

CARACTÉRISATION DES SOURCES D'AÉROSOLS ORGANIQUES À PARIS, PAR APPLICATION DU MODÈLE *ROLLING POSITIVE MATRIX FACTORIZATION* (PMF)

Alexia Baudic^{*1}, Grégory Abbou¹, Mendosa Rabort¹, Laurent Gauvin¹ et Véronique Ghersi¹

¹ Airparif, Observatoire de la qualité de l'air en région Île-de-France, 7 rue Crillon, 75004 Paris, France.

^{*}Courriel de l'orateur : alexia.baudic@airparif.fr

TITLE

INVESTIGATION OF ORGANIC AEROSOLS SOURCES IN DOWNTOWN PARIS USING ROLLING POSITIVE MATRIX FACTORIZATION (PMF)

RESUME

Les Aérosols Organiques (AO) constituent une part importante de la matière particulaire submicronique (PM₁), avec des impacts avérés sur la santé humaine. Cette étude identifie et quantifie leurs sources en appliquant le modèle *Rolling PMF* à des données acquises en 2023 grâce à un spectromètre de masse (ACSM) situé sur le super-site de Paris 1^{er} – Les Halles. Trois sources primaires principales ont été identifiées : le trafic routier (HOA), la combustion du bois (BBOA), la cuisson (COA), et deux facteurs oxydés (LO-OOA, MO-OOA) associés aux aérosols organiques secondaires (AOS). Ces résultats apportent des éléments clés pour orienter les politiques publiques dans leur démarche d'amélioration de la qualité de l'air.

ABSTRACT

Organic Aerosols represent a major fraction of submicron particulate matter (PM₁), with well-established impacts on human health. This study identifies and quantifies their sources by applying *Rolling PMF* to data collected in 2023 using an aerosol chemical mass spectrometer (ACSM) at the Paris 1^{er} – Les Halles supersite. Three primary sources were identified: road-traffic (HOA), wood combustion (BBOA), cooking (COA) and two oxidized factors (LO-OOA, MO-OOA) associated with secondary organic aerosols (SOA). These results provide key insights to guide public policies for improving air quality.

MOTS-CLÉS: Qualité de l'air urbaine, Aérosol Organique, ACSM, Caractérisation des sources, *Rolling PMF* /

KEYWORDS: Urban air quality, Organic aerosol, ACSM, Source apportionment, *Rolling PMF*

1. INTRODUCTION

Les particules fines et ultrafines représentent un enjeu majeur de santé publique, notamment dans les grandes agglomérations comme Paris. Pour orienter efficacement les politiques publiques, il est indispensable de caractériser leurs sources d'émission (primaires et secondaires), leur composition chimique, leurs variabilités temporelles et leur contribution respective à la pollution particulaire mesurée. Pour répondre à ce besoin, des techniques avancées de mesure en temps réel, comme les aéthalomètres pour le suivi du carbone suie (Black Carbon, BC) et les spectromètres de masse à aérosols (*Aerosol Chemical Speciation Monitor*, ACSM) pour la caractérisation des espèces chimiques submicroniques non-réfractaires dans la fraction PM₁, permettent une spéciation fine des sources. Airparif, l'Observatoire de la qualité de l'air en Île-de-France, suit ces mesures depuis 2015 et met en évidence l'importance de la matière organique qui constitue une part significative de la masse totale des particules PM₁, en accord avec les études précédentes menées sur la région parisienne (Crippa et al., 2013 ; Petit et al., 2014 ; LCSQA, 2025). Cette fraction organique complexe résulte à la fois d'émissions primaires variées et de processus de formation secondaires qu'il est primordial d'identifier et de quantifier. Les modèles sources-récepteur de type *Positive Matrix Factorization* (PMF) sont largement utilisés au sein de la communauté scientifique pour répondre à ce besoin. Ainsi, la présente étude vise à déterminer les principales sources d'aérosols organiques (AO) à Paris en 2023 à partir des spectres de masse fournis par l'ACSM, en appliquant la méthodologie de *Rolling PMF* harmonisée selon Chen et al. (2022) pour garantir la cohérence et la comparabilité des résultats.

2. MATERIEL & METHODES

2.1. Instrumentation et site de mesures

La composition chimique de la fraction non réfractaire de l'aérosol submicronique (NR-PM₁), comprenant la matière organique (MO), le nitrate (NO₃⁻), l'ammonium (NH₄⁺), le sulfate (SO₄²⁻) et le chlorure (Cl⁻), est caractérisée toutes les 30 minutes au moyen d'un ACSM quadripolaire (Q-ACSM, Aerodyne Research Inc., USA) équipé d'une lentille aérodynamique PM₁. Depuis 2019, ces mesures en temps réel sont réalisées par

Airparif sur le super-site urbain de fond Paris 1^{er} - Les Halles situé au cœur de Paris (48°51'44" N, 2°20'41" E). Éloignée de toute source directe d'émission, cette station est représentative de l'exposition moyenne de la population aux niveaux de pollution atmosphérique de l'agglomération parisienne. Elle est également un site de référence pour la surveillance d'un large panel de polluants gazeux et particulaires. Plusieurs de ces paramètres ont d'ailleurs vocation à être utilisés comme traceurs indépendants afin de confirmer l'identité des sources d'AO. La période de mesure couverte pour cette étude est l'année 2023.

2.2. Validation et traitement des données ACSM

La validation et le traitement des données ACSM sont réalisés conformément au guide méthodologique du Laboratoire Central de la Surveillance de la Qualité de l'Air (LCSQA, 2025), ainsi qu'au protocole établi par le centre de calibration des ACSM (ACMCC - *Aerosol Chemical Monitor Calibration Center*) d'ACTRIS (Aerosol, Clouds and Trace Gases Research Infrastructure). Ces étapes de post-traitement reposent sur la vérification des paramètres techniques de l'instrument, le suivi d'ions spécifiques, la bonne configuration des coefficients d'étalonnage, le contrôle de la balance ionique et la validation environnementale, incluant notamment les comparaisons et corrélations entre les mesures ACSM et celles des fractions PM₁ et PM_{2.5}. Les invalidations signalées par l'opérateur technique référent sont également prises en compte. Une fois les spectres de masse de l'ACSM validés, une matrice de données spécifique est générée, ne conservant que les fragments de masse (m/z) caractéristiques de différentes molécules organiques selon la table de fragmentation d'Allan et al. (2004). Cette matrice, regroupant les concentrations des m/z et leurs incertitudes associées sur l'ensemble de la période d'étude, constitue les données d'entrée du modèle PMF.

2.3. La méthode *Rolling PMF*

La répartition des sources de l'AO a été déterminée par factorisation matricielle positive (PMF ; Paatero et Tapper, 1994). La PMF est un modèle bilinéaire qui décompose la variabilité d'un jeu de données multivarié en une combinaison linéaire de profils de facteurs multipliés par leurs séries temporelles. Elle repose sur l'équation matricielle $X = G \cdot F + E$, où X représente les données d'entrée, G les séries temporelles des facteurs, F les profils chimiques des sources et E les résidus du modèle. L'algorithme PMF s'appuie sur la méthode des moindres carrés pour résoudre cette équation de manière itérative en minimisant la fonction Q (définie par la somme des résidus au carré pondérée par leurs incertitudes) afin d'obtenir des matrices G et F reproduisant au mieux la matrice X . L'espace des solutions PMF étant infini, le solveur multilinéaire ME-2 (Paatero and Hopke, 2009), implémenté dans le logiciel SoFI Pro (Source Finder ; Canonaco et al., 2013) a été utilisé pour orienter le modèle vers des solutions physiquement cohérentes. Des contraintes ont été appliquées sur certains profils de sources primaires à l'aide de spectres de masse types issus de la littérature, tout en laissant au modèle un degré de liberté (approche *a-value*). Une analyse PMF appliquée à l'ensemble de l'année suppose des profils de sources constants dans le temps, ce qui peut constituer une limitation notable dans un contexte atmosphérique où les sources et leurs signatures chimiques évoluent. Pour y remédier, une analyse *Rolling PMF* (Canonaco et al., 2021) a été privilégiée. Elle a été appliquée à une matrice comprenant 72 variables (m/z 13 – 100) et 17 298 points temporels couvrant l'année 2023, en suivant le protocole d'harmonisation de Chen et al. (2022). Une fenêtre glissante de 14 jours, décalée d'un jour à chaque itération, a été utilisée pour suivre finement la variabilité temporelle des profils de sources et obtenir une représentation plus réaliste de leur évolution. En raison du nombre important de simulations PMF générées, un ensemble de critères a été défini pour accepter ou rejeter automatiquement les solutions. Les solutions validées ont ensuite été moyennées pour produire la solution finale.

3. RÉSULTATS ET DISCUSSION

3.1. Répartition de la composition chimique des PM₁

L'analyse de la composition chimique des particules PM₁, réalisée à partir des mesures ACSM du super-site Paris 1^{er} – Les Halles sur l'année 2023, révèle une nette prédominance de la matière organique (MO / Org.), représentant en moyenne 55 % de la masse totale (6 µg/m³). Elle est suivie du nitrate (NO₃, 17 %, 1.9 µg/m³), du sulfate (SO₄, 10 %, 1.1 µg/m³), de l'ammonium (NH₄, 9 %, 1.0 µg/m³) et du chlorure (Cl, ~1 %, 0.1 µg/m³), auxquels s'ajoute la contribution du BC estimée à 8 % (0.9 µg/m³). Cette forte proportion de MO est cohérente avec les observations déjà rapportées à l'échelle nationale (LCSQA, 2025) et internationale (Chen et al., 2022). L'année 2023 a par ailleurs été marquée par plusieurs périodes de forte teneur en MO. En février, des concentrations horaires pouvant atteindre plus de 50 µg/m³ ont été enregistrées (MO : 51 %), accompagnées d'une hausse des niveaux de BC lié à la combustion de la biomasse (BC_{wb}). Cette situation a conduit à plusieurs épisodes de pollution aux particules PM₁₀ les 9-10, 14-15 et 21 février (Figure 1, zone orange à

gauche), favorisés par des conditions anticycloniques froides et stables (vents faibles, fortes inversions thermiques, faibles hauteurs de couche de mélange) propices à l'accumulation des émissions locales, notamment celles issues du trafic routier et du chauffage au bois. Un autre épisode notable de MO (71 %) a eu lieu au début du mois de septembre les 6, 7 et 8 septembre (Figure 1, zone orange à droite), dans un contexte anticyclonique exceptionnellement chaud et ensoleillé, entraînant trois journées d'épisode de pollution à l'ozone et favorisant également la formation d'Aérosols Organiques Secondaires (AOS).

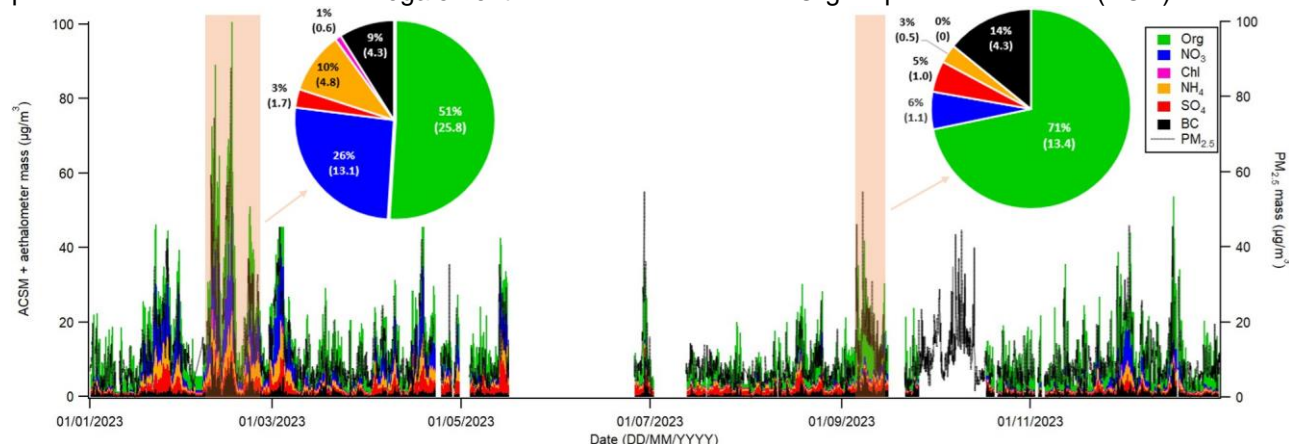


Figure 1. Évolution temporelle de la composition chimique des PM₁ et du carbone suie (BC) sur le super-site Paris 1^{er} - Les Halles, avec mise en évidence des contributions (%) et concentrations moyennes (µg/m³) des espèces chimiques lors des événements spécifiques de février et septembre 2023 (zones orangées).

3.2. Identification des sources d'AO par Rolling PMF

L'application du modèle *Rolling PMF* a permis d'identifier de manière robuste les principales sources de l'AO. Parmi les sources primaires : (i) le trafic routier (HOA – *Hydrocarbon-like OA*) représente 8 % (m/z 41, 43, 55, 57, 69 et 71) ; (ii) la combustion de la biomasse (BBOA – *Biomass Burning OA*) contribue à 11 % (m/z 29, 60 et 71) et (iii) la cuisson (COA – *Cooking OA*) à ~20 %, avec un spectre de masse proche de celui du HOA mais présentant des ratios plus élevés pour les m/z 55:57 (3 vs 1) et m/z 41:43 (1.5 vs 0.8) (Figure 2). Deux facteurs secondaires ont également été identifiés, avec des états d'oxydation plus (MO-OOA pour *More Oxidized-OOA*) ou moins (LO-OOA pour *Less Oxidized-OOA*) importants, tous deux dominés par les m/z 43 et 44 et contribuant respectivement à 34 % et 27 % de l'AO total. Ces résultats soulignent la prédominance des facteurs secondaires (>60 %) et le rôle majeur des processus de vieillissement atmosphérique et de formation secondaire dans les concentrations d'AO mesurées en air ambiant.

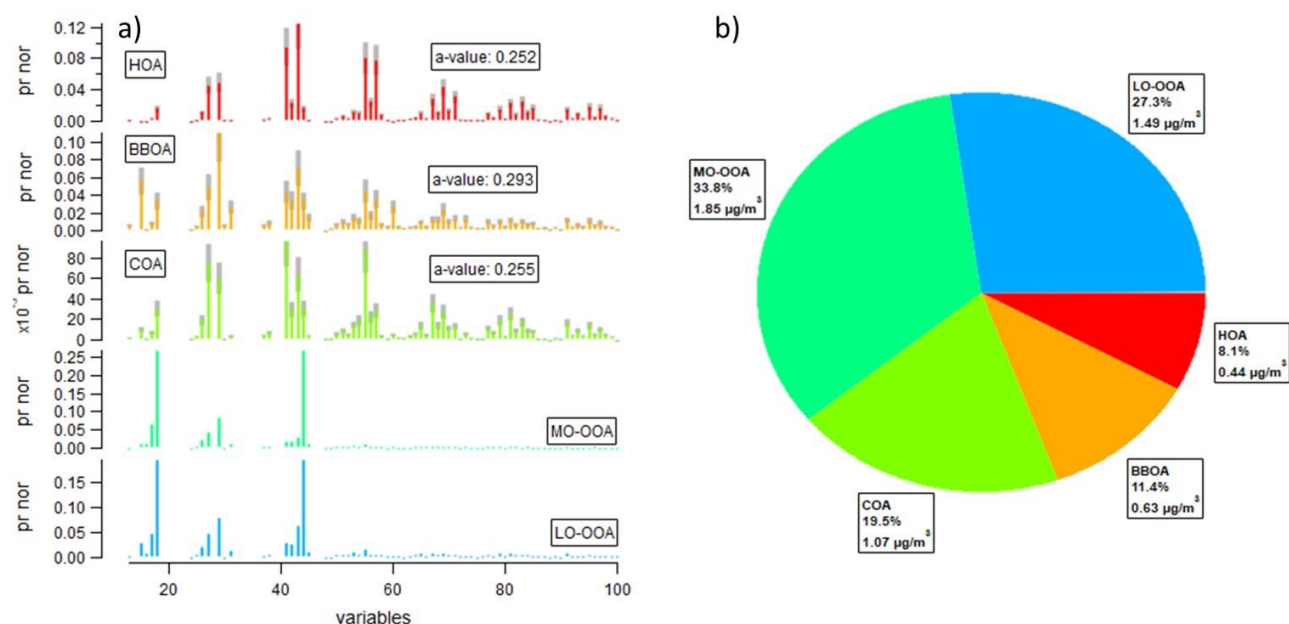


Figure 2. (a) Empreintes spectrales et (b) contributions relatives (%) et absolues (µg/m³) des cinq principales sources d'AO identifiées sur le super-site de Paris 1^{er} – Les Halles sur l'année 2023

La dynamique temporelle des sources est cohérente avec leurs origines : la source BBOA prédomine en hiver, particulièrement en février (>20 %), et suit étroitement les variations du BC_{wb} , illustrant ainsi un recours accru au chauffage au bois ; la source HOA présente une hausse des contributions absolues le matin et le soir liées aux périodes de trafic routier intense ; tandis que la source COA montre de plus fortes concentrations le midi et le soir, typiques des activités de cuisson. *A contrario*, les facteurs LO-OOA et MO-OOA ont une variabilité diurne plutôt stable. LO-OOA, davantage influencé par les sources locales, affiche des maxima saisonniers en été (>40 % en septembre) et en hiver tandis que MO-OOA reflète un vieillissement atmosphérique avancé souvent associé au transport longue distance (30 ± 3 %). Les contributions moyennes annuelles identifiées sont cohérentes avec celles reportées dans la littérature (Chebaicheb, 2023) : HOA (5-15 %), BBOA (10-20 %), COA (10-15 %) et OOA (LO-OOA + MO-OOA, 20-40 %).

4. CONCLUSIONS & PERSPECTIVES

La présente étude avait pour objectif de mieux comprendre l'origine de l'Aérosol Organique (AO), principal constituant de la fraction PM_{10} , en identifiant les sources majeures responsables de sa variabilité à Paris. L'attribution des sources a été réalisée à l'aide du modèle *Rolling PMF*, selon le protocole harmonisé de Chen et al. (2022). Cinq principaux facteurs d'AO ont été identifiés, apportant un éclairage essentiel pour la mise en place de politiques publiques adaptées et pour l'interprétation fine *a posteriori* des épisodes ou phénomènes de pollution. Toutefois, plusieurs travaux de spéciation avancée ont montré l'intérêt d'étendre les analyses PMF à d'autres espèces, comme le BC ou les composés organiques volatils, pour affiner l'attribution des sources (Petit et al., 2014 ; Simon et al., 2025). Des mesures par spectromètre de mobilité électrique (MPSS) pourraient également permettre d'évaluer la contribution des sources selon la taille des particules. Parallèlement, une perspective importante consiste à évaluer l'impact sanitaire des différentes sources d'AO en intégrant des mesures de Potentiel Oxydant (PO), afin d'identifier les contributions les plus délétères pour la santé humaine et d'orienter encore plus efficacement les stratégies de réduction des émissions.

Allan, J. D., Delia, A. E., Coe, H., Bower, K. N., Alfarra, M. R., Jimenez, J. L., Middlebrook, A. M., Drewnick, F., Onasch, T. B., Canagaratna, M. R., Jayne, J. T., and Worsnop, D. R.: A generalised method for the extraction of chemically resolved mass spectra from Aerodyne aerosol mass spectrometer data, *Journal of Aerosol Science*, 35, 909–922, <https://doi.org/10.1016/j.jaerosci.2004.02.007>, 2004.

Canonaco, F., Crippa, M., Slowik, J. G., Baltensperger, U., and Prévôt, A. S. H.: SoFi, an IGOR-based interface for the efficient use of the generalized multilinear engine (ME-2) for the source apportionment: ME-2 application to aerosol mass spectrometer data, *Atmos. Meas. Tech.*, 6, 3649–3661, <https://doi.org/10.5194/amt-6-3649-2013>, 2013.

Canonaco, F., Tobler, A., Chen, G., Sosedova, Y., Slowik, J. G., Bozzetti, C., Daellenbach, K. R., El Haddad, I., Crippa, M., Huang, R.-J., Furger, M., Baltensperger, U., and Prévôt, A. S. H.: A new method for long-term source apportionment with time-dependent factor profiles and uncertainty assessment using SoFi Pro: application to 1 year of organic aerosol data, *Atmos. Meas. Tech.*, 14, 923–943, <https://doi.org/10.5194/amt-14-923-2021>, 2021.

Chebaicheb H.: Étude de la composition chimique des particules fines et des sources d'aérosol organique sur différents sites en France à partir de jeux de données pluriannuels à haute résolution temporelle, Thèse de doctorat, 2023.

Chen G, Canonaco F, Tobler A, Aas W, Alastuey A, Allan J, ..., Prévôt ASH. European aerosol phenomenology - 8: Harmonised source apportionment of organic aerosol using 22 Year-long ACSM/AMS datasets. *Environ Int.* 2022 Aug; 166:107325. doi: 10.1016/j.envint.2022.107325. Epub 2022 May 30. PMID: 35716508.

Crippa, M., Canonaco, F., Slowik, J. G., El Haddad, I., DeCarlo, P. F., Mohr, C., Heringa, M. F., ..., Wiedensohler, A., Baltensperger, U., and Prévôt, A. S. H.: Primary and secondary organic aerosol origin by combined gas-particle phase source apportionment, *Atmos. Chem. Phys.*, 13, 8411–8426, <https://doi.org/10.5194/acp-13-8411-2013>, 2013.

Laboratoire Central de la Surveillance de la Qualité de l'Air (LCSQA) : Exploitation des six premières années de données automatiques du programme CARA (Composition chimique des PM, 2015-2021), Janvier 2025.

Laboratoire Central de la Surveillance de la Qualité de l'Air (LCSQA) : Guide méthodologique pour la mesure de la composition chimique des particules submicroniques non réfractaires (NR- PM_{10}) par Aerosol Chemical Speciation Monitor (ACSM) – Révision 2025, Mai 2025.

Paatero, P. and Tapper, U.: Positive matrix factorization: A non-negative factor model with optimal utilization of error estimates of data values, *Environmetrics*, 5, 111–126, <https://doi.org/10.1002/env.3170050203>, 1994.

Paatero, P. and Hopke, P. K.: Rotational tools for factor analytic models, *J. Chemometrics*, 23, 91–100, <https://doi.org/10.1002/cem.1197>, 2009.

Petit, J.-E. : Compréhension des sources et des processus de formation de la pollution particulaire en région Île-de-France, Thèse de doctorat, 2014.

Simon, L., Favez, O., Petit, J.-E., Canonaco F., Slowik J.G., Marchand C., Gros, V.: Source apportionment of organic gaseous and particulate compounds using a combined positive matrix factorization approach in summer (2020) in the Paris region (France), *Atmospheric Environment*, <https://doi.org/10.1016/j.atmosenv.2025.121269>, 2025.

La présente étude a été rendue possible grâce au soutien technique et scientifique d'Hasna Chebaicheb (LCSQA, INERIS) et Jean-Eudes Petit (CEA, LSCE).