

IDENTIFICATION DES SOURCES DE PARTICULES ULTRAFINES (PUF) SUR LA PLATEFORME ATOLL (ATMOSPHERIC OBSERVATORY IN LILLE)

S. Randrianomenjanahary*^{1,2}, S. Crumeyrolle², H. Chen¹, V. Riffault¹

¹Centre de Recherche et d'Innovation Energie – Environnement (CERI EE), IMT Nord Europe, 59500 Douai, France

²UMR 8518 Laboratoire d'Optique Atmosphérique (LOA), CNRS, Université de Lille, 59000 Lille, France

*Courriel de l'orateur : soatoavina.randria@imt-nord-europe.fr

SOURCE APPORTIONMENT OF ULTRAFINE PARTICLES (UFP) ON ATOLL (ATMOSPHERIC OBSERVATORY IN LILLE) PLATFORM

RESUME

Les Particules UltraFines (PUF), de diamètre aérodynamique inférieur à 100 nm, ont des effets néfastes sur la santé. Comprendre leur origine est nécessaire afin de pouvoir agir efficacement sur leurs sources d'émission. Cette étude vise à identifier les différentes sources de PUF à l'aide d'un modèle récepteur (*Non-negative Matrix Factorization*, NMF). Des données de mesures de PUF acquises sur la plateforme d'observation ATOLL entre 2017 et 2024 ont permis d'identifier un maximum de six facteurs NMF, et d'observer une prédominance des émissions issues du trafic routier et de la nucléation des particules, ainsi qu'une contribution particulièrement forte des activités humaines sur les émissions de PUF en été.

ABSTRACT

Ultrafine particles (UFP) with aerodynamic diameters below 100 nm have adverse effects on health. A thorough understanding of their sources is necessary to limit their emission. This study aims to identify UFP sources using receptor modeling (*Non-negative Matrix Factorization*, NMF). Datasets used in this study include data from 2017 – 2024 measured on ATOLL. A maximum of six factors have been successfully identified during summer. A strong anthropogenic influence has been observed, with a dominance of traffic sources alongside nucleation sources.

MOTS-CLÉS: Particules UltraFines (PUF), Non negative Matrix Factorization (NMF) / **KEYWORDS:** UltraFine Particles (UFP), Non negative Matrix Factorization (NMF)

1. INTRODUCTION

L'exposition en air ambiant aux PM_{2,5} (Particules en suspension de diamètre aérodynamique < 2,5 µm) est responsable d'environ 4,2 millions de décès prématurés en 2018 selon l'Organisation Mondiale de la Santé (World Health Organization, 2018). Les impacts de ces aérosols atmosphériques sur la santé dépendent fortement de leur taille et de leur composition chimique (Ohlwein et al., 2019). Parmi les PM_{2,5}, les particules ultrafines (PUF, de diamètre inférieur à 100 nm) sont les plus nombreuses et peuvent pénétrer plus profondément dans l'organisme, y compris rejoindre la circulation sanguine (Ohlwein et al., 2019). Les réglementations mises en place, notamment en Europe, pour limiter leurs émissions et les concentrations massiques dans l'air ambiant (EC, 2023) ont entraîné une diminution observable des concentrations massiques en PM, tempérées toutefois par une hausse des concentrations en nombre des PUF (Suchánková et al., 2025). L'émission des PUF n'est pas encore réglementée, cependant la nouvelle directive européenne préconise d'inclure leur mesure dans la surveillance de la qualité de l'air (EC, 2023).

Les PUF peuvent provenir de la conversion de gaz en particules formant de nouvelles particules dans l'atmosphère (Crumeyrolle et al., 2023; Kulmala et al., 2004), ce processus forme les premiers cluster de particule dans une gamme de diamètre inférieure à 10 nm qui vont par la suite grossir dans l'atmosphère pour provoquer ce qu'on appelle les événements de nucléation (Kulmala et al., 2004). Elles peuvent aussi être émises directement dans l'atmosphère (Ogulei et al., 2007) sur des gammes de diamètres différents selon leur origine. Dans les environnements urbains, les sources issues du trafic routier seraient dominantes (Ogulei et al., 2007). On peut distinguer plusieurs sources de trafic selon le type d'émission, la taille des particules et le type de combustion, les plus petites peuvent être formées par condensation des gaz d'échappement qui refroidissent dès leur contact avec l'atmosphère (Ogulei et al., 2007). En effet, Ogulei et al., (2017) montrent les différences dans les distributions en taille des particules en fonction du type de moteur : des voitures essence (30 < Dp < 35 nm) et des voitures diesel (60 < Dp < 80 nm). D'autres sources peuvent atteindre des diamètres plus larges au-dessus de 100 nm, telles que les émissions dues aux chauffages en bois en hiver (Velazquez-Garcia et al., 2024), ou d'autres sources formées à partir de processus secondaires de vieillissement dans l'atmosphère (Garcia-Marlès et al., 2024).

Comprendre l'origine des PUF ainsi que leur contribution respective aux nombres de particules dans l'atmosphère est indispensable pour mettre en place des politiques sur leur réglementation. Contrairement aux sources de PM qui peuvent être étudiées à partir de leur composition chimiques (Chebaicheb et al., 2023), les sources de PUF se basent sur les données de distribution en taille des particules (Wang et al., 2023). Il existe plusieurs méthodes pour caractériser les sources de PUF : k-means, Analyse en Composante Principale (ACP), Positive Matrix Factorization (PMF), Non-negative Matrix Factorization (NMF) (Garcia-

Marlès et al., 2024; Liang et al., 2020; Wang et al., 2023,...). La PMF a été la plus utilisée dans le domaine de la séparation de source depuis le développement du modèle par Paatero & Tapper, (1994). La décision d'utiliser la NMF (Lee & Seung, 1999) provient du fait que son implémentation est plus souple et qu'elle propose plus de variante en terme d'algorithme (Liang et al., 2020). Dans cette étude, la NMF a été utilisée sur huit années de données (2017 – 2024) mesurées sur la plateforme ATmospheric Observatory in LiLLe (ATOLL). Le modèle permet de séparer une distribution en taille des particules en différentes sources selon leur mode ainsi que leur contribution temporelle.

2. METHODOLOGIE

2.1. Zone d'étude et instruments

La plateforme ATmospheric Observatory in LiLLe (ATOLL) est située à Villeneuve-d'Ascq, au nord de la France, à 6 km du centre-ville de Lille. Cette station péri-urbaine fait partie de l'infrastructure de recherche européenne ACTRIS (Aerosols, Clouds, and Trace Gases Research InfraStructure, Laj et al., 2024) et intègre différents instruments dédiés à la caractérisation optique, physique et chimique des aérosols in situ (Chebaicheb et al., 2023; Crumeyrolle et al., 2023; Velazquez-Garcia et al., 2024).

En particulier en ce qui concerne ce travail, un SMPS (*Scanning Mobility Particles Sizer*) mesure en continu la distribution en taille des particules atmosphériques sur la plateforme ATOLL depuis 2017 dans une gamme allant de 15,7 à 800 nm jusqu'en avril 2022 puis de 10 à 800 nm avec la labellisation ACTRIS de la plateforme. L'instrument a été paramétré pour obtenir une résolution temporelle de 5 minutes. Le système SMPS est un couplage entre un CPC (*Condensation Particle Counter*), un DMA (*Differential Mobility Analyzer*) et un neutralisant au nickel (Ni-63, 95 MBq) pour charger les particules avant leur classification. Chaque cycle dure 300 secondes (Crumeyrolle et al., 2023). Un ACSM (*Aerosol Chemical Speciation Monitor*) mesure la composition chimique des aérosols sur ATOLL depuis 2016. Une analyse par Positive Matrix Factorization (PMF) a permis d'identifier les principales sources de PM₁ distinguant les émissions liées au trafic (HOA), à la combustion de biomasse (BBOA) et les aérosols secondaires âgés (LO-OOA et MO-OOA) pour la période 2016 - 2022. (Chebaicheb et al., 2023). Un aethalometer (AE33) est utilisé pour caractériser la concentration des particules de suie (black carbon, BC) suivant les normes préconisées par ACTRIS. Les concentrations de BC issues des combustions de feux de biomasse ou de combustibles fossiles ont été estimées (Sandradewi et al., 2008). Les paramètres météorologiques (température, humidité relative, direction et intensité des vents, rayonnement solaire) proviennent d'une station météorologique installée sur la plateforme.

2.2. Non negative Matrix Factorization (NMF)

La Non-Negative Matrix Factorization (NMF) (Lee & Seung, 1999) applique un algorithme de factorisation à une matrice positive X_{ij} pour obtenir 2 matrices positives W_{ik} et H_{kj} suivant l'équation :

$$X \sim W \times H$$

Elle permet de décomposer une distribution en taille de particules donnée X en différents facteurs pour avoir le produit de deux matrices : la matrice de contribution W qui représente la série temporelle de chaque facteur, la matrice de profil H qui représente la distribution en taille de chaque facteur. Cette approche a été utilisée auparavant sur des distributions en taille de particules (Liang et al., 2020; Wang et al., 2023). Dans cette étude l'analyse NMF a été faite en utilisant la librairie "NMF" (Zitnik & Zupan, 2018) en implémentation libre sur Python.

Les données de chaque année ont été analysées indépendamment avec la NMF, le modèle a été initialisé plusieurs fois (100 runs) pour différents nombre de facteur (2 – 10) et le nombre optimal de facteur à factoriser a été déterminé à l'aide de deux métriques mathématiques : la corrélation cophénétique (CCC, Brunet et al., (2004)) et la somme des carrés des résidus (RSS, Hutchins et al., (2008)). L'évolution de ces métriques a été suivie pour sélectionner la meilleure solution. Il est important de préciser que l'analyse des sources par NMF permet d'identifier les facteurs qui dominent le jeu de données tandis que des facteurs secondaires peuvent être mélangés aux facteurs principaux. Si le nombre de facteurs est très petit, le modèle pourrait ne pas être optimal en revanche trop de facteurs pourraient produire des sources artificielles dépourvues de signification physique.

Tableau 1. Diamètre géométrique moyen (nm) des sources identifiées pour chaque année.

Source	2018	2019	2020	2021	2022	2023	2024
Nucleation_1	-	-	-	-	<10	<10	<10
Nucleation_2	<19	<15	<15	<15	20	19	17
Traffic_nucleation	-	25	29	30	31	31	28
Traffic_1	37	40	45	46	47	47	41
Traffic_2	63	63	71	79	72	78	72
Urban_background	117	126	146	163	138	160	138

On a comparé les résultats année en année afin d'évaluer la consistance du modèle et, saison par saison pour l'année 2023, pour voir la variabilité des facteurs en fonction des différentes conditions environnementales. L'identification des sources s'appuie ensuite sur l'analyse des distributions en taille de chaque facteur (Figure 1), de leurs profils journaliers séparés entre jours ouvrables et weekends (Figure 2), sur l'analyse saisonnière

des contributions de chaque source et sur une analyse de corrélation avec les autres données auxiliaires issues des autres instruments et des paramètres météorologiques. La nomenclature s'est faite en se basant sur les études antérieures de caractérisation des sources de PUF. Enfin la contribution respective de chaque source a été évaluée et discutée (Figure 1).

3. RESULTATS

La comparaison sur différentes années sur la saison estivale a permis de décomposer 4 – 6 facteurs : Nucleation_1, Nucleation_2, Traffic_nucleation, Traffic_1, Traffic_2, Urban_background. Chaque facteur représente une source monomodale spécifique (Tableau 1, Figure 1).

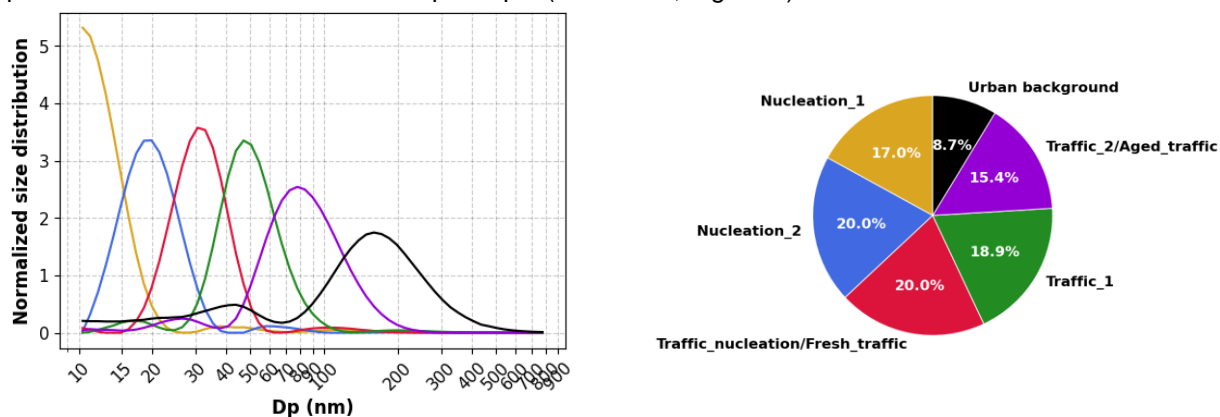


Figure 1. (gauche) Distribution en taille de chaque source identifiée pour l'année 2023. (droite) Contributions relatives de chaque source pour l'année 2023

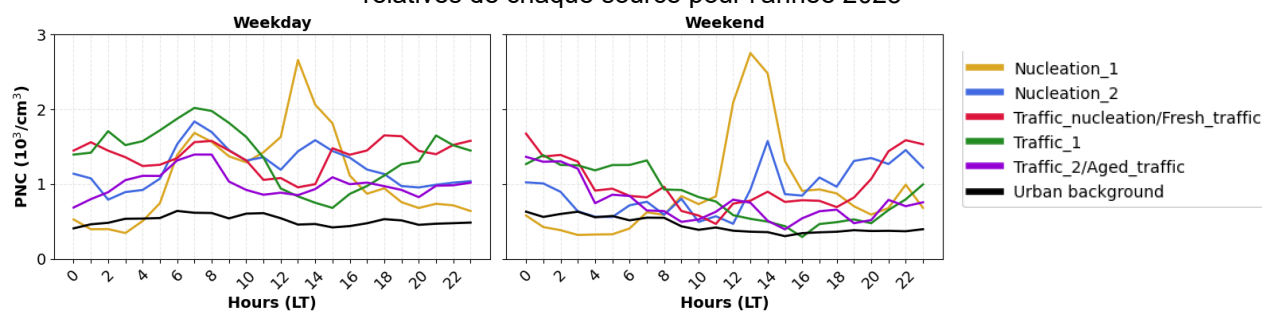


Figure 2. Valeurs médianes de la concentration en nombre de chaque source pour (gauche) les jours ouvrables et (droite) les week-ends de l'été 2023.

3.1. Source de nucléation

La **Nucleation_1** est caractérisée par un mode inférieur à 10 nm (Tableau 1, Figure 1), elle a été identifiée pour les années 2022 – 2024. La contribution de cette source (Figure 2) débute avec l'apparition du soleil et présente deux pics : en matinée (7h) plutôt corrélé avec les profils de trafic (Ogulei et al., 2007) et en début d'après-midi (13 h) corrélé aux événements de nucléation observés sur la plateforme (Crumeyroille et al., 2023).

La **Nucleation_2** ($D_p \sim 20$ nm) évolue de manière similaire à la **Nucleation_1** mais le pic de l'après-midi est observé avec un décalage d'une heure, tandis que le pic matinal est plus marqué. Cela soutient l'idée que cette source est également liée à des événements de nucléation induits par la photochimie. Le mode d'apparition de cette source et le décalage temporel par rapport à la **Nucleation_1** suggèrent qu'elle pourrait provenir du grossissement des particules nouvellement formées dans l'atmosphère. Le rayonnement solaire est le seul paramètre corrélé avec les deux sources de nucléation avec des valeurs de 0.2 et 0.25 respectivement, la faible corrélation pourrait être expliquée par la présence de la source de trafic.

3.2. Source de trafics

Trois sources de trafic ont été identifiées dans cette étude, **Traffic_nucleation**, **Traffic_1** et **Traffic_2** avec des modes respectivement entre 25 – 31, 37 – 47, 63 – 79 nm. Les sources de trafic présentent un profil diurne similaire à celui du NO_x ou du BC avec deux pics prononcés sur les heures de pointe 7 - 8h et 18 – 20h (Figure 2), on observe une légère diminution de leur concentration pendant les week-ends avec un pic plus marqué en fin d'après-midi. Le **Traffic_nucleation** correspond à la condensation des gaz provenant des échappements des véhicules, il est émis dans un diamètre proche des sources de nucléation. Les **Traffic_1** et **Traffic_2** sont considérés comme des émissions plutôt locales de véhicules (Garcia-Marlès et al., 2024). Ce sont des particules émises directement par les véhicules essence et diesel respectivement. Le **Traffic_2** est constitué de particules dont le diamètre est légèrement plus grand que celui du **Traffic_1**, d'autres études

suggèrent aussi l'interprétation de cette source comme une source de trafic vieilli pour être émise dans un mode un peu plus grossier (Liang et al., 2020; Ogulei et al., 2007). La contribution de l'ensemble des sources de trafic est majoritaire, avec en 2023 une contribution de plus de 54 % du total.

3.3. Urban background

L'**Urban background** est une source d'accumulation de pollution qui serait typique des environnements urbains à très forte densité de trafic (Garcia-Marlès et al., 2024), sa variation diurne est assez stable. Elle a une très forte corrélation avec les BC et les aérosols organiques secondaires (0.93). Cette source serait constituée par des émissions de trafic qui ont vieilli dans l'atmosphère (Garcia-Marlès et al., 2024).

4. CONCLUSION

Dans cette étude, les sources probables de PUF en saison d'été ont été identifiées sur la plateforme ATOLL en utilisant la NMF. Différents nombres de sources ont pu être obtenus avec un maximum de six sources en 2023 : Nucleation_1, Nucleation_2, Traffic_nucleation, Traffic_1, Traffic_2, Urban_background. On observe une importante contribution des sources de nucléation avec au moins 37 % de contribution sur la concentration des PUF sur ATOLL. Trois sources de trafic ont été identifiées avec une contribution de plus de 54 % à la concentration des PUF sur ATOLL et une source de pollution de fond urbain qui montre que la station ATOLL est sous l'influence des activités anthropiques environnantes.

Pour conclure, en été, la nucléation et le trafic sont les principales sources de PUF sur ATOLL. Bien que le modèle NMF soit capable de séparer nos données en différentes sources, attribuer une signification physique à chaque source identifiée reste difficile et nécessite une étude plus approfondie. Comprendre les processus de formation et de vieillissement des particules est nécessaire pour appuyer l'identification de chaque source.

RÉFÉRENCES

- Brunet et al. (2004). Metagenes and molecular pattern discovery using matrix factorization. *Proceedings of the National Academy of Sciences of the United States of America*
- Chebaicheb et al. (2023). Investigation of four-year chemical composition and organic aerosol sources of submicron particles at the ATOLL site in northern France. *Environmental Pollution*
- Crumevolle et al. (2023). Measurement report: Atmospheric new particle formation at a peri-urban site in Lille, northern France. *Atmospheric Chemistry and Physics*
- EC. (2023). *Directive (EU) 2024/2881 of the European Parliament and of the Council of 23 October 2024 on ambient air quality and cleaner air for Europe (recast)*. Edward Elgar Publishing
- Garcia-Marlès et al. (2024). Source apportionment of ultrafine particles in urban Europe. *Environment International*
- Hutchins et al. (2008). Position-dependent motif characterization using non-negative matrix factorization. *Bioinformatics*
- Kulmala et al. (2004). Formation and growth rates of ultrafine atmospheric particles: A review of observations. *Journal of Aerosol Science*
- Laj et al. (2024). Aerosol, Clouds and Trace Gases Research Infrastructure (ACTRIS): The European Research Infrastructure Supporting Atmospheric Science. *Bulletin of the American Meteorological Society*
- Lee, D. D., & Seung, H. S. (1999). Learning the parts of objects by non-negative matrix factorization. *Nature*
- Liang et al. (2020). Efficient data preprocessing, episode classification, and source apportionment of particle number concentrations. *Science of The Total Environment*
- Ogulei et al. (2007). Modeling Source Contributions to Submicron Particle Number Concentrations Measured in Rochester, New York. *Aerosol Science and Technology*
- Ohlwein et al. (2019). Health effects of ultrafine particles: A systematic literature review update of epidemiological evidence. *International Journal of Public Health*
- Paatero, P., & Tapper, U. (1994). Positive matrix factorization: A non-negative factor model with optimal utilization of error estimates of data values. *Environmetrics*
- Sandradewi et al. (2008). Using Aerosol Light Absorption Measurements for the Quantitative Determination of Wood Burning and Traffic Emission Contributions to Particulate Matter. *Environmental Science & Technology*
- Suchánková et al. (2025). An insight into recent PM1 aerosol light scattering properties and particle number concentration variabilities at the suburban site ATOLL in Northern France. *Science of The Total Environment*
- Velazquez-Garcia et al. (2024). Assessment of light-absorbing carbonaceous aerosol origins and properties at the ATOLL site in northern France. *Aerosol Research*
- Wang et al. (2023). Traffic, marine ships and nucleation as the main sources of ultrafine particles in suburban Shanghai, China. *Environmental Science: Atmospheres*
- World Health Organization. (2021). *WHO global air quality guidelines: Particulate matter (PM2.5 and PM10), ozone, nitrogen dioxide, sulfur dioxide and carbon monoxide*. World Health Organization. <https://iris.who.int/handle/10665/345329>
- Zitnik, M., & Zupan, B. (2018). *NMF: A Python Library for Nonnegative Matrix Factorization*