both deployed at the
337 beginning of Saint-Louis Street, which is 245 m long, and consists of one single traffic lane
338 traveled by about 7,000 vehicles daily. Filters B-013 and B-028 are predicted to have a
339 resuspension origin. This is consistent for sample B-013, which was placed in the street adjacent
340 to Saint-Louis street. However, the prediction for filter B-028, which was deployed at the

341 ground floor inside the street canyon, is more surprising. Finally, B-027 is the only filter which
 342 was predicted as a brake pad source. This is also consistent considering that the filter measure
 343 station was placed at the end of the street, which ends with a traffic light, and where vehicles
 344 are therefore likely to brake and stop.



345

346 **Figure 8.** Model results for the main source predicted on accumulative surfaces and two
 347 certified chemical standards.

348

349 **4.4 Conclusion and Perspectives.** Achieving a real representativeness in the source of
 350 magnetic signal in urban PM remains challenging since there are many types of traffic-related
 351 PM sources and since samples from the same kind of source might display a large heterogeneity.
 352 Hence, this study was intended to assess the possibility of using the discriminating power of
 353 magnetic parameters for a source-to-sink purpose by using a machine learning approach. The

354 results are very promising. They are generally very consistent given the locations of the samples
355 for which the PM source is predicted by the model. The machine learning algorithm trained
356 with the magnetic parameters was able to differentiate the origin of the magnetic signal of
357 accumulative surfaces, as it was the case for the passive filters deployed in the street canyon.
358 However, since the samples are usually heterogenous, it would be desirable to integrate more
359 samples to obtain a better representativeness.

360 The model could also be improved by finding a way to include non-available values for
361 some parameters (*NA*). For now, the model is not able to deal with a lack of data. This is
362 unfortunate because it is sometimes not possible to perform all the magnetic techniques on the
363 same sample for various reasons. In these cases, the samples must be removed from the data
364 set. Another way to improve the model is to add the possibility of predicting more than one
365 category per sample to quantify the contribution from each category and to refine the result.
366 This would allow to not only predict the main source, but also estimate the contribution of all
367 the defined sources involved in the measured magnetic signal. Finally, to truly evaluate the
368 efficiency of machine learning technique, it would be very interesting to compare our machine
369 learning classification based on magnetic properties with isotopic chemistry analysis or other
370 machine learning algorithms.

371 Finally, this study demonstrates the great potential of artificial intelligence applied to the
372 study of air quality and parameterized with magnetic properties. Indeed, magnetic mapping has
373 been widely used during the last decades to characterize air pollution (Hofman et al., 2017) and
374 has proven to be very accurate at high resolution (Letaïef et al., 2020). This is an important
375 improvement compared numerical modeling of dispersion and prediction of pollutants usually
376 performed with low resolution data coming from monitoring stations that are too few in
377 comparison with the scale of the city. Our study helps to better understand the physical

378 provenance of PM detected with magnetic methods, which will, in a first step, be used as a
379 complement of the conventional measurements for the parametrization of the numerical
380 models, but could also, on a longer term, be useful to public deciders involved in urban PM
381 mitigation.

382

383 AUTHOR INFORMATION

384 **Corresponding authors**

385 **Sarah Letaïef**

386 Géosciences Montpellier, University Montpellier and CNRS, Montpellier, F-34095, France.

387 Email : letaief-sarah@laposte.net

388 ORCID : <https://orcid.org/0000-0002-8057-1414>

389 **Authors**

390

391 **Pierre Camps**

392 Géosciences Montpellier, University Montpellier and CNRS, Montpellier, F-34095, France.

393 Phone : +33 (0) 4 67 14 39 38

394 Email: pierre.camps@cnrs.fr

395 ORCID: <https://orcid.org/0000-0002-6637-4342>

396

397

398 **Claire Carvalho,**

399 Sorbonne Université, UMR 7590, Institut de Minéralogie, de Physique des Matériaux et de

400 Cosmochimie, F-75005, Paris, France.

401 Email : claire.carvalho@sorbonne-universite.fr

402 ORCID : <https://orcid.org/0000-0002-0986-3203>

403 **CRedit authorship contribution statement**

404 **S. Letaïef:** Conceptualization, Methodology, Formal analysis, Data curation, Visualization,

405 Writing – original draft, Writing – review & editing.

406 **P. Camps:** Conceptualization, Supervision, Resources, Project administration, Funding

407 acquisition, Writing – review & editing.

408 **C. Carvalho:** Formal analysis, Investigation, Data curation, Writing – review & editing.

409

410 **Declaration of competing interest**

411 The authors declare that they have no known competing financial interests or personal
412 relationships that could have appeared to influence the work reported in this paper.

413 **Data availability**

414 Data are available on Zenodo repository: <https://doi.org/10.5281/zenodo.7198329>

415 **Acknowledgments**

416 This research was funded by the Agence Nationale de la Recherche (ANR) grant numbers
417 ANR-19-CE04-0008. We thank Mathilda de Villiers-Best for help with the English.

418

419 **REFERENCES**

420 Cao, L., Appel, E., Hu, S., Ma, M., 2015. An economic passive sampling method to detect
421 particulate pollutants using magnetic measurements. *Environ. Pollut.* 205, 97–102.
422 <https://doi.org/10.1016/j.envpol.2015.05.019>

423 Colangeli, C., Palermi, S., Bianco, S., Aruffo, E., Chiacchiaretta, P., Di Carlo, P., 2022. The
424 Relationship between PM_{2.5} and PM₁₀ in Central Italy: Application of Machine
425 Learning Model to Segregate Anthropogenic from Natural Sources. *Atmosphere* (Basel).
426 13, 484. <https://doi.org/10.3390/atmos13030484>

427 Day, R., Fuller, M., Schmidt, V.A., 1977. Hysteresis properties of titanomagnetites: Grain-
428 size and compositional dependence. *Phys. Earth Planet. Inter.* 13, 260–267.
429 [https://doi.org/10.1016/0031-9201\(77\)90108-X](https://doi.org/10.1016/0031-9201(77)90108-X)

430 Department of Economic and Social Affairs, 2019. *World Urbanization Prospects: The 2018*
431 *Revision, World Urbanization Prospects: The 2018 Revision.* UN, New York.
432 <https://doi.org/10.18356/b9e995fe-en>

- 433 Dunlop, D.J., 2014. High-temperature susceptibility of magnetite: a new pseudo-single-
434 domain effect. *Geophys. J. Int.* 199, 707–716. <https://doi.org/10.1093/gji/ggu247>
- 435 Dunlop, D.J., 2002. Theory and application of the Day plot (M_{rs} / M_s versus H_{cr} / H_c) 2.
436 Application to data for rocks, sediments, and soils. *J. Geophys. Res.* 107, 2057.
437 <https://doi.org/10.1029/2001JB000487>
- 438 Egli, R., 2006. Theoretical aspects of dipolar interactions and their appearance in first-order
439 reversal curves of thermally activated single-domain particles. *J. Geophys. Res. Solid*
440 *Earth* 111, n/a-n/a. <https://doi.org/10.1029/2006JB004567>
- 441 Egli, R., 2004. Characterization of Individual Rock Magnetic Components by Analysis of
442 Remanence Curves, 1. Unmixing Natural Sediments. *Stud. Geophys. Geod.* 48, 391–446.
443 <https://doi.org/10.1023/B:SGEG.0000020839.45304.6d>
- 444 Gonet, T., Maher, B.A., 2019. Airborne, Vehicle-Derived Fe-Bearing Nanoparticles in the
445 Urban Environment: A Review. *Environ. Sci. Technol.* 53, 9970–9991.
446 <https://doi.org/10.1021/acs.est.9b01505>
- 447 Hama, S.M.L., Cordell, R.L., Monks, P.S., 2017. Quantifying primary and secondary source
448 contributions to ultrafine particles in the UK urban background. *Atmos. Environ.*
449 <https://doi.org/10.1016/j.atmosenv.2017.07.013>
- 450 Heslop, D., Dekkers, M.J., Kruiver, P.P., Van Oorschot, I.H.M., 2002. Analysis of isothermal
451 remanent magnetization acquisition curves using the expectation-maximization
452 algorithm. *Geophys. J. Int.* 148, 58–64. [https://doi.org/10.1046/j.0956-
453 540x.2001.01558.x](https://doi.org/10.1046/j.0956-540x.2001.01558.x)
- 454 Heslop, D., Roberts, A.P., 2012a. Estimating best fit binary mixing lines in the Day plot. *J.*
455 *Geophys. Res. Solid Earth* 117, n/a-n/a. <https://doi.org/10.1029/2011JB008787>
- 456 Heslop, D., Roberts, A.P., 2012b. A method for unmixing magnetic hysteresis loops. *J.*

457 Geophys. Res. Solid Earth 117. <https://doi.org/10.1029/2011JB008859>

458 Hofman, J., Maher, B.A., Muxworthy, A.R., Wuyts, K., Castanheiro, A., Samson, R., 2017.
459 Biomagnetic Monitoring of Atmospheric Pollution: A Review of Magnetic Signatures
460 from Biological Sensors. *Environ. Sci. Technol.* 51, 6648–6664.
461 <https://doi.org/10.1021/acs.est.7b00832>

462 Hofman, J., Wuyts, K., Van Wittenberghe, S., Brackx, M., Samson, R., 2014. On the link
463 between biomagnetic monitoring and leaf-deposited dust load of urban trees:
464 Relationships and spatial variability of different particle size fractions. *Environ. Pollut.*
465 189, 63–72. <https://doi.org/10.1016/j.envpol.2014.02.020>

466 Hrouda, F., 2003. Indices for numerical characterization of the alteration processes of
467 magnetic minerals taking place during investigation of temperature variation of magnetic
468 susceptibility. *Stud. Geophys. Geod.* 47, 847–861.
469 <https://doi.org/10.1023/A:1026398920172>

470 Hunt, C.P., Moskowitz, B.M., Banerjee, S.K., 2013. Magnetic Properties of Rocks and
471 Minerals. pp. 189–204. <https://doi.org/10.1029/RF003p0189>

472 Ingo, G.M., Riccucci, C., Pisani, G., Pascucci, M., D’Ercole, D., Guerriero, E., Boccaccini,
473 F., Falso, G., Zambonini, G., Paolini, V., Di Carlo, G., 2022. The vehicle braking
474 systems as main source of inhalable airborne magnetite particles in trafficked areas.
475 *Environ. Int.* 158, 106991. <https://doi.org/10.1016/j.envint.2021.106991>

476 Kakosimos, K.E., Hertel, O., Ketznel, M., Berkowicz, R., 2010. Operational Street Pollution
477 Model (OSPM) - a review of performed application and validation studies, and future
478 prospects. *Environ. Chem.* 7, 485. <https://doi.org/10.1071/EN10070>

479 Kruiver, P.P., Dekkers, M.J., Heslop, D., 2001. Quantification of magnetic coercivity
480 components by the analysis of acquisition curves of isothermal remanent magnetisation.

481 Earth Planet. Sci. Lett. 189, 269–276. [https://doi.org/10.1016/S0012-821X\(01\)00367-3](https://doi.org/10.1016/S0012-821X(01)00367-3)

482 Kukutschová, J., Moravec, P., Tomášek, V., Matějka, V., Smolík, J., Schwarz, J., Seidlerová,
483 J., Šafářová, K., Filip, P., 2011. On airborne nano/micro-sized wear particles released
484 from low-metallic automotive brakes. *Environ. Pollut.* 159, 998–1006.
485 <https://doi.org/10.1016/j.envpol.2010.11.036>

486 Letaïef, S., Camps, P., Poidras, T., Nicol, P., Bosch, D., Pradeau, R., 2020. Biomagnetic
487 Monitoring vs. CFD Modeling: A Real Case Study of Near-Source Depositions of
488 Traffic-Related Particulate Matter along a Motorway. *Atmosphere (Basel)*. 11, 1285.
489 <https://doi.org/10.3390/atmos11121285>

490 Liati, A., Spiteri, A., Dimopoulos Eggenschwiler, P., Vogel-Schäuble, N., 2012. Microscopic
491 investigation of soot and ash particulate matter derived from biofuel and diesel:
492 implications for the reactivity of soot. *J. Nanoparticle Res.* 14, 1224.
493 <https://doi.org/10.1007/s11051-012-1224-7>

494 Maher, B.A., Ahmed, I.A.M., Davison, B., Karloukovski, V., Clarke, R., 2013. Impact of
495 roadside tree lines on indoor concentrations of traffic-derived particulate matter.
496 *Environ. Sci. Technol.* <https://doi.org/10.1021/es404363m>

497 Maher, B.A., Moore, C., Matzka, J., 2008. Spatial variation in vehicle-derived metal pollution
498 identified by magnetic and elemental analysis of roadside tree leaves. *Atmos. Environ.*
499 42, 364–373. <https://doi.org/10.1016/j.atmosenv.2007.09.013>

500 Mathissen, M., Scheer, V., Vogt, R., Benter, T., 2011. Investigation on the potential
501 generation of ultrafine particles from the tire–road interface. *Atmos. Environ.* 45, 6172–
502 6179. <https://doi.org/10.1016/j.atmosenv.2011.08.032>

503 Matzka, J., Maher, B., 1999. Magnetic biomonitoring of roadside tree leaves: identification
504 of spatial and temporal variations in vehicle-derived particulates. *Atmos. Environ.* 33,

505 4565–4569. [https://doi.org/10.1016/S1352-2310\(99\)00229-0](https://doi.org/10.1016/S1352-2310(99)00229-0)

506 Muxworthy, A.R., Lam, C., Green, D., Cowan, A., Maher, B.A., Gonet, T., 2022. Magnetic
507 characterisation of London’s airborne nanoparticulate matter. *Atmos. Environ.* 287,
508 119292. <https://doi.org/10.1016/j.atmosenv.2022.119292>

509 Pike, C.R., Roberts, A.P., Verosub, K.L., 1999. Characterizing interactions in fine magnetic
510 particle systems using first order reversal curves. *J. Appl. Phys.* 85, 6660–6667.
511 <https://doi.org/10.1063/1.370176>

512 Prévot, M., Mankinen, E.A., Grommé, S., Lecaille, A., 1983. High paleointensities of the
513 geomagnetic field from thermomagnetic studies on Rift Valley pillow basalts from the
514 Mid-Atlantic Ridge. *J. Geophys. Res.* 88, 2316.
515 <https://doi.org/10.1029/JB088iB03p02316>

516 Rahimi, M., Bortoluzzi, D., Wahlström, J., 2021. Input Parameters for Airborne Brake Wear
517 Emission Simulations: A Comprehensive Review. *Atmosphere (Basel)*. 12, 871.
518 <https://doi.org/10.3390/atmos12070871>

519 Rhys, H.I., 2020. *Machine Learning with R, the tidyverse, and mlr*. Manning.

520 Roberts, A.P., Heslop, D., Zhao, X., Pike, C.R., 2014. Understanding fine magnetic particle
521 systems through use of first-order reversal curve diagrams. *Rev. Geophys.* 52, 557–602.
522 <https://doi.org/10.1002/2014RG000462>

523 Roberts, A.P., Pike, C.R., Verosub, K.L., 2000. First-order reversal curve diagrams: A new
524 tool for characterizing the magnetic properties of natural samples. *J. Geophys. Res. Solid
525 Earth*. <https://doi.org/10.1029/2000JB900326>

526 Robertson, D.J., France, D.E., 1994. Discrimination of remanence-carrying minerals in
527 mixtures, using isothermal remanent magnetisation acquisition curves. *Phys. Earth
528 Planet. Inter.* 82, 223–234. [https://doi.org/10.1016/0031-9201\(94\)90074-4](https://doi.org/10.1016/0031-9201(94)90074-4)

529 Sagnotti, L., Taddeucci, J., Winkler, A., Cavallo, A., 2009. Compositional, morphological,
530 and hysteresis characterization of magnetic airborne particulate matter in Rome, Italy.
531 *Geochemistry, Geophys. Geosystems*. <https://doi.org/10.1029/2009GC002563>

532 Vlasov, D., Ramírez, O., Luhar, A., 2022. Road Dust in Urban and Industrial Environments:
533 Sources, Pollutants, Impacts, and Management. *Atmosphere (Basel)*. 13, 607.
534 <https://doi.org/10.3390/atmos13040607>

535 Winkler, A., Contardo, T., Lapenta, V., Sgamellotti, A., Loppi, S., 2022. Assessing the impact
536 of vehicular particulate matter on cultural heritage by magnetic biomonitoring at Villa
537 Farnesina in Rome, Italy. *Sci. Total Environ.* 823, 153729.
538 <https://doi.org/10.1016/j.scitotenv.2022.153729>

539 Winkler, A., Contardo, T., Vannini, A., Sorbo, S., Basile, A., Loppi, S., 2020. Magnetic
540 Emissions from Brake Wear are the Major Source of Airborne Particulate Matter
541 Bioaccumulated by Lichens Exposed in Milan (Italy). *Appl. Sci.* 10, 2073.
542 <https://doi.org/10.3390/app10062073>

543 Winklhofer, M., Zimanyi, G.T., 2006. Extracting the intrinsic switching field distribution in
544 perpendicular media: A comparative analysis. *J. Appl. Phys.* 99, 08E710.
545 <https://doi.org/10.1063/1.2176598>

546 World Health Organization, 2022. WHO Air quality Database 2022 [WWW Document].
547 Consult. Novemb. 10th. URL [https://www.who.int/data/gho/data/themes/air-](https://www.who.int/data/gho/data/themes/air-pollution/who-air-quality-database)
548 [pollution/who-air-quality-database](https://www.who.int/data/gho/data/themes/air-pollution/who-air-quality-database)

549 Yang, Y., Vance, M., Tou, F., Tiwari, A., Liu, M., Hochella, M.F., 2016. Nanoparticles in
550 road dust from impervious urban surfaces: distribution, identification, and environmental
551 implications. *Environ. Sci. Nano* 3, 534–544. <https://doi.org/10.1039/C6EN00056H>

552

IV.3 DISCUSSION ET PERSPECTIVES

IV.3.1 Approche EM (espérance-maximisation) vs Bayésienne

En magnétisme des roches les études de mélange basées sur les courbes d'acquisition des aimantations rémanentes (isotherme et/ou anhystérétique) sont plus souvent traitées à l'aide d'un algorithme EM (*Heslop et al., 2002 ; Maxbauer et al., 2016*). Que ce soit pour les approches EM ou bayésienne, il s'agit de deux algorithmes itératifs cherchant les paramètres du maximum de vraisemblance d'un modèle de probabilité basé sur des variables non observables. La première différence est que l'inférence bayésienne est fondée sur le fait que les probabilités s'expriment en degré de confiance alors que l'EM est basée sur une interprétation fréquentiste qui définit une probabilité comme la limite de fréquence relative d'un événement après de nombreux essais.

J'ai choisi d'utiliser le modèle bayésien plutôt que l'EM pour deux raisons : la première est que les probabilités ou conditions dites « à priori » utilisées comme conditions initiales dans le modèle bayésien permettent de directement tester les hypothèses sous-jacentes incluses dans la physique des processus analysés. Deuxièmement, parce qu'en modélisant il y a possibilité d'obtenir plusieurs maximums locaux qui ne sont pas forcément des maximums globaux de l'espace de probabilité. Pour cela, l'EM a plus de chance de tomber sur un maximum local puisqu'il cherche les maximums les plus proches et se corrigera difficilement. A l'inverse, le bayésien est en théorie efficace pour reconnaître un maximum local et l'échantillonneur Gibbs est capable d'explorer de manière plus large l'espace de probabilité et identifier ainsi le maximum global (*Marin & Robert, 2014*).

IV.3.2 Comment expliquer une diminution de l'aimantation au-dessus d'un champ appliqué de 1 Tesla ?

Au cours de l'étude sur la caractérisation magnétique des sources liées au trafic, j'ai observé un phénomène étrange qui n'a jamais été décrit à ma connaissance en magnétisme des roches : une diminution de l'ARI après avoir atteint un maximum pour des champs inducteurs autour de 1 Tesla (*Figure 4.2*). Cet effet a pu être identifié sur des échantillons de

pots d'échappement ou encore ceux provenant des plaquettes de freins. Afin d'essayer de mieux comprendre ce phénomène j'ai émis et étudié quatre hypothèses :

- (1) Une erreur dans la mesure ;
- (2) Le cas de diffusion atomique décrite dans certaines ferrites ;
- (3) La présence d'un champ d'interaction à l'interface entre deux phases magnétiques ;
- (4) L'éventuel effet du champ de désaimantation.

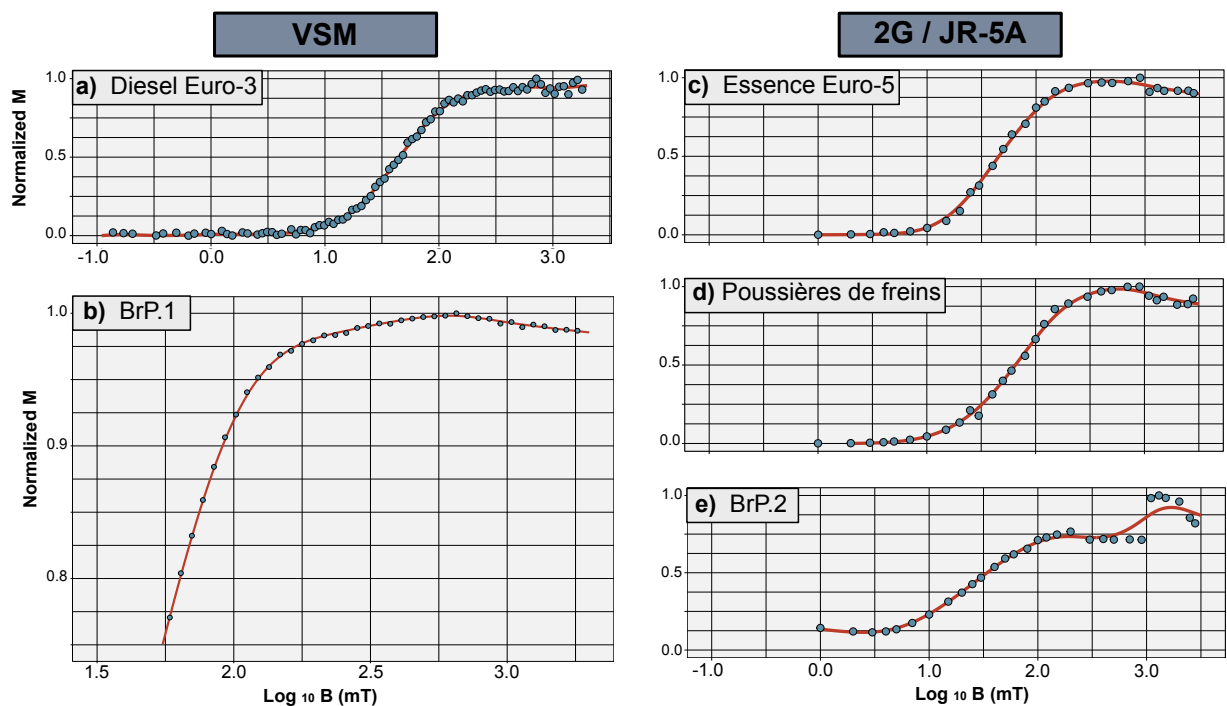


Figure 4.2 Courbes d'acquisition d'ARI obtenues au VSM pour un échantillon de [a] diesel de norme Euro-3 ; [b] plaquette de frein. Comparaison avec celles obtenues avec un aimanteur à impulsion (pulse magnetizer ASC) et mesurées avec les magnétomètres cryogénique et spinner pour un échantillon : [c] d'essence de norme Euro-5, [d] de poussière de freins et, [e] de plaquette de frein. Cette figure illustre le phénomène de diminution de l'aimantation pour un champ appliqué supérieur à 1 Tesla.

IV.3.2.1 Hypothèse 1 : une erreur dans la mesure

Même si je n'ai pas eu l'occasion de répliquer les mesures sur un même échantillon avec une procédure différente, j'ai pu remarquer que le phénomène de désaimantation après que la saturation soit atteinte était reproductible et ce, quel que soit le mode opéré pour obtenir des courbes d'acquisition des ARIs (Figure 4.2). Les aimantations ont été

acquises d'une part, avec le « pulse magnetizer ASC » puis mesurées avec un magnétomètre cryogénique (SQUID-2G) ou un inductomètre à rotation (JR-5A) à Géosciences Montpellier, et d'autre part, avec un magnétomètre à vibration (VSM) au laboratoire de l'IPGP-IMPMC. Nous avons ensuite pensé à un effet de viscosité, c'est-à-dire à une dépendance du temps entre l'acquisition de l'aimantation et sa mesure. C'est pourquoi j'ai répété à nouveau les mesures en laissant 24h entre le pas d'aimantation et l'acquisition de la mesure. J'ai finalement observé le même résultat, laissant croire que la relaxation visqueuse de l'aimantation, estimée au laboratoire d'une dizaine de minutes, n'en peut être la cause. De plus, l'hypothèse d'une rotation mécanique des particules magnétiques lors de l'acquisition de l'ARI a également été invalidée en fixant les échantillons avec du sodium silicaté en solution aqueuse.

IV.3.2.2 Hypothèse 2 : la diffusion atomique dans les ferrites

En m'intéressant à certaines études de Louis Néel portant sur les ferrites, j'ai pensé que la diminution de l'aimantation rémanente isotherme acquise à haut champ pouvait s'expliquer par leur présence. Les ferrites sont essentiellement composées de $\text{Fe}_2\text{O}_3\text{MO}$, où M est un ion métallique bivalent tels que : Cu^{2+} , Zn^{2+} , Ag^{2+} , Ni^{2+} , Co^{2+} , Mg^{2+} , Pb^{2+} , etc. Cet ion occupe soit les places tétraédriques (sites A) entouré de quatre ions d'oxygène, soit les place octaédriques (sites B) entouré de six d'ions d'oxygène. Lors d'échanges ou d'interactions, M peut passer d'un site B à un site A. Ce phénomène est généralement accompagné d'un déplacement de l'ion Fe^{3+} d'un site A vers un site B (Néel, 1948 ; 1950a). Les ferrites (sauf quelques exceptions) ont généralement un comportement ferromagnétique s.l. (Néel, 1948) à température ambiante.

En effet, lors d'interactions ou d'échanges entre spins des plus proches voisins, le matériel peut devenir antiferromagnétique. C'est notamment le cas pour les ferrites mixtes de Ni-Zn (Néel, 1950b) où les ions Ni^{2+} (généralement localisés sur un site B) sont souvent remplacés par un ion Zn^{2+} (habituellement localisé sur un site A), accompagné d'un déplacement de Fe^{3+} de A vers B. A force de cela, il arrive ensuite un moment où un déséquilibre se crée, un seul ion Ni^{2+} persiste et finit par se comporter comme un ion libre, qui n'atteindra pas la saturation par le champ d'aimantation. La saturation pourra être

seulement atteinte à nouveau lorsque deux ions magnétiques parmi les six voisins de A seront présents (Néel, 1950b). Cependant, les mesures de susceptibilité en fonction de la température (courbes k_0 -T) montrent pour les plaquettes de freins des températures de Curie impossibles à atteindre par le dispositif expérimental, c'est-à-dire supérieures à 700°C. Or, les températures de Curie connues pour les ferrites décrites par Néel sont inférieures à 700°C, même pour les ferrites Ni-Zn, qui sont parmi les ferrites avec des températures de Curie les plus élevées (Joshi et al., 1988).

IV.3.2.3 Hypothèse 3 : l'interaction entre deux phases eutectoïdes

Lors du 17^{ème} Castle Meeting (28 août - 3 septembre 2022), j'ai eu l'occasion d'échanger avec deux spécialistes en magnétisme des roches : Dr Ramon Egli (ZAMG, Autriche) et Dr Simo Spassov (Institut royal de météorologie, Belgique). Après avoir discuté de mes interrogations, ils se sont montrés intéressés par ce travail et nous avons élaboré ensemble une procédure expérimentale afin de tester l'hypothèse sur l'interaction de deux phases magnétiques différentes. Dans cet objectif, la manipulation expérimentale consistait à réaliser plusieurs cycles d'hystérésis à basses températures à l'aide d'un magnétomètre SQUID (MPMS3, Quantum Design) au laboratoire de paléomagnétisme de l'institut royal de météorologie à Dourbes (Belgique).

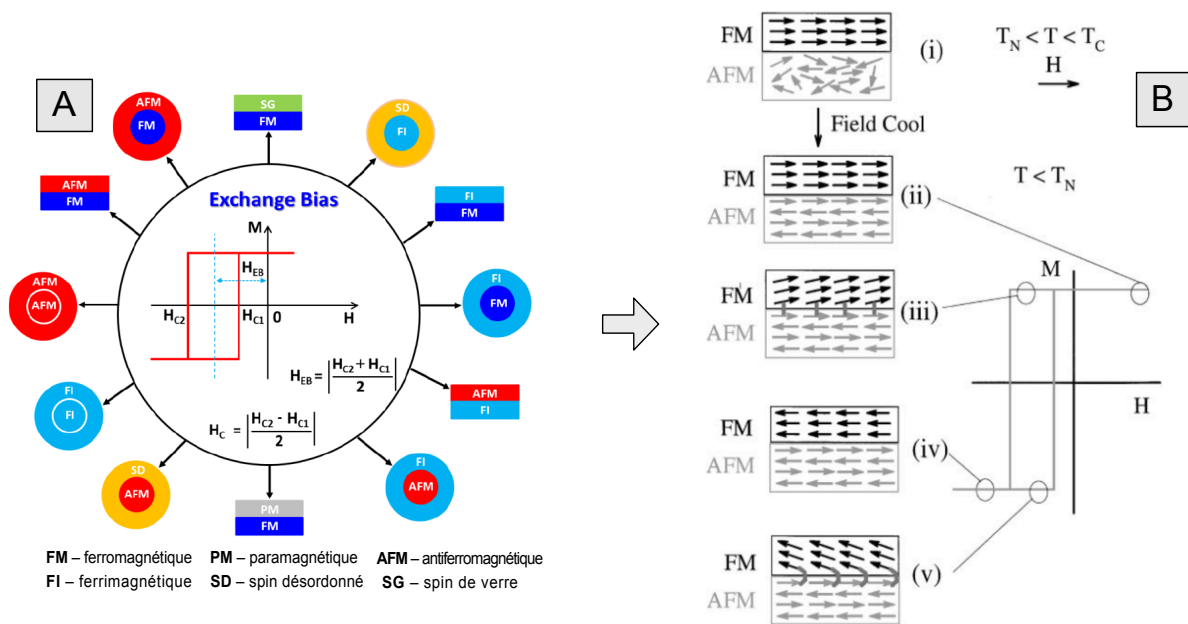


Figure 4.3 Le phénomène d'interaction magnétique se détecte par un changement dans le cycle d'hystérésis en basse température lorsque l'échantillon est refroidi en présence d'un champ magnétique. [A] Schéma décrit les systèmes magnétiques naturels pour lesquels des effets d'interaction ont été reportés (Phan et al., 2016). [B] Schéma de la configuration des moments magnétiques d'une bicouche FM/AFM à différentes étapes du cycle d'hystérésis qui vont être perturbés à l'interface par l'effet d'interaction (d'après Nogués & Schuller, 1999). Le décalage du cycle d'hystérésis est décrit par le champ d'interaction (Exchange bias field) H_{eb} .

En effet, lorsqu'un matériel composé d'une interface entre une phase ferromagnétique (FM) et une phase antiferromagnétique (AFM) est refroidi à basse température (T_B), une anisotropie est induite dans la phase FM (Nogués & Schuller, 1999). Les conditions initiales étant $T_N < T_B < T_C$, où T_N est la température de Néel de la phase AFM et T_C , la température de Curie de la phase FM. Durant l'expérience, on réalise plusieurs cycles d'hystérésis à différentes températures de 300 K (température ambiante), 150 K et 20 K. À cette dernière température on obtient $T_B < T_N$. Cette anisotropie provoque la mise en place d'un champ d'interaction (H_{eb}) à l'interface des phases FM et AFM (Figure 4.3A). Il est possible d'identifier ce phénomène lorsqu'un décalage du cycle d'hystérésis en direction opposée à celle du champ appliqué pendant le refroidissement T_B est repéré le long de l'axe du champ. Autrement dit, lorsqu'on obtient une valeur absolue du champ coercitif différente entre les branches descendantes et ascendantes du cycle d'hystérésis (Figure 4.3B). Pour examiner cela, nous avons appliqué ou pas un champ pendant le

refroidissement de l'échantillon, dans un premier temps. Puis nous avons coupé le champ pour mesurer le cycle d'hystérésis (Table 4.2 ; Figure 4.4).

Table 4.2 Valeurs de champ d'interaction B_{eb} (T) mesurées sur les plaquettes

Échantillons	Refroidissement sous champ	Température	B_{eb} [T]
BrP.1	Oui	150 K	7,70E-06
	Oui	20 K	-2,83E-05
	Non	300 K	2,16E-05
	Non	150 K	1,60E-05
	Non	20 K	3,64E-05
BrP.2	Oui	150 K	1,77E-05
	Oui	20 K	-1,73E-05
	Non	300 K	2,49E-05
	Non	150 K	-3,97E-05
	Non	20 K	6,67E-05
BrP.3	Oui	150 K	1,87E-05
	Oui	20 K	1,23E-05
	Non	300 K	2,12E-05
	Non	150 K	1,87E-05
	Non	20 K	2,34E-05

Les premiers résultats obtenus sur trois plaquettes de frein Figure 4.4 ne montrent aucun décalage. Les valeurs mesurées pour le champ d'interaction B_{eb} varient entre -2 et 7.10^{-5} T (Table 4.2), ce qui est considéré comme négligeable. Par conséquent, les premiers résultats obtenus sur les plaquettes de frein montrent que l'interaction entre une phase ferro/ferri-magnétique et une phase antiferromagnétique ne serait pas, pour l'instant, l'hypothèse privilégiée pour expliquer les diminutions d'ARI pour des champs appliqués supérieurs à 1 Tesla. Lors de nos discussions durant le Castle meeting, Ramon Egli a évoqué un autre scénario d'interaction entre deux phases ferromagnétiques ayant des champs coercitifs différents. Cette piste devra être étudiée plus en détails car nous avons tout de même observé en microscopie optique la présence de deux phases eutectoïdes d'acier, probablement de la cémentite et de la perlite (Figure 4.4).

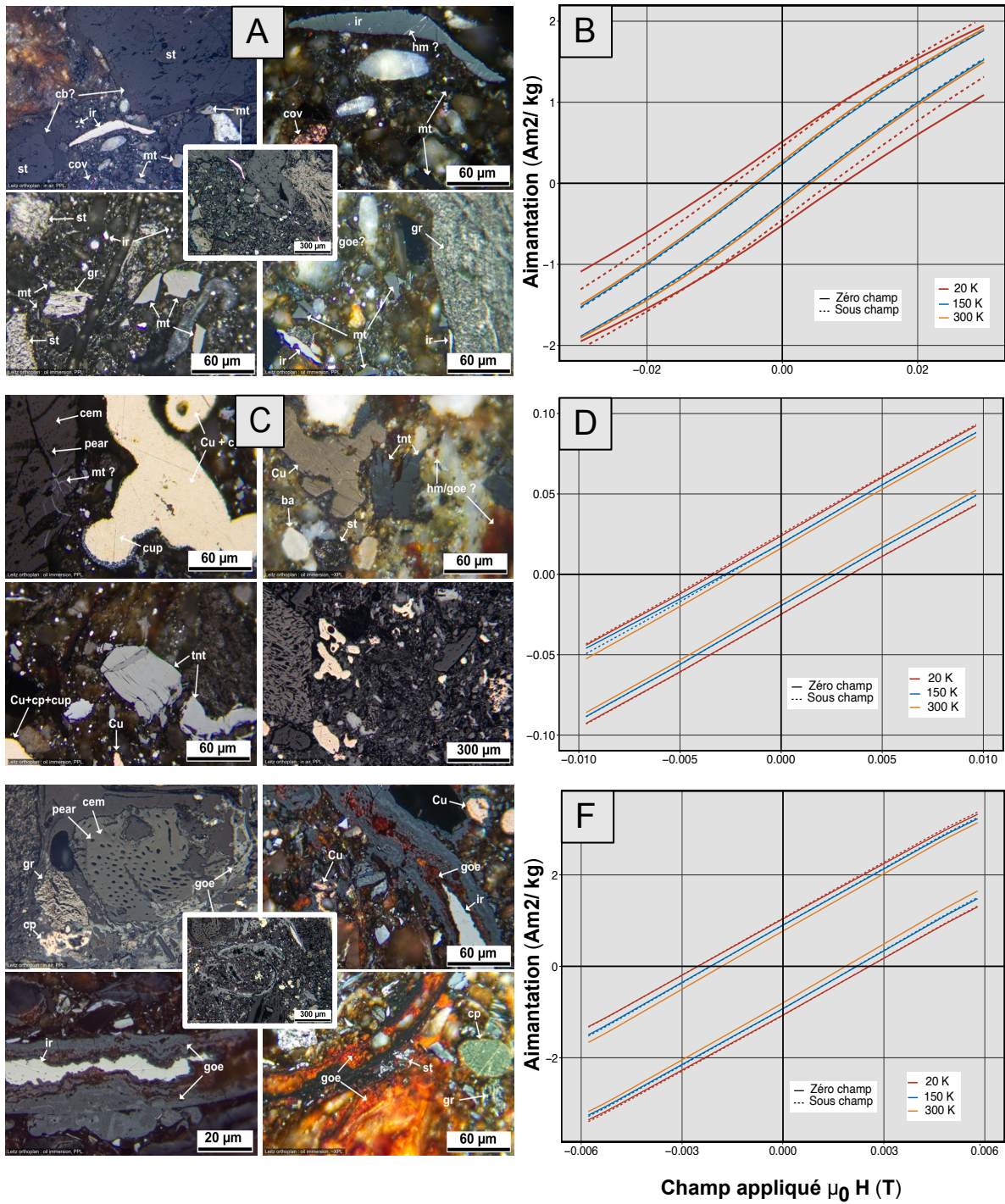


Figure 4.4 Images de microscopie à lumière réfléchie pour des échantillons de plaquettes de frein : [A] BrP.1 ; [C] BrP.2 et ; [E] BrP.3 avec polariseurs parallèles (PPL), croisés (XPL) et tournés (~XPL). Résultats obtenus sur le MPMS ne montrant aucun décalage d'hystérésis pour [B] BrP.1 ; [D] BrP.2 et [F] BrP.3.

mt: magnetite; **hm:** hematite; **goe:** goethite; **Cu:** copper; **cup:** cuprite; **cov:** covellite; **tnt:** tenorite; **cp:** chalcopyrite; **ba:** barite; **st:** steel; **ir:** iron; **pear:** pearlite; **cem:** cementite; **gr:** graphite; **cb:** carbide.

Cependant, la présence de ces deux phases a été systématiquement observées sur les images de microscopie provenant des plaquettes de frein BrP.1, BrP.2 et BrP.3 (Figure 4.4). C'est pourquoi, il est prévu de compléter ces observations par de l'imagerie magnétique, que je pourrai réaliser avec un microscope à force atomique équipé d'une pointe magnétique au CEMIPAI (CNRS-Montpellier).

IV.3.2.4 Hypothèse 4 : Le champ de désaimantation

En effet la présence d'aimants permanents, largement utilisés dans les moteurs et les générateurs pourrait expliquer le phénomène observé. Les aimants permanents présentent une anisotropie de forme qui provoque une diminution d'aimantation à des champs élevés (*Okamoto, 2021*) en raison d'un fort effet du champ de désaimantation. L'augmentation du champ appliqué proche de la saturation peut provoquer une augmentation du champ de désaimantation, diminuant ainsi l'aimantation spontanée proche de la saturation. De plus, les points de Curie supérieurs à 700°C pour les plaquettes de frein indiquent la présence potentielle de matériaux de fer pur, d'acier et/ou de fonte, pour lesquels les températures sont connues pour être comprises entre 750 et 1400°C. De plus, le Day Plot présenté dans l'article 3 illustre que la taille des domaines des plaquettes est PSD-MD.

En parallèle, la principale différence physique entre les particules SD et MD est la présence d'un champ de désaimantation. En effet, les particules MD sont plus larges et composées de domaines. Lorsqu'elles sont soumises à un champ externe, un champ magnétostatique auto-induit se traduit rapidement par une perte partielle de l'aimantation acquise. Cela se produit par divers processus irréversibles tels que la nucléation ou un « pinning » de la paroi d'un des domaines, souvent dus à la présence d'inclusions ou de défauts. Il est possible de déterminer l'énergie produite par les processus d'auto-désaimantation irréversible avec la procédure suivante proposée par *Fabian, 2003* (Figure 4.5) :

- 1- Appliquer un champ $B = B_{\max}$ puis enlever le champ afin d'arriver à la valeur de rémanence M_{rs} . Pour éviter de dépasser vers des champs négatifs, Fabian, 2003 propose de faire cela en plusieurs étapes : $B=10$ mT, $B=1$ mT puis $B=0$ mT ;
- 2- Mesurer la courbe initiale $M_{si}(B)$ puis la cycle d'hystérésis ;
- 3- Le rapport entre la surface grise (Figure 4.5) et la surface totale du cycle d'hystérésis donnera la valeur du champ de désaimantation, si un décalage entre l'aller et le retour à la saturation est observé. Plus le rapport est grand, plus la valeur du champ de désaimantation sera importante.

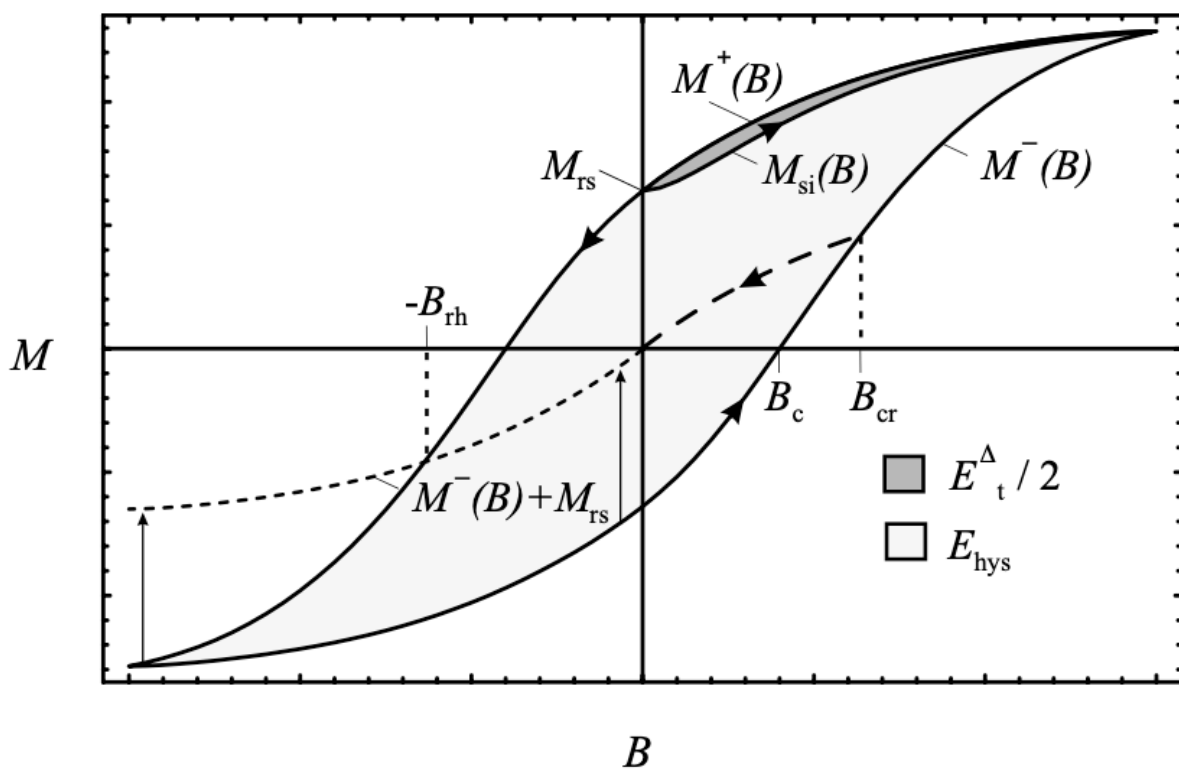


Figure 4.5 Mesure du cycle d'hystérésis en incluant la détermination de la courbe $M_{si}(B)$. La zone grisée correspond ainsi à la moitié de l'énergie du champ de désaimantation (E_t^Δ). L'aire totale entre la branche de l'hystérésis inférieure $M^-(B)$ et la branche supérieure $M^+(B)$ est notée E_{hys} .

IV.3.3 Finalement jusqu'où peut aller le magnétisme appliqué à la qualité de l'air ?

Aux vues des résultats de ce chapitre, l'utilisation de paramètres magnétiques semble être pertinente pour décrire des échantillons de toutes sortes tels que des

plaquettes de freins ou des pots d'échappement. En utilisant des paramètres bien déterminés au préalable il devient possible de discriminer les sources.

Mes résultats ont montré l'association entre les paramètres magnétiques des poussières mesurées sur diverses surfaces accumulatives, et une approche par Machine Learning permettant de remonter jusqu'à la source (magnétique) dominante. De plus, les échantillons étudiés montrent une grande hétérogénéité, il apparaît donc nécessaire d'obtenir une base de données nettement plus importante. Dans cet objectif, il serait très intéressant de mettre en place une base donnée commune, accessible en ligne que tout un chacun pourrait remplir selon les types d'échantillons et les mesurées magnétiques effectuées. Cela permettrait de rapidement alimenter le modèle.

En parallèle, je me demande si je n'ai pas utilisé trop de paramètres ou si ma liste d'échantillon n'était pas trop exhaustive. Pour pallier à cela, je pense qu'il faudrait trouver un moyen d'évaluer de manière plus précise la pertinence de chacun des paramètres ou d'en essayer d'autres comme les paramètres de forme d'hystérésis introduits par *Fabian (2003)*.

CHAPITRE V

LES HAIES VEGETALES URBAINES : UN MOYEN EFFICACE DE PIEGER LES PARTICULES ISSUES DU TRAFIC OU UN OBSTACLE A LEUR DISPERSION ?



V.1 AVANT-PROPOS

V.1.1 La capacité de rétention des particules par les végétaux

Que ce soit grâce à des mesures de concentrations relatives de particules fines issues du trafic ou des observations de microscopie, les chapitres précédents démontrent bien l'efficacité des espèces végétales à capter/retenir les particules émises par le trafic. En effet, grâce à leurs surfaces foliaires importantes, les arbres et arbustes sont potentiellement des collecteurs efficaces de poussières. Ils peuvent être valorisés comme un service écosystémique supplémentaire en terme de phytoremédiation (Sæbø *et al.*, 2012 ; Janhäll, 2015). De plus, il a été montré que les particules de tailles inférieures à 10 μm , déposées à la surface de la feuille peuvent demeurer piégées à l'intérieure de la couche de cire cuticulaire,

dans les cils ou encore dans les rainures de la feuille, empêchant ainsi toute remise en suspension par le vent ou la pluie (Lehndorff *et al.*, 2006 ; Dzierzanowski *et al.*, 2011 ; Terzaghi *et al.*, 2013 ; Przybysz *et al.*, 2014). Cette efficacité de piégeage a été étudiée pour différentes espèces végétales. En revanche, il reste nécessaire de compléter ces travaux afin de déterminer de manière plus claire des liens entre les caractéristiques atomiques, morphologiques des feuilles (comme leurs tailles, la présence de trichomes, la rugosité de surface) et physiologiques (comme les propriétés de la cire cuticulaire et sa régénération), avec les propriétés des particules qui sont à l'origine de leur accumulation et piégeage, ou encore l'influence des conditions météorologiques sur cette captation (Popek *et al.*, 2013 ; Wang *et al.*, 2015). Bien que non quantifiées et bien comprises de manière précise, leur capacité de captation et piégeage justifient leur utilisation comme surfaces d'accumulation de polluants dans des campagnes de haute résolution de biosurveillance de la qualité de l'air. Sur la [Figure 5.1](#), on montre une comparaison de variation relative de l'ARI mesurée à 300 mT, utilisée comme traceur de concentrations relatives en polluants de chaque côté d'une rue (côté piéton et son côté trafic). Cette étude de faisabilité menée préalablement au projet Breathe a été effectuée à partir de quatre espèces endémiques méditerranéennes (Eleagnus, Lierre, Laurier rose et du laurier tin). Ce graphique illustre de manière claire : d'une part, les variations de capacité de piégeage des PM d'une espèce à l'autre. D'autre part, la précision spatiale de ce traceur, capable de détecter une plus grande concentration relative de polluants côté trafic.

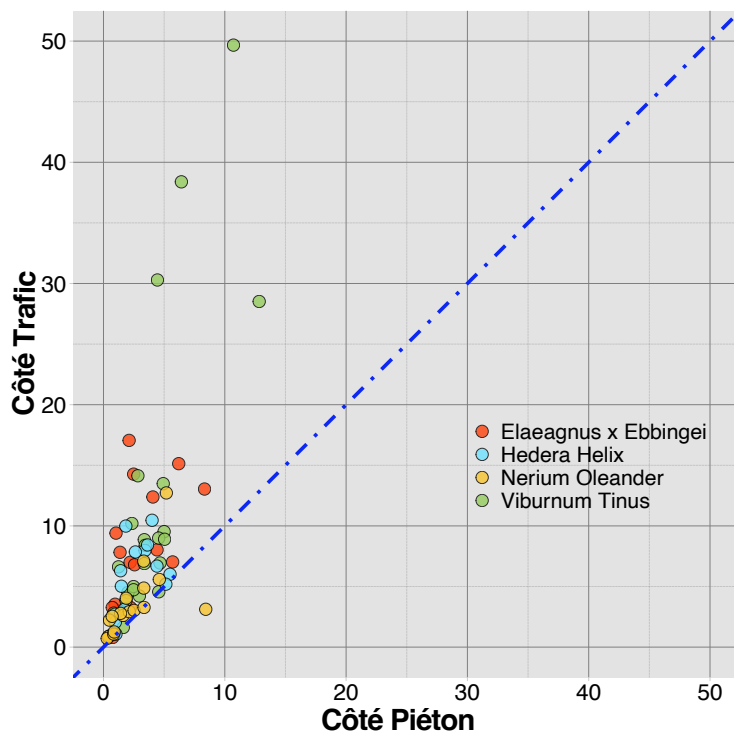


Figure 5.1 Mesures des variations relatives de l'ARI à 300 mT, utilisée comme traceur des accumulations de particules fines sur quatre espèces endémiques méditerranéennes et comparaison entre les côtés trafic et piéton des voies de circulation.

V.1.2 Les végétaux : une solution pour la mitigation de la pollution de l'air ?

V.1.2.1 « To tree or not to tree? »

Une question reste tout de même en suspens : celle de savoir si malgré leur capacité à capter et emprisonner les particules sur leurs surfaces foliaires, les végétaux urbains sont capables de véritablement diminuer les concentrations des particules potentiellement respirables par la population urbaine. Instinctivement, on aurait tendance à répondre que oui. Mais le sujet reste complexe et nous n'avons encore qu'une connaissance limitée des paramètres qui influencent les effets des végétaux sur la qualité de l'air. En effet, les processus de dépôt ou de dispersion des polluants peuvent être radicalement influencés (Janhäll, 2015) selon :

- (5) **Les propriétés des végétaux** : les espèces végétales, la présence de pilosité ou cire (rugosité de la surface), l'épaisseur des feuilles, la surface de la haie et sa porosité ou encore la proximité à la source ;
- (6) **Les propriétés des polluants** : taille des particules, leurs sources et les possibles interactions avec des éléments de la haie végétale ;
- (7) **Les conditions météorologiques** : direction et vitesse du vent dominant, humidité, et température.
- (8) **La configuration de la zone d'étude** : rue canyon, hauteur des bâtiments, orientation par rapport à la direction du vent, et densité des plantations.

Ceux-ci expliquent les importantes variations de résultats quant à l'effet des végétaux sur les concentrations de polluants recensées par une précédente étude (*Abhijith et al., 2017*) allant d'une augmentation de concentration en particules jusqu'à 95% à une réduction de concentration de PM₁, PM_{2.5}, PM₁₀ et particules ultrafines (PUF) de 2 à 90 %. Ajouté à cela, des études basées sur de la modélisation de dispersion des polluants (CFD) en simulant leurs émissions, dispersions et dépôts ont indiqué pour tous les cas de figure une contribution des processus dispersifs nettement supérieure à celle de dépôts (*JeanJean et al., 2016 ; 2017*). Les réductions de concentration en PM_{2.5}, restent faibles de l'ordre de quelques pourcents (9 % par dispersion et 2.8 % par déposition). Il en est de même pour les PM₁₀ où l'augmentation du couvert végétal dans les Midlands et Glasgow (Royaume-Uni) de 3.7 à 16.5 % et de 3.6 à 8 % ont donné respectivement une diminution de concentration en PM₁₀ de 10 % et 2% (*McDonald et al., 2007*). Également, pour le grand Londres où *Thallis et al. (2011)* estiment une diminution de concentration annuelle en PM₁₀ de 0.7 à 1.4 %. A l'inverse, *Gromke & Runk (2007, 2009, 2012)* et *Vos et al (2013)* observent des augmentations de concentrations de polluants provenant du trafic dues à la présence de végétaux. Ils interprètent d'ailleurs cela en expliquant que la présence de végétaux provoque une obstruction du flux/vent, et ainsi une diminution de la dispersion responsable de la dilution des polluants.

Enfin, un autre paramètre à ne pas omettre est l'échelle. En effet, selon l'échelle de la zone étudiée les conclusions des études peuvent être diamétralement opposées. Par exemple, pour une amélioration de la qualité de l'air locale on pourrait soutenir que les végétaux urbains devraient être plantés loin des sources de polluants pour ne pas obstruer la ventilation (*Vos et al., 2013*). En revanche, pour estimer une amélioration de la qualité de l'air non plus à l'échelle locale mais à celle de la ville *Thallis et al (2011)* recommandent de planter le plus près possible des sources.

Finalement, en se basant sur plusieurs études *Janhäll (2015)* inventorie des conseils sur la conception de moyens de mitigation à l'aide d'espèces végétales :

- (1) **Végétation basse** : pour favoriser la dispersion et la dilution des polluants en hauteur ;
- (2) **Végétation haute et suffisamment poreuse** : pour filtrer l'air passant au-dessus des haies de végétations basses sans pour autant l'obstruer ;
- (3) **Végétation proche de la source** : l'augmentation des concentrations en polluants permettent une augmentation des dépôts (et d'autant plus si la surface foliaire est grande et que les feuilles sont « velues »).

V.1.2.2 Un facteur de levier clef : la vitesse de dépôt

Comme décrit ci-dessus, il n'y a pas de clairs consensus dans les études de mitigation de la qualité de l'air à l'aide de barrières végétalisées. Pour prendre position dans ce débat encore présent dans la communauté, il semblerait que la clé soit le paramètre de vitesse de dépôts. Ce dernier représente tout simplement la capacité d'une espèce végétale à extraire les particules présentes en suspension dans l'air.

Il peut être également décrit comme un transfert (flux) des PM présentes dans l'air vers une surface accumulatrice (murs, sols, végétations). Comme mentionné dans le [Chapitre I](#), il a été introduit par *Chamberlain (1966)* et est défini en *cm/sec* par l'équation :

$$V_g = \frac{F}{\chi}$$

où F est le flux de particules vers une surface accumulatrice, autrement dit le nombre de particules déposées par une unité de surface et de temps ($N \cdot m^{-2} \cdot s^{-1}$), et χ représente le nombre total de particules par unité de volume d'air avant le dépôt ($N \cdot m^{-3}$). χ est aussi appelé la dose de polluant. La vitesse de dépôt est très différente d'une espèce à l'autre, pouvant aller de 0.02 cm/sec pour des espèces comme les épicéas, *Picea*, (*Peters & Eider, 1992*) et les ficus, *Ficus*, (*Freer-Smith et al., 2004*) à 30 cm/sec pour le noisetier, *Corylus*, (*White & Turner, 1970*), puisqu'elle dépend d'une multitude de facteurs tels que : la taille des particules, la nature du polluant, la vitesse du vent dominant et les caractéristiques de la surface de dépôt ou encore les conditions micro-météorologiques (*Table 5.1, Rouspard, 2013*). Ce paramètre n'est souvent pas pris en compte par la plupart des modèles ou bien il est sous-estimé de 5 à 50 fois (*Maher et al., 2013 ; Santiago et al., 2017*).

Table 5.1 Paramètres influençant les dépôts de particules en milieux urbains (*Rouspard, 2013 ; modifié à partir de Sehmel, 1980*).

Propriétés de l'aérosol	Propriétés de la surface	Variables micrométéorologiques
Diamètre	Densité des rugosités	Vitesse du vent
Forme	Taille des rugosités	Vitesse de frottement
Densité	Température	Intensité de turbulence
Hygroscopicité	Propriétés électrostatiques	Flux de chaleur sensible
Solubilité	Nature chimique	Stabilité atmosphérique
Charge électrostatique		Humidité relative
Propriétés physiques		Température ambiante
		Rayonnement solaire

V.2 UN TUNNEL A VENT EXPERIMENTAL : LE @ZEPHYR LAB

V.2.1 Description générale

Un tunnel a vent a été conçu et construit spécialement sur mesure pour répondre à un double-objectif :

- (1) Réaliser une modélisation analogique (Figures 5.2A et 5.2B) avec des haies d'échelle réelle c'est-à-dire de 0.75 m² de section pour environ 2 m de large ;
- (2) Créer un laboratoire citoyen ouvert à toutes les parties prenantes qu'ils soient scolaires, citoyens, industriels ou élus politiques (Figures 5.2C).

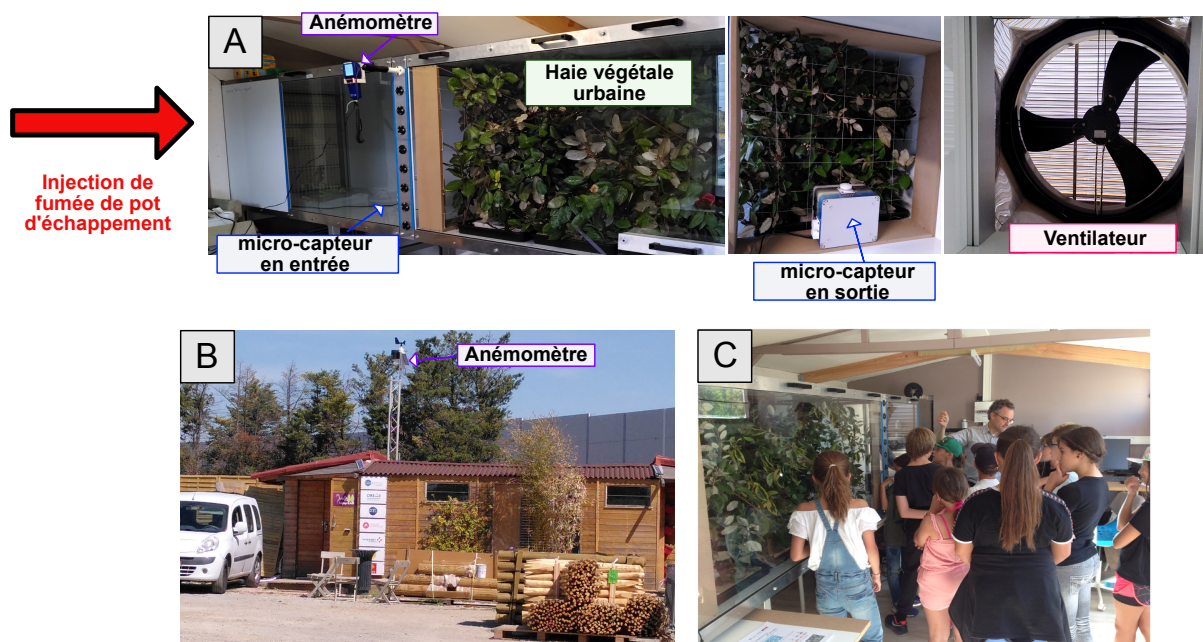


Figure 5.2 [A] Illustration des parties du tunnel à vent expérimental et des outils utilisés pour mettre en place les manipulations expérimentales sur les haies végétales. [B] Photographie du site et de la « cabane » dans laquelle est installé le banc expérimental. On voit également la voiture utilisée pour injecter les polluants à l'entrée du banc. [C] Thierry Poidras présentant le dispositif expérimental à une classe de primaire venue spécialement pour la journée sur la qualité de l'air.

V.2.2 Principes de l'expérimentation sur une haie végétale

Le banc expérimental se compose de plusieurs outils : un ventilateur permettant d'aspirer l'air de l'entrée vers la sortie du dispositif de manière laminaire avec une vitesse jusqu'à 10 ms^{-1} pour un banc vide. La vitesse de commande du ventilateur (en Volts) permet de régler la vitesse du flux d'air à l'intérieure de la gaine. Celle-ci est contrôlée par un anémomètre à hélices présent à l'entrée. On place ensuite la haie végétale étudiée au centre du tunnel. Cette dernière se compose de branches récoltées le jour même de l'expérience et fixées dans une mousse, qui est-elle même plongée dans l'eau afin de pouvoir garder des feuilles fraîches durant toute l'expérience. Trois micro-capteurs sont placés en amont et trois en aval de la haie (deux LOACs de *Meteomodem* et quatre micro-capteurs N3 et R1 de chez *Alphasense*) comptant les particules par gamme de tailles par diffusion de faisceaux optiques. Enfin, nous possédons également une station météo sur le toit de la cabane (Figure 5.2B), permettant d'avoir les données de direction et vitesse du vent dominant, de température ambiante et d'humidité relative en temps réel. Après un panel de tests d'étalonnage nous avons été en mesure de réaliser cinq expérimentations différentes sur une haie d'*Eleagnus*, cinq sur une haie de *Celtis australis* et une sur *Pinus halepensis*, ces espèces ayant été choisies car elles sont toutes endémiques méditerranéennes et facilement plantées en milieux urbains.

V.3 RESULTATS

V.3.1 Caractérisation physique du banc expérimental

Afin de mieux comprendre le comportement du flux dans le tunnel pendant les expérimentations, nous avons commencé par travailler sur la caractérisation physique du banc.

V.3.1.1 Mesurer à vitesse nulle

Les premiers tests d'injection de polluant dans le tunnel ont montré que la mesure des LOACs est très dépendante du débit volumique à l'entrée du capteur (Figure 5.3A) qui ne peut pas être régulé précisément par le simple ventilateur d'aspiration de l'air. Par

ailleurs, nous avons observé en présence d'une haie, des concentrations de particules mesurées par le LOAC, situé à l'entrée, qui étaient nettement inférieures à celles mesurées par celui situé en sortie (Figure 5.3A). Nous avons interprété ces observations par l'influence de l'augmentation de la turbulence en aval de la haie. Pour pallier à cela, nous avons imaginé deux caissons cylindriques dans lesquels sont insérés les LOACs situés respectivement en amont et en aval de la haie végétale (Figure 5.3B). Ces caissons sont conçus pour s'ouvrir et se fermer automatiquement toutes les 10 min, de manière synchronisée, en étant pilotés à distance par ordinateur. Cette période correspond à la durée pendant laquelle la mesure du LOAC est intégrée, nous permettant ainsi d'avoir une mesure caisson ouvert intégrée sur 10 min et une mesure caisson fermé, intégrée également sur une période de 10 min. Les mesures de LOAC prises en compte durant les expérimentations sont désormais celles mesurées à caissons fermés, c'est-à-dire lorsque la vitesse de l'air dans le banc est nulle, puisqu'on considère que lorsque les caissons sont ouverts, le comptage de particules est surestimé (Figure 5.3C).

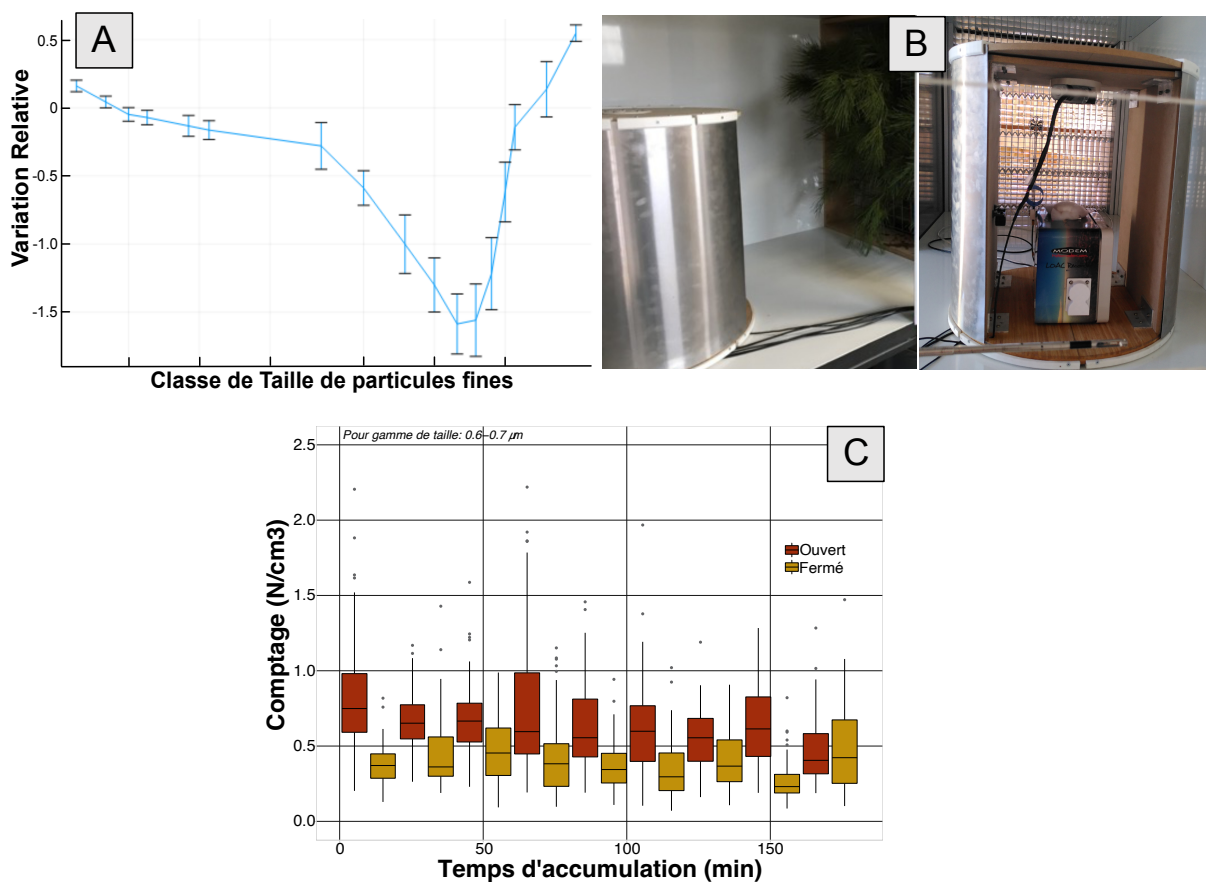


Figure 5.3 [A] Variation relative mesurée par les μ -capteurs LOAC en fonction des classes de tailles. Il s'agit ici

de la différence entre la mesure avant et la mesure après la haie normalisée par la mesure après. [B] Photographie des caissons synchronisés pour compter les particules à vitesse nulle. [C] Illustration de la différence de comptage entre ouverture (rouge) et fermeture (bleu) des caissons pour la classe de taille 0.6-0.7 μm sur toute la durée de l'expérimentation.

Finalement, en plus des LOACs nous avons également équipé chaque caisson de deux capteurs supplémentaires : un compteur de particules OPC-N3 et un OPC-R1 de chez Alphasense. Un positionné à l'intérieur du caisson proche du LOAC et l'autre à l'extérieur du caisson (Figure 5.4). Étant donné que la mesure LOAC n'est pas instantanée mais intégrée sur une période de 10 min, ces micro-capteurs Alphasense, moins précis, certes, nous apportent un suivi en temps réel des comptages de particules. Nous avons aussi observé pour les compteurs alphasense une surestimation du nombre de particules lorsque la mesure se fait caisson ouvert, bien que le fabricant affirme qu'il prend en compte une correction du débit volumique d'air.

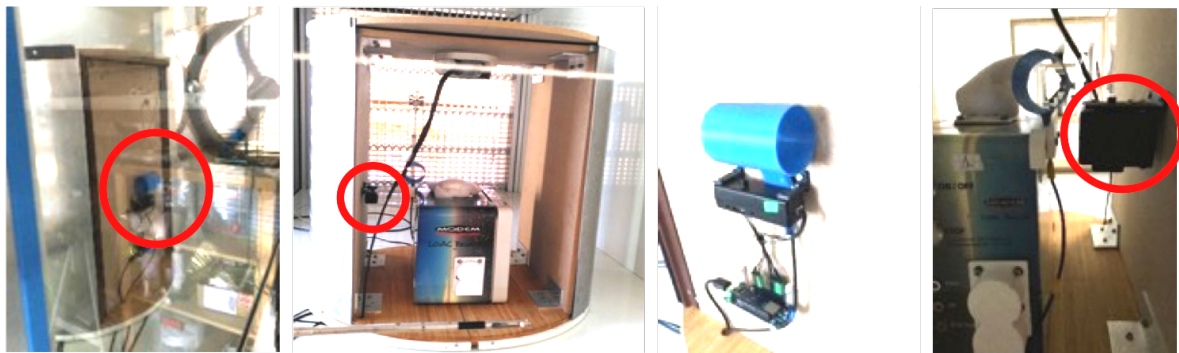


Figure 5.4 Illustration du dispositif multi-capteurs regroupant par caisson : un LOAC, un OPC-N3, un OPC-R1 Alphasense et un petit anémomètre.

V.3.1.2 Profils de vitesse et turbulence du courant d'air à l'intérieur du tunnel

J'ai réalisé en Novembre 2019 des profils de vitesse 2D dans la section du tunnel avant et après la haie à l'aide d'un anémomètre à fil chaud pour plusieurs vitesses de rotation du moteur (Figure 5.5). Ceci permet de caractériser le banc et modéliser de manière analogique les propriétés physiques et aérologiques d'une haie végétale. En présence de haie, il n'a d'ailleurs pas été possible de réaliser de profils en sortie de haie car la turbulence était beaucoup trop importante et l'anémomètre à fil chaud n'arrivait pas à stabiliser sur

une valeur. Cette observation rejoint d'ailleurs celle expliquant un comptage de particule par le LOAC de sortie nettement supérieur à celui situé en amont de la haie. Finalement, nos premières observations montrent qu'étant donné que nous travaillons avec de réelles haies que nous mettons en place nous-même dans la gaine, il est très difficile de reproduire des conditions expérimentales rigoureusement identiques d'une expérience à une autre. Il apparaît donc nécessaire de mesurer avant chaque expérience les caractéristiques du flux d'air qui va traverser la haie mais également la résistance de cette dernière afin d'être en mesure de pouvoir comparer les résultats de chacune des manipulations expérimentales faites sur une même espèce végétale.

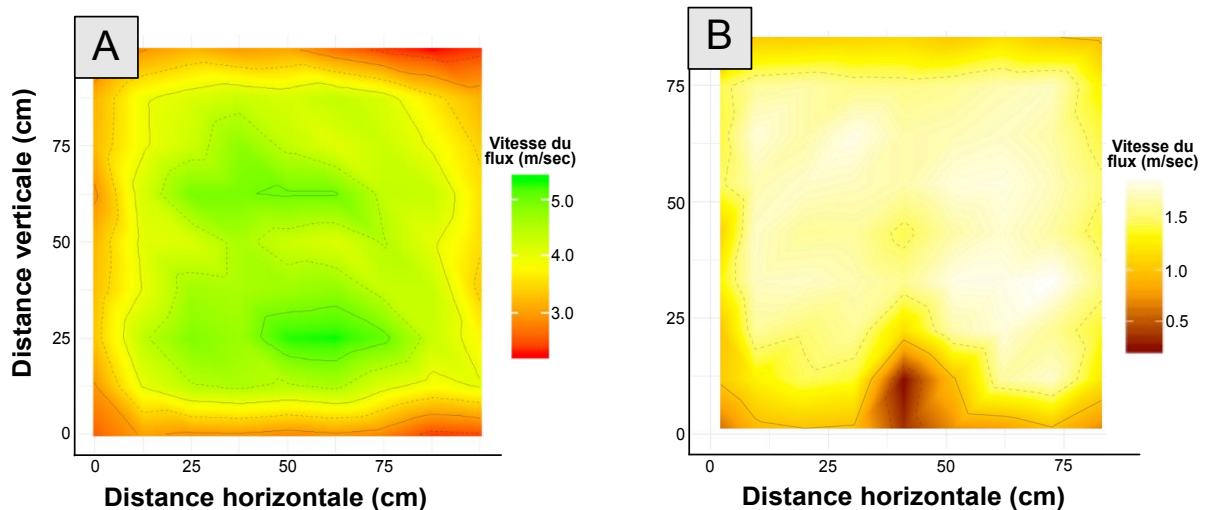


Figure 5.5 Profils de vitesses réalisés à l'anémomètre à fil chaud en entrée de tunnel pour une vitesse de commande de 4 V : [A] Sans présence de haie et [B] avec la présence de haie de *Eleagnus*.

V.3.1.3 Caractérisation expérimentale de la perméabilité d'une haie au courant d'air

Comme mentionné ci-dessus, afin de pouvoir comparer les différentes expérimentations faites sur une même espèce végétale, nous devons être en mesure de maintenir les conditions expérimentales constantes. Il s'agit en particulier de contrôler le débit volumique d'air. Pour une même consigne donnée au moteur du ventilateur, ce paramètre dépend de plusieurs facteurs : l'espèce végétale, la densité des feuilles, l'agencement des branches et la largeur de la haie. Pour cela, j'ai réalisé une batterie de tests sur une grille alvéolée (Figure 5.6A), où le paramètre résistance est contrôlé en fermant au fur et à mesure les alvéoles. Pour chacun des pourcentages d'obturation de la grille (0,

20, 32, 40, 47, 56, 68, 77, 86.5 et > 87 %), la vitesse du ventilateur (V_{moteur}) et la vitesse en entrée du tunnel (donnée par un anémomètre à hélice ; $V_{\text{entrée}}$) pour différentes vitesses de commandes allant de 0 à 6 V ont été mesurées. Finalement, la variation de ces trois paramètres (Figure 5.6B) visualisée par une analyse en composantes principales nous a permis de déterminer une variation relative de vitesse telle que :

$$VR = \frac{V_{\text{entrée}} - V_{\text{moteur}}}{V_{\text{moteur}}}$$

On définit ainsi une fonction empirique nous donnant la résistance en fonction de VR.

$$\text{Résistance} = f(VR).$$

Cette relation a permis d'estimer la perméabilité des haies utilisées pour les premières expérimentations (Figure 5.6C). Ensuite, le paramètre de perméabilité calculée par rapport à la variation relative entre V_{moteur} et $V_{\text{entrée}}$ a été ajouté sur l'ordinateur de contrôle afin d'être en mesure de visualiser instantanément les perméabilités des nouvelles haies mises en place dans le tunnel. Ce paramètre a finalement été fixé à 70 % \pm 5 % pour toutes les expérimentations suivantes et quel que soit l'espèce végétale étudiée.

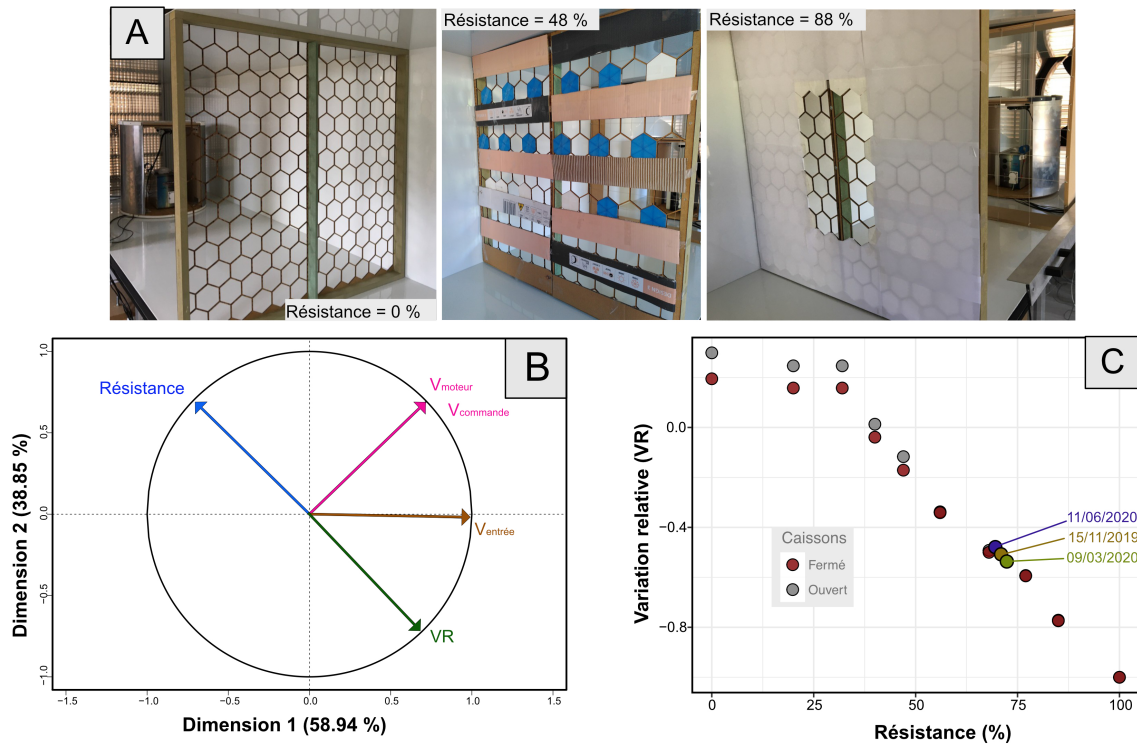


Figure 5.6 Tests de résistance d'une haie végétale réalisés à partir d'une grille alvéolée en Juillet 2020 : [A] Photographies des grilles utilisées pour plusieurs résistances de 0 à > 80 %. [B] Analyse en composantes principales sur les différents paramètres mesurés pendant les tests (V_{moteur} , $V_{commande}$, $V_{entrée}$ et la résistance de la grille) afin de mieux visualiser comment ils varient les uns avec les autres et définir ainsi la variation relative (VR) telle que la Résistance = $f(VR)$. [C] Illustration de la relation entre la perméabilité et la VR permettant de retrouver la perméabilité des haies utilisées pour les premières expérimentations du 17 novembre 2019, 09 Mars et 11 Juin 2020.

V.3.1.4 Débit volumique à l'intérieur du tunnel

L'objectif est de réaliser des expérimentations à débit volumique constant. Comme la section du banc est fixe, il suffit pour cela de fixer la vitesse. Ceci est important car la vitesse de dépôt dépend de la vitesse du vent (*Beckett et al., 2000 b*). Ce paramètre permet de conclure sur la validité de l'expérience car un changement du débit volumique à consigne de vitesse constante (*Figure 5.7A*) traduit à coup sûr une dégradation des propriétés physiques de la haie et donc de sa capacité de captation des particules. Une expérimentation réalisée pour une même consigne de vitesse sur une haie de *Micocoulier* le

03/08/2021 montrant un débit volumique croissant est illustrée sur la [Figure 5.7B](#). Dans cette expérience j'ai interprété cette augmentation de vitesse comme étant une altération de la haie due à la chaleur. La vapeur d'eau rejetée ainsi que le dessèchement des feuilles risquent de fausser les mesures des micro-capteurs ainsi que la capacité de piégeage de l'espèce végétale en question. C'est pourquoi, cette manipulation a finalement été rejetée pour le calcul des vitesses de dépôt final.

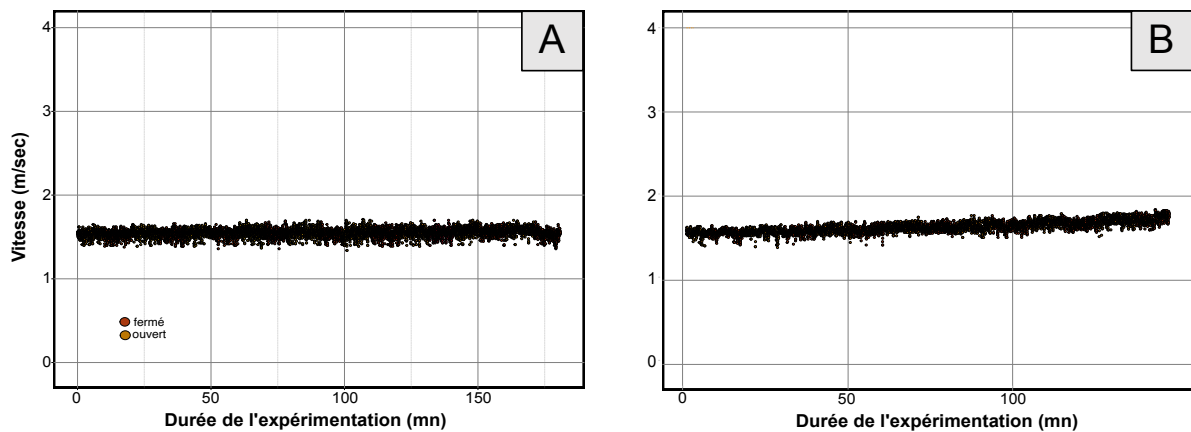


Figure 5.7 Vitesse du courant d'air mesurée à l'intérieur du tunnel utilisée comme test d'étalonnage : [A] vitesse constante, expérimentation approuvée et, [B] augmentation de la vitesse durant l'expérience, expérience rejetée.

V.3.2 Capacité d'extraction de la haie

L'intérêt de la modélisation analogique est tout d'abord d'être en mesure de contrôler un maximum de paramètres : la vitesse du vent, la nature de la haie, sa perméabilité, la nature du polluant injecté, etc. Une fois qu'un maximum de paramètres a été fixé, il est possible de déterminer les vitesses de dépôts pour des espèces végétales urbaines et endémiques. Ceci sera possible grâce aux mesures données par le dispositif micro-capteurs permettant de comparer les comptages de particules avant et après la haie. Ajouté à cela, des mesures de magnétisme environnemental (ARA_{80,100mT}, ARI_{100mT}, ARI_{300mT} et ARI_{1000mT}) sont réalisées sur les feuilles de la haie avant et après l'injection de polluants.

V.3.2.1 Vue par les micro-capteurs

Le dispositif micro-capteurs permettant de mesurer un volume constant d'air emprisonné dans les caissons a été tout d'abord testé sur une haie d'*Eleagnus* avec injection de fumées de pot d'échappement (pot d'échappement d'un véhicule diesel en marche à 2000 tours/min et relié par un conduit à l'entrée du banc). Les fumées du pot d'échappement sont injectées dans l'air ambiant, tous deux rentrent ensuite dans le tunnel via une zone de mélange aménagée en amont. Ces résultats montrent bien une différence de concentration de particules mesurée par les dispositifs multi-capteurs situés respectivement avant et après la haie (Figure 5.8A) pour des tailles de particules entre 1 et 10 μm . De plus, une plus forte concentration en entrée est observée ainsi que la forme de courbe théorique en V (Figure 1.8) avec un minimum à 0.5 μm pour le diamètre aérodynamique de poussière observé. Ces observations confirment bien la fonctionnalité de notre démarche expérimentale et nous a permis de mettre en œuvre sept expérimentations différentes sur plusieurs haies d'*Eleagnus*, cinq également sur plusieurs haies de Micocoulier (*celtis australis*), et une sur une haie de pin d'alep (*pinus halepensis*). Je choisis de présenter dans ce manuscrit un exemple des résultats obtenus à partir des LOACs situés en amont et aval d'une haie d'*Eleagnus* (*Eleagnus xenbbingei*; Figure 5.8B). A partir de ces résultats, les données sont réduites en étant moyennées sur toutes la durée de l'expérience (Figure 5.8C), me permettant de comparer les concentrations par gamme de taille en amont et aval de la haie. Sur cette dernière figure, on peut observer un point d'inflexion autour de 1 μm . Si on calcule la dérivée de ces courbes on obtient l'intersection de deux courbes log-normales faisant référence à deux modes de dépôt différents (Figure 1.7A) : le mode accumulation et le mode grossier. Le premier est caractéristique des particules de diamètre < 1 μm , souvent associé aux particules dérivant des émissions de pots d'échappement tandis que le second est caractéristique des tailles > 1 μm , pouvant correspondre à l'air ambiant, lui aussi injecté dans le tunnel, en même temps que les émissions du véhicule diesel.

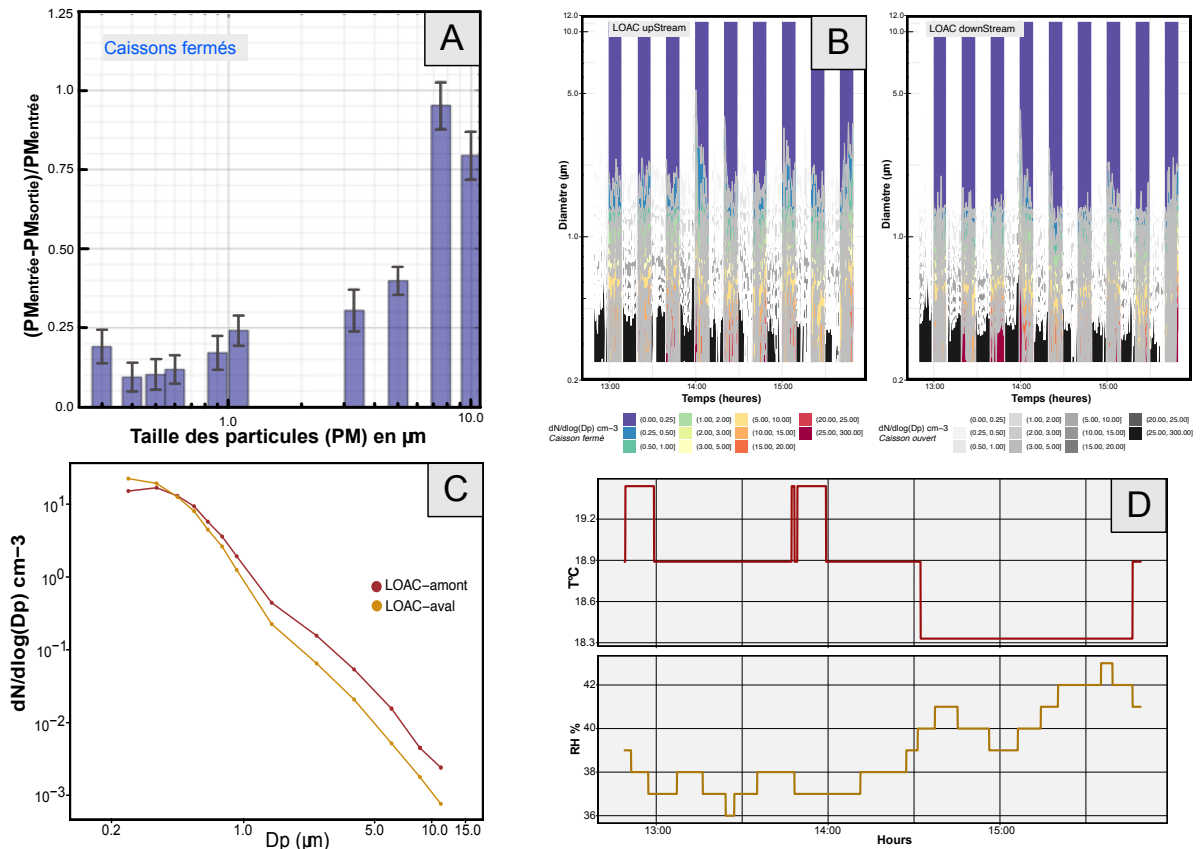


Figure 5.8 [A] Variation relative des concentrations de particules en fonction de leur taille entre avant et après filtration par une haie. [B] Exemple de résultats provenant des compteurs de particules (OPC) situés en amont et aval d'une haie d'Eleagnus où le diamètre est représenté par gamme de taille en fonction de la durée de l'expérience. L'échelle de gris indique les concentrations en nombre de PM lorsque les caissons sont ouverts tandis que l'échelle couleur représente les concentrations lorsque les caissons sont fermés. [C] Réduction des données de la même manipulation représentée par la concentration moyenne en nombre de PM sur toute la durée de l'expérience, en fonction des diamètres des particules. Données non-corrigées de la ligne de base des OPC-LOAC. [D] Conditions météorologiques (RH et T°C) pendant l'expérience.

On peut également remarquer que pour les gammes de taille les plus petites, on observe des concentrations avant la haie, supérieures à celles après la haie, ce qui impliquerait une vitesse de dépôt négative. Ce n'est pas systématiquement le cas mais cela reste tout de même souvent observé peu importe les espèces végétales. Pour expliquer cela, je propose quatre hypothèses : la première serait l'effet d'un offset déjà présent entre les capteurs d'entrée et de sortie même en absence de haie. En effet, nous avons déjà observé que le LOAC 2 (en sortie) mesurait systématiquement des concentrations supérieures à celui du LOAC 1 (en entrée) sur des expérimentations effectuées sans la présence de haie (Figure

5.9A). Cet offset a été corrigé en déterminant puis appliquant systématiquement un rapport qui ramène les deux lignes de base au même niveau pour chaque gamme de taille de PM (Figure 5.9A). De plus, en appliquant cette correction et comparant les mesures faites sur une haie lavée (Figure 5.9C) et une haie non lavée (Figure 5.9D), j'ai remarqué une différence non significative de signal mesuré, notamment pour les plus petites classes de taille de PM. En effet, parce que nous manipulons des haies naturelles, des PM peuvent déjà être capturées par les feuilles et branches de la haie avant le début de l'expérience et ainsi être relâchées pendant l'expérience. Comme cela est illustré dans la Figure 5.9C, des concentrations plus élevées en sortie qu'en entrée pour haie non rincée, alors que ce n'est pas le cas pour une haie rincée, sont observées. C'est pourquoi, nous avons lavé systématiquement les feuilles des haies étudiées à grande eau pour ensuite les placer dans le tunnel avec un vent de 6 m/s pendant 10 min afin de les sécher.

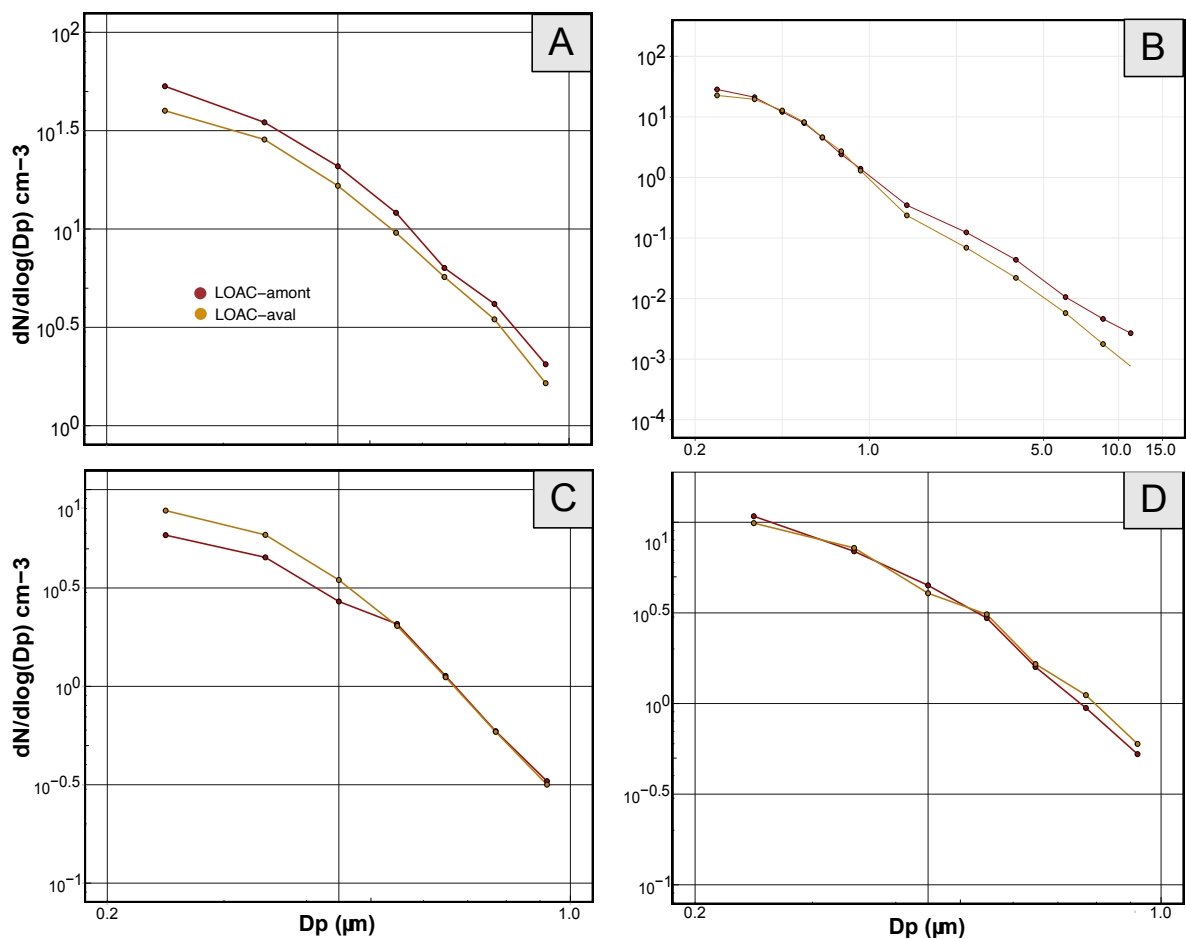


Figure 5.9 Comparaison des données OPC en entrée et en sortie pour [A] une expérience sans haie, [B] une haie

naturelle non lavée et [C] une haie naturelle rincée à grande eau. Ces illustrations permettent de tester des hypothèses quant à l'explication d'une vitesse de dépôt négative pour les diamètres de particules les plus petits.

Enfin, une autre question s'est posée : « Les PM peuvent-elles se désagréger en plus petites particules au cours de leur passage à travers la haie ? » En effet, cela peut être le cas notamment pour les carbones suies qui sont composées de chaînes de monomères. Ces chaînes sont capables de facilement se casser en plusieurs morceaux, d'autant plus si le carbone suie vient d'être formé. Cette hypothèse est donc également valable, mais difficile à prouver. Finalement, la dernière hypothèse serait l'inverse de celle-ci : « Les particules ultrafines (PUF) sont-elles capables de s'agglomérer lors de leurs passages dans la haie ? » Cette hypothèse est également difficile à prouver, mais nous sommes tout de même conscients que les capteurs que nous utilisons ne sont pas capables de détecter les PUFs. C'est pourquoi, la turbulence créée par le vent à l'intérieur du banc associée à la présence de la haie pourrait permettre aux PUF non détectées en entrée, de s'agglomérer en PM plus grossières, détectables en sortie de la haie par les OPC. Pour prouver cela, il faudrait réaliser une modélisation CFD à l'intérieur du tunnel avec la présence d'une haie.

Pour estimer les vitesses de dépôt, j'ai tout d'abord calculé la différence de concentrations entre l'amont et l'aval de la haie, que j'ai ensuite normalisée par la durée de l'expérience (en secondes) et la surface de capture des feuilles (en cm²). Afin d'estimer la surface de capture nous avons tout d'abord compté environ 1000 feuilles, que j'ai ensuite pesé et dont j'ai mesuré les surfaces (avec un scanner). Après avoir récolté puis pesé l'ensemble des feuilles restant sur la haie, un simple produit en croix entre la masse et la surface (ou le nombre) m'a permis d'estimer la surface (nombre) totale de capture de la haie.

Par la suite, les vitesses de dépôts ont été déterminées pour chaque expérimentation sur *Eleagnus*, *Celtis australis* et *Pinus halepensis* (Figure 5.10). On remarque que les courbes de vitesse de dépôt pour les haies d'*Eleagnus* et de *Pinus halepensis* ont une forme en V, similaires à la courbe théorique (Figure 1.8). Ces résultats prouvent que même avec des micro-capteurs low-cost dans un laboratoire citoyen on est capable de retrouver des résultats décrits dans la littérature.

De plus, comme cela est illustré dans la courbe théorique, on observe une dépendance de la vitesse de dépôt par rapport à la vitesse du vent et ce, qu'importe l'espèce végétale étudiée. Ce phénomène est plus remarquable pour les diamètres de PM les plus grossiers : plus la vitesse du vent à l'intérieur du tunnel augmente, plus le végétal est capable d'extraire ces particules de l'air. En effet, cela s'explique par le fait que la probabilité d'impaction des PM sur les feuilles augmente avec la vitesse du vent. De plus, en comparant les vitesses de dépôt pour une vitesse de vent donnée à 1.4 - 1.6 m/s, il semblerait que les *Eleagnus* aient une meilleure efficacité de rétention avec 2.5 cm/s pour des diamètres de PM autour de 10 μm alors que nous retrouvons des vitesses autour de 0.15 cm/s pour *Pinus halepensis*. Concernant *Celtis australis*, les valeurs de vitesses de dépôt sont trop dispersées, ce qui ne permet pas de montrer une tendance. Étant donné que les vitesses dans le tunnel ne restent pas stables pendant toute la durée de l'expérience (Figure 5.7B) sur la plupart des manipulations de *Celtis australis*, j'interprète cela comme une fragilité trop importante des feuilles. D'autant plus que la plupart des expérimentations réalisées sur *Celtis australis*, qui présente un feuillage caduc, ont été effectuées l'été (Juin, Août et Septembre 2021). Il apparaît donc que les feuilles n'ont pas supporté la chaleur et le vent de 1 à 2 m/s présent dans le tunnel pendant toute une expérience qui dure en moyenne entre 2 et 3h. Je conclus donc sur le fait que *Celtis australis* ne semble pas être un bon candidat pour nos expérimentations. Il est donc difficile de discuter de sa capacité de mitigation de la pollution de l'air.

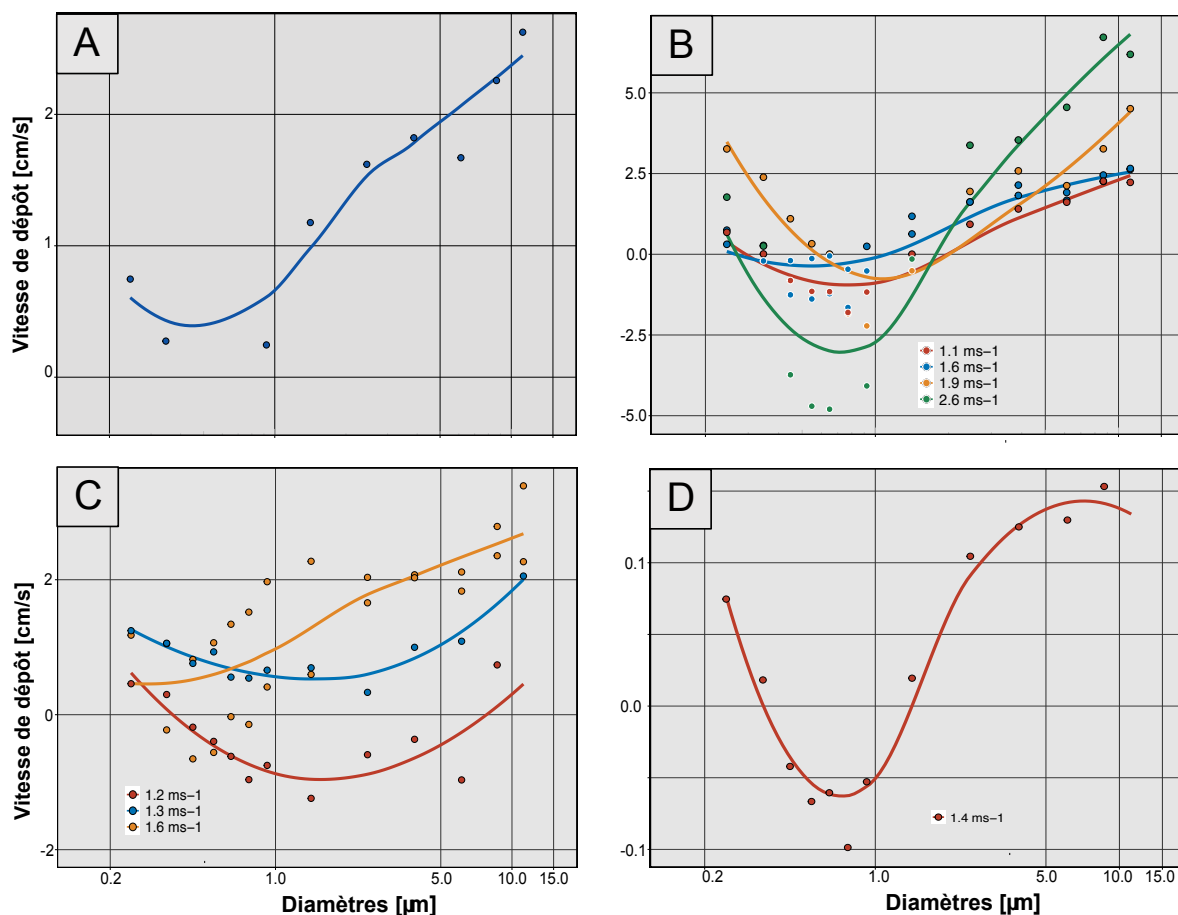


Figure 5.10 Vitesses de dépôt estimées pour [A] l'expérience sur *Eleagnus* discutée ci-dessus ; l'ensemble des manipulations expérimentales réalisées sur [B] *Eleagnus* ; [C] *Celtis australis* et ; [D] *Pinus halepensis*.

V.3.2.2 Vue par le magnétisme

De même que pour les micro-capteurs, les premiers tests de mesures magnétiques réalisées sur les prélèvements de feuilles d'une haie d'*Eleagnus* après l'expérience montrent des concentrations relatives (mesurées à partir des variations relatives de l'ARI_{1000mT}) nettement plus élevées en amont qu'en aval (Figure 5.11A). Ces observations sont conformes à nos attentes et nous permettent également de valider notre méthode. Comme je l'ai mentionné plus haut, les micro-capteurs ne sont pas capables de détecter les PUF. Or, la méthode magnétique est capable de détecter la présence de magnétite SD (de l'ordre de 25 nm) et MD (de l'ordre de 60 nm).

C'est pourquoi, nous avons vu un double intérêt à réaliser des mesures magnétiques sur les feuilles des haies étudiées : celui tout d'abord de mesurer les particules déposées sur

les feuilles afin de les comparer aux données des micro-capteurs situés avant et après la haie. En soi, la différence de concentrations entre avant et après la haie devrait se retrouver sur les feuilles (mesurées par le magnétisme). Ensuite celui d'utiliser la méthode magnétique pour prendre en compte les particules les plus fines, qui ne sont pas détectées par les micro-capteurs. Pour chaque manipulation, j'ai donc prélevé un nombre suffisant de feuilles pour remplir dix cubes en plexiglass de 8 cm³ de volume avant le début d'injection de polluant dans la haie. Cinq sur les 10 cubes ont reçu une ARA puis ont été mesurés, et les cinq autres ont reçu successivement une ARI_{100mT}, ARI_{300mT}, et ARI_{1000mT} puis ont été mesurés. A la fin de l'expérience (au bout d'environ 2h d'injection de diesel), j'ai prélevé des feuilles pour remplir 25 cubes pour les mesures d'ARA et 25 cubes pour les mesures d'ARI. Les résultats exposés comme exemple (Figure 5.11B) correspondent également à une des sept expériences réalisées sur une haie d'*Eleagnus*, la même que celle utilisée pour présenter les résultats des micro-capteurs dans la Figure 5.8.

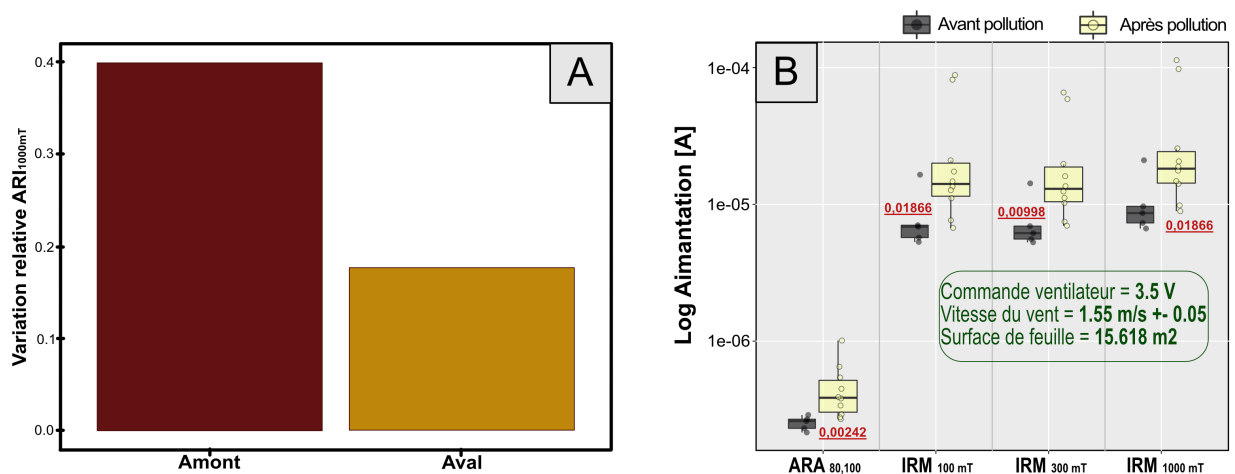


Figure 5.11 Mesures magnétiques effectuées sur des feuilles d'une haie d'*Eleagnus* : [A] Test de variation relative entre avant et après l'injection de polluant. Ce graphique montre la capacité de rétention de la haie en comparant les valeurs de variations relatives du paramètre magnétique en amont et l'aval de la haie, et [B] Résultats d'aimantations rémanentes réalisées sur les feuilles d'*Eleagnus* provenant de la même expérimentation que les données des micro-capteurs présentés précédemment. Les échantillons ont donc été récoltés avant et après 180 min d'injection de diesel Euro-4. En rouge sont les résultats des p-values calculées à partir du test de Wilcoxon.

Les résultats se présentent sous forme de variation relative entre les échantillons prélevés avant et ceux prélevés après l'injection de diesel pour les différentes aimantations

rémanentes mesurées. J'ai également utilisé le test Wilcoxon, un test non paramétrique permettant de comparer les moyennes entre avant et après. Si la p-value mesurée est ≤ 0.05 , cela veut dire que les deux moyennes (avant/après) sont significativement différentes. Que ce soit pour les ARAs ou ARIs mesurées, on observe une différence significative entre avant et après l'exposition des feuilles au polluant.

V.3.2.3 *Corrélation entre les deux approches*

Selon la littérature, les vitesses de dépôt peuvent se mesurer de diverses façons. Le traçage est la plus commune. Les polluants sont tracés en utilisant des espèces chimiques ou radioactives, normalement connues pour être absentes dans le milieu étudié. Ce traceur peut être généré par le polluant ou fixé sur un polluant déjà existant. Dans mon travail le principe reste le même, seulement le traçage ne se fait plus à partir d'espèces chimiques mais à l'aide des propriétés magnétiques (valeurs relatives d'intensités d'aimantation rémanente) des PM. Ainsi, ces données vont me permettre de mesurer le flux d'extraction du polluant de l'air vers les feuilles de la haie végétale étudiée. Pour ce faire, j'ai tenté de trouver une corrélation entre les vitesses de dépôt mesurées dans chaque expérimentation à partir des données de micro-capteurs avec les paramètres magnétiques mesurés sur les feuilles des haies. Selon *Rouspard. (2013)*, la vitesse de dépôt moyenne (\overline{V}_g) d'un aérosol polydispersé ou composé de plusieurs gammes de taille de PM se calcule à partir de l'équation suivante :

$$\overline{V}_g = \frac{\sum_i V_{gi} \times C_i}{\sum_i C_i}$$

avec V_{gi} la vitesse de dépôt des PM de gamme de taille i et C_i la concentration des particules de taille i .

Malheureusement au vu des résultats (*Figure 5.12*), je ne suis pas capable d'exprimer la moindre corrélation entre les deux méthodes.

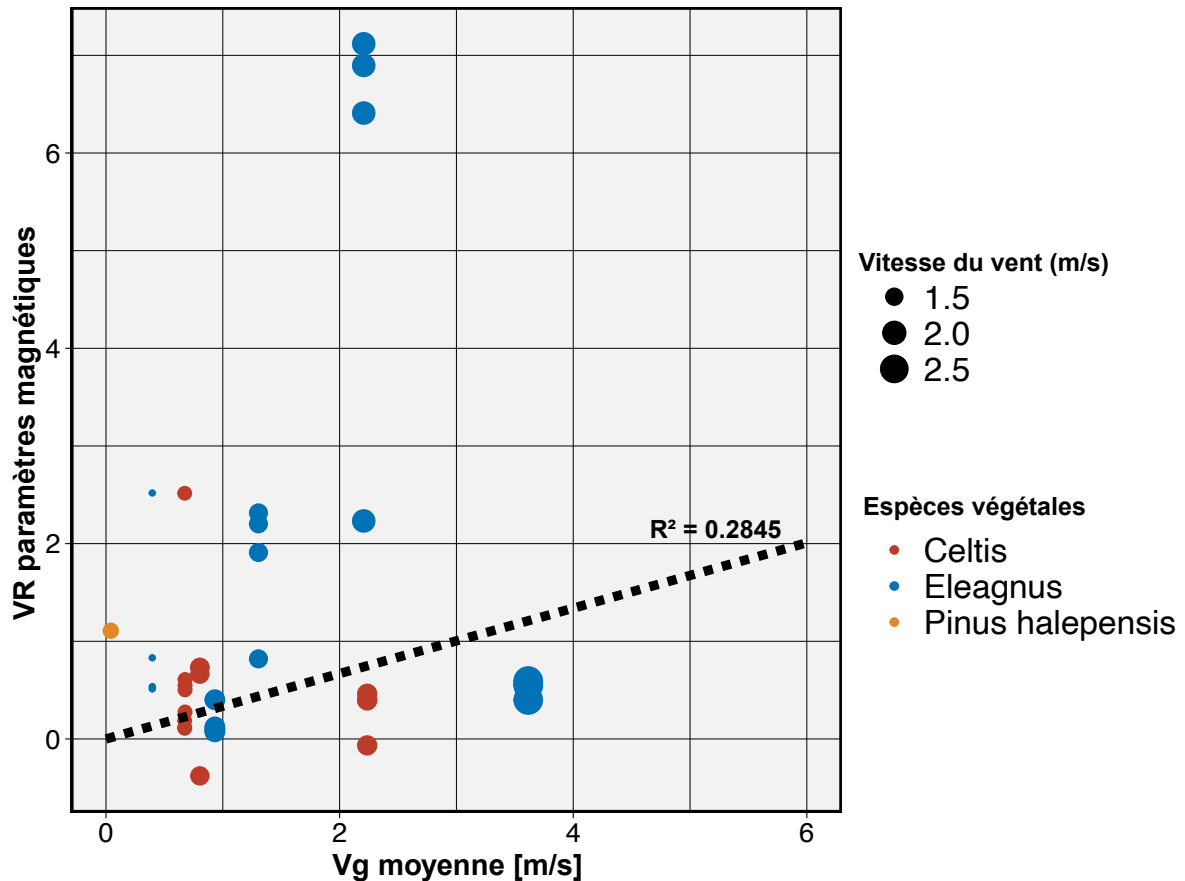


Figure 5.12 Mise en relation de la variation des paramètres magnétiques mesurés (ARA , ARI_{100mT} , ARI_{300mT} et ARI_{1000mT}) avec la vitesse de dépôt moyennée sur les classes de taille 0.2 à 12.5 μm .

V.4 DISCUSSION ET PERSPECTIVES

Les différentes expériences réalisées dans le tunnel à vent montrent que la captation de la matière particulaire par les végétaux peut être mise en évidence à la fois par nos mesures magnétiques et celles des micro-capteurs. Ceci a été faisable en fixant un maximum de paramètres possibles tels que la vitesse du vent dans le tunnel, la nature du polluant, la résistance de la haie et l'espèce végétale étudiée. Cependant, comme il reste difficile de contrôler les concentrations de polluants déjà présents dans l'air qui vont entrer dans le banc, les micro-capteurs situés en amont de la haie permettent de mesurer une concentration initiale qui sera utilisée pour normaliser le flux et ainsi permettre une comparaison entre les différentes expériences. *Wang et al., (2019)* ont également réalisé des

manipulations expérimentales semblables, à la différence que plusieurs paramètres physiques n'ont pas été fixés ou même mentionnés, ce qui rend les comparaisons entre expérimentations discutables. De plus, leurs données de concentrations en PM sont obtenues avec seulement un micro-capteur (GRIMM) qui est déplacé pendant l'expérimentation tantôt en amont, tantôt en aval de la végétation sur des intervalles de mesure de 7min consécutives. Je reste sceptique sur cette approche car j'ai eu l'occasion de comprendre à maintes reprises durant ma thèse que les données provenant des micro-capteurs sont complexes et à « prendre avec des pincettes ». Par exemple, nos deux LOACs situés seulement à 2m l'un de l'autre ne mesurent pas les mêmes concentrations lorsqu'il n'y a pas de haie, ce qui nous a obligé à calculer un offset entre les deux appareils. Malgré toutes nos réflexions et précautions, de nombreuses questions persistent. Étant donné que beaucoup de paramètres entrent en jeu, les expériences restent trop hétérogènes même si les différents paramètres cités ci-dessus sont fixés. De plus, la variabilité des mesures des micro-capteurs est trop grande, il semblerait que la correction d'offset calculée spécifiquement pour chaque gamme de taille de PM ne soit pas suffisante. De ce fait, on pourrait imaginer des expériences sur des haies artificielles, cela nous aiderait peut-être à corriger cette variabilité de manière plus précise. D'autre part, les conditions météorologiques restent un paramètre non négligeable. Malheureusement, les données de la station météo située sur le mât n'ont pas toujours été disponibles en raison d'un problème électronique. A l'avenir, il serait peut-être intéressant de trouver un moyen de normaliser ou corriger les données de concentrations en particules par des paramètres tels que l'humidité relative (RH), la température, et éventuellement la vitesse du vent extérieur.

Malgré toutes ces observations nous avons tout de même été en mesure de quantifier cette captation en terme de vitesse de dépôt pour différentes espèces végétales présentes en bordure des voies de circulation. En effet, tout comme *Wang et al., (2019)*, je souligne l'importance de déterminer des vitesses de dépôt pour chacune des espèces présentes dans chacun des cas d'étude afin que les modèles de dispersion des polluants n'aient plus à prendre de valeurs standards qui sous-estiment largement les capacités de rétention des PM par les végétaux. En revanche, on observe encore des vitesses de dépôt négatives entre 0.2 et 1 μm (*Figure 5.10*) et ceci, quelle que soit l'espèce. Comme cette

observation n'est physiquement pas compréhensible, je propose deux hypothèses : la première serait l'effet d'un arrachage des petites particules. Une précédente étude a d'ailleurs observé le même phénomène et a interprété cela comme la remise en suspension des petites particules déjà déposées (*Zhang et al., 2014*). Cette hypothèse aurait pu être validée ou invalidée avec la corrélation entre les mesures magnétiques et les vitesses de dépôt moyennées (*Figure 5.12*), si cet effet avait été également visible sur les mesures des paramètres magnétiques. On aurait pu éliminer les valeurs inférieures à zéro. Cependant aucune corrélation de ce type n'a pu être réalisée, la question reste donc en suspens. La seconde hypothèse serait la correction d'un autre offset des compteurs de particules qui permettrait de décaler toute la courbe vers le haut. Là aussi, je ne suis pas en mesure de le prouver pour le moment.

Enfin, les espèces végétales étudiées dans le tunnel à vent ont été spécifiquement choisies car on les retrouve au abords la jonction des autoroutes A9/A709 (*Chapitre II*) ainsi qu'en centre-ville de Montpellier (*Chapitre III*). Les perspectives de ce travail seront donc d'intégrer dans un modèle numérique les vitesses de dépôt déterminées pour chacune des espèces permettant ainsi d'estimer la part des polluants captée par la végétation. Ces résultats nous permettraient de conclure quant à la meilleure solution de mitigation dans ces deux zones d'étude. De plus, si les corrélations de ces modèles aux cartographies magnétiques de polluants s'avèrent suffisamment concluantes, on pourrait imaginer d'ajouter un paramètre magnétique dans les modèles numériques, ce qui pourrait dans certains cas, remplacer les valeurs de vitesses de dépôts qui sont moins aisées à acquérir.

CONCLUSION GENERALE

Ma thèse s'inscrit dans un projet ANR nommé BREATHE, un projet très ambitieux, novateur de par sa conception et sa pluridisciplinarité. C'est pourquoi, en dépit de ma formation déjà interdisciplinaire (océanographie, géosciences, sédimentologie, paléoclimatologie en Arctique et magnétisme des roches), ce projet m'a permis de découvrir de nouveaux champs disciplinaires et méthodes. Ce fut extrêmement enrichissant ! En effet, elle combine différents domaines scientifiques (magnétisme environnemental, physique de l'atmosphère, sciences humaines et sociales) et méthodes (magnétisme des roches, modélisation numérique et analogique, sciences participatives) afin d'assurer sa cohérence autour d'une problématique prenant une place majeure dans notre société actuelle : la surveillance et la mitigation de la pollution de l'air en milieux urbains/péri-urbains. Ceci a été traité grâce à une approche inhabituelle et sûrement peu connue des sciences de l'atmosphère basée sur les techniques du magnétisme environnemental. Grâce à la rapidité des analyses magnétiques, leurs faibles coûts et donc à la possibilité de multiplier les points de mesure, le développement de cette méthode appliquée à la qualité de l'air a fait l'objet de nombreuses études depuis le début des années 2000. On sait aujourd'hui que c'est une méthode potentiellement fiable qui donne des indications sur l'exposition chronique à micro-échelle. De ce fait, ma thèse s'interroge sur la possibilité de démocratiser la (bio)surveillance magnétique de la qualité de l'air. Peut-on amener cette méthode à un niveau de compréhension et de précision tels qu'elle pourrait être utilisable pour les citoyens dans leurs revendications pour un meilleur cadre de vie et les décideurs politiques dans leurs prises de décision ?

VI.1 LE MAGNETISME ENVIRONNEMENTAL AU SERVICE DE LA SURVEILLANCE DES PARTICULES EMISES PAR LE TRAFIC

L'approche du magnétisme environnemental permet de cartographier de manière simple et efficace les concentrations de polluants particulaires. Son degré de fiabilité a été évalué en comparant la cartographie magnétique avec un modèle numérique de dispersion des polluants aux abords d'une autoroute ([Chapitre II](#)). La corrélation entre ces différentes

méthodes peut être expliquée par l'identification dans les deux cas, et donc l'isolement de la principale source de polluants. En effet, dans le modèle numérique le trafic a été la seule source de pollution injectée de manière volumétrique sur les voies de circulation de la zone d'étude. Concernant la cartographie magnétique, la mesure magnétique des accumulations de polluants durant 3 mois sur des feuilles d'arbres/arbustes et des filtres passifs ont été exprimées en variations relatives (VR) permettant d'enlever le signal urbain de fond et ainsi d'isoler le signal trafic. Je suis aujourd'hui convaincue qu'il est incontournable d'exprimer les mesures de cartographie magnétiques en VR, quel que soit le paramètre magnétique utilisé (ARI, ARA ou encore la susceptibilité magnétique), et d'autant plus quand des comparaisons ou corrélations sont effectuées. L'expression de concentrations relatives sous forme de VR permet également de s'affranchir du signal provenant des métaux du sol qui peuvent parvenir jusqu'aux feuilles par translocation via le système racinaire, les branches et les tiges.

Les cartographies magnétiques se sont avérées également particulièrement bien adaptées à des études réalisées sous forme de Sciences Participatives. Les revendications citoyennes déjà présentes contre : l'élargissement des autoroutes A9/A709, un trafic trop important présent dans une petite rue canyon du centre-ville de Montpellier et les rejets d'une usine de traitement des déchets, nous ont rapidement permis d'identifier les possibilités et les limites d'une étude de cartographie magnétique citoyenne (**Chapitres II et III**). En identifiant les attentes, besoins et contraintes de chacun, il a été possible de créer une synergie entre les différents acteurs qu'ils soient citoyens, chercheurs académiques, élus ou même industriels. En s'entourant de collaborateurs provenant du domaine des Sciences Humaines et Sociales, il a été possible de mobiliser plusieurs dizaines de participants pour les différents chantiers d'étude en leur proposant des données pour illustrer leurs revendications et les faire valoir auprès des politiques publiques. En retour, j'ai pu tester la méthode de cartographie magnétique sur différentes zones urbaine et péri-urbaines en multipliant les stations de mesure. De plus, le citoyen étant déjà mobilisé, il n'a plus besoin d'être sensibilisé. En revanche, je me suis assurée que le protocole expérimental et la méthode soient bien assimilées par les participants afin de garantir la qualité des données récoltées. Pour cela, des outils classiques ont été mobilisés comme la création d'une page internet « BREATHE » (<https://breathe.hypotheses.org/>), l'organisation de

plusieurs réunions grand public et un Café citoyen où un repas et un concert ont été offerts à l'issue des débats réunissant toutes les parties prenantes. De plus, le rendu sous forme de cartographie a également été très apprécié par les participants puisqu'ils ont rapidement pu se localiser et donc identifier leur contribution ainsi que les degrés de pollutions les concernant. Ceci nous a d'ailleurs donné l'idée de proposer un indice de qualité de l'air magnétique qui pourrait permettre la démocratisation de la méthode magnétique mais également de simplifier les dialogues avec les partenaires diverses. J'espère que cet indice magnétique sera développé et repris largement par la communauté scientifique dans les futures études. Finalement, grâce à la facilité de mise en place du protocole et la rapidité d'acquisition de nombreuses données, le magnétisme environnemental se révèle être un outil très utile de Sciences participatives en produisant des cartes de pollution de haute résolution à l'échelle d'une rue, ce que les systèmes de surveillance conventionnels ne sont pas encore capable de réaliser. En revanche les résultats provenant de l'usine de traitement des déchets Ocréal ([Chapitre III](#)) nous a démontré les limites de cet outil. En effet, ce dernier s'avère très précis à l'échelle d'une rue ou d'un tronçon d'autoroute, mais très peu fiable à mesure qu'on s'éloigne de la principale source de pollution et donc lorsque l'on mélange les sources d'émissions. Dans le cas de l'usine OCREAL, les retombées potentielles des cheminées vont se faire sur des secteurs où l'on va aussi avoir des sources d'émission liées au trafic routier, ferroviaire, et à la présence de villes et villages.

En outre, en utilisant plusieurs surfaces accumulatrices telles que les feuilles de végétaux ou les filtres passifs, le magnétisme s'avère tout autant efficace quel que soit le support, tant que celui-ci n'est évidemment pas magnétique de prime abord. L'utilisation de végétaux endémiques à la biosurveillance magnétique de la qualité de l'air permet une meilleure couverture spatiale et un système d'évaluation de la mitigation de la pollution par les plantes non négligeable à considérer. En contrepartie, certains paramètres restent difficiles à maîtriser comme ceux jouant un rôle à l'interface air-feuille (caractéristiques des feuilles, temps d'exposition, effets de la météo, etc.).

Finalement, il a été démontré que le magnétisme doit permettre de décrire les différentes sources liées au trafic (pneu, pots d'échappement, produits d'abrasion, remise en suspension) et ainsi de les discriminer dans le signal total mesuré sur les surfaces accumulatrices ([Chapitre IV](#)). Ceci représente un résultat majeur qui améliore notre

compréhension de ce que nous mesurons avec cette technique, permettant ainsi d'alimenter des modèles « source-to-sink » (testé ici avec du Machine Learning, [Chapitre IV](#)). Les paramètres majeurs identifiés pourraient, à terme, être inclus dans les modèles de dispersion de polluants et permettre d'augmenter leurs résolutions. Ce travail demande d'être finaliser en ajoutant des échantillons de source supplémentaires afin d'assurer la représentativité de ce que nous pouvons retrouver en milieux urbains.

VI.2 LE MAGNETISME ENVIRONNEMENTAL AU SERVICE DE LA MITIGATION DE LA POLLUTION DE L'AIR

Un autre sujet très dynamique dans la littérature scientifique est la recherche de moyens pour améliorer la qualité de l'air en milieux urbains et péri-urbains. Les résultats du [Chapitre II](#), qu'ils proviennent de la modélisation ou de la cartographie magnétique montrent une hausse des concentrations de polluants derrière le mur anti-bruit. L'autoroute se trouvant dans un milieu hautement dispersif, la construction de ce mur du côté vent dominant a favorisé l'accumulation de polluants sur les voies de circulation situées derrière le mur anti-bruit. Même si ce dernier protège finalement les habitants du village de Saint-Aunès et qu'il a été construit exclusivement pour atténuer la pollution sonore provenant de l'autoroute, il s'avère qu'au vu de la configuration de la zone d'étude et de la direction du vent dominant, ce sont finalement les usagers de l'autoroute dans le sens Nord-Sud qui sont les plus exposés. Cet exemple illustre bien que l'identification et la prise en compte de multiples paramètres tels que : les sources de polluants, la configuration de la zone d'étude, la rugosité des bâtiments, ou encore la direction et vitesse du vent dominant restent primordiales. Ajouté à cela, les effets des végétaux : qu'ils soient efficaces dans la rétention des polluants ou obstruents à leurs dispersions, ont été démontrés à de multiples reprises par des études expérimentales sur des végétaux ou des modélisations numériques de dispersion de polluants. C'est pourquoi, il devient primordial de prendre en compte ces effets dans les modèles grâce au calcul de leurs vitesses de dépôt (V_g). Le développement d'un tunnel à vent expérimental (ZephyrLab) tout équipé de capteurs low-cost m'a justement offert la possibilité de travailler sur l'efficacité de rétention de haies

urbaines naturelles. Ces modélisations analogiques nous ont permis de déterminer les vitesses de dépôt pour chaque haie étudiée ([Chapitre V](#)).

Le bémol de cette étude est que pour l'instant nous n'avons pas trouvé de corrélation franche entre les vitesses de dépôt et les indicateurs de concentration de polluants fournis par les paramètres magnétiques. Ce chapitre ouvre de nombreuses perspectives de recherche pour essayer de comprendre ce résultat. Les pistes portent en particulier sur un questionnement des mesures issues des compteurs de particule low-cost et des protocoles expérimentaux que j'ai mis en œuvre. Il reste notamment à tester de nouvelles sources de polluants.

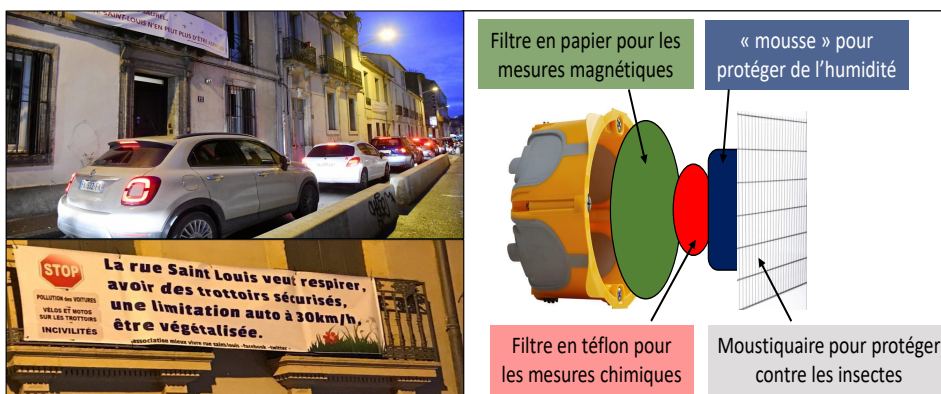
ANNEXES

Annexe 1A: Kit de pose distribué au citoyen pour les accompagner dans la pose de leurs boîtiers.



MESURES CITOYENNES DE LA QUALITE DE L'AIR DANS LE QUARTIER DES ARCEAUX, MONTPELLIER

<https://breathe.hypotheses.org>



Avant tout, **un grand merci** pour votre participation à notre projet scientifique visant à étudier la qualité de l'air dans le quartier des arceaux autour de la rue Saint-Louis à l'aide d'une méthode innovante combinant une mesure magnétique et une mesure géochimique des particules fines provenant du trafic routier.

Votre rôle commence donc par la pose des boîtiers contenant les filtres à air sur votre balcon (protocole ci-dessous).

Pour cela on vous a remis **un kit par balcon** comportant :

- **1 boîtier** pour des **mesures chimiques** (permettant de déterminer la source des polluants)
- **1 boîtier** pour les **mesures magnétiques** (permettant de mesurer des concentrations relatives de pollution). Ces boîtiers, sauf cas particuliers, seront à laisser en place pour une durée d'environ **3 mois**.
- **1 paire de gants**

- **1 bout de ficelle** aidant à fixer les filtres au balcon
- **2 sachets** pour la récupération des échantillons
- **Formulaire** à remplir

Comment positionner les boîtiers sur vos balcons ?

*(Nous vous conseillons de le lire en entier avant de commencer.
Vous trouverez également quelques images illustrant le protocole à la fin)*

Étape 1 : Préparation

- Vous munir de la paire de gants
- Sortir délicatement le boîtier du sachet
- Pour positionner bien droit le boîtier, il vous faut trouver un point d'équilibre en déplaçant les nœuds des ficelles autour du boîtier.

Étape 2 : Pose

- Ajuster la longueur des ficelles : le boîtier doit pendre dans le vide et ne pas reposer sur une surface. Dans l'idéal il doit être accroché court (environ 10 cm) pour éviter qu'il n'y ait trop de prise au vent.
- Accrocher le boîtier au balcon en faisant un nœud bien solide en vérifiant qu'il soit bien à l'horizontal. Vous pouvez également scotcher le nœud au balcon pour plus de précautions.
- Répéter l'opération avec le second boîtier (et plus pour certains cas) en les espaçant d'au moins 1 m.

Quelques précautions à prendre



- ⇒ Toujours manipuler les boîtiers avec des gants.
- ⇒ Essayer de ne pas toucher le boîtier mais seulement les ficelles.
- ⇒ S'assurer que les deux boîtiers soient bien droits et qu'ils ne s'emmêlent pas.
- ⇒ Éviter toute pollution supplémentaire à proximité des boîtiers (fumée de cigarette, remise de poussière en suspension, travaux, etc)

Étape 3 : Communiquer avec nous

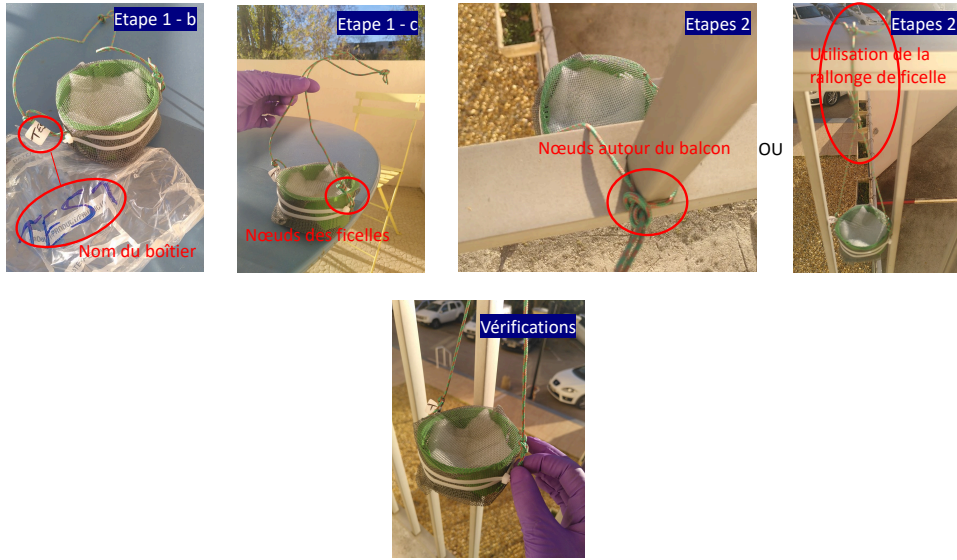
- a. Remplir le formulaire ci-joint
- b. Veuillez nous envoyer ce formulaire à l'email suivant :
sarah.letaief@umontpellier.fr

Vous pouvez également y ajouter quelques photos de votre installation à votre convenance ! En cas de doute ou d'une quelconque question, n'hésitez pas à contacter Sarah Letaief (doctorante responsable de l'étude métrologie) par email ou par téléphone (0627818611).

Étape 4 : Récupération des boîtiers

Nous communiquerons avec vous sur la période de récupération des boîtiers qui se fera (sauf cas particuliers des mesures temporelles) dans 3 mois.

- a. Vous munir à nouveau des gants que vous avez soigneusement gardé dans le sac plastique.
- b. Ouvrir le sachet plastique correspondant au boîtier que vous allez prélever.
- c. Couper les ficelles avec un ciseaux et laisser tomber le boîtier directement dans le sachet dans le toucher.
- d. Prendre soin de bien maintenir le boîtier à l'horizontale pour éviter toute perte de poussière.
- e. Refermer bien le sachet.
- f. Faire de même pour le/les autres boîtiers.
- g. Remplir sur le formulaire la date et heure de récupération puis nous l'envoyer à nouveau.



Annexe 1B : Fiche de renseignement à remplir par les participants renseignant sur la localisation, la date de pose et de retrait des filtres.

Formulaire de renseignement sur les boîtiers

Merci de bien veiller à placer **un filtre chimie** et **un filtre magnétisme** pour **chaque emplacement**.
 Ces filtres sont différenciés par un **code couleur** (bleu = chimie et rouge = magnétisme) sur l'étiquette du boîtier ainsi que par leur **nom** (B2 = filtre magnétisme n°2; C2 = filtre chimie n°2).

Nom & prénom : -----

Adresse : -----

Etage : -----

Date & heure de pose : -----

	Boîtier 1	Boîtier 2	Boîtier 3	Boîtier 4
Nom	-----	-----	-----	-----
Localisation <i>(côté cour ou côté rue)</i>	-----	-----	-----	-----
Date & heure de récupération:	-----	-----	-----	-----

RÉFÉRENCES

Abhijith, K. V.; Kumar, P.; Gallagher, J.; MaNabola, A.; Baldauf, R.; Pilla, F.; Broderick, B.; Di Sabatino, S.; Pulvirenti, B. Air pollution abatement performances of green infrastructure in open road and built-up street canyon environments – A review. *Atmos. Environ.* **2017**, 162, 71–86.

Abu-Allaban, M., Gillies, J. A., Gertler, A. W., Clayton, R., & Proffitt, D. Tailpipe, resuspended road dust, and brake-wear emission factors from on-road vehicles. *Atmospheric environment.* **2003**, 37(37), 5283-5293.

Aitchison, J., and Brown, J.A.C. *The Lognormal Distribution Function*, Cambridge Univ. Press, Cambridge, UK. **1957**.

Allen, J. O., Alexandrova, O., and Kaloush, K. E. Tire wear emissions for asphalt rubber and Portland cement concrete pavement surfaces. **2006**.

Amaral, S. S., De Carvalho, J. A., Costa, M. A. M., and Pinheiro, C. An overview of particulate matter measurement instruments. *Atmosphere.* **2015**, 6(9), 1327-1345.

Amato, F., Karanasiou, A., Moreno, T., Alastuey, A., Orza, J. A. G., Lumbreras, J., ... and Querol, X. Emission factors from road dust resuspension in a Mediterranean freeway. *Atmospheric Environment.* **2012**, 61, 580-587.

ANSES. *Particules de l'air Ambiant Extérieur. Effets Sanitaires des Particules de L'air Ambiant Extérieur Selon les Composés, les Sources et la Granulométrie. Impact sur la Pollution Atmosphérique des Technologies et de la Composition du Parc de Véhicules Automobiles Circulant en France, Avis de l'ANSES.* **2019**.

Ares, A., J. R. Aboal, A. Carballeira, S. Giordano, P. Adamo, and J. A. Fernández. Moss bag biomonitoring: A methodological review. *Science of The Total Environment.* **2012**, 432:143-158.

ATMO-Occitanie, Commune de Saint-Aunès : Évaluation de l'efficacité des haies végétalisées sur la qualité de l'air, rapport annuel **2019**.

ATMO-Occitanie, Commune de Saint-Aunès : Évaluation de l'efficacité des haies végétalisées sur la qualité de l'air, rapport annuel **2020**, <https://atmo-occitanie.org/commune-de-saint-aunes-evaluation-de-lefficacite-des-haies-vegetalisees-sur-la-qualite-de-lair-2020> (consulté le 22 Juillet 2022).

Austin, E., Novosselov, I., Seto, E., and Yost, M. G. Laboratory evaluation of the Shinyei PPD42NS low-cost particulate matter sensor. *PloS one.* **2015**, 10(9), e0137789.

Baensch-Baltruschat, B., Kocher, B., Stock, F., & Reifferscheid, G. Tyre and road wear particles (TRWP)-A review of generation, properties, emissions, human health risk, ecotoxicity, and fate in the environment. *Science of the total Environment.* **2020**, 733, 137823.

Beckett, K. P., Freer-Smith, P. H., and Taylor, G. Particulate pollution capture by urban trees: effect of species and windspeed. *Global change biology.* **2000b**, 6(8), 995-1003.

Bessagnet, B., Allemand, N., Putaud, J. P., Couvidat, F., André, J. M., Simpson, D., ... & Thunis, P. Emissions of Carbonaceous Particulate Matter and Ultrafine Particles from Vehicles—A Scientific Review in a Cross-Cutting Context of Air Pollution and Climate Change. *Applied Sciences*. **2022**, 12(7), 3623.

Birmili, W.; Allen, A.G.; Bary, F.; Harrison, R.M. Trace metal concentrations and water solubility in size-fractionated atmospheric particles and influence of road traffic. *Environ. Sci. Technol.* **2006**, 40, 1144–1153.

Bonney, R., Phillips, T.B., Ballard, H.L., and Enck, J.W. Can citizen science enhance public understanding of science? *Public Understanding of Science*, 0963662515607406. **2015**.

Bosanquet, C.H. and Pearson, J.L. The spread of smoke and gases from chimney, *Trans. Faraday Soc.*, 32:1249, **1936**.

Boucher, O., Lohmann, U. The sulfate-CCN-cloud albedo effect—a sensitivity study with 2 general-circulation models. *Tellus Series B-Chemical and Physical Meteorology*. **1995**, 47 (3), 281–300.

Brandt J., Mikkelsen T., Thykier-Nielsen S., Zlatev Z., Using a combination of two models in tracer simulations, *Math. Comput. Model.*, 23, **1996**, 99– 115.

Britter, R. E., and Hanna, S. R. Flow and dispersion in urban areas. *Annual review of fluid mechanics*. **2003**, 35(1), 469-496.

Bush, J., Moffatt, S., and Dunn, C.E. (2001) Keeping the public informed? Public negotiation of air quality information. *Public Understanding of Science*, 10, 213–229. **2001**.

Cao, L., Appel, E., Hu, S., & Ma, M. An economic passive sampling method to detect particulate pollutants using magnetic measurements. *Environmental Pollution*, 205, **2015**, 97-102.

Carruthers D. J., Dyster S. J., McHugh C. A., Factors affecting inter-annual variability of NO_x and NO₂ concentrations from single point sources, *Clean Air and Environmental Protection*, 33, **2003**, 15–20.

Carruthers D. J., Holroyd R. J., Hunt J. C. R., Weng W-S., Robins A. G., Thomson D. J., Smith, F. B., UK- ADMS, a new approach to modelling dispersion in the earth's atmospheric boundary layer, *J. Wind Eng. Ind. Aerod.*, 52, **1994**, 139–153.

Carsignol, J ; Calovi, L. La Pollution des Sols et des Végétaux à Proximité des Routes—Les éléments Traces Métalliques (ETM) ; SETRA : Sourdun, France. **2004**.

Carson, M. A., Doberneck, D. M., Hart, Z., Kelsey, H., Pierce, J. Y., Porter, D. E., ... & Triezenberg, H. A. A Strategic Framework for Community Engagement in Oceans and Human Health. *Community Science*, 1(1), e2022CSJ000001. **2022**.

Carvallo, C., Dunlop, D.J., Özdemir, Ö. Experimental comparison of FORC and remanent Preisach diagrams. *Geophys. J. Int.* 162, 747–754, **2005**.

Chamberlain, A. C. Transport of gases to and from grass and grass-like surfaces. *Proceedings of the Royal Society of London. Series A. Mathematical and Physical Sciences*. **1966**, 290(1421), 236-265.

Charlson, R.J., et al. Climate forcing by anthropogenic aerosols. *Science*. **1992**, 255 (5043), 423–430.

Charron, A., Polo-Rehn, L., Besombes, J. L., Golly, B., Buisson, C., Chanut, H., ... & Jaffrezo, J. L. Identification and quantification of particulate tracers of exhaust and non-exhaust vehicle emissions. *Atmospheric Chemistry and Physics*. **2019**, 19(7), 5187-5207.

Chen Q., Prediction of room air motion by Reynolds- stress models. *Build. Environ.*, **1996**, 31(3), 233–244.

Ciencewicki, J., Jaspers, I. Air pollution and respiratory viral infection. *Inhalation Toxicology*. **2007**, 19 (14), 1135–1146.

Conrad, C., and Daoust, T. Community-based monitoring frameworks: Increasing the effectiveness of environmental stewardship. *Environmental Management*, 41, 356–358. **2008**.

Conrad, C.C. and Hilchey, K.G. A review of citizen science and community- based environmental monitoring: Issues and opportunities. *Environmental monitoring and assessment*, 176, 273–291. **2011**.

Cooper, C. B., Dickinson, J., Phillips, T., & Bonney, R. Citizen science as a tool for conservation in residential ecosystems. *Ecology and Society*, 12, 11–21. **2007**.

Cornwell, M.L. and Campbell, L.M. Co-producing conservation and knowledge: Citizen-based sea turtle monitoring in North Carolina, USA. *Social Studies of Science*, 42, 101–120. **2012**.

Crilly, L. R., Shaw, M., Pound, R., Kramer, L. J., Price, R., Young, S., ... and Pope, F. D. Evaluation of a low-cost optical particle counter (Alphasense OPC-N2) for ambient air monitoring. *Atmospheric Measurement Techniques*. **2018**, 11(2), 709-720.

Dahl, A., Gharibi, A., Swietlicki, E., Gudmundsson, A., Bohgard, M., Ljungman, A., ... and Gustafsson, M. Traffic-generated emissions of ultrafine particles from pavement-tire interface. *Atmospheric Environment*. **2006**, 40(7), 1314-1323.

Davies, L., Bates, J., Bell, J., James, P., and Purvis, O. Diversity and sensitivity of epiphytes to oxides of nitrogen in London. *Environmental Pollution*, 146, 299–310. **2007**.

Day, R., Fuller, M., & Schmidt, V. A. Hysteresis properties of titanomagnetites: grain-size and compositional dependence. *Physics of the Earth and planetary interiors*, 13(4), 260-267, **1977**.

De Marco, A., Proietti, C., Anav, A., Ciancarella, L., D'Elia, I., Fares, S., ... & Leonardi, C. Impacts of air pollution on human and ecosystem health, and implications for the National Emission Ceilings Directive: Insights from Italy. *Environment International*. **2019**, 125, 320-333.

De Miguel, E.; Llamas, J.F.; Chacón, E.; Berg, T.; Larssen, S.; Røyset, O.; Vadset, M. Origin and patterns of distribution of trace elements in street dust: Unleaded petrol and urban lead. *Atmos. Environ.* **1997**, 31, 2733–2740.

Denier van der Gon, H. A., Gerlofs-Nijland, M. E., Gehrig, R., Gustafsson, M., Janssen, N., Harrison, R. M., ... and Cassee, F. R. The policy relevance of wear emissions from road transport, now and in the future—an international workshop report and consensus statement. *Journal of the Air & Waste Management Association*. **2013**, 63(2), 136-149.

Dunlop, D. J. and Özdemir, Ö. *Rock magnetism: fundamentals and frontiers* (No. 3). Cambridge university press. **2001**.

Dunlop, D. J. High-temperature susceptibility of magnetite: a new pseudo-single-domain effect. *Geophysical Journal International*, 199(2), 707-716, **2014**.

Dzierzanowski, K.; Popek, R.; Gawronska, H.; Saebø, A.; Gawronski, S.W. Deposition of particulate matter of different size fractions on leaf surfaces and in waxes of urban forest species. *Int. J. Phytorem.* **2011**, *13*, 1037–1046.

EEA. 2012. *Air Quality in Europe - 2012 Report*. European Environment Agency, Copenhagen, Denmark.

EEA. 2013. *Air quality in Europe - 2013 report*. European Environment Agency, Copenhagen, Denmark.

EEA. *Air quality in Europe 2021*. Copenhagen. <https://doi.org/10.2800/549289>

Egli, R. and Lowrie, W. An hysteretic remanent magnetization of fine magnetic particles. *Journal of Geophysical Research: Solid Earth.* **2002**, *107*(B10), EPM-2.

Egli, R. *Magnetic Characterization of Geologic Materials with First-Order Reversal Curves*. In: Franco, V., Dodrill, B. (eds) *Magnetic Measurement Techniques for Materials Characterization*. Springer, Cham., **2021**, https://doi.org/10.1007/978-3-030-70443-8_17.

Environmental Protection Agency, (U.S.). *Air Quality Criteria for Particulate Matter*. Office of Research and Development, Office of Health and Environmental Assessment, Research Triangle Park, N.C. EPA report no. EPA/600/P-95/001aF. **1996**.

EPA. **2010**. *Our Nation's Air-Status and Trends through 2008*. Environmental Protection Agency (EPA), United States.

Evans, M. E., & Heller, F. *Environmental magnetism: principles and applications of enviromagnetics*. Elsevier. **2003**.

Fabian, K. Some additional parameters to estimate domain state from isothermal magnetization measurements. *Earth and Planetary Science Letters*, *213*(3-4), 337-345, **2003**.

Feinberg, S., Williams, R., Hagler, G. S., Rickard, J., Brown, R., Garver, D., ... and Garvey, S. Long-term evaluation of air sensor technology under ambient conditions in Denver, Colorado. *Atmospheric measurement techniques.* **2018**, *11*(8), 4605-4615.

Freer-Smith, P., El-Khatib, A., Taylor, G. Capture of particulate pollution by trees: a comparison of species typical of semi-arid areas (*ficus nitida* and *eucalyptus globulus*) with european and north american species. *Water, Air, Soil Pollut.* *155* (1-4), 173-187. **2004**.

Fuchs, N.A. *The mechanics of the Aerosols*, Pergamon, New York. **1964**.

Gadsdon, S.R., Dagley, J.R., Wolseley, P.A., and Power, S.A. Relationships between lichen community composition and concentrations of NO₂ and NH₃. *Environmental Pollution*, *158*, 2553–2560. **2010**.

Gómez-Paccard, M., G. McIntosh, V. Villasante, M. L. Osete, J. Rodriguez-Fernández, and J. C. Gómez-Sal. Low-temperature and high magnetic field measurements of atmospheric particulate matter. *Journal of Magnetism and Magnetic Materials.* **2004**, 272–276, Part 3:2420-2421.

Gonet, T., & Maher, B. A. Airborne, vehicle-derived Fe-bearing nanoparticles in the urban environment: a review. *Environmental Science & Technology.* **2019**, *53*(17), 9970-9991.

Grange, S. K., Fischer, A., Zellweger, C., Alastuey, A., Querol, X., Jaffrezo, J. L., ... & Hueglin, C. Switzerland's PM₁₀ and PM_{2.5} environmental increments show the importance of non-exhaust emissions. *Atmospheric Environment:* **2021**, *12*, 100145.

Grell G. A., Peckham S. E., McKeen S., Schmitz R., Frost G., Skamarock W. C., Eder B., Fully coupled “online” chemistry within the WRF model, *Atmos. Environ.*, 39, **2005**, 6957–6975.

Gromke, C., Ruck, B. Influence of trees on the dispersion of pollutants in an urban street canyon experimental investigation of the flow and concentration field. *Atmospheric Environment* 41 (16), 3287-3302. **2007**.

Gromke, C., Ruck, B. On the impact of trees on dispersion processes of traffic emissions in street canyons. *Boundary-layer Meteorology* 131 (1), 19-34. **2009**.

Gromke, C., Ruck, B. Pollutant concentrations in street canyons of different aspect ratio with avenues of trees for various wind directions. *Boundary-layer Meteorology* 144, 41-64. **2012**.

Hama, S. M. L.; Cordell, R. L.; Monks, P. S. Quantifying primary and secondary source contributions to ultrafine particles in the UK urban background. *Atmos. Environ.* **2017**, 166, 62–78.

Hansard, R.; Maher, B. A.; Kinnersley, R. Biomagnetic monitoring of industry-derived particulate pollution. *Environ. Pollut.* **2011**, 159, 1673–1681.

Hansen, J., Nazarenko, L. Soot climate forcing via snow and ice albedos. *Proceedings of the National Academy of Sciences of the United States of America.* **2004**, 101 (2), 423–428

Harrison, R. M., Jones, A. M., Gietl, J., Yin, J., and Green, D. C. Estimation of the contributions of brake dust, tire wear, and resuspension to non-exhaust traffic particles derived from atmospheric measurements. *Environmental science & technology.* **2012**, 46(12), 6523-6529.

Haywood, J., Boucher, O. Estimates of the direct and indirect radiative forcing due to tropospheric aerosols: a review. *Reviews of Geophysics.* **2000**, 38 (4), 513–543.

Haywood, J.M., Shine, K.P. The effect of anthropogenic sulfate and soot on the clear sky planetary radiation budget. *Geophysical Research Letters.* **1995**, 22, 603–606.

Hedges, A. Air Quality Information, Report on Consultancy and Research. Unpublished report prepared for the Department of the Environment, London, UK. **1993**.

Hejda, P., Zelinka, T. Modeling of hysteresis processes in magnetic rock samples using the Preisach diagram. *Phys. Earth Planet. Sci. Lett.* 63, 32–40, **1990**.

Heslop, D., Dekkers, M. J., Kruiver, P. P., & Van Oorschot, I. H. M. Analysis of isothermal remanent magnetization acquisition curves using the expectation-maximization algorithm. *Geophysical Journal International*, 148(1), 58-64. **2002**.

Hinds, W.C. *Aerosol Technology: Properties, Behavior, and Measurement of Airborne Particles*, 2nd ed.; John Wiley & Sons: Hoboken, NJ, USA, **1999**.

Hunt, C. P.; Moskowitz, B. M.; Banerjee, S. K. Magnetic properties of rocks and minerals. In *Rock physics & phase relations: A handbook of physical constants*; Ahrens, T. J., Ed.; AGU Reference Shelf; American Geophysical Union: Washington, D.C. **1995**, Vol. 3, pp 189–204.

Jacobson, M.Z. Climate response of fossil fuel and biofuel soot, accounting for soot’s feedback to snow and sea ice albedo and emissivity. *Journal of Geophysical Research Atmospheres.* **2004**, 109 (D21).

Jackson, M., Gruber, W., Marvin, J. and Banerjee, S.K. Partial anhysteretic remanence and its anisotropy: applications and grain-size dependence. *Geophys. Res. Lett.*, 15: 440-443, **1988**.

Janháň, S. Review on urban vegetation and particle air pollution – Deposition and dispersion. *Atmos. Environ.* **2015**, 105, 130–137.

Jayarathne, R., Liu, X., Thai, P., Dunbabin, M., and Morawska, L. The influence of humidity on the performance of a low-cost air particle mass sensor and the effect of atmospheric fog. *Atmospheric Measurement Techniques.* **2018**, 11(8), 4883-4890.

Jeanjean, A. P. R.; Monks, P. S.; Leigh, R. J. Modelling the effectiveness of urban trees and grass on PM_{2.5} reduction via dispersion and deposition at a city scale. *Atmos. Environ.* **2016**, 147, 1–10.

Jeanjean, A. P. R.; Buccolieri, R.; Eddy, J.; Monks, P. S.; Leigh, R. J. Air quality affected by trees in real street canyons: The case of Marylebone neighbourhood in central London. *Urban For. Urban Green.* **2017**, 22, 41–53.

Jones, A., Roberts, D.L., Slingo, A. A climate model study of indirect radiative forcing by anthropogenic sulfate aerosols. *Nature.* **1994**, 370 (6489), 450–453.

Joshi, G. K., Khot, A. Y., & Sawant, S. R. Magnetisation, curie temperature and Y- K angle studies of Cu substituted and non-substituted Ni-Zn mixed ferrites. *Solid state communications*, 65(12), 1593-1595, **1988**.

Kakosimos, K. E., Hertel, O., Ketznel, M., & Berkowicz, R. Operational Street Pollution Model (OSPM)—a review of performed application and validation studies, and future prospects. *Environmental Chemistry.* **2010**, 7(6), 485-503.

Kam, W., Liacos, J. W., Schauer, J. J., Delfino, R. J., and Sioutas, C. Size-segregated composition of particulate matter (PM) in major roadways and surface streets. *Atmospheric environment.* **2012**, 55, 90-97.

Kardel, F. *Urban habitat quality assessment based on plant leaf characteristics.* University of Antwerp, Antwerp. **2011**.

Kelly, K. E., Whitaker, J., Petty, A., Widmer, C., Dybwad, A., Sleeth, D., ... and Butterfield, A. Ambient and laboratory evaluation of a low-cost particulate matter sensor. *Environmental pollution.* **2017**, 221, 491-500.

Kole, P. J., Löhr, A. J., Van Belleghem, F. G., & Ragas, A. M. Wear and tear of tyres: a stealthy source of microplastics in the environment. *International journal of environmental research and public health.* **2017**, 14(10), 1265.

Kroll, J. H., Heald, C. L., Cappa, C. D., Farmer, D. K., Fry, J. L., Murphy, J. G., & Steiner, A. L. The complex chemical effects of COVID-19 shutdowns on air quality. *Nature Chemistry.* **2020**, 12(9), 777-779.

Kukutschova, J.; Moravec, P.; Tomašek, V.; Matejka, V.; Šmolík, J.; Schwarz, J.; Seiderova, J.; Šafařová, K.; Filip, P. On airborne nano/micro-sized wear particles released from low-metallic automotive brakes. *Environ. Pollut.* **2011**, 159 (4), 998–1006.

Kumar, P., Morawska, L., Martani, C., Biskos, G., Neophytou, M., Di Sabatino, S., ... and Britter, R. The rise of low-cost sensing for managing air pollution in cities. *Environment international.* **2015**, 75, 199-205.

Kumar, P., Pirjola, L., Ketznel, M., and Harrison, R. M. Nanoparticle emissions from 11 non-vehicle exhaust sources—a review. *Atmospheric Environment.* **2013**, 67, 252-277.

Lawrence, A. 'No personal motive?' Volunteers, biodiversity, and the false dichotomies of participation. *Ethics Place and Environment*, 9, 279–298. **2006**.

Leelőssy, Ádám, Molnár, Ferenc, Izsák, Ferenc, Havasi, Ágnes, Lagzi, István and Mészáros, Róbert. "Dispersion modeling of air pollutants in the atmosphere: a review" *Open Geosciences*, vol. 6, no. 3, **2014**, pp. 257-278.

Legg, C. J., and Nagy, L. Why most conservation monitoring is, but need not be, a waste of time. *Journal of Environmental Management*, 78, 194–199. **2006**.

Lehndorff, E.; Urvat, M.; Schwark, L. Accumulation histories of magnetic particles on pine needles as function of air quality. *Atmos. Environ.* **2006**, 40, 7082–7096.

Lewis, A. and Edwards, P. Validate personal air-pollution sensors, <https://doi.org/10.1038/535029a>. **2016**.

Liati, A.; Pandurangi, S. S.; Boulouchos, K.; Schreiber, D.; Arroyo Rojas Dasilva, Y. Metal nanoparticles in diesel exhaust derived by in-cylinder melting of detached engine fragments. *Atmos. Environ.* **2015**, 101, 34–40.

Liati, A.; Schreiber, D.; Dimopoulos Eggenschwiler, P.; Arroyo Rojas Dasilva, Y. Metal particle emissions in the exhaust stream of diesel engines: an electron microscope study. *Environ. Sci. Technol.* **2013**, 47 (24), 14495–14501.

Lowrie, W., and Fuller, M. On the alternating field demagnetization characteristics of multidomain thermoremanent magnetization in magnetite. *Journal of Geophysical Research*. **1971**, 76(26), 6339–6349.

Lu, S. G., Y. W. Zheng, and S. Q. Bai. A HRTEM/EDX approach to identification of the source of dust particles on urban tree leaves. *Atmospheric Environment*. **2009**, 42:6431–6441.

Lyons, R., Oldfield, F., & Williams, E. The possible role of magnetic measurements in the discrimination of Sahara/Sahel dust sources. *Earth Surface Processes and Landforms*. **2012**, 37(6), 594–606.

Maher, B. A. Magnetic properties of some synthetic sub-micro magnetites. *Geophys. J. Int.* **1988**, 94: 83–96.

Maher, B. A., C. Moore, and J. Matzka. Spatial variation in vehicle-derived metal pollution identified by magnetic and elemental analysis of roadside tree leaves. *Atmospheric Environment*. **2008**, 42:364–373.

Maher, B. A., I. A. M. Ahmed, B. Davison, V. Karloukovski, and R. Clarke. Impact of Roadside Tree Lines on Indoor Concentrations of Traffic-Derived Particulate Matter. *Environmental Science & Technology*. **2013**, 47:13737–13744.

Maher, B. A.; Ahmed, I. A. M.; Davison, B.; Karloukovski, V.; Clarke, R. Impact of roadside tree lines on indoor concentrations of traffic derived particulate matter. *Environ. Sci. Technol.* **2013**, 47,13737–13744.

Maher, B. A.; Thompson, R.; Hounslow, M. W. Introduction. In *Quaternary Climates, Environments and Magnetism*; Maher, B. A., Thompson, R., Eds.; Cambridge University Press: Cambridge. **1999**, pp 1–48.

Marin, J. M., & Robert, C. P. *Bayesian essentials with R* (Vol. 48). New York : Springer. **2014**.

Mathissen, M.; Scheer, V.; Vogt, R.; Benter, T. Investigation on the potential generation of ultrafine particles from the tire-road interface. *Atmos. Environ.* **2011**, 45 (34), 6172–6179.

Matthaios, V. N., Lawrence, J., Martins, M. A., Ferguson, S. T., Wolfson, J. M., Harrison, R. M., & Koutrakis, P. Quantifying factors affecting contributions of roadway exhaust and non-exhaust emissions to ambient PM_{10–2.5} and PM_{2.5–0.2} particles. *Science of The Total Environment*. **2022**, 835, 155368.

Matzka, J. and B. A. Maher. Magnetic biomonitoring of roadside tree leaves: identification of spatial and temporal variations in vehicle-derived particulates. *Atmospheric Environment*. **1999**. 33:4565–4569.

Matzka, J. *Magnetische, elektronenmikroskopische und lichtmikroskopische Untersuchungen an Stäuben und Aschen sowie an einzelnen Aschepartikeln*. University of München, München. **1997**.

Maxbauer, D. P., Feinberg, J. M., & Fox, D. L. MAX UnMix: A web application for unmixing magnetic coercivity distributions. *Computers & Geosciences*, 95, 140–145. **2016**.

Mayergoyz, I. *Mathematical Models of Hysteresis and Their Applications*, Elsevier, **2003**.

McIntosh, G., M. Gómez-Paccard, and M. L. Osete. *The magnetic properties of particles deposited on *Platanus x hispanica* leaves in Madrid, Spain, and their temporal and spatial variations*. *Science of The Total Environment*. **2007**, 382:135-146.

McDonald, A.G., Bealey, W.J., Fowler, D., Dragosits, U., Skiba, U., Smith, R.I., Donovan, R.G., Brett, H.E., Hewitt, C.N., Nemitz, E. *Quantifying the effect of urban tree planting on concentrations and depositions of PM10 in two UK conurbations*. *Atmospheric Environment* 41, 8455-8467. **2007**.

Mead, M. I., Popoola, O. A. M., Stewart, G. B., Landshoff, P., Calleja, M., Hayes, M., ... and Jones, R. L. *The use of electrochemical sensors for monitoring urban air quality in low-cost, high-density networks*. *Atmospheric Environment*. **2013**, 70, 186-203.

Mie, G. *Beiträge zur Optik trüber Medien, speziell kolloidaler Metallösungen*. *Annalen der physik*. **1908**, 330(3), 377-445.

Mitchell, R. and B. A. Maher. *Evaluation and application of biomagnetic monitoring of traffic-derived particulate pollution*. *Atmospheric Environment*. **2009**, 43:2095-2103.

Mitchell, R., Maher, B. A., and Kinnersley, R. *Rates of particulate pollution deposition onto leaf surfaces: temporal and inter-species magnetic analyses*. *Environmental Pollution*. 2010, 158(5), 1472-1478.

Morawska, L., Thai, P. K., Liu, X., Asumadu-Sakyi, A., Ayoko, G., Bartonova, A., ...and Williams, R. *Applications of low-cost sensing technologies for air quality monitoring and exposure assessment: How far have they gone?*. *Environment international*. **2018**, 116, 286-299.

Münzel, T., Gori, T., Al-Kindi, S., Deanfield, J., Lelieveld, J., Daiber, A., & Rajagopalan, S. *Effects of gaseous and solid constituents of air pollution on endothelial function*. *European heart journal*. **2018**, 39(38), 3543-3550.

Muxworthy, A. R., J. Matzka, and N. Petersen. *Comparison of magnetic parameters of urban atmospheric particulate matter with pollution and meteorological data*. *Atmospheric Environment*. **2001**, 35:4379-4386.

Nali, C. and G. Lorenzini. *Air Quality Survey Carried Out by Schoolchildren: An Innovative Tool for Urban Planning*. *Environmental Monitoring and Assessment*. **2007**, 131:201-210.

Namdeo A., Mitchell G., Dixon R., *TEMMS: an integrated package for modelling and mapping urban traffic emissions and air quality*, *Environ. Model. Softw.*, 17, **2002**, 177-188.

Néel, L. *Propriétés magnétiques des ferrites ; ferrimagnétisme et antiferromagnétisme*. In *Annales de physique* (Vol. 12, No. 3, pp. 137-198), **1948**.

Néel, L. *Aimantation à saturation de certains ferrites*. *Comptes Rendus Hebdomadaires Des Séances De l'Académie Des Sciences*, 230(2), 190-192, **1950a**.

Néel, L. *Aimantation à saturation des ferrites mixtes de nickel et de zinc*. *Comptes Rendus Hebdomadaires Des Séances De l'Académie Des Sciences*, 230(4), 375-377, **1950b**.

Néel, L. *Some theoretical aspects of rock-magnetism*. *Advances in physics*, 4(14), 191-243, **1955**.

Nowak, D.J. *Institutionalizing urban forestry as a "biotechnology" to improve environmental quality*. *Urban Forestry & Urban Greening*, 5, 93-100. **2006**.

- Nogués, J., & Schuller, I. K. Exchange bias. *Journal of Magnetism and Magnetic Materials*, 192(2), 203-232. **1999**.
- Okamoto, S. Permanent Magnet Materials. In *Magnetic Measurement Techniques for Materials Characterization* (pp. 683-695), **2021**. Springer, Cham.
- O'Rourke, D. and Macey, G.P. Community environmental policing: Assessing new strategies of public participation in environmental regulation. *Journal of Policy Analysis and Management*, 22, 383–414. **2003**.
- Oettl D., Uhmer U., Development and evaluation of GRAL-C dispersion model, a hybrid Eulerian- Lagrangian approach capturing NO-NO₂ -O₃ chemistry, *Atmos. Environ.*, 45, **2011**, 839–847.
- Pant, P. and Harrison, R. M. Estimation of the contribution of road traffic emissions to particulate matter concentrations from field measurements: A review. *Atmospheric environment*. **2013**, 77, 78-97.
- Pellegrini, E., Campanella, A., Lorenzini, G., and Nali, C. Biomonitoring of ozone: A tool to initiate the young people into the scientific method and environmental issues. A case study in Central Italy. *Urban Forestry & Urban Greening*, 13, 800–805. **2014**.
- Penkała, M., Ogrodnik, P., & Rogula-Kozłowska, W. Particulate matter from the road surface abrasion as a problem of non-exhaust emission control. *Environments*. **2018**, 5(1), 9.
- Penttinen, P., Timonen, K.L., Tiittanen, P., Mirme, A., Ruuskanen, J., Pekkanen, J. Ultrafine particles in urban air and respiratory health among adult asthmatics. *European Respiratory Journal*. **2001**, 17, 428–435.
- Peregrinus, P. *Epistola de Magnete* Trans. by Silvanus P. Thompson, *Epistle of Peter Perigrinus of Maricourt, to Sygerus of Foucaucourt, Soldier, Concerning Magnets*. **1269**.
- Peters, K., Eiden, R. Modelling the dry deposition velocity of aerosol particles to a spruce forest. *Atmos. Environ.* 26 (14), 2555-2564. **1992**.
- Phan, M. H., Alonso, J., Khurshid, H., Lampen-Kelley, P., Chandra, S., Stojak Repa, K., Nemat, Z., Das, R., Iglesias, Ó., Srikanth, H. Exchange bias effects in iron oxide-based nanoparticle systems. *Nanomaterials*, 6(11), 221. **2016**.
- Pike, C.R., Roberts, A.P., Verosub, K.L. Characterizing interactions in fine magnetic particle systems using first order reversal curves. *J. Appl. Phys.* 85, 6660–6667, **1999**.
- Popek, R.; Gawronńska, H.; Wrochna, M.; Gawronski, S.W.; Saebø, A. Particulate matter on foliage of 13 woody species: deposition on surfaces and phytostabilisation in waxes—a 3-year study. *Int. J. Phytorem.* **2013**, 15, 245–256.
- Preisach, F. Über die magnetische Nachwirkung. *Z. Phys.* 94, 277–302, **1935**.
- Przybysz, A.; Sæbø, A.; Hanslin, H.M.; Gawronski, S.W. Accumulation of particulate matter and trace elements on vegetation as affected by pollution level, rainfall and the passage of time. *Sci. Total Environ.* **2014**, 481, 360–369.
- Pullman, M. *Conifer PM_{2.5} Deposition and Re-suspension in Wind and Rain Events*. Master's thesis. Cornell University, p. 51. **2009**.
- Rahimi, M., Bortoluzzi, D., and Wahlström, J. Input parameters for airborne brake wear emission simulations: a comprehensive review. *Atmosphere*. **2021**, 12(7), 871.

Rai, A. C., Kumar, P., Pilla, F., Skouloudis, A. N., Di Sabatino, S., Ratti, C., ... and Rickerby, D. End-user perspective of low-cost sensors for outdoor air pollution monitoring. *Science of The Total Environment*. **2017**, 607, 691-705.

Rai, P.K. Environmental magnetic studies of particulates with special reference to biomagnetic monitoring using roadside plant leaves. *Atmospheric Environment*. **2013**, 72, 113–129.

Rapport annuel d'activité. Ocréal. **2018**: [Rapport d'activité - Suez](#) (consulté le 2/08/2022)

Renoux, A., and Boulaud, D. *Les aérosols : physique et métrologie*. Tec & Doc Lavoisier. **1998**.

Roberts, A.P., C.R. Pike, C.R., Verosub, K.L. First-order reversal curve diagrams: a new tool for characterizing the magnetic properties of natural samples. *J. Geophys. Res.* 105, 28461– 28475, **2000**.

Roberts, D.L., Jones, A. Climate sensitivity to black carbon aerosol from fossil fuel combustion. *Journal of Geophysical Research-Atmospheres*. **2004**, 109 (D16).

Robertson, D.J., France, D.E. Discrimination of remanence-carrying minerals in mixtures, using isothermal remanent magnetisation acquisition curves. *Phys. Earth Planet. Inter.* 82, 223–234, **1994**.
[https://doi.org/10.1016/0031-9201\(94\)90074-4](https://doi.org/10.1016/0031-9201(94)90074-4)

Rouspard, P. Étude phénoménologique du dépôt sec d'aérosols en milieu urbain : Influence des propriétés des surfaces, de la turbulence et des conditions météorologiques. *Doctoral dissertation, ROUEN, INSA*, **2013**.

Sæbø, A.; Popek, R.; Nawrot, B.; Hanslin, H. M.; Gawronska, H.; Gawronski, S. W. Plant species differences in particulate matter accumulation on leaf surfaces. *Sci. Total Environ.* **2012**, 427–428, 347– 354.

Santiago, J. L.; Martilli, A.; Martin, F. On dry deposition modelling of atmospheric pollutants on vegetation at the microscale: Application to the impact of street vegetation on air quality. *Bound-Layer Meteor.* **2017**, 162 (3), 451–474.

Schwartz, S.E. The Whitehouse effect–shortwave radiative forcing of climate by anthropogenic aerosols: an overview. *Journal of Aerosol Science*. **1996b**, 27 (3), 359–382.

Seed, L., Wolseley, P., Gosling, L., Davies, L., & Power, S. A. Modelling relationships between lichen bioindicators, air quality and climate on a national scale: Results from the UK OPAL air survey. *Environmental Pollution*, 182, 437-44. **2013**.

Sehmel, G.A. Particle and gaz dry deposition: a review. *Atmospheric Environment* (1967), vol. 14, no 9, p. 983-1011, **1980**.

Seinfeld, J., and Pandis, S. *Atmospheric Chemistry and Physics*. **2016**, 5th Edition. New York.

Setälä, H., Viippola, V., Rantalainen, A.-L., Pennanen, A., and Yli-Pelkonen, V. (2013) Does urban vegetation mitigate air pollution in northern conditions? *Environmental Pollution*, 183, 104–112. **2013**.

Silvertown, J. A new dawn for citizen science. *Trends in Ecology & Evolution*, 24, 467–471. **2009**.

Slinn, W. G. N. Predictions for particle deposition to vegetative canopies. *Atmospheric Environment* (1967), 16(7), 1785-1794, **1982**.

Snyder, E.G., Watkins, T.H., Solomon, P.A., Thoma, E.D., Williams, R.W., Hagler, G.S., Shelow, D., Hindin, D.A., Kilaru, V.J., and Preuss, P.W. The changing paradigm of air pollution monitoring. *Environmental Science & Technology*, 47, 11369–11377. **2013**.

Stone, V., Miller, M. R., Clift, M. J., Elder, A., Mills, N. L., Møller, P., ... & Cassee, F. R. Nanomaterials versus ambient ultrafine particles: an opportunity to exchange toxicology knowledge. *Environmental health perspectives*. **2017**,125(10), 106002.

Stull R. B., *An Introduction to Boundary Layer Meteorology*. Kluwer Academic Publishers, **1988**.

Szuskiewicz, M. M., Łukasik, A., Petrovský, E., Grison, H., Błońska, E., Lasota, J., & Szuskiewicz, M. Magneto-chemical characterisation of Saharan dust deposited on snow in Poland. *Environmental Research*. **2023**, 216, 114605.

Tauxe, L., Banerjee, S. K., Butler, R. F., & Van der Voo, R. *Essentials of Paleomagnetism*. **2016**, 4rd Web Edition.

Tallis, M., Taylor, G., Sinnett, D., Freer-Smith, P. Estimating the removal of atmospheric particulate pollution by the urban tree canopy of London, under current and future environments. *Landscape and Urban Planning* 103, 129-138. **2011**.

Terzaghi, E.; Wild, E.; Zacchello, G.; Cerabolini, B. E. L.; Jones, K. C.; Di Guardo, A. Forest Filter Effect: Role of leaves in capturing/releasing air particulate matter and its associated PAHs. *Atmos. Environ.* **2013**, 74, 378–384.

Thompson, R.; Oldfield, F. *Environmental Magnetism*; Springer Netherlands: Dordrecht, **1986**.

Thorpe, A., and Harrison, R. M. Sources and properties of non-exhaust particulate matter from road traffic: a review. *Science of the total environment*. **2008**, 400(1-3), 270-282.

Tipler, P. *Physics for Scientists and Engineers*. New York: W.H. Freeman. **1999**.

Van Wittenberghe, S., S. Adriaenssens, J. Staelens, K. Verheyen, and R. Samson. Variability of stomatal conductance, leaf anatomy, and seasonal leaf wettability of young and adult European beech leaves along a vertical canopy gradient. *Trees-Structure and Function*. **2012**, 26:1427-1438.

Vardoulakis, S., Gonzalez-Flesca, N., Fisher, B. E. A. and Pericleous, K. Spatial variability of air pollution in the vicinity of a permanent monitoring station in central Paris. In *Atmospheric Environment*. **2005**, vol. 39, 2725–2736.

Velasco, A., Ferrero, R., Gandino, F., Montrucchio, B., and Rebaudengo, M. A mobile and low-cost system for environmental monitoring: A case study. *Sensors*. **2016**, 16(5), 710.

Vos, P. E. J.; Maiheu, B.; Vankerkom, J.; Janssen, S. Improving local air quality in cities: to tree or not to tree? *Environ. Pollut.* **2013**, 183, 113–122.

Wahlin, P., Berkowicz, R., Palmagren, F. Characterisation of traffic-generated particulate matter in Copenhagen. *Atmospheric Environment*. **2006**, 40, 2151–2159

Wang, L.; Gong, H.; Liao, W.; Wang, Z. Accumulation of particles on the surface of leaves during leaf expansion. *Sci. Total Environ.* **2015**, 532, 420–434.

Wang, H., Maher, B.A., Ahmed, I.A., & Davidson, B. Efficient removal of ultrafine particles from diesel exhaust by selected tree species: implications for roadside planting for improving the quality of urban air. *Environmental Science & Technology*, 53(12), 6906-6916. **2019**.

White, E., Turner, F. A method of estimating income of nutrients in a catch of airborne particles by a woodland canopy. *J. Appl. Ecol.* 441-461. **1970**.

WHO. **2014**. Fact Sheet: Ambient (outdoor) air quality and health. WHO Media Centre.

WHO. **2017**. Regional Office for Europe. Evolution of WHO air quality guidelines: past, present and future. WHO Regional Office for Europe. <https://apps.who.int/iris/handle/10665/341912>

WHO. **2018**. Fact Sheet: Ambient (outdoor) air quality and health. WHO Media Centre.

WHO. **2021**. WHO global air quality guidelines: Particulate matter (PM_{2.5} and PM₁₀), ozone, nitrogen dioxide, sulfur dioxide and carbon monoxide. World Health Organization. <https://apps.who.int/iris/handle/10665/345329>

Williams M., Yamada T., A microcomputer-based forecasting model: potential applications for emergency response plans and air quality studies., *J. Air Waste Manage. Assoc.*, 40, **1990**, 1266–1274.

Wuytack, T., K. Verheyen, K. Wuyts, F. Kardel, S. Adriaenssens, and R. Samson. The potential of biomonitoring of air quality using leaf characteristics of white willow (*Salix alba* L.). *Environmental Monitoring and Assessment*. **2010**, 171:197-204.

Yang, Y.; Vance, M.; Tou, F. Y.; Tiwari, A.; Liu, M.; Hochella, M. F., Jr Nanoparticles in road dust from impervious urban surfaces: distribution, identification, and environmental implications. *Environ.Sci.: Nano* **2016**, 3 (3), 534–544.

Zhang, J., Shao, Y., & Huang, N. Measurements of dust deposition velocity in a wind-tunnel experiment. *Atmospheric Chemistry and Physics*, 14(7), 8869-8882. **2014**.

Zhang, R.; Wang, G.; Guo, S.; Zamora, M.L.; Ying, Q.; Lin, Y.; Wang, W.; Hu, M. and Wang, Y. Formation of urban fine particulate matter. *Chemical reviews*, 115(10):3803–3855, **2015**. doi: 10.1021/acs.chemrev.5b00067.

Zhu, Y. F.; Hinds, W. C.; Kin, S.; Sioutas, C. Concentration and size distribution of ultrafine particles near a major highway. *J. Air Waste Manage. Assoc.* **2002**, 52, 1032–1042.

Zhu, Y., Hinds, W. C., Kim, S., Shen, S., and Sioutas, C. Study of ultrafine particles near a major highway with heavy-duty diesel traffic. *Atmospheric environment*. **2002**, 36(27), 4323-4335.