



HAL
open science

Analyse de tendances nationales en matière de qualité de l'air

Laure Malherbe, Maxime Beauchamp, Aude Bourin, Stephane Sauvage

► **To cite this version:**

Laure Malherbe, Maxime Beauchamp, Aude Bourin, Stephane Sauvage. Analyse de tendances nationales en matière de qualité de l'air. LCSQA. 2017. hal-04466378

HAL Id: hal-04466378

<https://hal.science/hal-04466378>

Submitted on 19 Feb 2024

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.




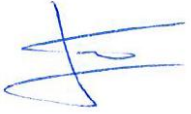
Distributed under a Creative Commons Attribution - NonCommercial - NoDerivatives 4.0 International License

Laboratoire Central de Surveillance de la Qualité de l'Air

ANALYSE DE TENDANCES NATIONALES EN MATIERE DE QUALITE DE L'AIR

**Laure Malherbe, Maxime Beauchamp (INERIS)
Aude Bourin, Stéphane Sauvage (Institut Mines-Telecom Lille Douai)**

Rapport final, Septembre 2017

	Rédaction	Vérification	Approbation
NOM	Laure MALHERBE Aude BOURIN	Augustin COLETTE	Laurence ROUÏL
Qualité	Ingénieur de l'Unité MOCA Direction des Risques Chroniques Ingénieur de recherche du Département Sciences de l'Atmosphère et Génie de l'Environnement IMT Lille Douai	Responsable de l'Unité MOCA Direction des Risques Chroniques	Responsable du Pôle DECI Direction des Risques Chroniques
Visa			



LE LABORATOIRE CENTRAL DE SURVEILLANCE DE LA QUALITE DE L'AIR

Le Laboratoire Central de Surveillance de la Qualité de l'Air est constitué des laboratoires de l'IMT Lille Douai, de l'INERIS et du LNE. Il mène depuis 1991 des études et des recherches à la demande du Ministère chargé de l'environnement, et en concertation avec les Associations Agréées de Surveillance de la Qualité de l'Air (AASQA). Ces travaux en matière de pollution atmosphérique ont été financés par la Direction Générale de l'Énergie et du Climat (bureau de la qualité de l'air) du Ministère chargé de l'Environnement. Ils sont réalisés avec le souci constant d'améliorer le dispositif de surveillance de la qualité de l'air en France en apportant un appui scientifique et technique au ministère et aux AASQA.

L'objectif principal du LCSQA est de participer à l'amélioration de la qualité des mesures effectuées dans l'air ambiant, depuis le prélèvement des échantillons jusqu'au traitement des données issues des mesures. Cette action est menée dans le cadre des réglementations nationales et européennes mais aussi dans un cadre plus prospectif destiné à fournir aux AASQA de nouveaux outils permettant d'anticiper les évolutions futures.

TABLE DES MATIERES

RESUME	7
REMERCIEMENTS ET COLLABORATIONS.....	9
1 INTRODUCTION	11
2 BASES DE DONNEES	12
2.1 Données de mesure	12
2.1.1 Mesures automatiques	12
2.1.2 Mesures manuelles	13
2.2 Données de modélisation	14
3 METHODOLOGIE.....	15
3.1 Variables de concentration étudiées	15
3.2 Sélection des stations.....	16
3.2.1 Filtrage des données singulières	16
3.2.2 Filtre de complétude temporelle	16
3.3 Correction des séries temporelles de PM	17
3.4 Agrégation spatiale	19
3.5 Calcul de tendances	23
3.5.1 Test de Mann-Kendall	23
3.5.2 Pente de Sen.....	24
4 RESULTATS : EVOLUTION TEMPORELLE DES CONCENTRATIONS	25
4.1 Mesures automatiques	25
4.1.1 Stations sélectionnées.....	25
4.1.2 Dioxyde d'azote (NO ₂)	25
4.1.3 Ozone (O ₃)	31
4.1.3.1 Pics estivaux	31
4.1.3.2 Comparaison avec la moyenne annuelle	36
4.1.3.3 Autres indicateurs	37
4.1.4 Particules (PM ₁₀).....	39
4.1.4.1 Moyenne annuelle	39
4.1.4.2 Nombre annuel de dépassements du seuil de 50 µg.m ⁻³	44
4.2 Mesures manuelles	47
4.2.1 Stations sélectionnées.....	47

4.2.2	Concentrations en métaux lourds dans les PM ₁₀	50
4.2.3	Concentrations en HAP dans les PM ₁₀	55
4.2.4	Concentrations en ions inorganiques et pH dans les retombées atmosphériques en zone rurale	59
4.2.5	Concentrations en ions inorganiques dans les particules en suspension	63
4.2.6	COV.....	66
5	ATTRIBUTION DES TENDANCES DE QUALITE DE L'AIR.....	69
5.1	Introduction	69
5.2	Méthodologie.....	69
5.2.1	Analyse d'attribution dans l'exercice de modélisation Eurodelta-trends	69
5.3	Décomposition pour les années 1990/2000/2010	73
5.3.1	Ozone	73
5.3.2	Aérosols.....	76
5.4	Incertitudes de la décomposition	78
5.4.1	Performances des modèles.....	79
5.4.2	Incertitude de l'ensemble de modèles	80
5.4.3	Incertitude de l'approche de décomposition	81
5.5	Décomposition de la tendance entre 1990 et 2010	83
5.5.1	Ozone	83
5.5.2	Aérosols.....	85
6	CONCLUSIONS ET PERSPECTIVES.....	87
7	REFERENCES.....	89
8	GLOSSAIRE	94
8.1	Polluants.....	94
8.2	Sigles	95
9	LISTE DES ANNEXES	96

Les outils de surveillance de la qualité de l'air que constituent les réseaux de mesure et la modélisation bénéficient aujourd'hui d'une maturité suffisante pour être mobilisés au service de l'évaluation des politiques de réduction d'émissions de polluants. En France, en fonction des polluants, les mesures sont disponibles depuis le début des années 1990.

Le Laboratoire Central de Surveillance de la Qualité de l'Air (LCSQA), laboratoire national de référence, est en charge de la collecte des données d'observation produites en région par les Associations Agréées de Surveillance de la Qualité de l'Air (AASQA), de leur intégration dans la base de données nationale de qualité de l'air, GEOd'air, et de l'exploitation de celle-ci, en appui au Ministère en charge de l'Environnement, pour l'élaboration de bilans nationaux et le rapportage réglementaire en application des Directives européennes sur la qualité de l'air. Le LCSQA analyse également ces données pour élaborer des diagnostics sur l'évolution passée et future de la qualité de l'air en France, à l'aide de méthodes d'analyse statistique et géostatistique, et de modélisation.

En s'inspirant de travaux méthodologiques innovants menés dans un contexte européen, pour l'Agence Européenne de l'Environnement (EEA) ou pour la convention onusienne sur le Transport de la Pollution Atmosphérique à Longue Distance (CLRTAP), une analyse objective des tendances de qualité de l'air a été réalisée à l'aide des données disponibles. L'originalité de cette étude réside dans les méthodes utilisées et dans les critères de représentativité et d'assurance qualité imposés sur les données de façon à disposer de la meilleure estimation des tendances.

Les résultats issus de cette étude permettent de confirmer l'amélioration progressive de la qualité de l'air en France comme une conséquence des stratégies et plans d'action destinés à la réduction des émissions issues des différents secteurs d'activité, et qui sont mis en œuvre depuis plusieurs années. Ce signal positif concerne la plupart des polluants réglementés présents dans l'air ambiant sous forme gazeuse et particulaire et dans les retombées atmosphériques.

Ainsi, sur la période 2000-2010, ciblée dans le cadre de cette étude car mieux documentée, les concentrations de dioxyde d'azote (NO_2) dans l'air ambiant ont baissé de 17,3%, et celles de particules PM_{10} (pour les particules de diamètre inférieur à 10 microns) de 15,1% alors que les pics d'ozone (O_3) ont été réduits de 3,8%. Les tendances à la baisse des niveaux de particules et des pics d'ozone se confirment, voire s'accroissent pour les années les plus récentes. Les métaux lourds dans les PM_{10} ont aussi baissé substantiellement, mais les tendances sont moins claires pour les hydrocarbures aromatiques polycycliques (HAP) dans les PM_{10} , dont le benzo[a]pyrène. En revanche, les composés soufrés dans les retombées atmosphériques ont baissé très largement, et cette baisse a été accompagnée d'un rétablissement du pH des retombées atmosphériques, mettant fin aux records d'acidité des années 1990. Il convient toutefois de noter que certaines de ces tendances restent influencées par la variabilité des conditions météorologiques d'une année à l'autre, ce qui peut conduire à nuancer certaines conclusions. De plus, des inquiétudes demeurent encore pour les tendances de composés azotés (nitrate et ammonium) dans les particules et dans les retombées atmosphériques qui stagnent depuis les années 2000.

Le déploiement de modèles de qualité de l'air sur une longue période temporelle a permis d'évaluer leur capacité à reproduire ces évolutions afin de renforcer la confiance dans ce type d'outils. Les modèles numériques peuvent par ailleurs être utilisés pour des études de sensibilité, qui nous ont conduit à conclure quant au rôle primordial des stratégies de réduction d'émissions de polluants dont l'impact est supérieur aux autres facteurs tels que la variabilité météorologique ou le transport intercontinental de polluants.

REMERCIEMENTS ET COLLABORATIONS

La méthodologie d'analyse des tendances a été élaborée en collaboration avec l'équipe spéciale des mesures et de la modélisation (TFMM*) du Programme EMEP*, le programme de suivi de la Convention sur la pollution atmosphérique transfrontière à longue distance (CLRTAP*). La modélisation a été coordonnée à travers l'exercice EURODELTA-TRENDS aussi organisé dans le cadre de la TFMM.

La méthodologie d'attribution des tendances a été développée et mise en œuvre sur la base des travaux susmentionnés, dans le cadre du consortium européen ETC/ACM*.

Les données de mesure sont issues :

- de la base nationale de la qualité de l'air GEOD'air (anciennement BDQA), qui rassemble les données transmises par les AASQA*,
- de la base européenne de données sur la composition chimique et les propriétés physiques de l'atmosphère EBAS, dans laquelle sont transmises les données de l'observatoire MERA*, composante française du dispositif européen EMEP* ;
- de l'Office National des Forêts, qui gère le sous-réseau CATAENAT*(intégré dans le réseau français RENECOFOR*, composante française du réseau international ICP Forests*).

Les auteurs remercient Manuel Nicolas, de l'Office National des Forêts, pour sa collaboration dans l'analyse des données de retombées atmosphériques.

* : voir glossaire

1 INTRODUCTION

La mise en place de stratégies de gestion de la qualité de l'air, la densification des réseaux de surveillance et l'amélioration des outils d'analyse statistique et de modélisation depuis une vingtaine d'années offrent de nouvelles perspectives en matière d'évaluation des tendances temporelles de la qualité de l'air, tant du point de vue méthodologique que de l'interprétation de ces résultats.

En tant que laboratoire national de référence, le Laboratoire Central de Surveillance de la Qualité de l'Air (LCSQA) est en charge de la collecte des données d'observation produites en région par les Associations Agréées de Surveillance de la Qualité de l'Air (AASQA), de leur intégration dans la base de données nationale de qualité de l'air, GEOd'air, et de l'exploitation de celle-ci, en appui au Ministère en charge de l'Environnement, pour l'élaboration de bilans nationaux et le rapportage réglementaire en application des Directives européennes sur la qualité de l'air. Ces données sont également exploitées pour élaborer des diagnostics sur l'évolution passée et future de la qualité de l'air en France, à l'aide de méthodes d'analyse statistique et géostatistique, et de modélisation.

En s'inspirant de travaux méthodologiques innovants menés dans un contexte européen, pour l'Agence Européenne de l'Environnement (EEA) ou pour la convention onusienne sur le Transport de la Pollution Atmosphérique à Longue Distance (CLRTAP), une analyse objective des tendances de qualité de l'air est réalisée à l'aide des données disponibles. Cette étude repose sur une approche méthodologique nouvelle, contrainte par de stricts critères de représentativité et d'assurance qualité imposés sur les données de façon à disposer de la meilleure estimation des tendances.

Cette analyse porte sur un large ensemble de polluants gazeux et particulaires. Elle concerne les concentrations dans l'air ambiant ainsi que les retombées atmosphériques. Une description des données de mesure et de modélisation utilisées est fournie au chapitre 2.

Le chapitre 3 développe la méthode mise en œuvre. Plusieurs aspects sont abordés : la sélection des stations de mesure, le filtrage des données singulières, l'utilisation conjointe de la mesure et de la modélisation, l'agrégation de l'information par domaine géographique d'intérêt, l'évaluation de la tendance. Notons que les données de mesure issues de méthodes automatiques bénéficient d'une couverture spatiale, et souvent temporelle, plus importante que les données résultant de prélèvements manuels. Les données de modélisation ne sont pas non plus disponibles, ni ne présentent le même degré de fiabilité pour toutes les espèces chimiques. Ainsi la méthodologie doit-elle s'adapter aux données exploitées, ce qui explique des différences de traitement entre polluants. Les résultats obtenus pour chacun font l'objet du chapitre 4.

L'un des principaux intérêts d'une étude de tendance est d'évaluer l'efficacité en matière de qualité de l'air des politiques de réduction des émissions. Cette évaluation nécessite de prendre en compte la variabilité des autres facteurs d'influence que sont la météorologie et la pollution de fond aux limites du domaine. Le chapitre 5 présente ainsi les grands principes et l'application d'une méthode destinée à quantifier l'influence relative des émissions, de la météorologie et des concentrations de fond sur les tendances.

2.1 Données de mesure

2.1.1 Mesures automatiques

Les variables de pollution sélectionnées pour cette étude sont les **concentrations dans l'air ambiant de NO₂, O₃ et PM₁₀ mesurées sur les sites de fond** (implantation rurale, périurbaine ou urbaine). Du fait de leur caractère local, les mesures effectuées sur les sites de proximité ne peuvent être utilisées conjointement avec la modélisation de grande échelle (données du modèle CHIMERE, cf. §2.2) mais une information sur la pollution de proximité routière apparaît dans les analyses réalisées par station de mesure pour le NO₂ et les PM₁₀.

Ne sont pas considérées les mesures des polluants suivants :

- les particules PM_{2,5}, dont la surveillance ne s'est intensifiée qu'à partir de 2009, en réponse aux nouvelles dispositions sur ce polluant (Directive 2008/50/CE) ;
- le SO₂ et le CO, dont les concentrations ont sensiblement diminué au cours des années et dont la surveillance par la mesure a été notablement réduite ;
- le benzène, dont la surveillance par la mesure automatique s'est restreinte au profit de la mesure manuelle.

Pour toutes ces mesures, on pourra se référer aux analyses réalisées dans les bilans annuels nationaux de la qualité de l'air¹.

Les données des stations de mesures automatiques ont été extraites de la base nationale de la qualité de l'air BDQA (Base de Données de la Qualité de l'Air), devenue GEOd'air depuis 2014. Cette base est alimentée en données quart-horaires par les postes centraux des AASQA. Ces données sont ensuite agrégées sous forme de moyennes horaires avant d'être utilisées comme données primaires dans les chaînes de calculs statistiques et de modélisation.

Les moyennes horaires traitées dans cette étude résultent de l'agrégation des données quart-horaires validées par les AASQA. Elles sont disponibles à partir de l'année 2000. Pour les années antérieures, des données sont présentes dans la base européenne AIRBASE mais elles sont trop peu nombreuses pour permettre une analyse fiable. Le nombre de stations de mesure varie dans le temps et selon le polluant. La situation du réseau de mesure en 2014 pour les polluants considérés est présentée en Figure 1.

¹ <http://www.developpement-durable.gouv.fr/Bilan-de-la-Qualite-de-l-air-en,48891.html>

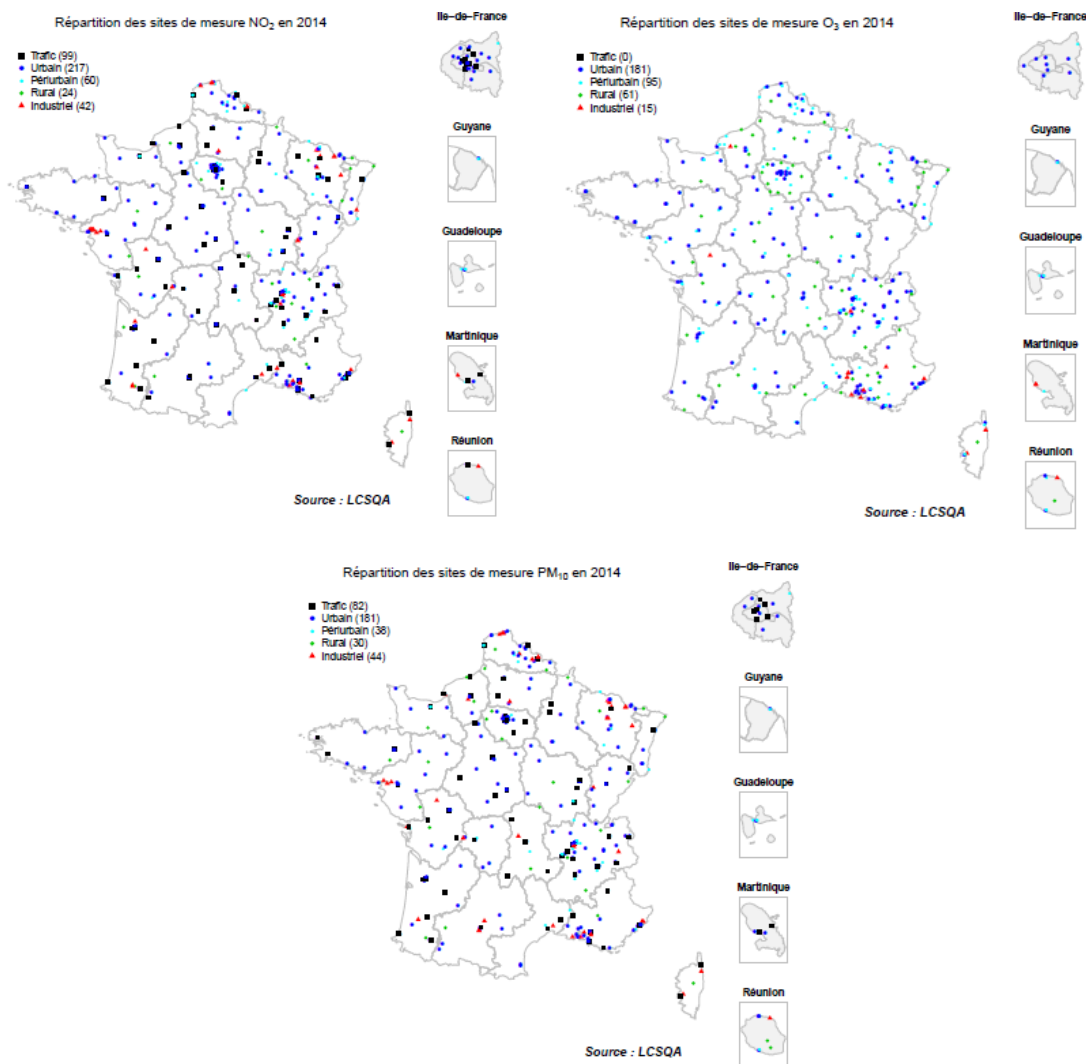


Figure 1 : Répartition spatiale des stations de mesure pour les polluants NO₂, O₃ et PM₁₀ en 2014

2.1.2 Mesures manuelles

Les jeux de données issus des mesures manuelles mis en œuvre dans cette étude sont composés :

- des concentrations en métaux lourds dans les PM₁₀ ;
- des concentrations en hydrocarbures aromatiques polycycliques (HAP) dans les PM₁₀ ;
- des concentrations en ions inorganiques et le pH dans les retombées atmosphériques ;
- des concentrations en ions inorganiques gazeux et particuliers dans les particules (sans coupure de taille, Total Suspended Particles) ;
- des concentrations en composés organiques volatils (COV) hydrocarbonés et carbonylés.

Les séries temporelles commencent dans les années 1990 pour les plus anciennes mesures manuelles. Le nombre d'années de cet historique est cependant variable selon les polluants considérés. Les environnements d'implantation des stations de mesures manuelles sont

multiples. Elles peuvent être implantées dans des zones urbaines, périurbaines ou rurales et être sous influence du trafic, de sources industrielles ou de fond.

Les données de stations de mesures manuelles ont été fournies par la base nationale de données de qualité de l'air GEOd'air, la base européenne de données sur la composition chimique et les propriétés physiques de l'atmosphère EBAS² et par l'Office National des Forêts dans le cas des retombées atmosphériques hors couvert forestier. Dans cette étude, les données n'ont pas subi de post-validation. Les moyennes annuelles résultent de l'agrégation des données brutes, journalières pour la majorité des polluants.

2.2 Données de modélisation

Une série de modélisations pour la période 1990-2010 a été réalisée avec le modèle de chimie-transport CHIMERE.

Ce travail a été conduit dans le cadre de l'exercice Eurodelta-Trends coordonné par l'INERIS sous l'impulsion de la Task Force on Measurement and Modelling de la CLRTAP. Une description détaillée est disponible dans l'article (Colette et al., 2017a). L'inscription de ces modélisations dans ce cadre international permet de s'assurer de la qualité de l'approche choisie par rapport aux meilleures pratiques actuelles, mais aussi de situer la modélisation Chimere dans un ensemble de modèles de chimie-transport reconnus internationalement (Emep, Cmaq, Lotos-Euros, Match, Minni, Polair3D, Wrf-Chem).

La configuration des modèles est assez contrainte en ce qui concerne les données de forçage :

- Emissions de polluants développées dans le cadre du projet ECLIPSE³ par IIASA ;
- Conditions aux limites contraintes par les observations comme pour le modèle Emep, ou bien modélisées avec le modèle global Cam-Chem dans le cadre de CCMi (Climate Chemistry Modelling Initiative), fournies par le LATMOS (C. Granier) ;
- Réanalyse météorologique contrainte par le CEPMMT (ERA-Interim) et raffiné sur l'Europe avec une configuration proche de celle d'EuroCordex, fournie par le LSCE (R. Vautard) ;
- Domaine de simulation identique couvrant l'ensemble de l'Europe à 25km de résolution.

Fin 2015, l'ensemble des simulations requises a été réalisé. Il s'agit de deux simulations sur 21 ans (1990-2010) utilisant des émissions variables ou constantes à leur niveau de 2010, ainsi qu'un certain nombre de simulations de sensibilité utilisant les valeurs de 1990, 2000, et 2010 pour les émissions, les conditions aux limites et la météorologie pour établir le rôle de chaque facteur.

Ces simulations ont été validées sur le plan technique et livrées sur la base de données du projet qui est en accès public⁴. De premiers éléments de validation sont fournis dans (Colette et al., 2017b) et des études plus ciblées sont en cours de publication.

² <http://ebas.nilu.no/>

³ <http://eclipse.nilu.no/>

⁴ <https://wiki.met.no/aerocom/user-server>

3.1 Variables de concentration étudiées

Le pas de temps considéré pour l'analyse des tendances est l'**année**. Un pas de temps plus fin n'a pas été jugé nécessaire compte tenu de l'objectif, qui est de caractériser les grandes évolutions de la qualité de l'air sur une longue période (> 10 années).

Les statistiques étudiées pour chaque polluant ou famille de polluants sont précisées ci-après (Tableau 1).

Tableau 1 : Statistiques de concentration prises en compte dans cette étude en accord avec les valeurs limites ou cibles et les objectifs de long terme des Directives européennes (2008/50/CE et 2004/107/CE) ainsi que les recommandations de l'OMS (2006, 2013).

NO₂	Moyenne annuelle
O₃	Moyenne annuelle SOMO35 ⁵ AOT40 pour la végétation ⁵ Statistiques relatives au maximum journalier de la moyenne glissante sur 8 heures, noté MDA8 : <ul style="list-style-type: none"> - nombre de dépassements du seuil de 50 ppb (100 µg.m⁻³) - nombre de dépassements du seuil de 60 ppb (120 µg.m⁻³) - 4e valeur la plus élevée sur l'année - maximum sur l'année
PM₁₀	Moyenne annuelle Nombre de dépassements du seuil de 50 µg.m ⁻³ en moyenne journalière
Métaux lourds dans les PM₁₀	Moyenne annuelle
HAP dans les PM₁₀	Moyenne annuelle
Ions inorganiques et pH dans les retombées atmosphériques	Moyenne annuelle
Ions inorganiques dans les particules en suspension	Moyenne annuelle
COV	Moyenne annuelle

⁵ **AOT40** : Indicateur de la pollution estivale due à l'ozone, défini pour la protection de la végétation et des écosystèmes (en anglais, *Accumulated Ozone over Threshold of 40 ppb*). Somme des différences entre les concentrations horaires d'ozone supérieures à 80 µg.m⁻³ et le seuil de 80 µg.m⁻³ (soit 40 parties par milliard) durant une période donnée (valeurs sur 1 heure mesurées quotidiennement entre 8 heures et 20 heures CET)

SOMO35 : indicateur de la pollution due à l'ozone, défini pour la protection de la santé humaine (en anglais : *Sum of Means over 35 ppb*). Somme des maximums journaliers des moyennes glissantes sur 8 heures qui dépassent 70 µg.m⁻³ (soit 40 parties par milliard)

3.2 Sélection des stations

3.2.1 Filtrage des données singulières

Si les séries de mesure utilisées sont constituées de données validées, cela n'exclut pas l'occurrence de valeurs singulières, liées à des effets locaux. En moyenne sur une année ou saison et sur un territoire, l'effet de ces anomalies est probablement réduit. Dans un objectif méthodologique, et dans l'éventualité où les données seraient exploitées à des échelles plus fines, une méthode d'identification de ces valeurs est mise au point.

Fondée sur une approche géostatistique, elle consiste à utiliser les informations disponibles dans le voisinage de chaque station, ce qui nécessite une densité de mesures relativement importante. Son application se limite donc actuellement aux mesures automatiques.

A un temps t fixé, l'observation faite à la station de mesure S_0 située en x_0 est considérée comme singulière si l'écart entre l'observation et sa valeur estimée par krigeage ordinaire⁶ à l'aide des observations voisines est plus grand qu'un seuil donné.

Le seuil est défini en utilisant l'incertitude de mesure fournie par l'écart-type (de l'erreur) de krigeage $\sigma_K(x_0)$ qui ne dépend pas des observations mais de l'échantillonnage spatial des stations de mesure et de la variabilité du phénomène. On introduit l'hypothèse suivante sur l'erreur de krigeage :

$$Z^*(x_0, t) - Z(x_0, t) = \sigma_K(x_0, t) \cdot T \quad (1)$$

où T est la loi normale standardisée.

Ensuite, à un seuil donné $q_{1-\frac{\alpha}{2}}$ (quantile de la loi normale), l'observation $Z(x_0, t)$ est considérée comme singulière au risque α de se tromper, si :

$$|Z^*(x_0, t) - Z(x_0, t)| > \sigma_K(x_0, t) \cdot q_{1-\frac{\alpha}{2}} \quad (2)$$

Une valeur conventionnelle de 5% est attribuée à α ($q_{0.9975} = 2.5$).

Les données identifiées comme singulières sont invalidées pour la suite de l'étude.

3.2.2 Filtre de complétude temporelle

Un double filtre est défini afin de ne retenir que les sites de mesure offrant une couverture adéquate de la période d'étude, sans pour autant réduire trop strictement le nombre de stations.

- i. Pour chacune des années, le pourcentage de données valides doit être d'au moins 75% quelle que soit la résolution temporelle considérée, sinon l'ensemble de

⁶ Le krigeage ordinaire est une combinaison linéaire des observations dans le voisinage de la station dans laquelle les poids sont déterminés par la résolution d'un système linéaire construit à partir d'une hypothèse de covariance stationnaire. Lorsque le phénomène étudié présente un caractère non stationnaire, il est possible d'en tenir compte dans le krigeage par l'introduction de variables auxiliaires en dérive externe.

l'année est écarté. Notons que ce seuil est plus bas que l'objectif de qualité de la Directive (85%⁷). Couramment utilisé au niveau européen (EEA, 2016 ; Colette et al., ETC/ACM, 2015 ; Colette et al., 2017b), il est jugé approprié pour des études sur la qualité de l'air (de Leeuw, ETC/ACM, 2012), permettant de conserver un nombre plus important de séries de données sans inclure pour autant des moyennes non représentatives de l'année. Ce seuil s'applique aussi pour les diagnostics saisonniers, par exemple 75% de l'été d'une année donnée devra être couvert par des données valides pour une analyse des tendances estivales.

- ii. Parmi les stations retenues en (i), seules les stations couvrant 75% des années pour la période considérée sont sélectionnées. Ce chiffre a été établi comme étant le plus robuste dans le cadre des analyses effectuées lors du projet CityZen (Colette et al., 2011). Un seuil plus bas risque de biaiser le résultat en sélectionnant des stations dont la couverture est particulièrement courte. Et un seuil plus haut n'est pas souhaitable non plus à cause de la réduction du nombre de stations choisies. L'inconvénient potentiel de cette approche est que les premières années de cette période seront potentiellement couvertes par moins de stations, ce qui pourrait introduire des biais.

Remarques :

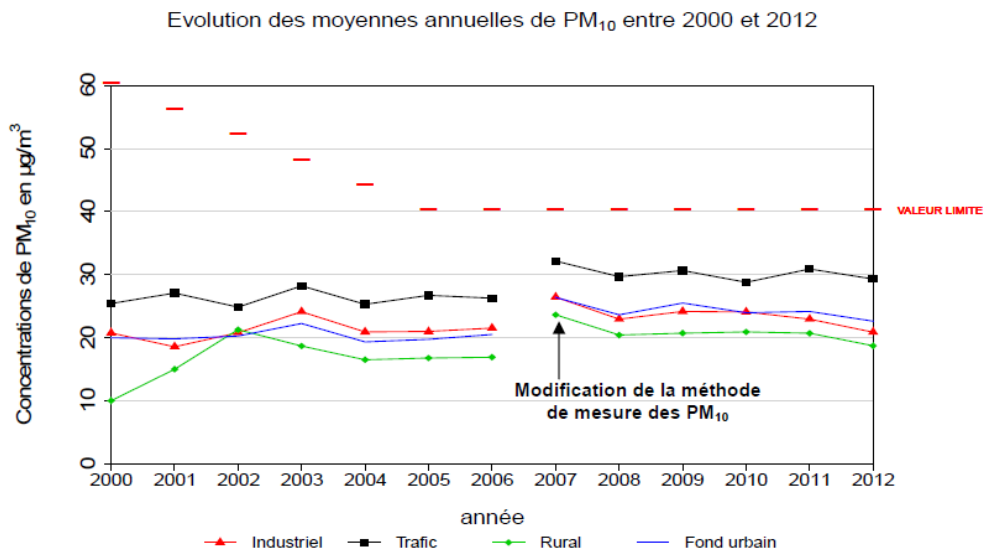
- Ce double filtre est comparable à celui qui est actuellement utilisé dans le bilan national de la qualité de l'air mais les seuils, ici définis d'après des travaux européens, diffèrent. Si l'exigence sur le pourcentage annuel de données valides est moindre (75% dans cette étude ; 85% dans le bilan national, par cohérence avec les données de rapportage), elle est supérieure en ce qui concerne la couverture minimale de la période d'étude (75% dans cette étude ; un tiers des années dans le bilan national). Une comparaison entre les deux filtres a été réalisée à titre de contrôle pour les PM₁₀ ; les tendances mises en évidence avec les deux sélections de stations sont similaires.

3.3 Correction des séries temporelles de PM

Jusqu'au 1er janvier 2007, la surveillance opérationnelle des PM₁₀ et des PM_{2.5} était réalisée en France par des systèmes de mesure automatique de type TEOM (PM₁₀, PM_{2.5}) ou jauge Bêta (PM₁₀). Or, comparés à la méthode de référence EN 12341 (gravimétrie), ces systèmes sous-estiment les concentrations de PM₁₀. Il s'agit d'un artefact connu, lié à la perte de composés semi-volatils.

⁷ 90% moins 5% pour le temps consacré à la maintenance et à l'étalonnage régulier dans le cas de la mesure fixe. Ce pourcentage représente le taux de saisie minimal sur la période de mesure soit, dans le cas d'une mesure réalisée en continu sur l'année, le taux de couverture annuel minimal.

Depuis le 1er janvier 2007, conformément à la législation européenne, la surveillance opérationnelle des PM₁₀ et des PM_{2.5} est réalisée de manière à assurer l'équivalence avec la méthode de référence. Ainsi l'année 2007 marque-t-elle une rupture dans l'historique, qui se caractérise par un saut positif dans les séries (Figure 2). Afin de ne pas être faussée par cette rupture, l'analyse de tendance nécessite une correction préalable des données antérieures à l'année 2007.



Source : Base de données nationale de la qualité de l'air

Figure 2 : Evolution moyenne par typologie des concentrations moyennes annuelles de PM₁₀ en France. Source : bilan annuel de la qualité de l'air 2012 (MEEM)

Note : Depuis 2014, le choix a été fait, pour le bilan annuel de la qualité de l'air, de présenter l'évolution des concentrations de particules à partir de l'année 2007 pour les PM₁₀ et 2009 pour les PM_{2.5} (la mesure des PM_{2.5} s'étant étendue avec l'application de la Directive 2008/50/CE).

Une approche simplifiée consiste à appliquer aux concentrations de PM₁₀ non volatiles un facteur multiplicatif uniforme, éventuellement différencié par saison. Peu adaptée pour une correction des données horaires ou journalières, elle constitue une première approximation satisfaisante en moyenne annuelle.

Une seconde approche, évaluée en 2009 (Malherbe et Bessagnet, 2009) et mise en œuvre en 2010 (Bessagnet et al., 2010), consiste à faire varier la correction dans l'espace et le temps à l'aide du modèle CHIMERE.

Pour des raisons pratiques, et compte tenu du temps imparti pour l'étude, la première méthode est employée. Elle ne permet pas de restituer la variabilité spatio-temporelle de la fraction semi-volatile des particules mais elle est jugée acceptable du fait que l'étude est conduite sur des moyennes annuelles et qu'il s'agit d'extraire une information spatiale agrégée sur les tendances. Le facteur retenu (1,36) est une valeur médiane calculée sur les données de PM₁₀ issues des sites « de référence »⁸ (cf. Annexe 1).

⁸ Sites de mesure des PM₁₀ sur lesquels sont mesurées simultanément la concentration totale et la concentration de la fraction non volatile des PM₁₀. La différence entre les deux mesures permet de quantifier la part semi-volatile des particules. Cf. Bessagnet et al., 2008.

3.4 Agrégation spatiale

La méthode de sélection des stations développée en 3.2 a permis de construire un panel de stations dont l'historique est suffisamment long et les données suffisamment robustes pour évaluer les tendances de manière fiable.

Ces tendances peuvent être évaluées par site de mesure ou, lorsque le nombre de stations le permet (cas des mesures automatiques), par domaine d'intérêt (France, région, zone administrative de surveillance...). Cette seconde option nécessite de disposer de concentrations moyennes représentatives des zones considérées.

Classiquement, cette agrégation spatiale se fait par moyenne arithmétique des moyennes calculées aux stations. Le principal défaut de cette approche est de ne pas tenir compte de la représentativité des stations ni de la structure spatiale du réseau de mesure.

Pour pallier ce problème, il est proposé d'estimer préalablement les concentrations de fond par krigeage sur l'ensemble de la France. Afin de représenter plus finement la variabilité spatiale des concentrations et leur caractère non stationnaire, les simulations obtenues par CHIMERE (cf. §2.2) sont utilisées comme dérive externe dans le krigeage. Un maillage de krigeage régulier de 5 km de résolution est défini sur la France. A partir des valeurs estimées sur ces mailles, des concentrations moyennes par domaine d'intérêt sont calculées.

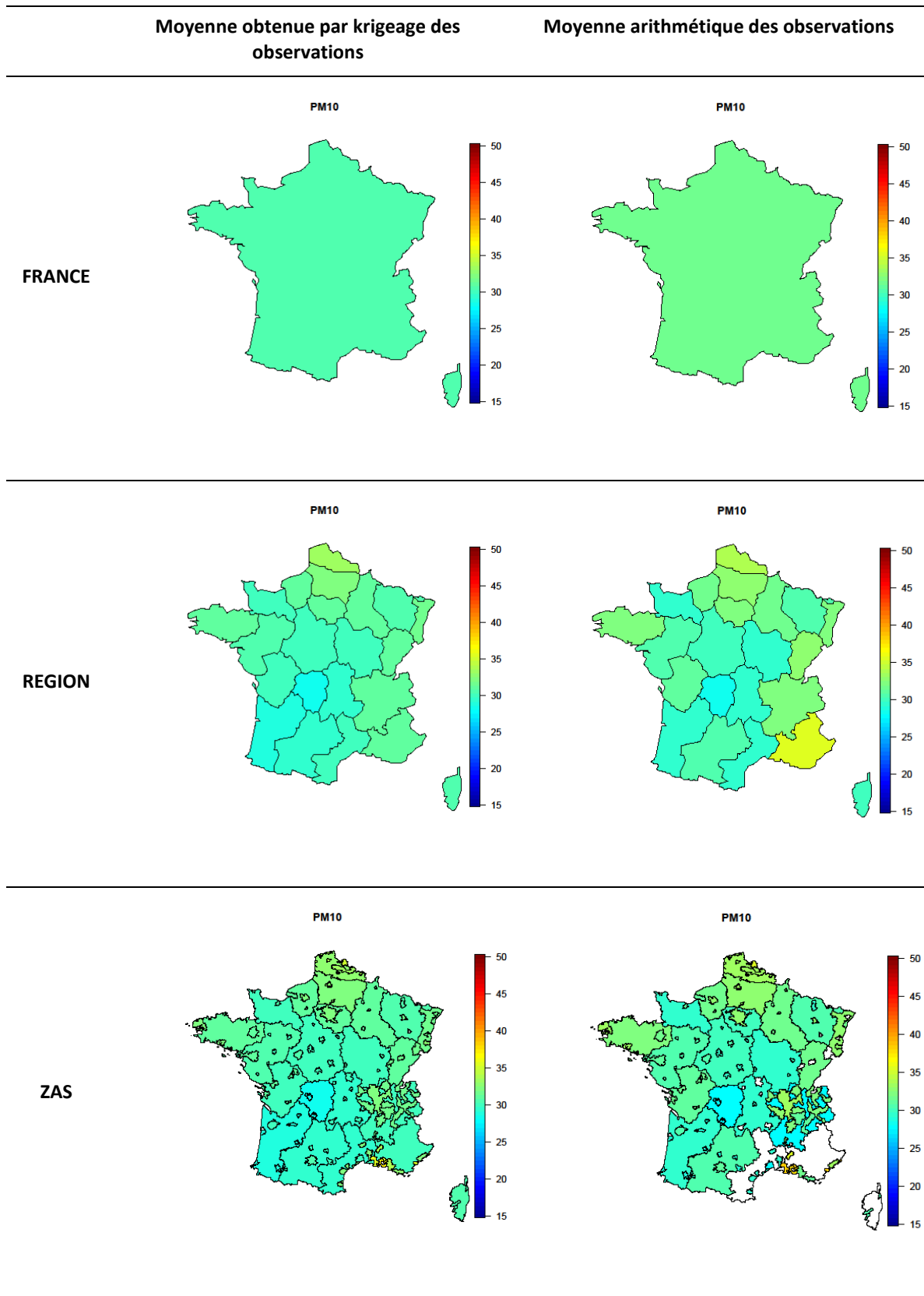
Le Tableau 2 montre une comparaison des concentrations moyennes annuelles 2010 de PM_{10} estimées sur la France, les régions administratives et les zones administratives de surveillance (ZAS) à partir d'un krigeage avec dérive externe et d'une moyenne arithmétique des moyennes annuelles aux stations. D'après les comparaisons réalisées, le calcul par moyenne arithmétique est susceptible de faire apparaître, du fait de la répartition des stations de mesure, une variabilité artificielle des concentrations d'une zone à une autre. Ce phénomène est amplifié si l'on remonte dans le temps, à cause du plus faible nombre de stations de mesure. D'autre part le krigeage permet d'estimer une concentration en toute partie du territoire alors que la moyenne arithmétique n'est pas nécessairement calculable (absence de station ou données non conformes aux critères de complétude pour l'année considérée).

D'un point de vue méthodologique, les moyennes calculées par krigeage permettent de construire une série temporelle « spatialisée » plus représentative des concentrations de fond moyennes, et d'assortir cette série d'un intervalle représentant la dispersion des valeurs krigées dans la zone d'intérêt. Cet intervalle est ici défini par les 5^e et 95^e centiles de ces valeurs (Figure 3). On constate l'importance du biais qui peut être introduit en se limitant à la moyenne arithmétique sur la Figure 4, où cette moyenne dépasse l'intervalle construit par krigeage pour les premières années de la période.

Lorsqu'il existe des lacunes dans les mesures ou que des stations ont été supprimées après application des critères de complétude, les séries krigées ont également l'avantage d'être complètes (voir Figure 5), ce qui facilite l'étude de la tendance (test de Mann-Kendall, calcul de la pente de Sen).

Remarque : l'application du krigeage aux données de mesures manuelles étudiées n'est pas adaptée en raison du nombre restreint de stations de mesure. Il peut néanmoins être envisagé de regrouper les stations par profils chimiques (Plaisance et al., 1996). En particulier, lorsque le nombre de sites est suffisant (par exemple pour les retombées atmosphériques 40 stations étaient opérationnelles en 2015), la classification hiérarchique ascendante sert à déterminer, à partir de données de spéciation, des comportements similaires entre plusieurs stations de mesures (Pascaud, 2013) et à étudier les évolutions temporelles par classe de stations.

Tableau 2 : Moyenne calculée sur la France métropolitaine, les régions administratives et les Zones Administratives de Surveillance (ZAS) de la concentration moyenne annuelle de PM₁₀ en 2010



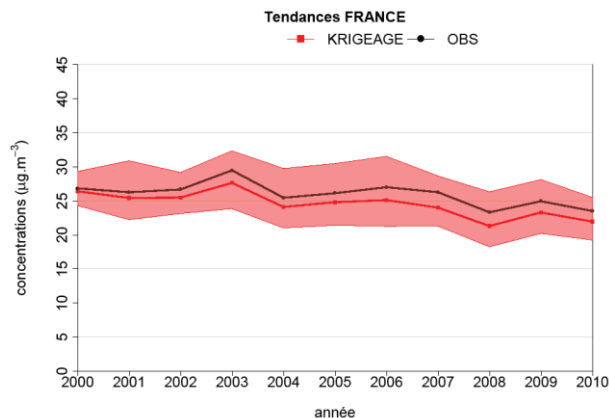


Figure 3 : Série temporelle de la concentration moyenne annuelle de fond de PM₁₀ calculée sur la France métropolitaine à partir d'un krigeage en dérive externe (rouge) et par moyenne arithmétique des observations (noir) sur la période 2000-2010. La plage rouge est délimitée par les 5^e et 95^e centiles des valeurs krigées.

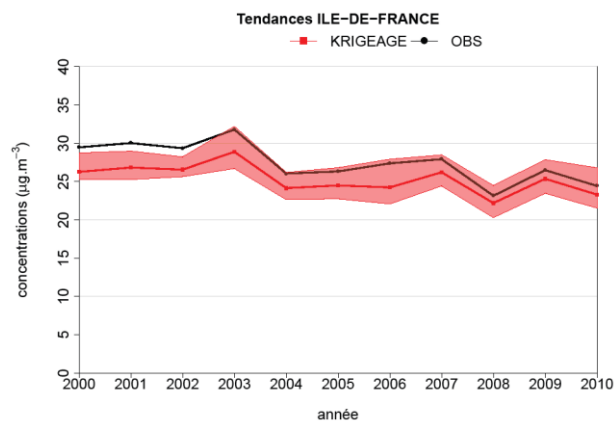


Figure 4 : Série temporelle de la concentration moyenne annuelle de fond de PM₁₀ calculée sur la région Ile-de-France à partir d'un krigeage en dérive externe (rouge) et par moyenne arithmétique des observations (noir) sur la période 2000-2010. La plage rouge est délimitée par les 5^e et 95^e centiles des valeurs krigées.

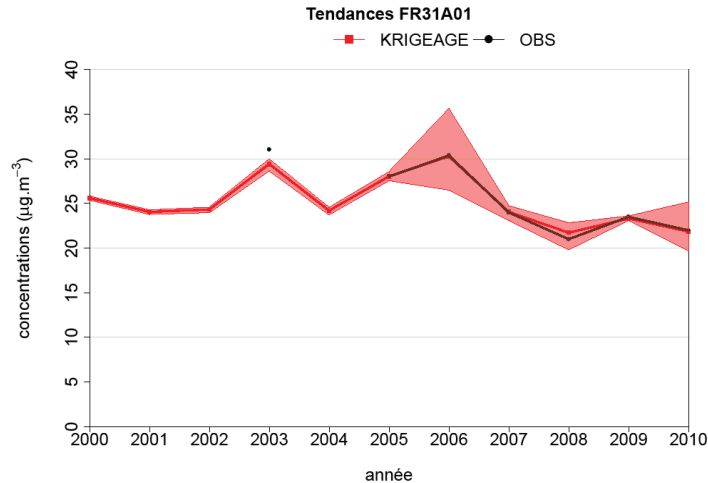


Figure 5 : Série temporelle de la concentration moyenne annuelle de fond de PM₁₀ calculée sur la zone agglomération de Bordeaux à partir d'un krigeage en dérive externe (rouge) et par moyenne arithmétique des observations (noir) sur la période 2000-2010. La plage rouge est délimitée par les 5^e et 95^e centiles des valeurs krigées.

3.5 Calcul de tendances

Les tendances sont caractérisées par deux tests statistiques : Mann-Kendall pour la significativité et Sen-Theil pour le calcul de la pente. Ces méthodes sont non-paramétriques, et fondées sur l'étude de la distribution des évolutions par paires.

Elles s'appliquent aussi bien aux séries de données mesurées aux stations, pour une analyse de tendance par site d'observation, ou aux séries de données agrégées spatialement, pour une analyse de tendance par domaine géographique (pays, région, zone administrative de surveillance).

3.5.1 Test de Mann-Kendall

La statistique de Mann-Kendall S est définie par :

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

avec

$$\begin{aligned} \text{sgn}(x_j - x_k) &= 1 \quad \text{si } (x_j - x_k) > 0 \\ &= 0 \quad \text{si } (x_j - x_k) = 0, \\ &= -1 \quad \text{si } (x_j - x_k) < 0 \end{aligned}$$

x_j est par exemple la concentration pour une année j (sur une station ou en moyenne sur une zone) ; n est le nombre d'années disponibles. S correspond donc au nombre de différences positives, moins le nombre de différences négatives. Si S est fortement positif, les tendances seront positives, et inversement.

Si l'échantillon contient plus de 10 valeurs ($n > 10$), la distribution de S peut être approchée par une loi normale moyennant la transformation suivante (où σ^2 est la variance de S) :

$$Z = (S-1)/\sigma \text{ si } S > 0$$

$$= 0 \text{ si } S = 0,$$

$$= (S+1)/\sigma \text{ si } S < 0$$

Le test de Mann-Kendall renvoie la valeur de la statistique réduite Z ainsi que la p -value correspondante. La tendance est considérée comme significative si cette p -value est inférieure à un seuil de risque donné (risque de conclure à tort à l'existence d'une tendance). Ce seuil est communément fixé à 5%.

Il est aussi d'usage de qualifier la significativité de la tendance selon différents seuils de risque, classiquement 1%, 5% et 10% : plus faible est la p -value, plus on peut conclure avec assurance à l'existence d'une tendance. On pourra ainsi distinguer les situations suivantes :

- *** p -value ≤ 0.001 , pour une tendance très fortement significative ;
- ** $0.001 < p$ -value ≤ 0.01 , pour une tendance fortement significative ;
- * $0.01 < p$ -value ≤ 0.05 , pour une tendance modérément significative ;
- + $0.05 < p$ -value ≤ 0.1 , pour une tendance faiblement significative ;
- ns p -value > 0.1 , pour une tendance non significative.

3.5.2 Pente de Sen

En faisant l'hypothèse d'une tendance linéaire, la concentration peut se décomposer comme suit :

$$C_t = B + Q \cdot t + \varepsilon_t$$

C_t est la concentration estimée pour l'année t , B , l'ordonnée à l'origine, Q , la pente et ε_t , le résidu de moyenne nulle. Dans le test de Sen, la pente est estimée de manière non-paramétrique. Pour une série temporelle de n mesures, un ensemble de pentes Q_{jk} est estimé pour chacune des $n(n-1)/2$ paires de données :

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

La pente de Sen est alors la médiane des $N=n(n-1)/2$ pentes estimées. Elle s'exprime en unité de concentration par an ou, après transformation (Colette et al., 2016), en pourcentage par an, ou en pourcentage sur la période. Elle peut être assortie d'un intervalle de confiance (en général à 95%) déduit de la distribution de ces N pentes.

Dans le contexte de la qualité de l'air, l'utilisation de ces tests offre des avantages notables par rapport aux régressions linéaires par moindres carrés, en particulier :

- La sensibilité aux valeurs aberrantes est moindre ;
- L'auto-corrélation temporelle n'a pas d'incidence, ce qui est essentiel pour des études réalisées à haute fréquence temporelle, un peu moins dans le contexte de tendances interannuelles.

4 RESULTATS : EVOLUTION TEMPORELLE DES CONCENTRATIONS

4.1 Mesures automatiques

L'analyse des tendances a été conduite sur les séries temporelles des concentrations agrégées spatialement à partir des données d'observation et de modélisation, ainsi qu'il est décrit au paragraphe 3.4. Des analyses destinées à affiner les conclusions en fonction des types d'environnement (rural, urbain, périurbain) et d'influence (fond, trafic) ont été réalisées en complément sur les séries de données observées.

4.1.1 Stations sélectionnées

La période d'étude est constituée des années couvertes à la fois par la mesure et la modélisation, soit **2000 à 2010**. S'agissant des analyses complémentaires réalisées sur les stations, la période d'étude a été étendue à toutes les années pour lesquelles des données étaient disponibles, soit **2000 à 2015**.

En vue d'une extension de la modélisation à des années ultérieures, la sélection des stations a été ainsi réalisée sur la période 2000 à 2015.

Dans les faits, le filtrage géostatistique a eu peu d'influence sur la sélection de stations mais il a son utilité pour ne pas inclure de valeurs aberrantes dans les calculs. En revanche, les critères de complétude suppriment chaque année un nombre relativement important de stations, quel que soit le polluant considéré. Ce phénomène est plus particulièrement marqué au début des années 2000.

Le nombre de stations sélectionnées, après filtrage des données singulières et application des critères de complétude sur la période 2000-2014, est nettement plus restreint que le nombre de stations actuellement en activité dans le réseau (on comparera les chiffres du Tableau 2 aux cartes de la Figure 1) mais il reste suffisant pour l'élaboration de cartographies ; de plus, les stations conservées se répartissent sur l'ensemble des régions françaises.

Tableau 2 : Nombre de stations retenues pour les polluants mesurés de manière automatique

NO ₂	O ₃	PM ₁₀
199	177	89

4.1.2 Dioxyde d'azote (NO₂)

La Figure 6 présente les cartes analysées de la concentration moyenne annuelle de fond de NO₂ construites à partir des données d'observation du réseau de mesure français et des sorties du modèle de chimie-transport CHIMERE, ainsi que la cartographie des pentes de Sen sur la période 2000-2010. La réduction des concentrations est relativement homogène sur la France, tout en étant plus importante sur les grandes agglomérations où les concentrations sont les plus élevées. Les régions de l'Est du pays et l'Île-de-France sont celles où les progrès sont les plus marqués.

Ce point est mis en évidence par la

Figure 7 qui compare les niveaux de concentration observés en 2000 (en ordonnées) pour différentes typologies de stations avec les tendances sur la période 2000-2015 qui leur sont associées (en abscisse), tendances exprimées annuellement en valeur absolue ($\mu\text{g}/\text{m}^3$) ou relative (%). Les réductions en valeur absolue les plus importantes sont observées aux stations trafic et urbaines de fond, c'est-à-dire dans les zones où les niveaux sont les plus élevés. Cependant, ponctuellement, certaines stations trafic n'enregistrent pas de tendance à la baisse ou celle-ci reste très faible. Exprimée en baisse relative, en prenant pour référence la valeur estimée au début de la période, les baisses de concentration les plus importantes (jusqu'à 4% par an) concernent majoritairement des stations de fond, situées aussi bien en milieu urbain que dans des zones rurales non directement influencées par les sources. Ce résultat montre les bénéfices combinés des politiques de réduction des émissions ciblant les sources locales dans les villes et des politiques de plus grande échelle orientées sur des secteurs d'activité.

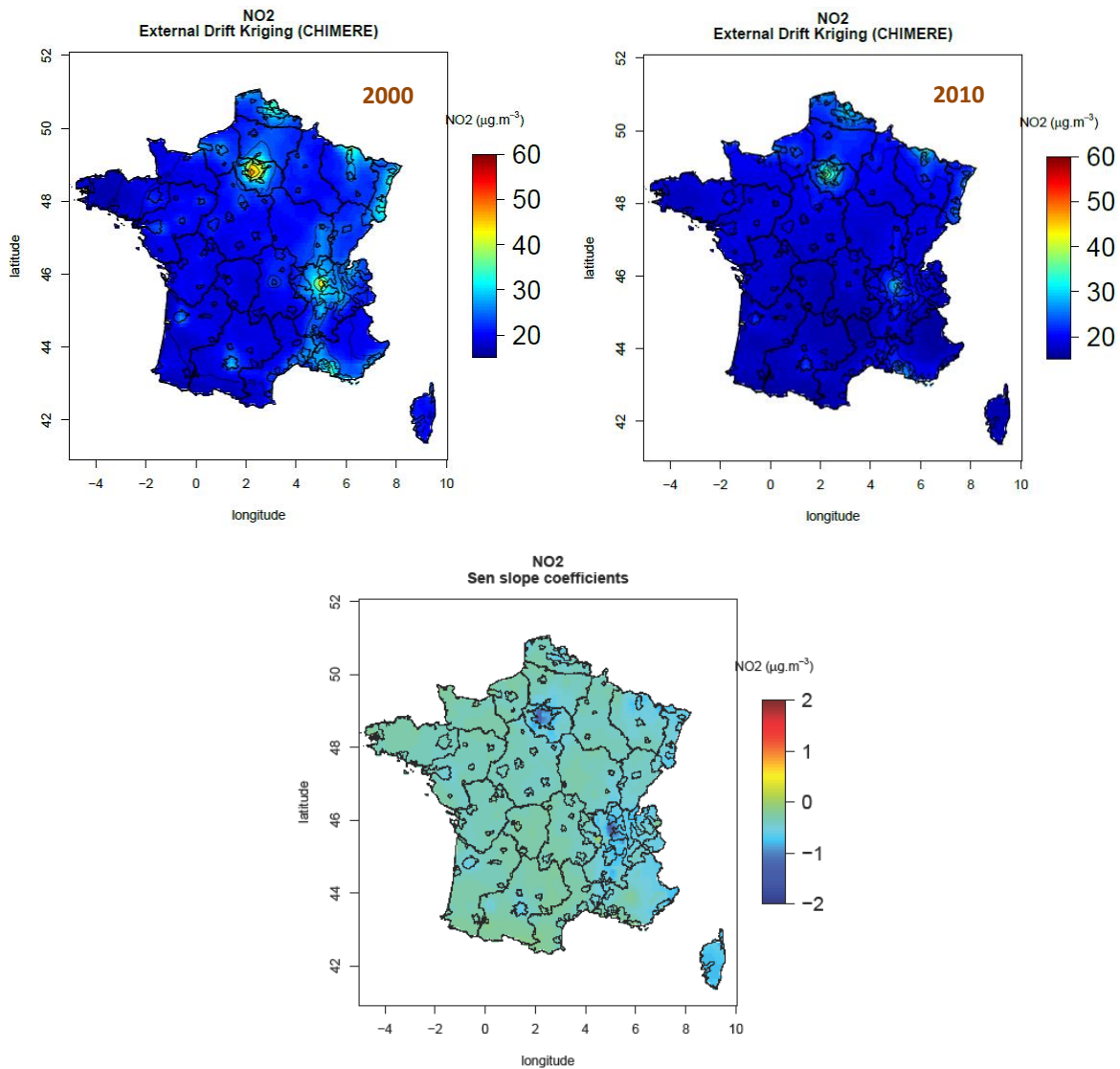


Figure 6 : Carte analysée de NO₂ en moyenne annuelle pour 2000 et 2010 et cartographie des pentes de Sen calculées en chaque maille pour la période 2000-2010. Les contours à l'intérieur de la France délimitent les régions et les ZAS.

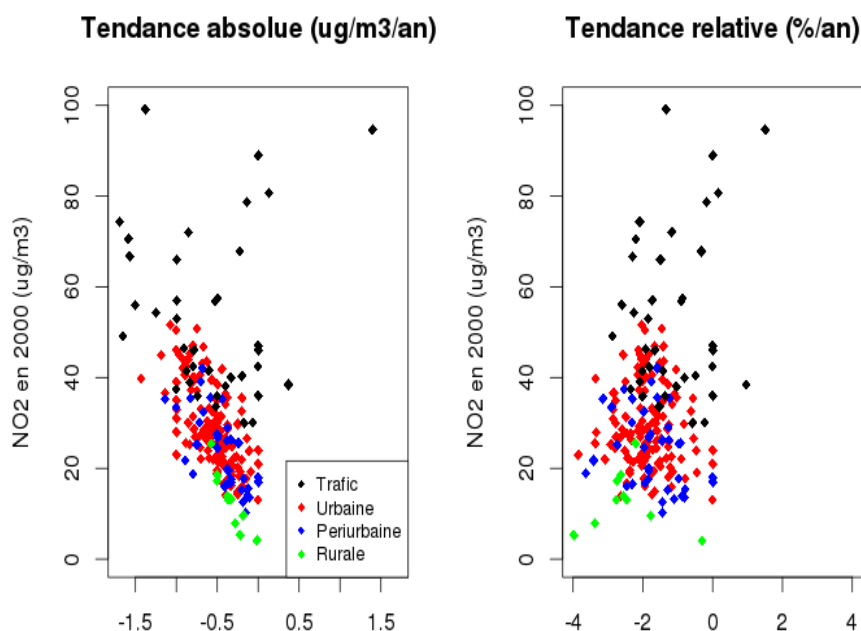


Figure 7 : Comparaison de la moyenne annuelle des concentrations de NO₂ en 2000 en différents points de mesure avec les tendances associées à chaque station sur la période 2000-2015, en valeur absolue ($\mu\text{g}/\text{m}^3/\text{an}$, fig. de gauche) et en relatif ($\%/ \text{an}$, fig. de droite). Différentes typologies sont distinguées : noir ; trafic, rouge : urbaine de fond, bleu : péri-urbaine de fond, vert : rurale de fond.

La Figure 8 illustre l'effet de l'agrégation spatiale sur les tendances du NO₂. Elle représente, à titre d'exemple, l'évolution de la concentration moyenne annuelle de NO₂ de fond agrégée sur la France et sur trois régions administratives (Ile-de-France, PACA et Rhône-Alpes). Deux méthodes différentes ont été utilisées pour calculer les agrégats moyens annuels :

- **Méthode 1** : Une moyenne arithmétique par zone des concentrations moyennes annuelles mesurées aux stations ;
- **Méthode 2** : Une moyenne arithmétique par zone des concentrations moyennes annuelles estimées par krigeage en chaque maille.

De manière générale, les agrégats calculés à partir des seules observations surestiment les agrégats calculés à partir des cartographies krigées, qui intègrent des informations supplémentaires et sont jugés plus fiables. Du point de vue des tendances, s'agissant des régions prises pour exemple en Figure 8, le comportement des deux méthodes semble assez similaire. Ce résultat s'explique par le fait que sur ces régions, l'échantillonnage du réseau de mesure est dense et représentatif de l'ensemble des situations observées dans la région.



Figure 8 : Séries temporelles de la concentration moyenne annuelle de NO_2 de fond calculée sur la France métropolitaine (en haut à gauche) et sur trois régions illustratives de différentes situations à partir d'un krigeage en dérive externe (rouge) et par moyenne arithmétique des observations (noir) sur la période 2000-2010. La plage rouge est délimitée par les 5^e et 95^e centiles des valeurs krigées.

La Figure 9 permet de comparer le comportement des pentes de Sen calculées avec les deux approches de manière plus exhaustive sur l'ensemble des Zones Administratives de Surveillance (ZAS) et non plus sur trois régions particulièrement bien couvertes par le dispositif de mesure. Les pentes calculées par la méthode 1 font apparaître une plus grande variabilité, en particulier des tendances décroissantes plus marquées qu'avec la méthode 2, mais aussi des tendances positives qui n'apparaissent jamais avec la deuxième approche. Cela s'explique par la faible densité et/ou l'échantillonnage préférentiel du réseau de mesure dans certaines régions, qui peuvent conduire à des conclusions erronées sur les tendances.

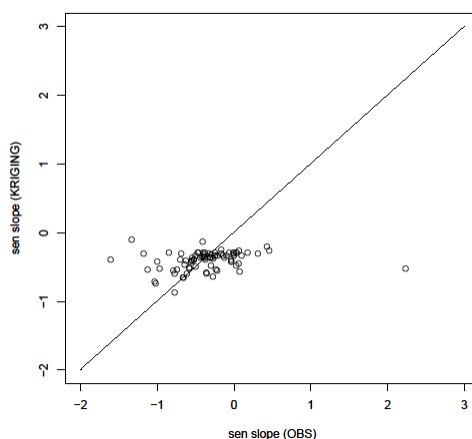


Figure 9 : Nuage de points des pentes de Sen calculées par ZAS à partir des observations aux stations (en abscisse) et des cartographies krigées (en ordonnée) pour la concentration moyenne annuelle de NO₂ de fond

La Figure 10 présente, sous forme de diagrammes en bâtons, les pentes de Sen calculées par région française. Le diagramme du haut montre les tendances absolues (en $\mu\text{g}/\text{m}^3/\text{an}$), celui du bas, les tendances relatives sur la période (en %). Ces tendances, assorties de leur intervalle de confiance, ont été calculées à partir des concentrations agrégées par krigeage (méthode 2) sur chacune des régions françaises.

Ces diagrammes indiquent une tendance à la baisse pour l'ensemble des régions. Pour la Bretagne, la Haute-Normandie et la région PACA, la borne supérieure de l'intervalle de confiance est toutefois légèrement positive : pour ces trois régions, la tendance est non ou faiblement significative (p-value associée à la statistique de Mann-Kendall comprise entre 8% pour la Bretagne et 12%).

Le Tableau 16 en Annexe 2 fournit des résultats similaires par ZAS.

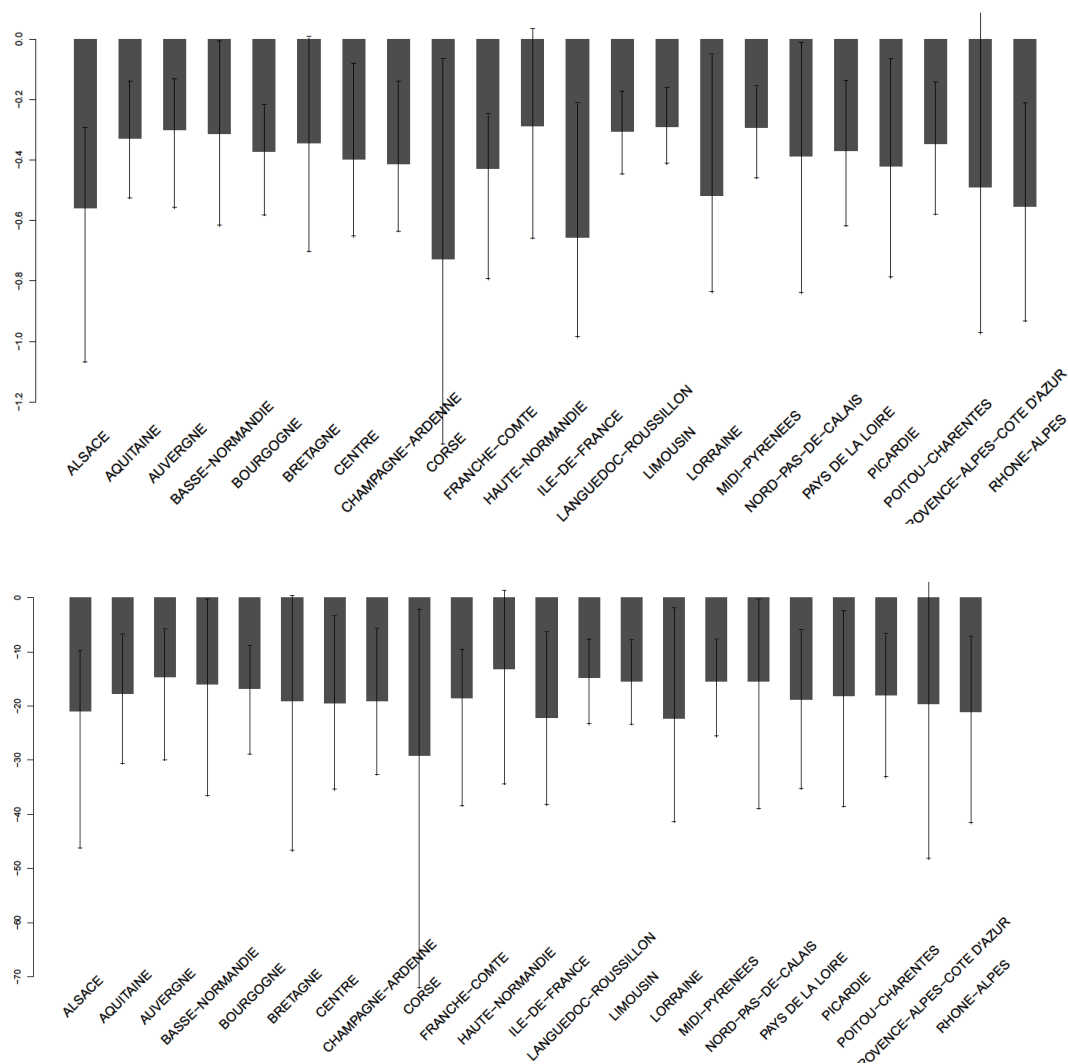


Figure 10 : Tendance absolue (en $\mu\text{g}/\text{m}^3/\text{an}$, en haut) et relative (en %, en bas) de la concentration moyenne annuelle de NO_2 de fond agrégée par région sur la période 2000-2010 et intervalle de confiance à 95% associé

En moyenne sur la France métropolitaine, en agrégeant les concentrations selon la méthode 2, la baisse observée entre 2000 et 2010 est de $0,37 \mu\text{g}/\text{m}^3/\text{an}$ en moyenne, soit de $4,1 \mu\text{g} \cdot \text{m}^{-3}$ sur la période (Tableau 3). Cette valeur, qui représente une diminution de 17,3%, est cohérente avec l'évolution globale sur l'Europe qui est estimée à -17% entre 2002 et 2012 (Colette et al., 2016). A noter que la baisse rapportée par les réseaux de mesure européens sur la période 1990-2012 atteint -41% (Colette et al., ETC/ACM, 2015).

Tableau 3 : Tendance absolue et relative de la concentration moyenne annuelle de NO_2 de fond agrégée sur la France au moyen d'un krigeage

Polluant	Période	Pente de Sen ($\mu\text{g}/\text{m}^3/\text{an}$)	Tendance relative (%)	p-value du test de Mann-Kendall et significativité de la tendance
NO_2	2000-2010	-0,37	-17,3	0,008 (**)

4.1.3 Ozone (O₃)

L'étude des tendances a été réalisée pour les différents indicateurs de la pollution d'ozone mentionnés dans le Tableau 1. Les résultats sont détaillés pour un indicateur caractéristique des pics estivaux d'ozone, le 4MDA8, quatrième valeur la plus élevée du maximum journalier des moyennes glissantes sur huit heures (§4.1.3.1), puis sont mis en regard des tendances obtenues pour la moyenne annuelle (§4.1.3.2). Les tendances calculées pour l'ensemble des variables sont synthétisées dans le Tableau 4 (§4.1.3.3).

De manière générale, ainsi qu'il ressort de ces résultats, le caractère non-linéaire de l'ozone complexifie l'interprétation des tendances. En particulier, si les concentrations les plus élevées de ce polluant tendent plutôt à diminuer par suite d'une réduction des émissions de précurseurs d'ozone, dans les zones où les concentrations sont plus faibles, une évolution opposée est observée. Ces zones sont généralement les centres urbains où les concentrations d'oxydes d'azote sont plus élevées du fait essentiellement du trafic routier. Les oxydes d'azote sont des précurseurs de l'ozone, mais lorsqu'ils sont présents en forte quantité, et dans certaines conditions, ils détruisent également l'ozone (c'est le phénomène de titration), ce qui explique que les niveaux d'ozone en milieu urbain sont souvent inférieurs aux niveaux observés en milieu rural. La diminution des concentrations d'oxydes d'azote dans les centres urbains sous l'effet des politiques de réduction des émissions peut avoir ainsi pour résultat d'inhiber ce phénomène et conduire localement à une augmentation des concentrations d'ozone.

4.1.3.1 Pics estivaux

La Figure 11 présente les cartes analysées des pics estivaux d'ozone (évalués en utilisant l'indicateur 4MDA8) ainsi que la carte des pentes de Sen qui montre l'évolution de ces pics sur la période 2000-2010.

Cette carte des tendances montre une certaine hétérogénéité dans la distribution géographique des tendances et illustre toute la complexité de la question de la pollution à l'ozone. Les pics baissent sur la majeure partie du territoire, avec quelques exceptions et des augmentations modérées localement sur une partie du Grand Est, d'Auvergne Rhône Alpes, de Provence-Alpes-Côte d'Azur, de la Nouvelle Aquitaine et de l'Occitanie.

Outre cette hétérogénéité géographique, les tendances calculées par station révèlent une variabilité liée au type d'environnement (rural ou urbain). On peut le constater sur la Figure 12 qui représente la distribution des pentes de Sen estimées par site de mesure pour la période 2000-2015 en fonction de la typologie. La proportion de pentes négatives, i.e. de tendances à la baisse, est supérieure pour les stations rurales, en accord avec des résultats obtenus sur l'Europe (Colette et al., ETC/ACM, 2015).

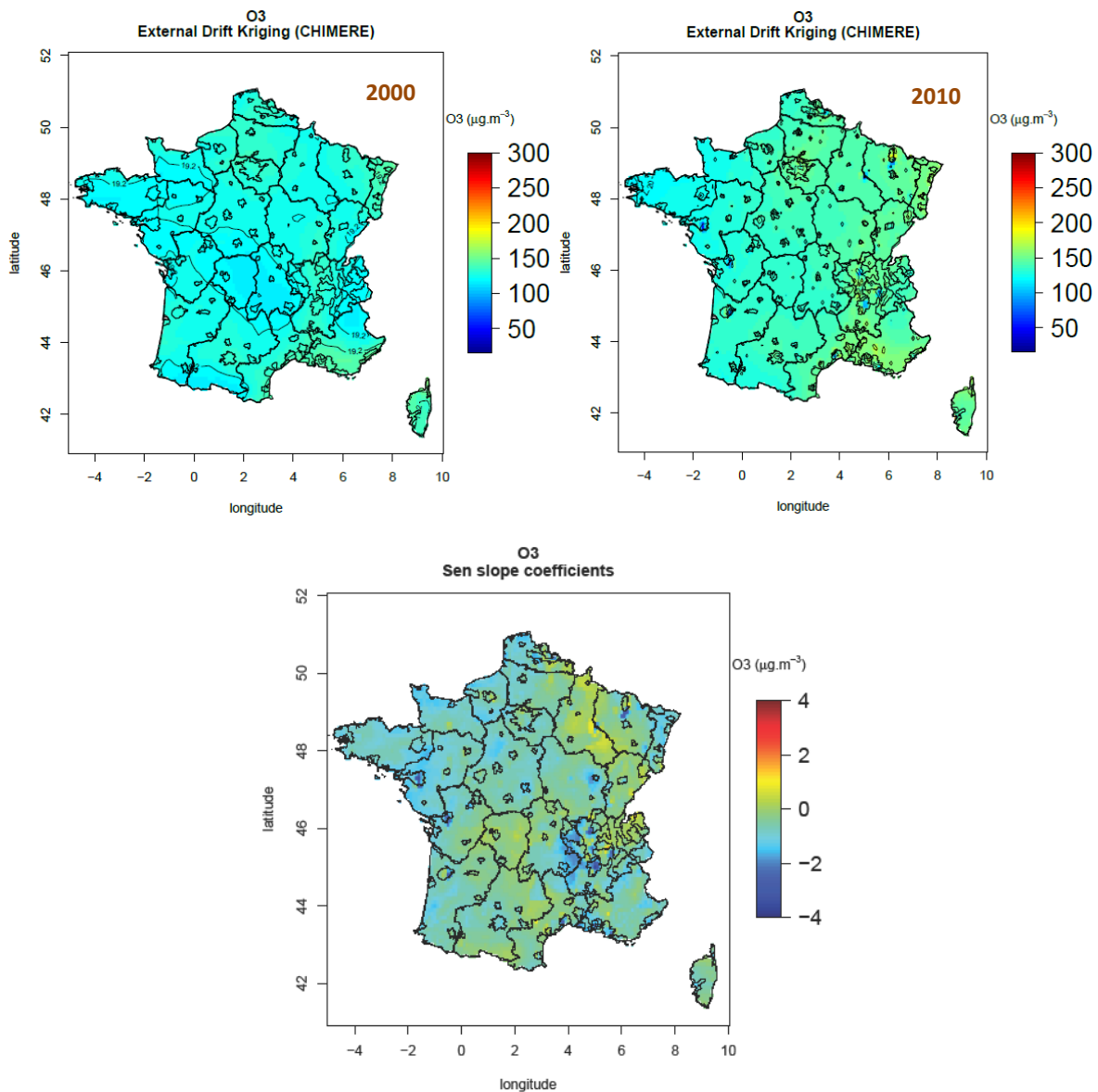


Figure 11 : Carte analysée de l'indicateur 4MDA8 pour 2000 et 2010 et cartographie des pentes de Sen calculées en chaque maille pour la période 2000-2010. Les contours à l'intérieur de la France métropolitaine délimitent les régions et les ZAS.

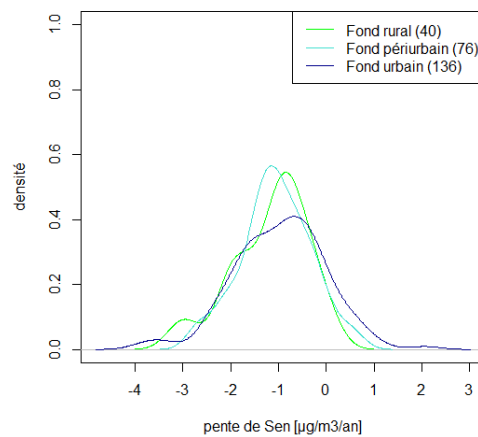


Figure 12 : Distribution des pentes de Sen calculées par station sur la période 2000-2015 pour l'indicateur 4MDA8.

La Figure 13 illustre l'effet de la méthode d'agrégation spatiale sur les tendances des pics estivaux d'O₃. Elle représente, à titre d'exemple, l'évolution des pics agrégés sur la France métropolitaine et sur trois régions administratives (Île-de-France, PACA et Corse) selon les méthodes 1 et 2 (cf. §4.1.2). Les agrégats calculés à partir des seules observations diffèrent légèrement des agrégats calculés à partir des cartographies krigées mais du point de vue des tendances, le comportement des deux méthodes reste similaire pour les régions ici considérées.

Il apparaît également que même si la tendance des pics d'ozone est à la baisse, les niveaux restent soutenus. La 4^e valeur la plus élevée de MDA8 reste largement supérieure à la valeur cible de l'OMS (100 µg.m⁻³) et dépasse souvent l'objectif de long terme de l'Union Européenne (120 µg.m⁻³).



Figure 13 : Séries temporelles de l'indicateur 4MDA8 calculé en moyenne sur la France métropolitaine (en haut à gauche) et sur trois régions illustratives de différentes situations à partir d'un krigage en dérive externe (rouge) et par moyenne arithmétique des observations (noir) sur la période 2000-2010. La plage rouge est délimitée par les 5^e et 95^e centiles des valeurs krigées.

Si l'on compare de manière plus exhaustive les pentes estimées par ZAS à partir des deux méthodes d'agrégation (par krigage ou par moyenne arithmétique), on constate au contraire des différences systématiques (Figure 14). Les pentes issues des moyennes arithmétiques sont plus dispersées et surtout, elles présentent beaucoup plus de valeurs positives. Il est donc essentiel de s'affranchir du facteur d'inhomogénéité du réseau, sans quoi on risque de conclure que les pics d'ozone augmentent, alors qu'il s'agit d'un artefact dû à l'échantillonnage du réseau.

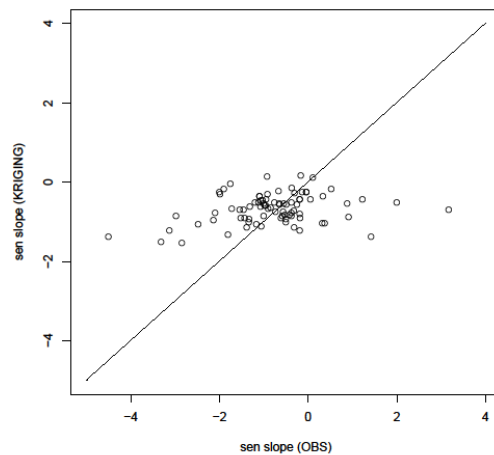


Figure 14 : Nuage de points des pentes de Sen calculées par ZAS à partir des observations aux stations (en abscisse) et des cartographies krigées (en ordonnée) pour l'indicateur 4MDA8

Sur la Figure 15, sont présentées les pentes de Sen calculées par région française selon la méthode 2 (agrégation spatiale réalisée à partir du krigeage). Le diagramme du haut montre les tendances absolues (en $\mu\text{g}/\text{m}^3/\text{an}$), celui du bas, les tendances relatives sur la période (en %). Les intervalles de confiance à 95% associés à ces tendances sont matérialisés par des segments.

On constate une tendance à la baisse pour l'ensemble des régions françaises. Les augmentations locales identifiées sur la cartographie de la Figure 11 n'ont donc pas d'effet en moyenne par région. Cependant, il faut souligner l'importante variabilité interannuelle, qui induit une absence de significativité statistique pour les tendances sur l'ensemble des régions, comme l'indiquent les barres verticales qui représentent l'intervalle de confiance.

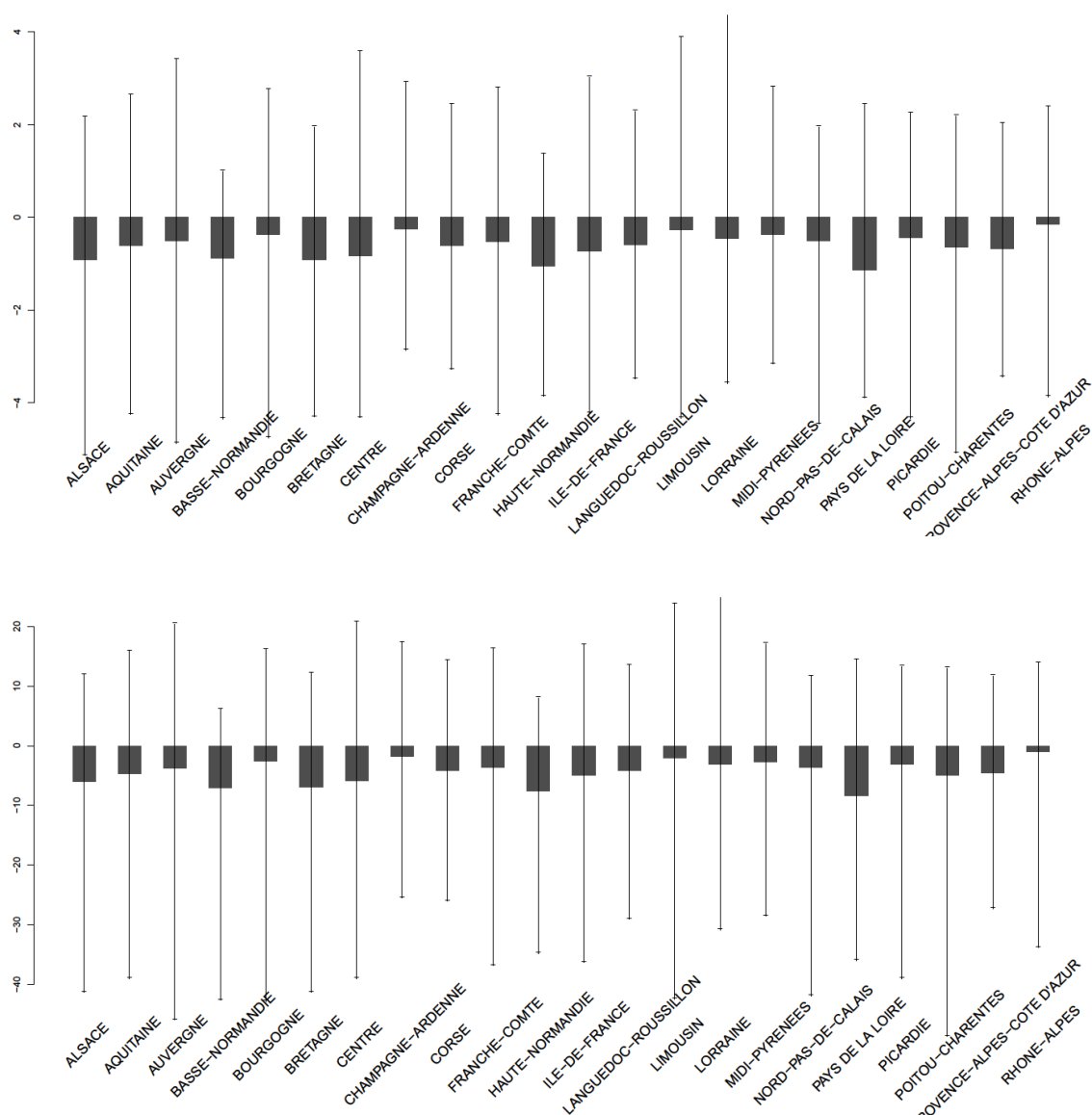


Figure 15 : Tendance absolue (en $\mu\text{g}/\text{m}^3/\text{an}$, en haut) et relative (en %, en bas) de l'indicateur 4MDA8 agrégé par région et intervalle de confiance à 95% associé

En moyenne sur la France métropolitaine, l'évolution des pics d'ozone sur la décennie 2000-2010 indique une baisse de 3,8% (cf. Tableau 4), mais celle-ci n'est pas statistiquement significative du fait de la forte variabilité interannuelle. Limiter l'analyse à la période 2000-2010, n'est justifié que par l'ambition de cette étude de proposer des chiffres représentatifs de l'ensemble du territoire à partir d'une réanalyse à haute résolution. Si l'on se focalise sur les stations péri-urbaines, particulièrement exposées aux panaches d'ozone urbains, on peut étendre la période d'analyse jusqu'à 2015 et on constate alors que la baisse relative atteint -9,8%, ce chiffre restant potentiellement influencé par la variabilité interannuelle de la météorologie.

4.1.3.2 Comparaison avec la moyenne annuelle

La Figure 16 ci-dessous, qui montre les tendances des pics et des moyennes annuelles mesurés aux stations depuis 2000, résume la situation de l’ozone : on observe une tendance plutôt à la baisse sur les pics (concentrations les plus élevées), tant en intensité qu’en fréquence, mais les niveaux moyens de fond n’enregistrent pas de tendances significatives, en dépit des efforts de réduction des émissions des précurseurs de l’ozone (oxydes d’azote et composés organiques volatils) consentis ces dernières années. Cela démontre que l’ozone n’est pas régi seulement par les émissions. Sa production est en effet influencée par les conditions météorologiques et l’élévation des températures en France et en Europe peut conduire à une augmentation des niveaux de fond d’ozone. Il s’agit également d’un polluant à longue durée de vie, qui peut être transporté sur de très longues distances à l’échelle de l’hémisphère. Ainsi, les concentrations d’ozone de fond en France sont-elles influencées par les émissions de précurseurs possiblement situés dans des pays lointains.

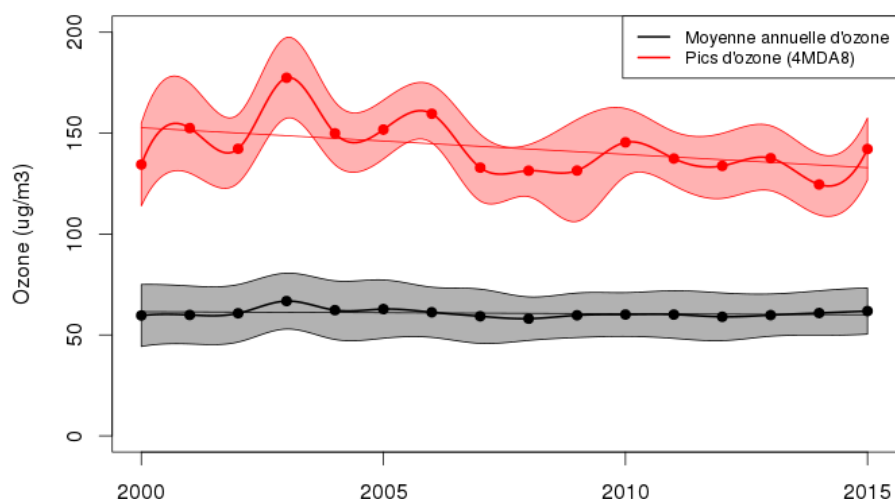


Figure 16 : Evolution temporelle des niveaux d’ozone en France depuis 2000. En noir, les concentrations moyennes annuelles, en rouge les pics (évalués à partir de l’évolution du 4MDA8)

L’hétérogénéité des tendances constatée pour les pics se vérifie aussi pour la moyenne annuelle. La Figure 17 met en évidence la variabilité des tendances de la moyenne annuelle d’ozone en fonction des typologies de stations en comparant ces tendances aux niveaux observés en 2000 : les stations rurales de fond connaissent pour la plupart une baisse significative des niveaux moyens de concentration, alors, que pour beaucoup de stations urbaines de fond ces niveaux sont en augmentation, en particulier à cause de la réduction de l’effet de titration décrit précédemment.

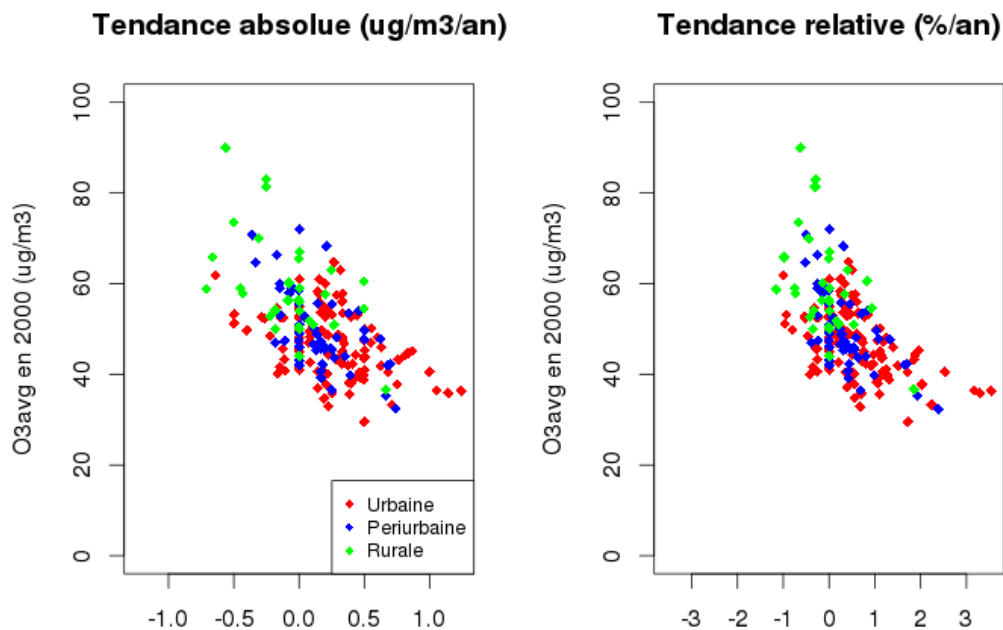


Figure 17 : Comparaison de la moyenne annuelle des concentrations d’ozone en 2000 en différents points de mesure avec les tendances sur la période 2000-2015 associées à chaque station, en valeur absolue ($\mu\text{g}/\text{m}^3/\text{an}$, fig. de gauche) et en relatif ($\%/ \text{an}$, fig. de droite). Différentes typologies sont distinguées : rouge : urbaine de fond, bleu : péri-urbaine de fond, vert : rurale de fond.

4.1.3.3 Autres indicateurs

L’évolution d’un ensemble d’indicateurs d’ozone en valeur absolue et relative est donnée dans le Tableau 4.

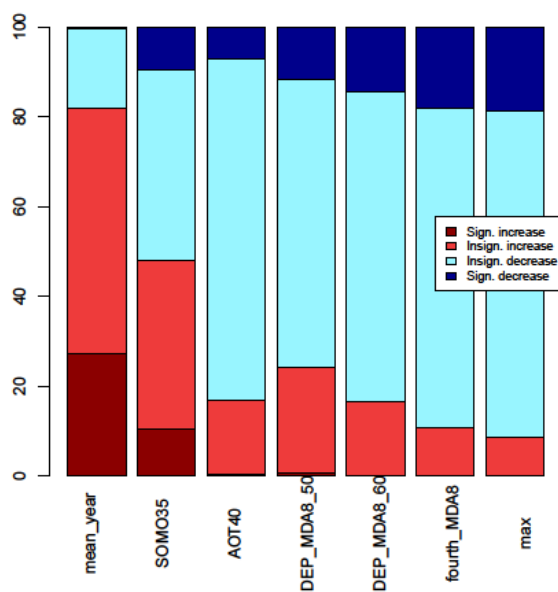
La baisse des pics d’ozone présentée en Section 4.1.3.1 est un élément encourageant, même si ceux-ci demeurent élevés. Sur la période 2000-2010, la valeur du quatrième pic annuel le plus élevé révèle une baisse de 3,8% et le nombre de dépassements de l’objectif de long terme de l’Union Européenne (60 ppb ou $120 \mu\text{g} \cdot \text{m}^{-3}$), une diminution de 6,2%. A l’inverse les moyennes annuelles d’ozone augmentent sur le territoire national en moyenne de 5,5%. Les indicateurs d’exposition tels que le SOMO35, défini pour la protection de la santé humaine (OMS, 2013), ou l’AOT40, défini pour la protection des écosystèmes et de la végétation (Directive 2008/50/CE), sont influencés à la fois par l’évolution des pics et de l’ozone de fond. Cette double influence, conjuguée à celle de l’importante variabilité interannuelle (cf. les intervalles de confiance à 95% des pentes de Sen qui incluent des valeurs positives et négatives), conduit à des signaux contradictoires (augmentation de 9,4% de SOMO35 et baisse de 14,3% de l’AOT40).

Tableau 4 : Tendance absolue et relative des différents indicateurs d’ozone agrégés sur la France au moyen d’un krigeage

Indicateur	Période	Pente de Sen (en unité de l’indicateur/an)	Tendance relative (%)	p-value du test de Mann-Kendall et significativité de la tendance
Moyenne annuelle (ppb)	2000-2010	0,28	5,5	0,21 (ns)
SOMO35 (ppb.days)	2000-2010	143	9,4	0,44 (ns)
AOT40 (ppb.hours)	2000-2010	-178	-14,3	0,88 (ns)
Nb_jours MDA8 > 50ppb (days)	2000-2010	-0,22	-4,4	0,64 (ns)
Nb_jours MDA8 > 60ppb (days)	2000-2010	-0,12	-6,2	0,76 (ns)
4 ^e valeur la plus élevée de MDA8 (ppb)	2000-2010	-0,54	-3,8	0,76 (ns)
Maximum annuel de MDA8 (ppb)	2000-2010	-0,75	-4,7	0,76 (ns)

1 ppb d’O₃ = 2 µg.m⁻³ d’O₃

La fraction de sites de mesure pour lesquels la tendance est à la hausse ou à la baisse est représentée sur la Figure 18. On retrouve le fait qu’à l’exception de la moyenne annuelle (et dans une certaine mesure aussi du SOMO35), des baisses sont constatées pour tous les indicateurs sur presque 80% des sites de mesure. Ces baisses sont toutefois non-significatives, et des tendances négatives significatives sont limitées à moins de 20% des sites. Il faut donc être prudent sur les conclusions tirées de l’analyse de tendance d’ozone sur une période aussi courte que 10 ans.



- mean_year : moyenne annuelle
- DEP_MDA8_50 et 60 : nombre de jours par an où le maximum de la moyenne glissante sur 8 heures est supérieur à 50ppb ou 60 ppb
- fourth_MDA8 : quatrième plus forte valeur du maximum journalier de la moyenne glissante sur 8 heures
- max : plus forte valeur observée de la moyenne journalière glissante sur 8 heures

Figure 18 : Pourcentage de stations françaises pour lesquelles la tendance est à la hausse de manière significative (rouge sombre), à la hausse de manière non significative (rouge), à la baisse de manière non significative (bleu), et à la baisse de manière significative (bleu sombre) sur la période 2000-2010 pour chaque indicateur relatif à l’ozone

4.1.4 Particules (PM₁₀)

4.1.4.1 Moyenne annuelle

La Figure 19 présente les cartes analysées de la concentration moyenne annuelle de fond de PM₁₀ construites par krigeage à partir des données d'observation du réseau de mesure français et des sorties du modèle de chimie-transport CHIMERE, ainsi que la cartographie des pentes de Sen sur la période 2000-2010.

Au début des années 2000, une large partie de la France présentait des concentrations moyennes de fond assez élevées, entre 25 et 30 µg.m⁻³. Sur la période 2000-2010, ces concentrations montrent une tendance générale à la baisse, à l'exception de quelques augmentations localisées, situées notamment dans le nord de la France.

Ce constat reste valable à une échelle d'analyse plus fine, comme le montre la Figure 20, qui compare les tendances de la moyenne annuelle aux niveaux observés en 2000 en fonction de la typologie de station. Cette représentation indique une diminution des concentrations quel que soit le type de site (implantation rurale ou urbaine, sous influence du fond ou du trafic).

Comme pour le NO₂, ces différents résultats mettent en évidence le bénéfice combiné des politiques de gestion des émissions à grande échelle, qui ciblent des secteurs d'activité, et des politiques orientées sur des sources locales.

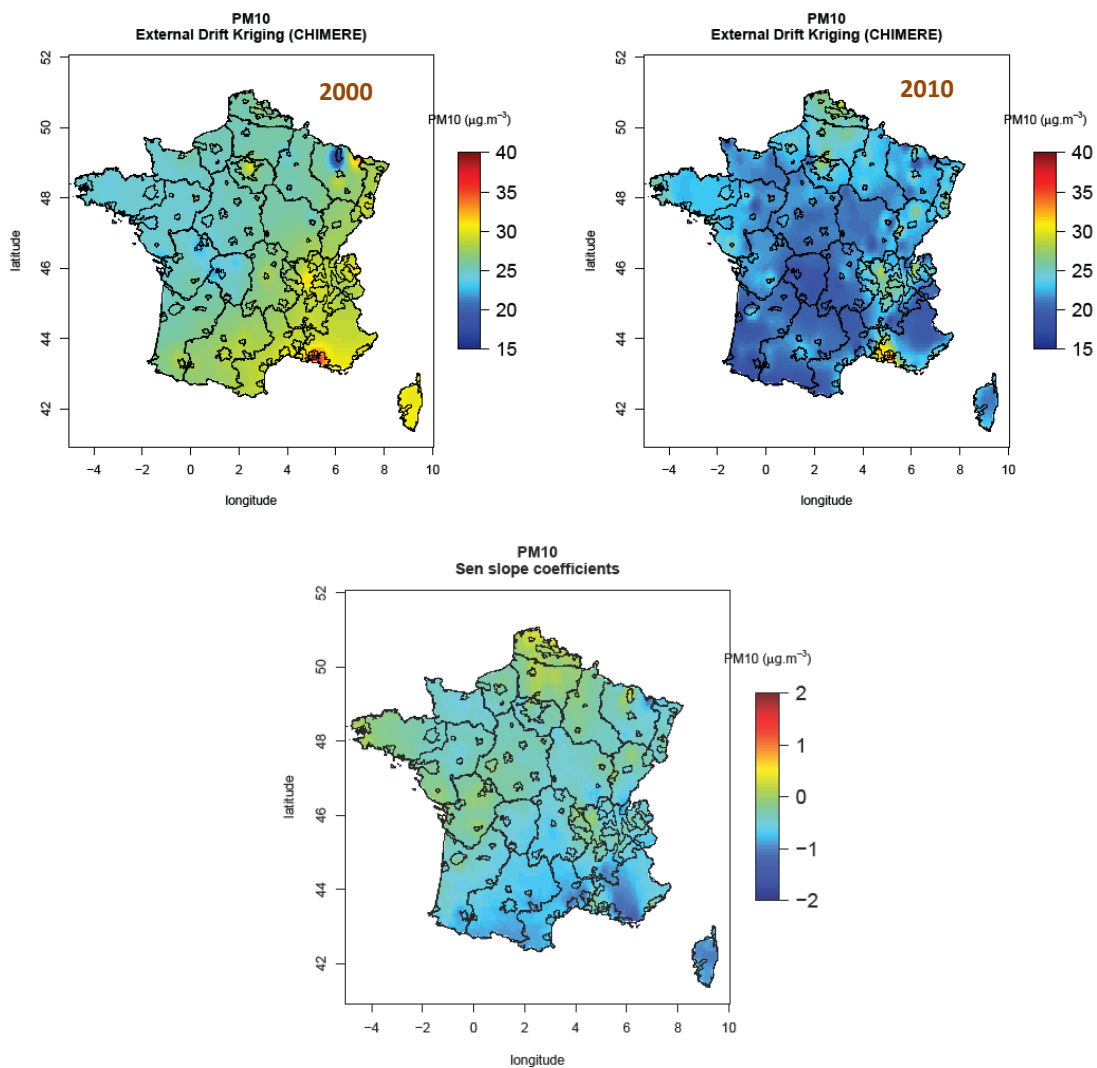


Figure 19 : Carte analysée de PM₁₀ en moyenne annuelle pour 2000 et 2010 et cartographie des pentes de Sen calculées en chaque maille pour la période 2000-2010. Les contours à l'intérieur de la France délimitent les régions et les ZAS.

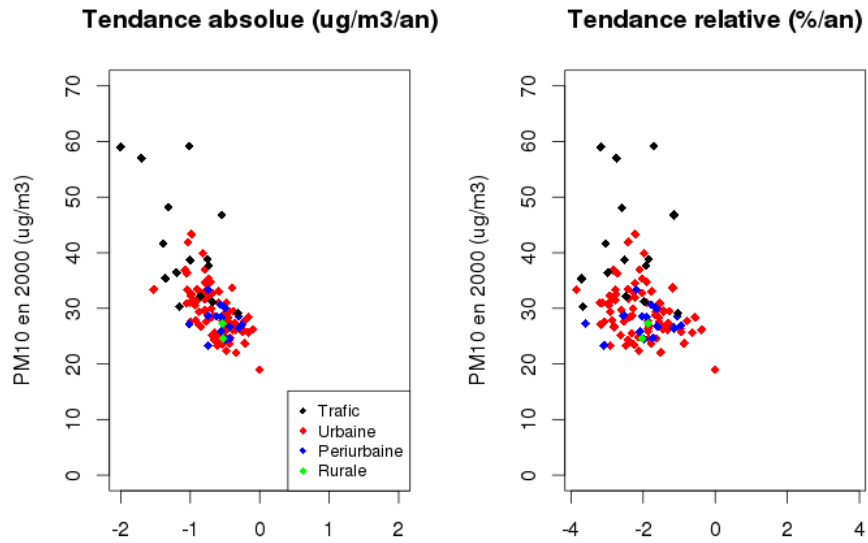
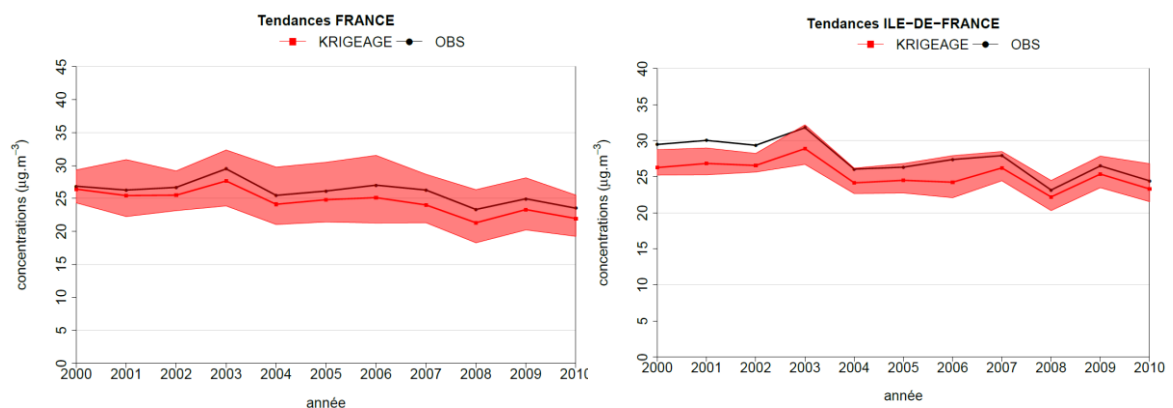


Figure 20 : Comparaison de la moyenne annuelle des concentrations de PM₁₀ en 2000 en différents points de mesure avec les tendances sur la période 2000-2015 associées à chaque station, en valeur absolue (µg/m³/an, fig. de gauche) et en relatif (%/an, fig. de droite). Différentes typologies sont distinguées : noir : trafic, rouge : urbaine de fond, bleu : péri-urbaine de fond, vert : rurale de fond.

La Figure 21 illustre l'effet de l'agrégation spatiale sur les tendances des PM₁₀. Elle représente, à titre d'exemple, l'évolution de la concentration moyenne annuelle de PM₁₀ de fond agrégée sur la France et sur trois régions administratives (Ile-de-France, PACA et Rhône-Alpes) selon les méthodes 1 et 2 (cf. §4.1.2).

Comme pour le NO₂, les agrégats calculés à partir des seules observations tendent à surestimer les agrégats calculés à partir des cartographies krigées, de manière moins marquée cependant et plus variable selon les régions. Du point de vue des tendances, le comportement des deux méthodes est là encore similaire (Figure 21).



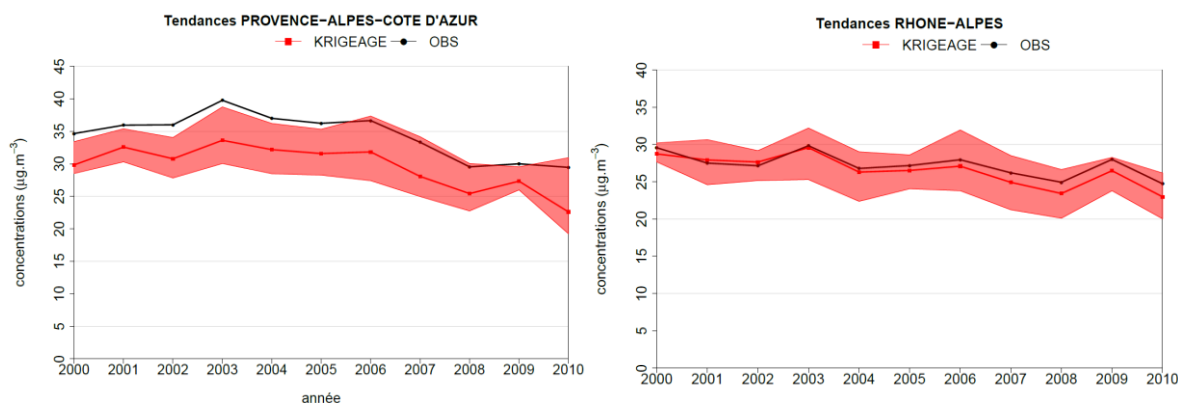


Figure 21 : Séries temporelles de la concentration moyenne annuelle de PM₁₀ de fond calculée sur la France métropolitaine (en haut à gauche) et sur trois régions illustratives de différentes situations à partir d'un krigeage en dérive externe (rouge) et par moyenne arithmétique des observations (noir) sur la période 2000-2010. La plage rouge est délimitée par les 5^e et 95^e centiles des valeurs krigées.

En Figure 22, les deux méthodes d'agrégation sont comparées sur l'ensemble des ZAS. Les pentes de Sen montrent une dispersion limitée autour de la première bissectrice du nuage de points et un effet de lissage peu marqué. On notera cependant quelques exceptions, en particulier un point associé à une ZAS du nord de la France, pour laquelle la tendance 2000-2010 est estimée à la baisse au rythme de 1,28 µg/m³/an à partir des seules observations alors qu'elle est estimée à la hausse de 0,28 µg/m³/an à partir de la carte krigée. Ces différences peuvent s'expliquer là encore par la faible densité d'échantillonnage et/ou l'échantillonnage préférentiel du réseau de mesure dans certaines zones.

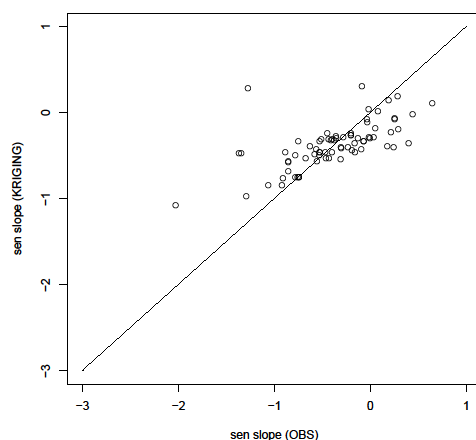


Figure 22 : Nuage de points des pentes de Sen calculées par ZAS à partir des observations aux stations (en abscisse) et des cartographies krigées (en ordonnée) pour la concentration moyenne annuelle de PM₁₀ de fond

La Figure 23 présente les tendances absolues (en µg/m³/an) et relatives (en %) de la moyenne annuelle des PM₁₀ de fond. L'intégralité des régions montre une tendance à la baisse, à l'exception de la région Nord-Pas-de-Calais. L'intervalle de confiance associé aux régions Bourgogne, Corse, Picardie et Poitou-Charentes illustre le caractère non significatif des tendances qui leur sont attribuées.

Les mêmes résultats sont présentés en Annexe 2 sous forme de tableau pour l'ensemble des ZAS (Tableau 16, Tableau 17, Tableau 18, Tableau 19).

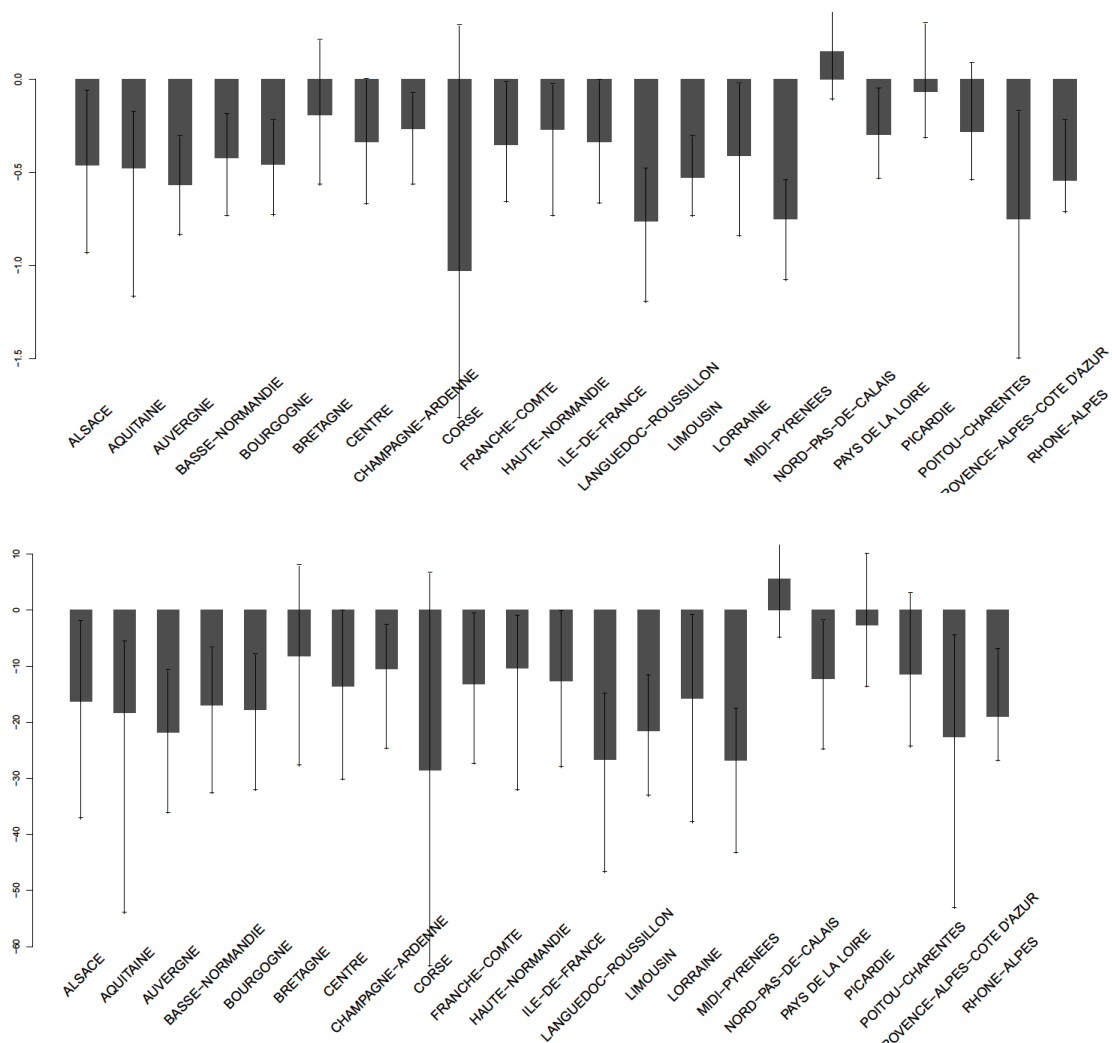


Figure 23 : Tendance absolue (en $\mu\text{g}/\text{m}^3/\text{an}$, en haut) et relative (en %, en bas) de la concentration moyenne annuelle de PM_{10} de fond agrégée par région sur la période 2000-2010 et intervalle de confiance à 95% associé

Sur la France métropolitaine, d'après la méthode 2 (agrégat calculé à partir du krigeage), la baisse observée entre 2000 et 2010 est de $0,40 \mu\text{g}/\text{m}^3/\text{an}$ en moyenne, soit de $4,4 \mu\text{g}\cdot\text{m}^{-3}$ sur la période (Tableau 5). Ce chiffre représente une diminution relative de 15,1% entre 2000 et 2010, ce qui est plus faible que la baisse de l'ordre de 29% reportée en Europe sur la période 2002-2012 (Colette et al., 2016). La tendance à l'amélioration s'accélère toutefois sur la France depuis ces dernières années comme illustré en Figure 24, montrant ainsi l'efficacité croissante des stratégies de réduction des émissions appliquées dans les villes et à l'échelle nationale. A ce titre le Tableau 6 est illustratif. Il quantifie cette amélioration au cours des dernières années pour différentes typologies de stations de mesure de PM_{10} . On se rapproche ainsi de l'amélioration constatée sur d'autres régions d'Europe.

Tableau 5 : Tendance absolue et relative de la concentration moyenne annuelle de PM₁₀ de fond agrégée sur la France à partir d'un krigeage

Polluant	Période	Pente de Sen ($\mu\text{g}/\text{m}^3/\text{an}$)	Tendance relative (%)	p-value du test de Mann-Kendall et significativité de la tendance
PM ₁₀	2000-2010	-0,40	-15,1	0,005 (**)

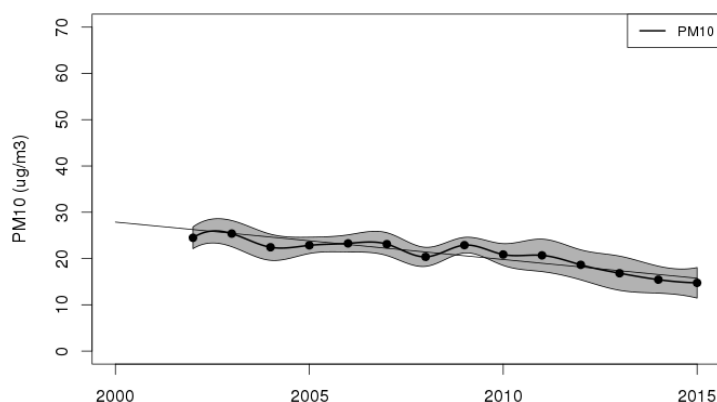


Figure 24 : Série temporelle de la concentration moyenne annuelle de PM₁₀ calculée sur l'ensemble des stations de mesures françaises intégrées à l'étude depuis 2000

Tableau 6 : Comparaison des tendances sur les concentrations moyennes annuelles de PM₁₀ pour les périodes 2000-2010 et 2000-2015

Typologie	Période 2000-2015		Période 2000-2010	
	Tendance ($\mu\text{g}/\text{m}^3/\text{an}$)	Différence relative (%)	Tendance ($\mu\text{g}/\text{m}^3/\text{an}$)	Différence relative (%)
Urbaine de fond	-0,61	-32,3	-0,37	-22,2
Périurbaine de fond	-0,38	-22,6	-0,11	-15,5
Rurale de fond	-0,80	-44,9	-0,57	-30,9
Trafic	-0,83	-34,4	-0,73	-23,7

4.1.4.2 Nombre annuel de dépassements du seuil de $50 \mu\text{g}\cdot\text{m}^{-3}$

L'analyse cartographique effectuée pour la moyenne annuelle sur la période 2000-2010 n'a pu être reconduite pour le nombre de dépassements du seuil journalier de $50 \mu\text{g}\cdot\text{m}^{-3}$. Elle aurait nécessité de corriger les moyennes journalières de PM₁₀ antérieures à 2007 plus finement que par l'application d'un facteur uniforme (cf. §3.3), ce qui n'a pas été possible dans le temps imparti.

Les calculs ici réalisés reposent donc uniquement sur les données de mesure collectées entre 2007 et 2015.

L'indicateur étudié est le pourcentage de stations d'une typologie donnée pour lesquelles plus de n_0 dépassements du seuil de $50 \mu\text{g}\cdot\text{m}^{-3}$ en moyenne journalière ont été observés. Différentes valeurs de n_0 , comprises entre 25 et 45, sont considérées (35 étant le nombre maximal de dépassements autorisés par la Directive 2008/50/CE).

Comme la moyenne annuelle (Figure 25), cet indicateur montre une tendance à la baisse, quel que soit le type de site (Figure 26). Cette évolution est peu influencée par l'évolution du parc de stations, ce dernier étant approximativement constant sur la période (Tableau 8). Depuis 2007, le nombre de stations en dépassement au regard du seuil réglementaire (35 jours) a ainsi baissé de près de 90% sur les stations urbaines et 75% sur les stations trafic (Tableau 7). En sévérant ce critère (25 jours), les résultats restent très positifs avec 66% de baisse sur les stations trafic.

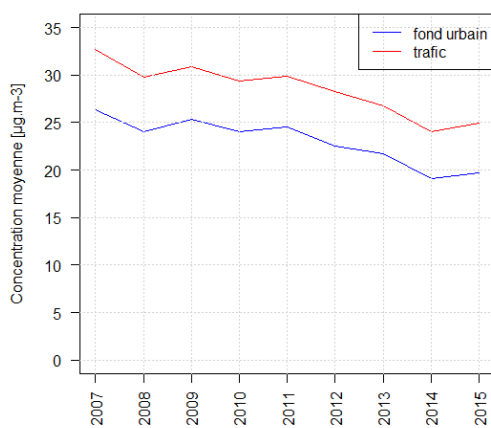


Figure 25 : Série temporelle de la concentration moyenne annuelle de PM_{10} calculée sur la France par moyenne arithmétique des observations sur la période 2007-2015. En bleu, moyenne sur les stations urbaines et périurbaines de fond, en rouge, moyenne sur les stations de proximité routière.

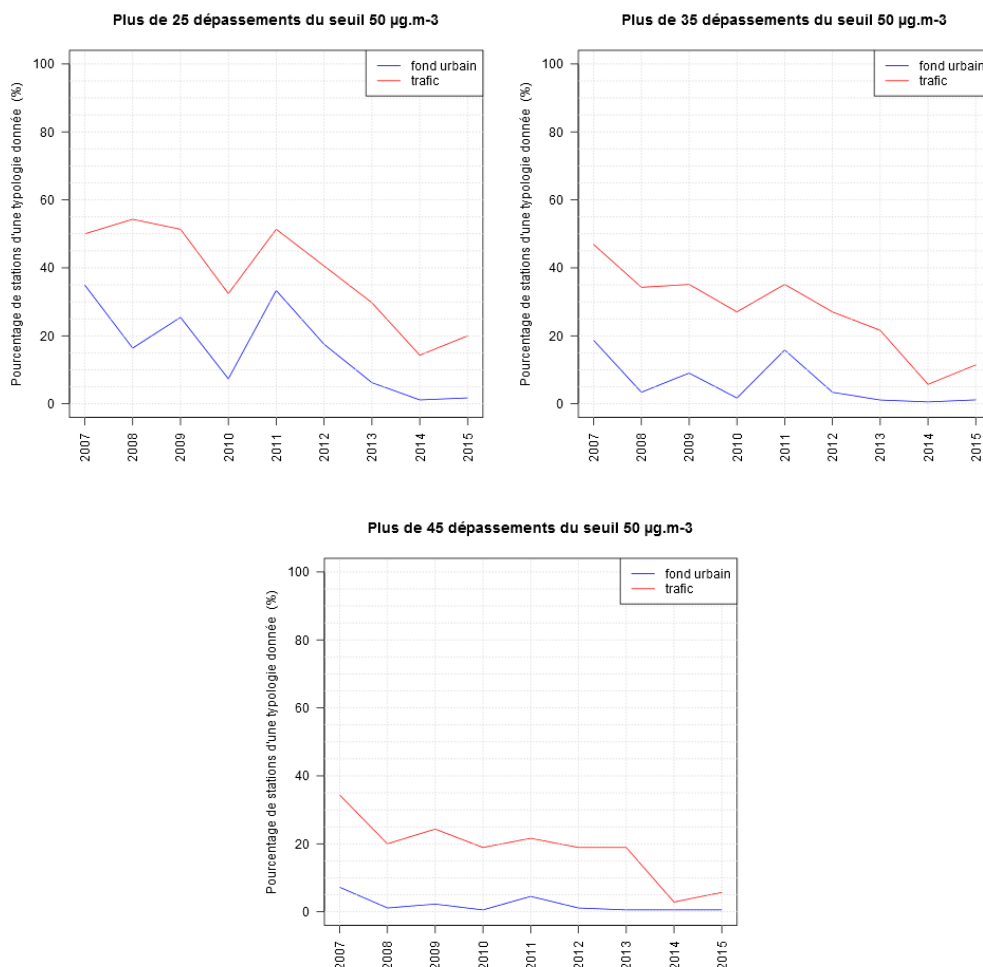


Figure 26 : Série temporelle du pourcentage annuel de stations urbaines et périurbaines de fond (en bleu) et de stations de proximité routière (en rouge) qui ont enregistré plus de n_0 dépassements du seuil de $50 \mu\text{g}\cdot\text{m}^{-3}$ En haut à gauche : $n_0=25$; en haut à droite $n_0=35$; en bas : $n_0=45$.

Tableau 7 : Tendances absolue et relative de la concentration moyenne annuelle de PM_{10} , en moyenne sur la France, et du pourcentage annuel de stations présentant plus de n_0 dépassements du seuil de $50 \mu\text{g}\cdot\text{m}^{-3}$ sur la période 2007-2015.

Indicateur	Typologie	Période	n_0	Pente de Sen (en unité de l'indicateur/an)	Tendance relative (%)	p-value du test de Mann-Kendall et significativité de la tendance
Moyenne annuelle ($\mu\text{g}\cdot\text{m}^{-3}$)	Urbaine de fond	2007-2015		-0,82	-24,9	0.005 (***)
	Trafic	2007-2015		-0,96	-23,6	0.005 (***)
Pourcentage (%) de stations présentant plus de n_0 dépassements	Urbaine de fond	2007-2015	25	-4,05	-94,9	0.029 (**)
			35	-1,08	-88,1	0.036 (**)
			45	-0,28	-79,5	0.171 (ns)
	Trafic	2007-2015	25	-4,88	-66,1	0.021 (**)
			35	-4,32	-75,1	0.036 (**)
			45	-2,78	-79,6	0.011 (**)

Tableau 8 : Nombre de stations disposant de données valides et utilisées dans les calculs

Année	2007	2008	2009	2010	2011	2012	2013	2014	2015
Stations urbaines et périurbaines de fond	166	177	177	177	177	177	177	175	172
Stations de proximité routière	32	35	37	37	37	37	37	35	35

4.2 Mesures manuelles

4.2.1 Stations sélectionnées

Pour l'étude des évolutions temporelles des données de mesures manuelles, les stations retenues par le filtre de complétude temporelle sont plus ou moins nombreuses et de typologies très variées en fonction des polluants réglementés à l'étude :

- métaux lourds dans les PM₁₀ (Tableau 9) : Pb, As, Cd et Ni. Au total parmi les 13 stations retenues sur des périodes comprises entre 1990 et 2015, les environnements d'implantation sont multiples. Pour les zones d'implantation urbaine et périurbaine, cette sélection de stations comprend : 3 stations sous influence trafic (T), 5 stations sous influence industrielle (I), 1 station de fond urbaine (U) et 2 stations de fond péri-urbaines (P). Par ailleurs, 2 stations de l'observatoire MERA sont caractérisées par une influence de fond avec une implantation rurale (R).

Tableau 9: Stations retenues pour les concentrations en métaux lourds dans les PM₁₀

Stations	AASQA	Code Géod'Air	Typologie
Av. Champs Elysées (AvCE)	AIRPARIF	FR04031	T
Place Victor Basch (PVB)	AIRPARIF	FR04012	T
Saint Denis (SDN)	ATMO OCCITANIE	FR08004	T
Chapitre (CHP)	ATMO OCCITANIE	FR12040	I
Eisenhower (EIS)	ATMO OCCITANIE	FR12039	I
Ferry (FER)	ATMO OCCITANIE	FR12013	I
Faure (FAU)	ATMO OCCITANIE	FR12012	I
Boulodrome (BOU)	ATMO OCCITANIE	FR12038	I
Paris 1er Les Halles (PAR)	AIRPARIF	FR04055	U
Saint Esteve (SEST)	ATMO OCCITANIE	FR08712	P
Lunel Viel (LUN)	ATMO OCCITANIE	FR08020	P
Peyrusse-Vieille (PEY)	ATMO OCCITANIE	FR12020	R
Revin (REV)	ATMO GRAND EST	FR14008	R

- HAP dans les PM₁₀ (Tableau 10) : B[a]P, B[a]A, B[b]F, B[k]F, DB[ah]A, IP et B[ghi]P⁹. Au total 6 stations ont été retenues sur des périodes comprises entre 2002 et 2012.

⁹ Les concentrations en B[j]F présentent une couverture temporelle faible. Les résultats des tendances sont consultables Tableau 22, Annexe 4.

Les stations sont toutes implantées dans des environnements urbains et périurbains mais leurs influences sont multiples, 4 stations sont caractéristiques du fond urbain, 1 station est sous l'influence du trafic et 1 station est sous l'influence industrielle ;

Tableau 10: Stations retenues pour les concentrations en HAP dans les PM₁₀

Stations	AASQA	Code GEOD'air	Typologie
Vénissieux-Village (VEN)	ATMO AUVERGNE – RHÔNE-ALPES	FR20060	I
Lille-Pasteur (LIL)	ATMO HAUTS-DE-FRANCE	FR11019	T
Gennevilliers (GEN)	AIRPARIF	FR04002	U
Marcq-en-Barœul (MAR)	ATMO HAUTS-DE-FRANCE	FR11016	U
Neuilly-sur-Seine (NEU)	AIRPARIF	FR04017	U
Paris 1er Les Halles (PAR)	AIRPARIF	FR04055	U

- concentrations en ions inorganiques et pH dans les retombées atmosphériques : une moyenne intégrant 13 stations rurales de l'observatoire MERA (entre 8 et 12 stations en simultané) et une autre moyenne de 27 stations rurales hors-couvert forestier du sous-réseau CATAENAT ont été utilisées pour déterminer des tendances en pH et concentrations moyennes annuelles en soufre (sulfates) et en azote (nitrates, ammonium) dans les retombées atmosphériques humides (MERA) et totales¹⁰ (CATAENAT) sur la période 1993-2015. Ces stations (Tableau 20 et Tableau 21, Annexe 3) sous influence de fond sont implantées dans des zones éloignées le plus possible des sources prédominantes et sont représentatives des différents flux météorologiques pouvant affecter le territoire métropolitain. Leur répartition géographique est homogène (Figure 27). Les travaux publiés par Coddeville et al., 2017 ont été réactualisés dans le cadre de cette étude ;

¹⁰ Les retombées totales intègrent les retombées humides (précipitations telles que pluie, neige), les retombées occultes (brouillard, rosée etc.) et les retombées sèches (particules, gaz).

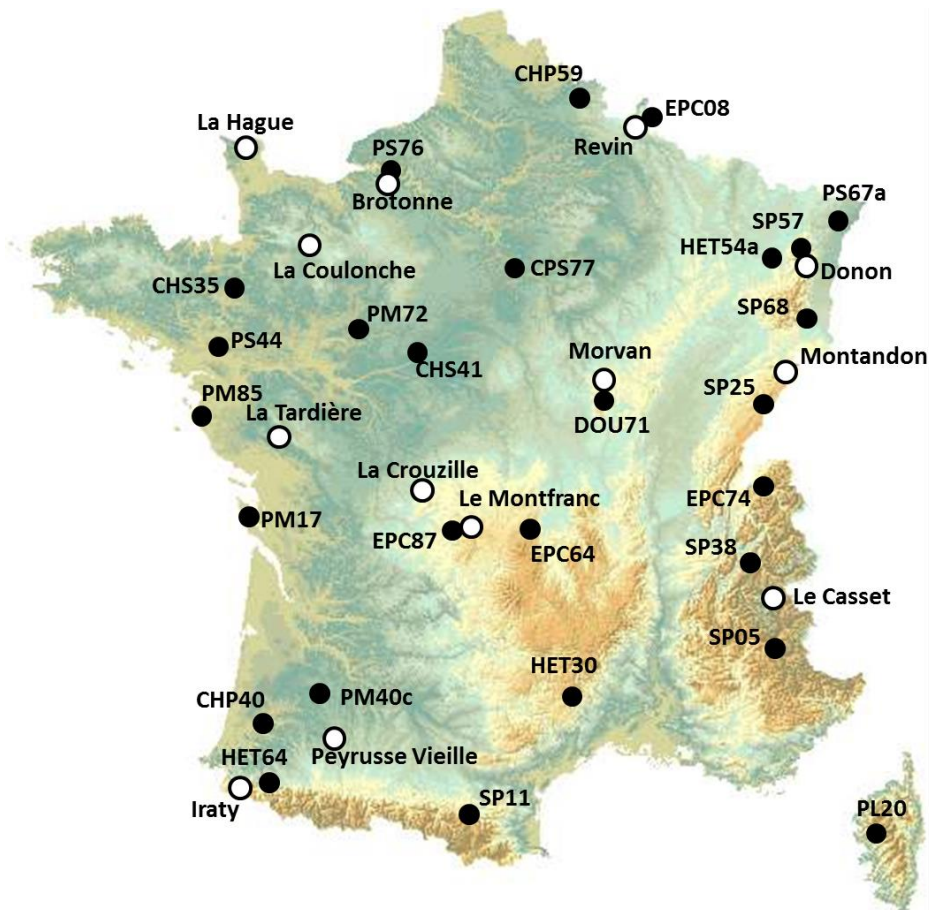


Figure 27 : Localisation géographique des stations de l'observatoire MERA (ronds blancs) et du sous-réseau CATAENAT (ronds noirs) utilisées dans cette étude (Coddeville et al., 2017).

- concentrations en ions inorganiques gazeux et particulaires dans les particules (sans coupure de taille, Total Suspended Particles) (Tableau 11) : la technique de prélèvement par boîtier filterpack (suivant le protocole présenté dans EMEP Manual for sampling and analysis (EMEP, 1996) a été mise en place sur trois stations de l'observatoire MERA (R) sous influence de fond sur des périodes comprises entre 2005 et 2013 dans le cadre de l'observatoire MERA ;

Tableau 11: Stations retenues pour les concentrations en ions inorganiques gazeux et particulaires dans les particules

Stations	AASQA	Code GEOd'air	Typologies
Revin	ATMO GRAND EST	FR14008	R
Peyrusse-Vieille	ATMO OCCITANIE	FR12020	R
La Tardière	AIR PAYS DE LA LOIRE	FR23124	R

- concentrations de COV hydrocarbonés et carbonylés (Tableau 12) : au total 6 stations ont été utilisées pour l'étude de tendances des concentrations en COV sur des périodes comprises entre 1997 et 2013. 3 stations de l'observatoire MERA sont caractérisées par une influence de fond alors que les autres stations sont implantées en zone urbaine sous influence de fond. La consolidation des jeux de

données est détaillée dans l'étude de Waked et al., 2014 et ces résultats ont été publiés dans Waked et al., 2016.

Tableau 12: Stations retenues pour les concentrations de COV hydrocarbonés et carbonylés

Stations	AASQA	Code GEOd'air	Typologies
Paris 1 ^{er} les Halles + siège Airparif	AIRPARIF	FR04055 / -	U
Strasbourg Ouest	ATMO GRAND EST	FR16001	U
Lyon	ATMO AURA	FR20062	U
Peyrusse-Vieille	ATMO OCCITANIE	FR12020	R
La Tardière	AIR PAYS DE LA LOIRE	FR23124	R
Donon (<i>Vosges Moyennes 2</i>)	ATMO GRAND EST	FR16302	R

4.2.2 Concentrations en métaux lourds dans les PM₁₀

Les évolutions temporelles des concentrations moyennes annuelles de plomb sur douze stations de mesure en France sont représentées Figure 28. Au début des années 90, les concentrations moyennes annuelles de plomb dans les PM₁₀ étaient comprises dans une gamme allant de 0,1 à 1 µg/m³ en fonction des stations de mesure retenues dans cette étude. Les stations de mesure couvrant la période 1990-2002 sont essentiellement sous influences trafic et industrielle. Depuis 2008, les niveaux annuels sont inférieurs à l'objectif de qualité de 0,25 µg/m³. Il faut noter que pour certaines typologies de stations de mesures (hors typologie industrielle), les concentrations moyennes annuelles sont inférieures à 0,01 µg/m³.

L'évaluation réglementaire de métaux lourds dans l'air ambiant dont l'arsenic, le cadmium et le nickel a débuté plus tardivement et leurs séries temporelles sont donc étudiées sur la période 1999-2012. Les évolutions temporelles des concentrations moyennes annuelles de ces métaux lourds dans les PM₁₀ sur huit stations en France sont présentées Figure 28. Selon les typologies des stations, les niveaux d'arsenic rencontrés dans les PM₁₀ sont variables, par exemple à Peyrusse-Vieille, une station rurale nationale, la moyenne annuelle est de 0,037 ng/m³ en 2008 et à Eisenhower, une station sous influence industrielle, la moyenne annuelle est de 1,3 ng/m³ en 2006. Bien qu'il existe des variabilités selon les influences des stations, les niveaux sont inférieurs à la valeur cible fixée par l'Union Européenne, qui est de 6 ng/m³ en moyenne annuelle. Le constat est identique concernant les niveaux de nickel contenus dans les PM₁₀. Ils sont inférieurs à la valeur cible de 20 ng/m³ en moyenne annuelle sur les stations de mesures retenues. Concernant le cadmium dans les PM₁₀, les niveaux sont très inférieurs à la valeur cible de 5 ng/m³ en moyenne annuelle depuis 1999 quelle que soit la typologie de la station.

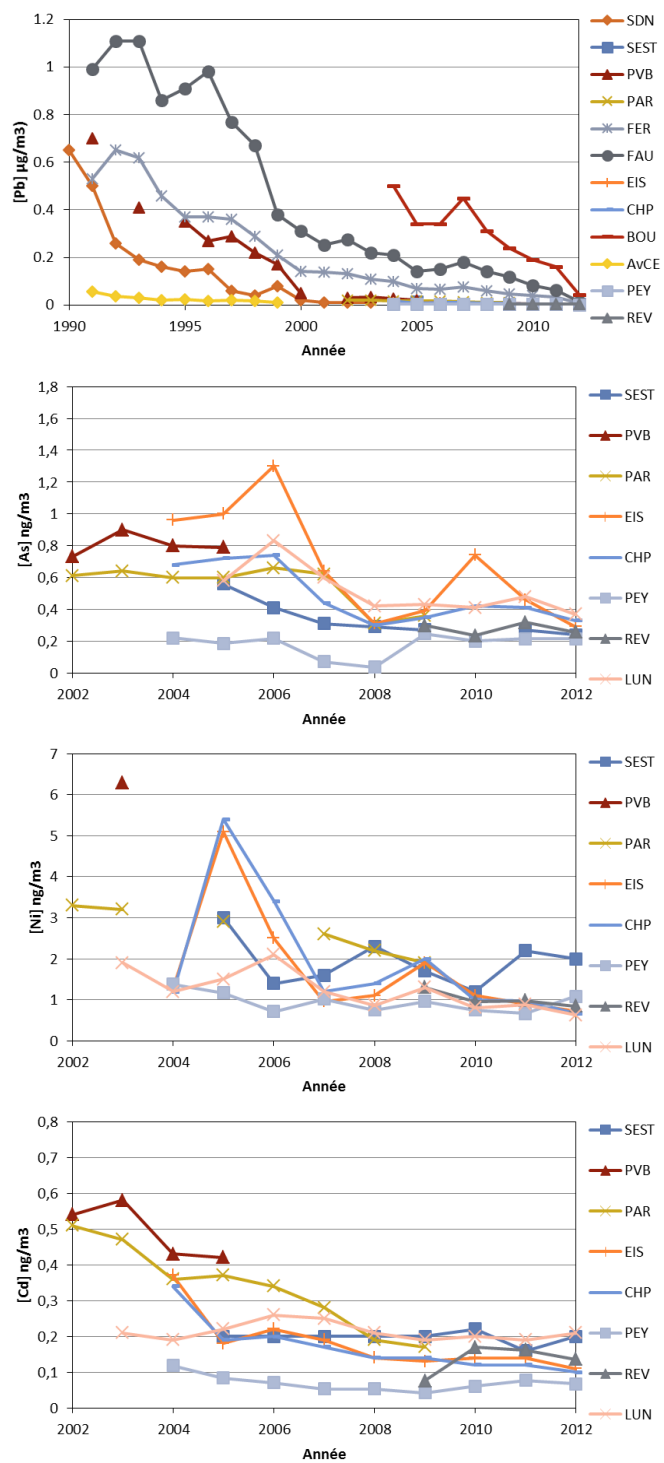


Figure 28: Evolutions temporelles des concentrations moyennes annuelles de plomb, d'arsenic, de nickel et de cadmium dans les PM₁₀ sur les stations retenues

Des tendances décroissantes significatives ont pu être détectées et estimées pour les concentrations moyennes annuelles en plomb dans les PM₁₀ sur la période 1990-2015 (Tableau 13). En moyenne sur les stations de mesure, les concentrations moyennes annuelles de plomb dans les PM₁₀ ont diminué significativement de $7,8 \pm 2,1$ %/an. Ces décroissances sont significatives sur toutes les stations de mesures étudiées (n=12), quelles que soient leur période de mesure, leur implantation et leur influence (Figure 29). La décroissance significative la plus élevée est enregistrée entre 2004 et 2012 sur la station de mesure Boulodrome (sous influence industrielle) avec 10,2 %/an. Sur la première période couvrant 1990-2005, les stations sous influence trafic et industrielle ont des décroissances fortement marquées.

Tableau 13 : Tendances absolues (ng/m³/an) et relatives (%/an) annuelles des concentrations moyennes annuelles de plomb dans les PM₁₀ mesurés sur les stations retenues

Stations	Période	Nombre d'année	Pente de Sen (ng/m ³ /an)	Tendance relative (%/an)	Significativité de la tendance
AvCE	1991-1999	9	-0,004	-8,83	***
PVB	1991-2005	12	-0,039	-7,83	***
SDN	1990-2004	14	-0,028	-8,76	***
BOU	2004-2012	9	-0,049	-10,15	***
CHP	2004-2012	9	-0,942	-8,38	***
EIS	2004-2012	9	-0,973	-8,78	***
FAU	2003-2012	10	-0,020	-8,97	***
FER	2003-2012	10	-0,010	-8,99	***
PAR	2002-2009	8	-0,002	-7,22	**
SEST	2005-2012	8	-0,400	-8,00	**
PEY	2004-2015	12	0,000	-3,77	***
REV	2008-2015	8	-0,410	-3,04	*

Pour les autres métaux lourds réglementés, les tendances réalisées sur des périodes plus récentes (couvrant 1999-2015), montrent que les niveaux de nickel et de cadmium ont significativement diminué pour 6 stations sur 8 (Figure 29), dont la moyenne est de $5,9 \pm 2,2$ %/an et de $5,4 \pm 2,6$ %/an respectivement (Tableau 23, Annexe 4). En revanche, les niveaux d'arsenic n'ont diminué que pour 3 stations sur 8 avec une moyenne de $6,6 \pm 2,0$ %/an (Tableau 23, Annexe 4).

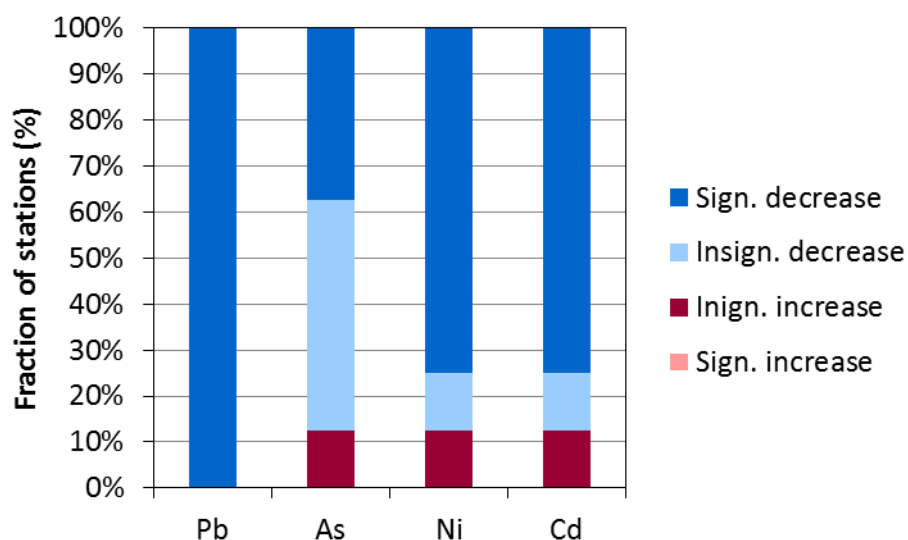


Figure 29: Pourcentage de stations françaises pour lesquelles la tendance est à la hausse de manière significative (rouge sombre), à la hausse de manière non significative (rouge), à la baisse de manière non significative (bleu), et à la baisse de manière significative (bleu sombre) sur les périodes couvrant les années 1999 et 2015 pour les concentrations moyennes annuelles de plomb, d'arsenic, de nickel et de cadmium dans les PM₁₀

En France, les émissions anthropiques de plomb issues de l'inventaire CITEPA, format Secten (CITEPA, 2017) ont diminué de 8,4 %/an ($p < 0,001$) entre 1990 et 2001, puis de 3,9 %/an ($p < 0,001$) entre 2002 et 2012. La réduction des émissions s'est produite à des amplitudes différentes pour la période 1990-2012, en lien avec l'arrêt des essences plombées impliquant une chute de la contribution du transport routier aux émissions de plomb. Pour les autres métaux lourds réglementés, les tendances à la baisse dans les émissions sont de 5,7 %/an pour l'arsenic, 5,8 %/an pour le nickel et 7,5 %/an pour le cadmium sur la période 2002-2012. Les changements dans les niveaux de métaux lourds observés depuis les années 1990 en France sont comparables à ceux observés et modélisés sur les stations du domaine EMEP (Figure 30). Au début de la période considérée, le principal facteur contrôlant les évolutions temporelles des niveaux de métaux lourds à l'échelle de l'Europe était les sources d'émissions anthropiques. La diminution des teneurs en métaux lourds est un effet combiné des baisses dans les émissions primaires et leurs types (diffuses ou ponctuelles). À la fin de la période, les effets de la variabilité météorologique et les sources secondaires deviennent aussi importants que l'effet des réductions des émissions anthropiques (Shatalov et al., 2014). Selon les modélisations dans le domaine EMEP, la remise en suspension de particules dans les zones urbanisées contenant du plomb et du cadmium est le secteur principal contribuant aux sources secondaires d'émissions de plomb et de cadmium (Ilyin et al., 2015).

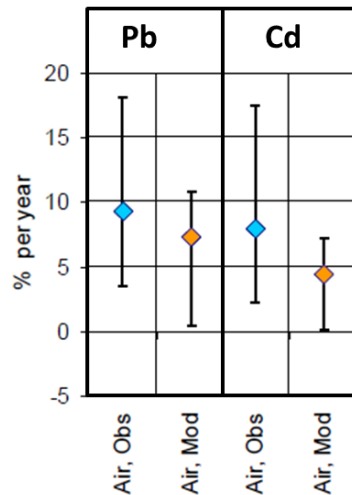


Figure 30: Tendence relative annuelle (%/an) des concentrations moyennes annuelles observées et modélisées de plomb et de cadmium dans les PM₁₀ (Colette et al., 2016)

Malgré des efforts notables pour atténuer la pollution atmosphérique par les métaux lourds, la santé humaine et les écosystèmes continuent d'être menacés dans de nombreux pays. L'exposition chronique à des niveaux faibles de métaux lourds reste un problème de santé publique (Leclercq, 2017). Une diminution globale des concentrations de métaux lourds dans les mousses (bryophytes), bio-indicateurs de la qualité de l'air, a été démontrée en Europe, ce qui suggère une amélioration de la qualité de l'air (Harmens et al., 2015). En revanche, Lequy et al., 2017 ont montré que l'exposition des écosystèmes à la pollution aux métaux lourds n'a pas diminué de manière linéaire avec le temps.

La zone à risque et l'ampleur du dépassement des charges critiques¹¹, indicateur de santé des écosystèmes, a évolué pour le plomb d'un niveau très élevé en 1990 à un niveau relativement bas dans l'ensemble de l'Europe (Figure 31). Les dépassements de charge critique pour le plomb depuis 1990 ont diminué de 67% à environ 20% de la zone de l'écosystème du domaine EMEP avec un dépassement d'environ 2 g ha⁻¹ an⁻¹ en 2010 contre un dépassement d'environ 30 g ha⁻¹ an⁻¹ en 1990. De même, les zones à risque pour les dépôts atmosphériques de Cd dépassant la charge critique étaient très étendues en 1990 sur le domaine européen, mais en 2010, elles sont concentrées principalement dans l'est de l'Europe. La tendance sur le pourcentage des zones à risque pour les retombées atmosphériques de Cd est passée d'environ 4% en 1990 à près de zéro en 2010. La tendance des magnitudes de dépassement de charge critique en cadmium converge également à zéro en 2010.

¹¹ Estimation quantitative de l'exposition au dépôt d'un ou de plusieurs polluants, en dessous desquels des effets nocifs importants sur les éléments sensibles de l'environnement ne se produisent pas, selon les connaissances actuelles. Le dépassement d'une charge critique est défini comme un dépôt atmosphérique du polluant supérieur à la charge critique.

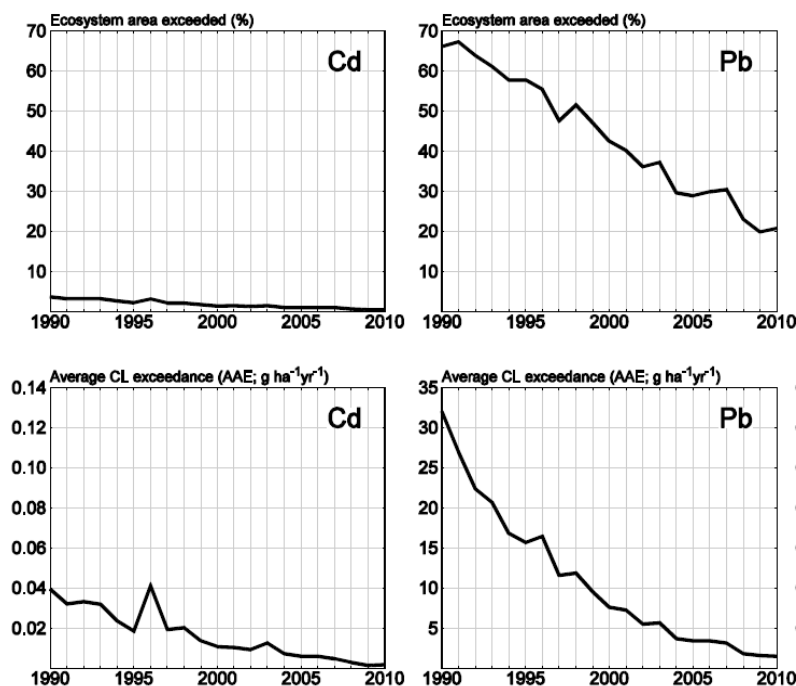
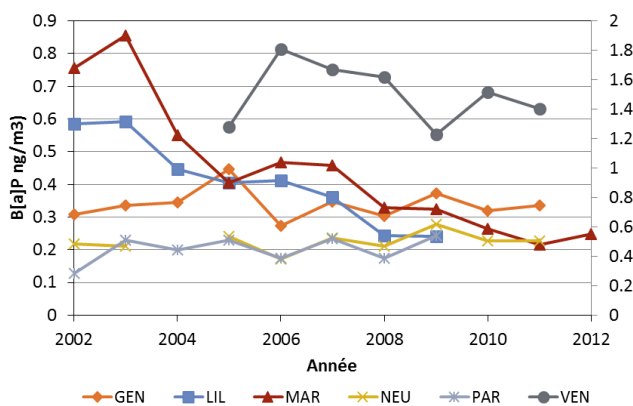
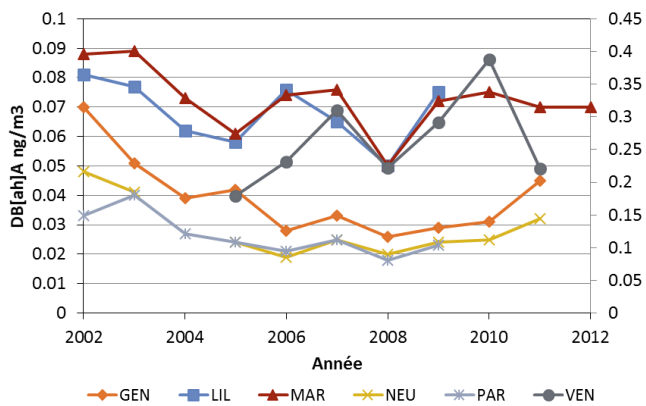
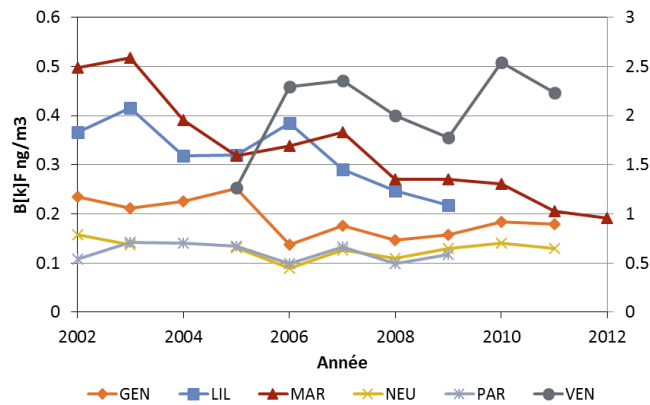
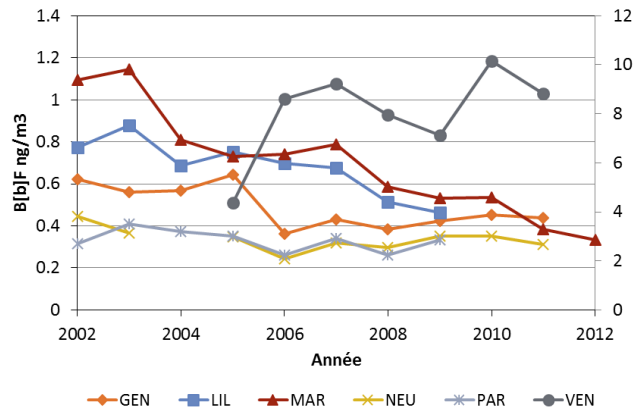
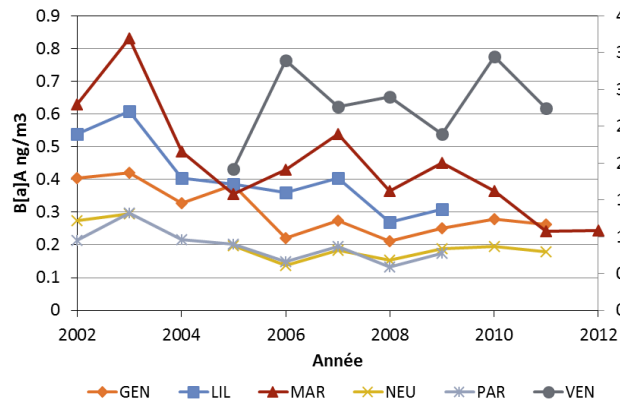


Figure 31: Evolutions temporelles entre 1990 et 2010 du pourcentage de zones à risques où les charges critiques pour le plomb et le cadmium sont dépassées (haut) et évolutions temporelles entre 1990 et 2010 de la magnitude des dépassements de charges critiques (Average Accumulated Exceedance) en plomb et en cadmium (bas), (de Wit et al., 2015)

4.2.3 Concentrations en HAP dans les PM₁₀

Les évolutions temporelles des concentrations moyennes annuelles de HAP sur six stations de mesure en France sont représentées Figure 32. Les niveaux mesurés sur la station sous influence industrielle de Vénissieux-Village sont plus élevés que pour les autres stations (les mesures sont tracées sur un axe secondaire). Mise à part la station de Vénissieux-Village, les niveaux de B[a]P mesurés sur la période 2002-2012 sont homogènes sur les stations et ne dépassent pas la valeur cible établie par la directive 2004/107/CE de 1 ng/m³. Pour les autres HAP, la directive ne fixe pas de valeur cible et les niveaux maximaux ont été rencontrés à Marcq-en-Barœul en début de période puis à Venissieux-Village sur la période 2005-2011. Les niveaux de B[a]A, B[b]F, B[k]F, DB[ah]A, IP et B[ghi]P les plus faibles sont mesurés à Paris 1^{er} les Halles et à Neuilly-sur-Seine.





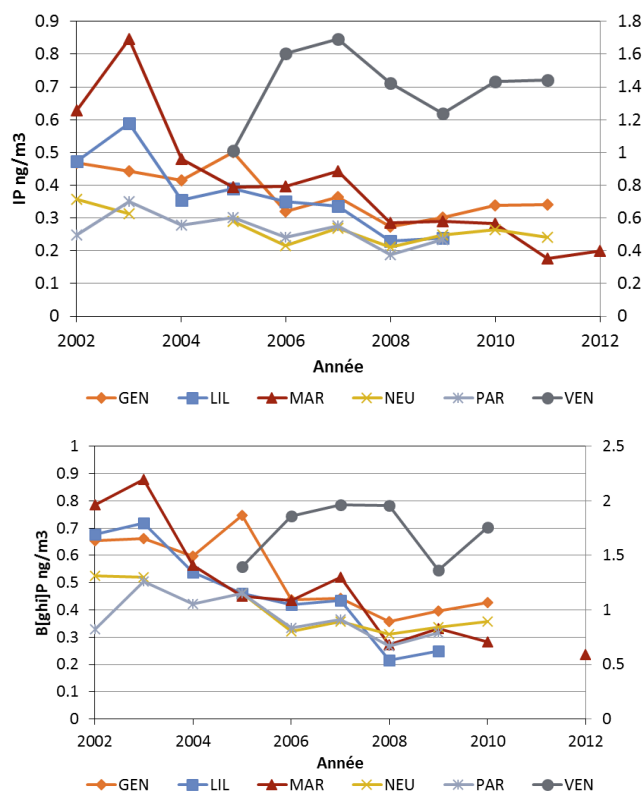


Figure 32: Evolutions temporelles des concentrations moyennes annuelles de HAP (B[a]P, B[a]A, B[b]F, B[k]F, DB[ah]A, IP et B[ghi]P) dans les PM₁₀ sur les stations retenues. Les mesures réalisées sur la station Venissieux-Village ont été reportées sur l'axe secondaire.

Au regard des concentrations en HAP mesurées dans les PM₁₀ sur les stations retenues, quelques baisses significatives sont observées (Figure 33). Les niveaux mesurés de B[a]P diminuent significativement pour deux stations, sur la station Lille-Pasteur et sur la station Marcq-en-Barœul, de 9,0 %/an et 7,6 %/an respectivement. Uniquement ces deux stations montrent des baisses significatives en B[b]F, en B[k]F, qui sont d'en moyenne $6,3 \pm 0,6$ %/an et $6,1 \pm 0,2$ %/an respectivement. Les niveaux de DB[ah]A ne diminuent significativement que sur une seule station, celle de Paris 1^{er} les Halles, à hauteur de 7,3%/an. Les niveaux d'IP et de B[ghi]P diminuent significativement sur un plus grand nombre de stations. En revanche la magnitude des baisses est comparable pour tous les HAP.

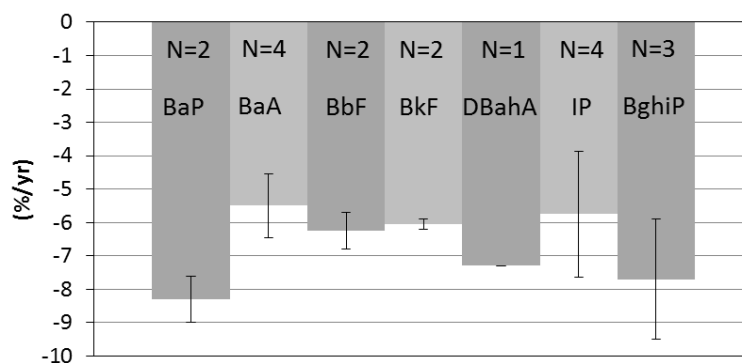


Figure 33: Tendances relatives annuelles (%/an) moyennes et écart-types sur les stations de mesure retenues dont les tendances sont significatives dans les concentrations moyennes annuelles de B[a]P, B[a]A, B[b]F, B[k]F, DB[ah]A, IP, B[ghi]P dans les PM₁₀

Toutes les tendances significatives sont à la baisse (Figure 34). Les évolutions non significatives sont principalement à la baisse mais il faut noter que 50% des stations enregistrent des augmentations non significatives pour les niveaux de B[a]P.

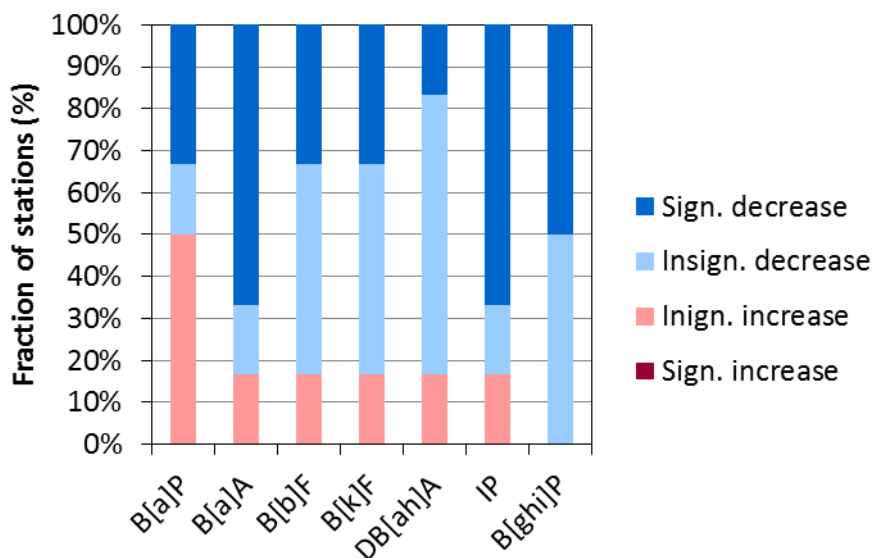


Figure 34: Pourcentage de stations françaises pour lesquelles la tendance est à la hausse de manière significative (rouge sombre), à la hausse de manière non significative (rouge), à la baisse de manière non significative (bleu), et à la baisse de manière significative (bleu sombre) sur la période 2002-2012 pour concentrations moyennes annuelles de B[a]P, B[a]A, B[b]F, B[k]F, DB[ah]A, IP, B[ghi]P dans les PM₁₀

Il faut noter que la faible couverture spatiale des stations de mesure ne permet pas de généraliser les baisses des niveaux de HAP sur l'ensemble du territoire français métropolitain. Dans cette étude, les typologies des stations de mesures et leurs influences en matière de sources de pollution ne permettent pas d'étudier les niveaux de fond. Par ailleurs, la faible couverture temporelle des mesures (parfois inférieure à 10 années) est à prendre en considération et ces évolutions devront être réévaluées dès lors que des années supplémentaires s'ajouteront à l'historique. En effet, les modélisations des concentrations en B[a]P sur le domaine EMEP présentent une augmentation des concentrations en B[a]P depuis 2008 (Figure 35). Outre la présence d'augmentations non significative, cette augmentation se distingue légèrement dans les mesures des stations sélectionnées dans cette étude à partir de 2008, notamment dans les concentrations de DB[ah]A, B[k]F, B[a]A et B[a]P (Figure 32).

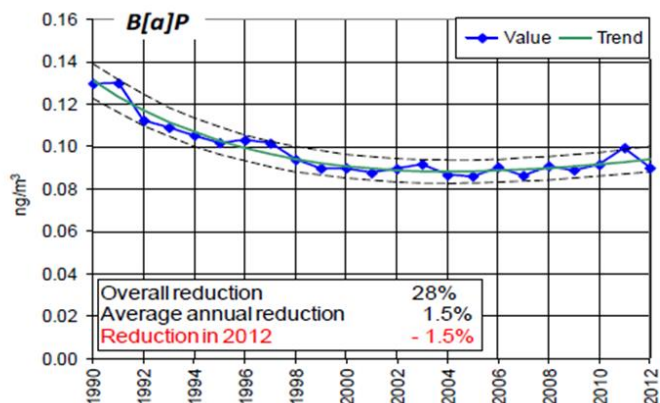


Figure 35: Tendances sur la série temporelle des moyennes annuelles modélisées de BaP dans les PM₁₀ sur le domaine EMEP (Colette et al., (2016))

Les analyses précédentes des tendances de concentrations de B[a]P dans l'air ambiant des pays de l'Union Européenne montrent que des baisses avaient été constatées durant la période 1990-2000 mais que durant les années plus récentes, des ré-augmentations de concentrations ambiantes en B[a]P concernent plus de la moitié des pays membres (Figure 35). Ces ré-augmentations dans l'air ambiant sont liées aux augmentations d'émissions de B[a]P, dont près de 80% en 2012 sur l'UE28 sont engendrées par la combustion de biomasse (basés sur les données reportées par 20 pays dans Guerreiro et al., 2014). Il faut noter également que les inventaires d'émissions présentent des incertitudes. En effet, les écarts significatifs entre les concentrations de B[a]P dans l'air ambiant modélisées par CHIMERE et les concentrations de B[a]P dans l'air ambiant mesurées sur des sites ruraux nationaux (sous influence de fond) pourraient être en partie attribués à une sous-estimation des émissions de B[a]P en France (Couvidat et al., 2017).

4.2.4 Concentrations en ions inorganiques et pH dans les retombées atmosphériques en zone rurale

Les évolutions temporelles des concentrations en ions inorganiques majeurs et du pH dans les retombées atmosphériques pour la période 1993-2015 sont présentées Figure 36. Les tendances absolues et relatives sont reportées Tableau 14.

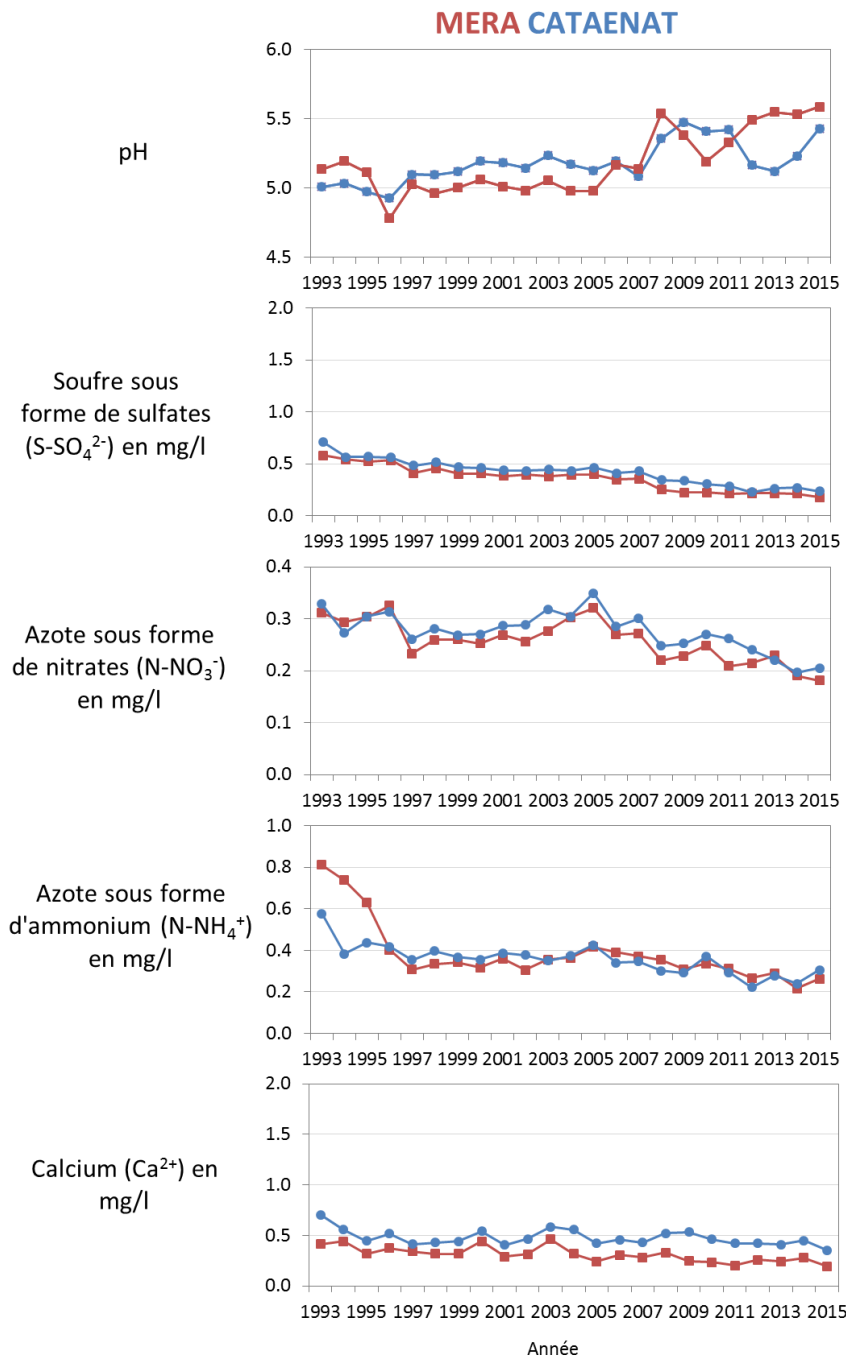


Figure 36: Evolutions temporelles des moyennes annuelles d'ions inorganiques majeurs et du pH dans les retombées atmosphériques humides et totales sur le territoire français métropolitain.

Sur l'observatoire MERA, les valeurs moyennes de l'**acidité directe mesurée en pH** étaient proches de 5 entre 1993 et 2008 avec un minimum à 4,8 enregistré en 1996 ; sur la fin de la période entre 2012 et 2015, les valeurs moyennes en pH sont proches de 5,5. Les valeurs moyennes des pH annuels sur CATAENAT sont comparables à celles sur MERA, à l'exception

de la chute des valeurs moyennes de pH à 5,2 en 2012 après une période de 4 années où la valeur moyenne des pH annuels était montée à 5,5 pour 2009. Ces dernières évolutions seront à consolider avec les valeurs des années à venir. Malgré ces différences, il a été estimé des augmentations significatives de 0,53 %/an et 0,34 %/an pour MERA et CATAENAT respectivement sur la période 1993-2015, reflétant une diminution de l'acidité directe des retombées atmosphériques en France, principalement liée à la baisse importante des émissions de polluants soufrés (Coddeville et al., 2017, Pascaud et al., 2016). Par rapport à la période 1993-2015, l'amplitude d'augmentation des valeurs de pH entre 2002-2015 est plus importante, elle est estimée à 1,16 %/an sur MERA et à 0,23 %/an (mais non significative) sur CATAENAT.

Pour les concentrations moyennes annuelles de **soufre sous forme de sulfates**, les valeurs moyennes présentent des gammes et des évolutions similaires. Au début de la période en 1993, les valeurs moyennes étaient de 0,71 mg/l sur CATAENAT et de 0,58 mg/l sur MERA. Des baisses en sulfates de 3,12 %/an sur MERA et 2,74 %/an sur CATAENAT ont été estimées significatives sur la période 1993-2015. Sur la période 2002-2015, ces baisses sont toujours estimées significatives, de l'ordre de 2,90 %/an. Ces tendances correspondent avec celles sur les valeurs de pH et confirment l'efficacité des politiques de réduction des émissions de polluants soufrés.

Tableau 14: Tendances absolues (en unité de l'indicateur/an) et relatives (%/an) annuelles sur les périodes 1993-2015 et 2002-2015, pour les moyennes annuelles d'ions inorganiques majeurs et du pH dans les retombées atmosphériques de l'observatoire MERA et du sous-réseau CATAENAT.

		Période	Nombre d'année	Pente de Sen (en unité de l'indicateur/an)	Tendance relative (%/an)	Tendance relative (%)	Significativité de la tendance
MERA	pH	1993-2015	23	0,03	0,53	12	**
	S-SO ₄ ²⁻ _mg/l	1993-2015	23	-0,02	-3,12	-72	***
	N-NO ₃ ⁻ _mg/l	1993-2015	23	0,00	-1,53	-35	***
	N-NH ₄ ⁺ _mg/l	1993-2015	23	-0,01	-1,95	-45	***
	Ca ²⁺ _mg/l	1993-2015	23	-0,01	-2,04	-47	***
	pH	2002-2015	14	0,05	1,16	16	***
	S-SO ₄ ²⁻ _mg/l	2002-2015	14	-0,02	-2,90	-41	***
	N-NO ₃ ⁻ _mg/l	2002-2015	14	-0,01	-2,06	-29	**
	N-NH ₄ ⁺ _mg/l	2002-2015	14	-0,01	-2,19	-31	**
	Ca ²⁺ _mg/l	2002-2015	14	-0,01	-2,07	-29	*
CATAENAT	pH	1993-2015	23	0,02	0,34	8	***
	S-SO ₄ ²⁻ _mg/l	1993-2015	23	-0,02	-2,74	-63	***
	N-NO ₃ ⁻ _mg/l	1993-2015	23	0,00	-1,21	-28	**
	N-NH ₄ ⁺ _mg/l	1993-2015	23	-0,01	-1,86	-43	***
	Ca ²⁺ _mg/l	1993-2015	23	0,00	-0,80	-19	+
	pH	2002-2015	14	0,01	0,23	3	
	S-SO ₄ ²⁻ _mg/l	2002-2015	14	-0,02	-2,91	-41	***
	N-NO ₃ ⁻ _mg/l	2002-2015	14	-0,01	-2,28	-32	***
	N-NH ₄ ⁺ _mg/l	2002-2015	14	-0,01	-2,12	-30	**
	Ca ²⁺ _mg/l	2002-2015	14	-0,01	-1,51	-21	*

Comme pour les sulfates, **les composés azotés sous forme de nitrates** présentent des gammes et des évolutions de valeurs moyennes comparables. Avec une diminution significative de 1,53 %/an et de 1,21 %/an sur MERA et sur CATAENAT respectivement, les valeurs moyennes des concentrations de nitrates sont proches de 0,2 mg/l en 2012. Un pic a été atteint en 2005 à environ 0,3 mg/l de nitrate, une valeur aussi élevée qu'en 1996 ou qu'en 1993. L'amplitude de la baisse des niveaux de nitrate dans les retombées atmosphériques est deux fois plus faible que celle des sulfates sur la période 1993-2015 et contraste avec l'amplitude de la baisse des émissions d'oxydes d'azote, estimée en France à 55 % sur la période 1990-2014, soit 3,7 %/an (CITEPA, 2017). Sur la période 2002-2015, les amplitudes de baisse sur les concentrations en nitrates dans les retombées atmosphériques sont plus importantes et de l'ordre de 2,06 %/an et de 2,28 %/an pour MERA et CATAENAT. C'est par ailleurs sur cette même période 2002-2015 que se concentrent les plus fortes baisses dans les émissions de NO_x, 45% soit 2,9%/an selon le CITEPA (CITEPA, 2017).

Concernant les **composés azotés sous forme d'ammonium**, les valeurs moyennes les plus élevées sont enregistrées en début de période entre 1993 et 1996. Des baisses significatives ont été estimées à 1,95 %/an et à 1,86 %/an sur MERA et CATAENAT respectivement. Elles contrastent avec un niveau à peu près constant des émissions d'ammoniac depuis 1980 (705 kt) et à hauteur de 708 kt en 2014 (CITEPA, 2017). La diminution des concentrations en NH₄⁺ a été importante sur la période 1993-2001 et modérée sur la période 2002-2015 (Figure 36). Cette divergence entre des changements dans les concentrations en NH₄⁺ et l'absence d'évolution dans les émissions en NH₃ peut être expliquée par des sources importantes issues de la pollution longue-distance mais également par la complexité de la physico-chimie atmosphérique ou l'évolution de la compétition entre les formes particulaires de l'ammonium, telles que celle du sulfate d'ammonium ou du nitrate d'ammonium.

Pour les concentrations moyennes annuelles de **calcium**, les valeurs moyennes sur CATAENAT sont plus élevées, d'environ 0,40 mg/l, que celles sur MERA, ce qui signifie qu'une fraction non négligeable de calcium se dépose par voie sèche car les retombées totales mesurées sur CATAENAT prennent en compte cette fraction. Des baisses significatives ont été estimées dans les concentrations et elles sont presque trois fois plus intenses sur MERA que sur CATAENAT (Tableau 14). Puisque les apports atmosphériques de calcium contribuent à la charge totale disponible pour le pouvoir tampon des sols et contrebalancent les apports d'espèces acidifiantes, par conséquent, dans certains écosystèmes et selon les pluviométries reçues, cette diminution combinée dans les concentrations des composés pouvant acidifier les sols (sulfates, nitrates et ammonium majoritairement) et du calcium pourrait entraîner une diminution du pouvoir tampon des sols et augmenter le nombre d'écosystèmes classés parmi les plus sensibles (Pascaud et al., 2014).

A plus grande échelle spatiale, les tendances sur les concentrations dans les retombées atmosphériques en Europe (Colette et al., 2016) et dans le monde (Vet et al., 2014) ont également été étudiées sur une période à long-terme. Il en ressort que les concentrations sulfates et en azote réduit et oxydé dans les retombées atmosphériques ont significativement diminué en Europe et en Amérique du Nord en réponse aux abattements des émissions de SO_x , de NO_x et plus modérément de NH_3 . Pour certaines régions reculées de l'Amérique du Nord, l'Amérique du Sud, l'Asie l'Océanie, les régions polaires et de manière générale sur les océans, la collecte de retombées atmosphériques n'est pas suffisamment robuste pour avoir des couvertures spatiale et temporelle appropriées à l'estimation des tendances sur ces régions.

Les réglementations en matière de diminution des émissions polluantes du dioxyde de soufre se sont pleinement répercutées dans les retombées atmosphériques de sulfates. Le constat est quelque peu différent pour les retombées atmosphériques d'azote, dont les tendances contrastent avec celles rapportées par les inventaires d'émissions. Ainsi la forte baisse estimée dans les émissions d'oxydes d'azote ne se reflète pas avec la même amplitude dans les retombées atmosphériques de nitrates. À l'inverse, les émissions d'ammoniac sont restées stables, alors qu'une baisse est détectée dans les retombées d'ammonium mesurées. Par ailleurs, les modélisations spatiales basées sur les inventaires d'émissions ne reflètent pas les variations géographiques observées dans les retombées atmosphériques d'azote sous forme d'ammonium. Le manque de performance de ces estimations est principalement attribué à une surestimation des modèles dans la partie occidentale française (Hamaoui-Laguel et al., 2014), où les dépôts importants d'azote sous forme d'ammonium attendus au regard de l'agriculture intensive locale présentent des écarts avec les dépôts mesurés sur les observatoires de surveillance depuis 20 ans (Pascaud et al., 2014). Ces divergences montrent que la recherche doit se poursuivre pour mieux comprendre et simuler les mécanismes de transport et de transformation des polluants dans l'atmosphère et aider à l'évaluation et la validation des modèles. Dans ce contexte, la surveillance continue des retombées atmosphériques reste une approche nécessaire pour évaluer les impacts réels des émissions polluantes sur l'environnement et asseoir la stratégie de contrôle de ces émissions.

4.2.5 Concentrations en ions inorganiques dans les particules en suspension

Les évolutions temporelles des concentrations de soufre et d'azotes réduit ou oxydé sous formes gazeuse ou particulaire sur les stations de l'observatoire MERA sont présentées Figure 37. La mesure des particules a été faite sans distinction de taille et les artéfacts de mesure permettent d'exprimer seulement la concentration de la somme en N-NH_3 gazeux et en N-NH_4^+ particulaire et la somme en N-HNO_3 gazeux et N-NO_3^- particulaire. Le calcul de tendance n'a pas été appliqué aux données car l'historique de moins de 10 années n'est pas assez étendu pour détecter et estimer des tendances monotones robustes.

Visuellement à partir de la Figure 37, une baisse commune aux trois stations est marquée sur la période 2005-2013 dans les concentrations de soufre gazeux et particulaire. La baisse est plus marquée dans les concentrations de gaz précurseur S-SO₂ que dans les concentrations particulaires de S-SO₄²⁻. Par exemple sur la station Revin, la concentration en S-SO₂ en 2013 est près de 80% plus faible que celle de 2006, alors que pour la concentration en S-SO₄²⁻, elle est en 2013 près de 50% plus faible que celle de 2006. Le constat est différent concernant les composés azotés. À l'exception de la réduction identifiable pour la station de La Tardière dans la somme des concentrations en N-NH₃ gazeux et en N-NH₄⁺ particulaire, aucune réduction n'est visible pour les composés ammoniacués. De plus, la variabilité interannuelle est importante comme le suggère le pic de la somme des concentrations des N-HNO₃ gazeux et N-NO₃⁻ particulaire de l'année 2009.

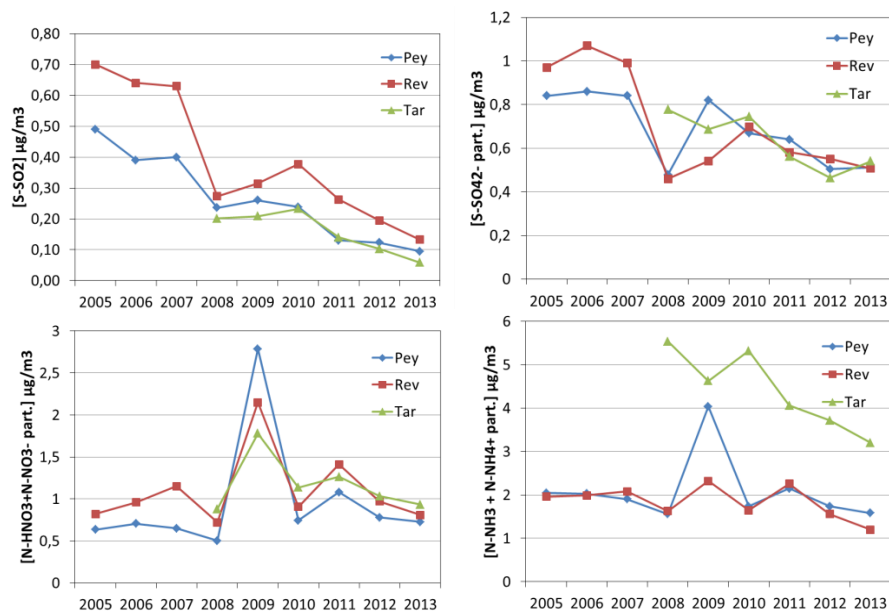


Figure 37: Concentrations moyennes annuelles de soufre gazeux (S-SO₂), de sulfates particulaires (S-SO₄²⁻), des composés ammoniacués (somme de N-NH₃ et N-NH₄⁺ particulaires) et des composés nitrés (somme de N-HNO₃ et de N-NO₃⁻ particulaire)

À l'échelle européenne, les composés soufrés et azotés gazeux et particulaires ont globalement diminué sur le domaine EMEP entre 1990-2012 (Colette et al., 2016). La baisse a été plus importante sur les 10 premières années pour les concentrations en SO_2 gazeux (80% sur la période 1990-2001 et 48% sur la période 2002-2012). En revanche, la baisse est moins marquée sur la première période pour les concentrations en SO_4^{2-} particulaire mesurées sur les stations EMEP (52% et 39% respectivement pour 1990-2001 et 2002-2012). Cette décroissance plus intense pour la phase gaz dans les années 90 a été mise en évidence et analysée en modélisation (Fowler et al., 2005 ; Fowler et al., 2007 ; Banzhaf et al., 2015). Les résultats indiquent que la baisse d'acidité dans les nuages (induite par la baisse des émissions de SO_2) a favorisé la formation de sulfate, agissant comme un effet rétroactif positif améliorant ainsi la conversion de SO_2 . Pour HNO_3 gazeux et NO_3^- particulaire, la diminution est également plus marquée pour les années 90 (24% sur la période) que pour les années 2000 (7,1% sur la période). Cependant, cette baisse n'est pas homogène sur le domaine EMEP car les concentrations de la somme des HNO_3 gazeux et NO_3^- particulaire n'ont diminué significativement que sur environ 50% des stations EMEP pour la période 1990-2001 et sur moins de 10% des stations EMEP sur la période 2002-2012. Certaines études indiquent que dans un premier temps la diminution du SO_2 gazeux a favorisé la formation de sulfate, puis dans un second temps a contribué à réduire les concentrations de $(\text{NH}_4)_2\text{SO}_4$ particulaire, laissant plus de NH_3 gazeux disponible pour former du NH_4NO_3 particulaire, contribuant ainsi à ralentir la baisse des concentrations en NO_3^- particulaire. Il faut noter également que près de 10% des stations EMEP sur la période 2002-2012 mesurent des concentrations de nitrates gazeux et particulaires à l'augmentation sur cette dernière période. Concernant le NH_3 gazeux et le NH_4^+ particulaire, les concentrations ont significativement diminué de 40% sur la période 1990-2001 mais la réduction a été moins importante sur la deuxième période (14%). Au regard des faibles changements dans les émissions de NH_3 , et comme indiqué ci-dessus, il faut considérer que les baisses des émissions de SO_2 gazeux ont contribué à un changement significatif dans les équilibres de formation d'ammonium particulaire.

4.2.6 COV

L'analyse des tendances de COV (Figure 38) montre des décroissances significatives en HCnM plus élevées sur les trois stations de fond en zone rurale nationale par rapport à la station de fond en zone urbaine de Strasbourg. Sur ces quatre stations, les baisses significatives concernent notamment des traceurs d'émissions de transport caractéristiques de l'évaporation d'essence tels que l'isopentane, l'acétylène, l'isobutane et le butane. La tendance à la baisse varie de 4,5% à 5,5%/an pour l'isopentane (non significatif à Paris), de 2,5% à 5,2% pour l'acétylène (non significatif Donon et Paris), de 3,1% à 4,7% pour le butane (non significatif Peyrusse-Vieille et Paris) et approche 4% pour l'isobutane (uniquement significatif à Strasbourg). Des tendances décroissantes sont également observées pour les produits de combustion tels que le m/p xylène, le toluène, le benzène et l'éthylène (ou éthène). Les tendances en m/p xylène et toluène ne sont pas significatives sur les stations Peyrusse-Vieille et Strasbourg, en revanche les diminutions significatives atteignent 7,0% à la Tardière pour le m/p xylène et 6,0% au Donon pour le toluène. Les baisses en benzène et éthylène sont significatives mais plus intenses sur la station de Strasbourg (5,0% et 5,4% respectivement) que sur la station de Peyrusse-Vieille (1,1% non significatif et 3,5% respectivement). Pour les traceurs d'émissions liés à l'utilisation de gaz naturel tels que l'éthane et le propane, aucune station n'a enregistré d'évolutions significatives pour ces COV légers à longue durée de vie. L'absence de significativité des décroissances en HCnM sur les stations de fond urbain à Paris et Lyon est à mettre en relation avec une forte variabilité interannuelle et au manque de complétude temporelle, pouvant être dû à un grand nombre de données manquantes. En revanche, Waked et al., 2016 ont démontré que des tendances significatives saisonnières affectent les concentrations de certains HCnM, traceurs des produits de combustions et des sources d'émissions véhiculaires sur la station de Paris.

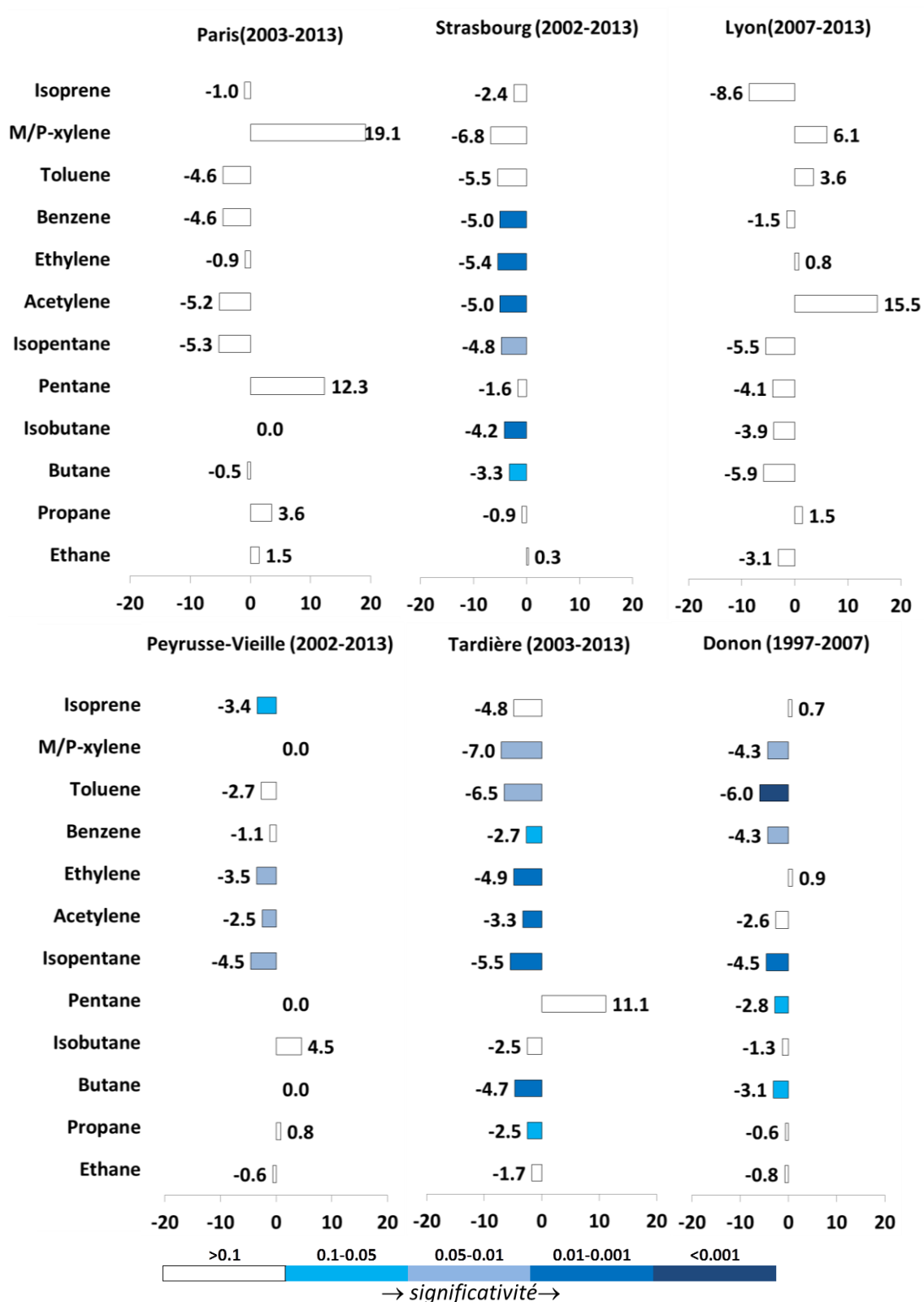


Figure 38: Tendances relatives annuelles (%/an) des concentrations moyennes annuelles de HCnM sur les stations de fond en zone rurale (observatoire MERA : Peyrusse-Vieille, Tardière, Donon) et sur les stations de fond en zone urbaine (Paris, station les Halles jusqu'en 2010 puis siège à partir de décembre 2010 ; Strasbourg, station Schiltigheim) (Waked et al., 2016)

La mesure multi espèces permet une analyse factorielle pour identifier des signatures de sources et évaluer leurs contributions. Ce travail a été réalisé année par année sur les données HCnM de Paris et Strasbourg sur la période 2005 à 2013. Les facteurs obtenus sont stables dans le temps et remarquablement similaires pour les deux zones urbaines considérées Paris et Strasbourg. Cinq facteurs anthropiques ont été identifiés comme contributeurs aux concentrations en HCnM : le trafic, l'usage de solvant, le gaz naturel, l'évaporation de carburants et le chauffage domestique. L'analyse des contributions des facteurs trafic et usage de solvants montre des tendances significatives à la baisse de -1 à -11% en accord avec les tendances pour les émissions de COV de ces secteurs, montrant l'efficacité des politiques de réduction mises en place (Waked et al. Données non publiées).

En comparaison aux autres pays européens, les concentrations moyennes annuelles en HCnM mesurées sur des stations EMEP présentent également des tendances décroissantes significatives sur la période 2002-2012, à hauteur de 40%, soit une tendance relative annuelle proche de 3,6%/an (Colette et al., 2016). Il faut noter néanmoins que l'absence de décroissances fortes en éthane et en propane a également été identifiée dans les mesures réalisées au Royaume-Uni (Derwent et al., 2017). Plusieurs hypothèses ont été formulées par ces auteurs, la non exhaustivité des inventaires d'émissions, notamment concernant les volumes de gaz naturels émis par des fuites sur les réseaux, et une augmentation des niveaux de fond en éthane liée au transport longue-distance, potentiellement intercontinental au regard de la longue durée de vie de cette espèce peu réactive.

Des observations sont également réalisées pour les composés organiques volatils biogéniques (COVB) ou les composés organiques volatils oxygénés (COVO) mais les bases de données ne sont pas encore suffisamment fournies pour analyser les tendances. Les COVO sont les plus abondants des COV à l'échelle globale et jouent un rôle déterminant s'agissant de la chimie atmosphérique. Les COVB sont des espèces très réactives ayant également un rôle clé et dont l'évolution des émissions est directement associée aux évolutions climatiques. Il apparaît par conséquent important de fournir des données d'observation pérennes des COV compte tenu de leurs rôles en tant que précurseurs de polluants secondaires comme l'ozone ou l'aérosol organique secondaire.

5.1 Introduction

Une des principales motivations pour étudier l'évolution à long terme de la qualité de l'air est de quantifier l'efficacité des mesures de réduction des émissions de polluants en termes d'atténuation des concentrations atmosphériques observées. Pour ce faire, il est nécessaire de prendre aussi en compte la variabilité météorologique, ainsi que l'évolution à long terme des concentrations de fond hémisphérique.

Plusieurs méthodes ont été proposées dans la littérature pour identifier l'influence de la météorologie, avec un intérêt particulier pour les tendances d'ozone (voir par exemple la revue méthodologique de (Solberg. et al., 2015)). L'une de ces méthodes consiste à avoir recours à la modélisation pour effectuer des études de sensibilité. C'est ce qui a été proposé dans le cadre de la récente étude Eurodelta-Trends, coordonnée par l'INERIS dans le cadre de la Task Force on Measurement and Modelling du programme EMEP de la Convention de Genève sur la pollution transfrontière (CLRTAP). Huit des principales équipes européennes de modélisation chimie-transport ont participé à cette étude consacrée à l'évolution de la qualité de l'air sur la période 1990-2010, incluant aussi des analyses de sensibilité aux changements d'émissions, ou de conditions aux limites. Il faut noter qu'il s'agit ici de simulation de relativement grande échelle couvrant l'ensemble de l'Europe à une résolution de l'ordre de 25km, donc à mettre en perspective avec l'évolution des niveaux de fond de pollution atmosphérique, et non à l'évolution qui peut être constatée en proximité.

Ce chapitre présente les principaux résultats de cette étude au niveau européen, ainsi qu'une analyse spécifique pour le cas français. La méthodologie d'attribution est présentée dans la partie 5.2 avec quelques illustrations relatives à la décomposition pour les années 1990, 2000 et 2010 présentées dans la partie 5.3, une discussion spécifiquement consacrée aux incertitudes est conduite dans la partie 5.4, alors que les résultats de l'attribution des tendances de qualité de l'air sont discutés dans la partie 5.5.

5.2 Méthodologie

5.2.1 Analyse d'attribution dans l'exercice de modélisation Eurodelta-trends

L'exercice de modélisation « Eurodelta-Trends » (EDT) a été spécifiquement conçu pour permettre une quantification de la contribution respective (i) des réductions d'émissions de précurseurs de polluants, (ii) de la variabilité météorologique, (iii) des changements de composition atmosphérique globaux sur les tendances de qualité de l'air en Europe. C'est ce que l'on appelle une étude « d'attribution » dans le jargon des sciences atmosphériques.

La période d'étude couvre de 1990 à 2010. Le début en 1990 correspond à l'année de référence du protocole de Göteborg. La fin en 2010 a été choisie par rapport à la disponibilité des données de forçage pour la modélisation (émission, conditions aux limites et météorologie). Le domaine de modélisation couvre l'ensemble de l'Europe, à une résolution approximative de 25 km.

Tous les modèles participants ont utilisé strictement les mêmes émissions et conditions aux limites. Des données météorologiques communes ont été proposées et utilisées par une majorité de modèles, avec quelques exceptions. Les émissions ont été fournies par IIASA et calculées avec le modèle GAINS (Amann et al., 2012) dans le cadre du projet européen ECLIPSE (Klimont et al., 2016b; Klimont et al., 2016a). Les conditions aux limites sont reconstruites à partir d'observations en suivant la méthodologie utilisée dans le cadre d'EMEP (Simpson et al., 2012). La météorologie était issue d'une version optimisée des simulations EURO-CORDEX effectuées par l'IPSL (Stegehuis et al., 2015).

Huit équipes de modélisation ont participé à l'expérience en livrant au minimum un ensemble de simulations : l'INERIS (France, en collaboration avec CIEMAT, Espagne) avec le modèle CHIMERE (Menut et al., 2013), le BSC (Espagne) avec le modèle CMAQ (Byun and Schere, 2006), Met Norway/MS-CW avec le modèle EMEP (Simpson et al., 2012), le TNO (Pays Bas) avec le modèle LOTOS-EUROS (Sauter et al., 2012; Schaap et al., 2008), SMHI (Suède) avec le modèle MATCH (Robertson et al., 1999), ENEA (Italie) avec le modèle MINNI (Mircea et al., 2016), le CEREAS (France) avec le modèle POLAIR (Mallet et al., 2007), et IASS (Allemagne) avec le modèle WRF-Chem (Mar et al., 2016; Grell et al., 2005).

Afin d'optimiser l'effort de calcul consacré au projet, le plan de modélisation Eurodelta-Trends est divisé en trois priorités, ciblant différentes questions scientifiques. La première (tier 1) concerne la simulation des trois années de référence 1990/2000/2010 ainsi qu'une étude de sensibilité aux changements d'émissions. La deuxième (tier 2) concerne la sensibilité aux conditions aux limites. Et la troisième (tier 3) est consacrée à la variabilité météorologique.

Si l'on prend l'exemple de la différence entre les années 1990 et 2010, il est possible de procéder à la décomposition à trois facteurs illustrée en Figure 39 (dans le cadre de d'EDT, cette décomposition est possible aussi pour la différence entre 1990 et 2000 ou entre 2000 et 2010). Les simulations sont notées par exemple M10B00E90, quand l'année météorologique utilisée est 2010, l'année des conditions aux limites 2000 et les émissions de précurseurs 1990, les deux derniers chiffres indiquant à chaque fois l'année concernée.

Si l'on veut procéder à la décomposition à trois facteurs, 2^3 combinaisons sont requises en principe, mais seules 4 combinaisons étaient incluses dans le plan d'expérience (M90B90E90, M10B90E90, M10B10E90, M10B10E10 : indiquées en noir sur la Figure 39). Un seul modèle a été utilisé pour l'ensemble des combinaisons afin d'évaluer l'impact de cette approximation.

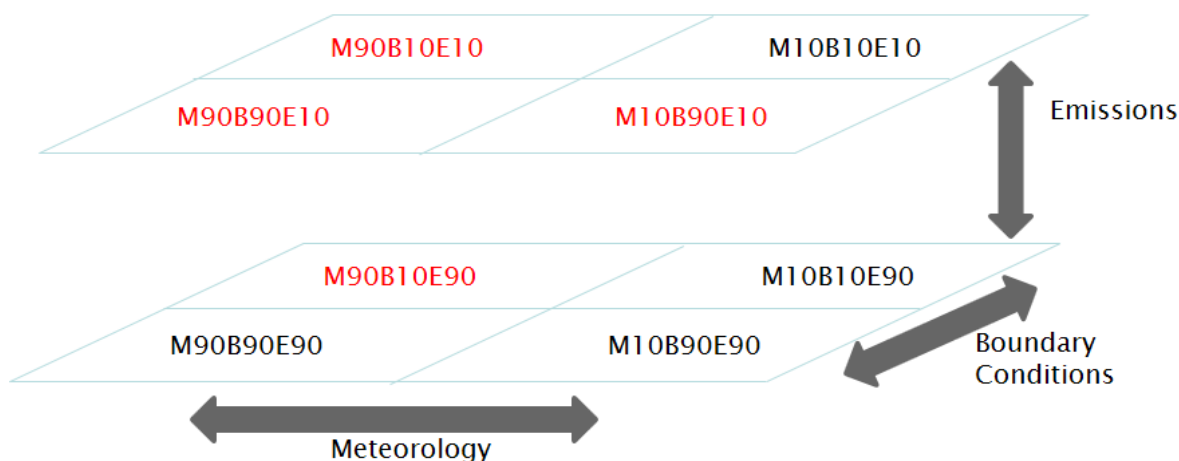


Figure 39: Décomposition à trois facteurs effectuée pour l'étude d'attribution des facteurs influençant les changements de pollution atmosphérique entre 1990 et 2010 en utilisant les analyses de sensibilité de l'expérience numérique Eurodelta-Trends. La météorologie (M), les conditions aux limites (B), et les émissions (E), sont représentées sur les axes x, y, et z, respectivement. Les simulations effectuées sont indiquées en noir, et celles qui n'ont pas été couvertes par l'expérience sont en rouge.

Sur la base de ces simulations, il est possible de proposer la décomposition suivante, où Δ représente la différence :

$$\begin{aligned} \Delta (2010-1990) \\ = \Delta(\text{météorologie}) + \Delta(\text{conditions aux limites}) + \Delta(\text{émissions}) + \text{résidus} \end{aligned} \quad (5.1)$$

Où

$$\begin{aligned} \Delta(2010-1990) &= (M10B10E10 - M90B90E90): \text{Tier 1} \\ \Delta(\text{météorologie}) &= (M10B90E90 - M90B90E90): \text{Tier 3} \\ \Delta(\text{conditions aux limites}) &= (M10B10E90 - M10B90E90): \text{Tier 2} \\ \Delta(\text{émissions}) &= (M10B10E10 - M10B10E90): \text{Tier 1} \end{aligned}$$

Il faut noter que le choix de l'année 2010 pour évaluer la sensibilité à la météorologie ou aux conditions aux limites est arbitraire, ainsi que le choix de l'année 1990 pour la sensibilité aux émissions. D'autres combinaisons pour explorer l'espace des paramètres auraient donné des résultats différents et cette hypothèse est testée dans la Section 5.4.3 où sont présentées des simulations additionnelles avec le modèle CHIMERE incluant toutes les combinaisons possibles.

Une limitation de cette décomposition réside dans sa sensibilité à l'année choisie pour les différentes expériences (soit 1990 soit 2010). Ce facteur est principalement préoccupant en ce qui concerne l'année météorologique (qui représente une variabilité interannuelle supérieure aux deux autres facteurs). Pour ce facteur, le changement sur les 20 ans considérés pourrait en effet être fort différent si la différence entre 2011 et 1991 avait été étudiée au lieu de la différence entre 2010 et 1990.

Effectuer une décomposition complète pour la période considérée demanderait cependant 21^3 simulations annuelles, ce qui est trop demandeur en ressources de calcul. Il est possible cependant de proposer une alternative en se reposant sur les deux simulations de tendance complètes effectuées dans le cadre d'Eurodelta-Trends (tier 3) avec des émissions variables ou constantes sur la période 1990-2010. La décomposition peut alors s'écrire, en notant τ la pente annuelle (plutôt que Δ la différence entre deux années en 5.1) :

$$\tau(1990-2010) = \tau(\text{météorologie}) + \tau(\text{conditions aux limites}) + \tau(\text{émissions}) + \text{résidu} \quad (5.2)$$

Où la tendance sur l'ensemble de la période (τ (1990 - 2010)) est calculée avec les simulations du tier 3 (MyyByyEyy avec yy variant de manière continue entre 1990 et 2010).

Grâce à leur variabilité interannuelle limitée, $\tau(\text{conditions aux limites})$ et $\tau(\text{émissions})$ peuvent être approximativement évaluées à partir de la différence entre les années 1990 et 2010, i.e. $(M10B10E10 - M10B10E90)$ et $(M10B10E90 - M10B90E90)$ divisés par le nombre d'années les séparant.

Pour quantifier la tendance attribuée au facteur météorologique, on utilise les simulations du tier 3 qui prennent en compte l'effet des changements météorologique et des conditions aux limites, mais des émissions constantes. Il devient alors possible de soustraire l'effet des conditions aux limites pour isoler la variabilité météorologique.

Pour résumer, nous avons une décomposition qui repose sur l'évaluation de l'impact des émissions et des conditions aux limites à partir des études de sensibilité sur une unique année, mais aussi sur des simulations continues pour l'impact de la météorologie :

- Tendance totale entre 1990 et 2010 :
 - o Calculée à partir de la simulation continue (tier 3) avec météorologie, conditions aux limites et émissions variables (Myy,Byy,Eyy, yy=1990..2010)
- Tendance due aux conditions aux limites :
 - o Différence entre M10B90E90 et M10B10E10, divisée par le nombre d'années (21) pour être comparable à la tendance
- Tendance due aux émissions :
 - o Différence entre M10B10E90 et M10B10E10, divisée par le nombre d'années (21) pour être comparable à la tendance
- Tendance due à la météorologie :
 - o Calculée à partir de la simulation continue (tier 3) avec météorologie, conditions aux limites variables mais émissions constantes (Myy,Byy,E10, yy=1990..2010), à laquelle on soustrait l'impact du changement des conditions aux limites calculées au second point.
- Résidus calculés à partir de la différence entre le changement total et la somme des facteurs individuels.

5.3 Décomposition pour les années 1990/2000/2010

Des informations importantes sur la robustesse de l'approche proposée peuvent être obtenues à partir de l'analyse de la décomposition pour les années 1990, 2000, et 2010, avant de s'intéresser aux tendances proprement dites, ce qui sera fait en Section 5.5.

5.3.1 Ozone

La décomposition des facteurs contribuant aux changements d'ozone modélisés entre les années 1990 et 2000 et entre les années 2000 et 2010 est présentée en Figure 40 et Figure 41. On s'intéresse aux pics d'ozone en utilisant comme indicateur la quatrième valeur la plus élevée du maximum journalier (calculé à partir d'une moyenne glissante sur 8h).

Pour chaque période, les cartes indiquent la contribution respective :

- de tous les facteurs (les différences totales 2010 – 2000 et 2000-1990)
- des émissions (Emis.)
- des conditions aux limites (Bound. Cond.)
- de la météorologie (Meteo)
- des résidus, ou termes d'interaction calculés à partir de la différence entre le changement total et la somme de tous les facteurs.

Pour chaque facteur, même s'il ne s'agit pas ici de tendance interannuelle mais de différence entre deux années, cette différence est exprimée en $\mu\text{g.m}^{-3}/\text{an}$. En divisant la différence par le nombre d'années les séparant (11) il sera possible de les comparer avec les tendances présentées plus loin.

Le principal élément à remarquer Figure 40 et Figure 41 concerne l'impact des changements d'émissions anthropiques européennes (en haut à droite) sur les pics d'ozone. Sur l'ensemble du continent, les stratégies de réductions ont effectivement permis de réduire les pics d'ozone, à l'exception de la péninsule ibérique dans les années 1990 et aussi dans une moindre mesure pour le nord du Royaume Uni dans les années 2000. Pour la France, la réduction observée est relativement homogène et constante sur les deux périodes considérées, avec une réduction plus marquée dans les années 1990 sur la région parisienne.

L'impact sur les pics d'ozone des changements à l'échelle du globe (évalué à partir de la simulation de sensibilité aux conditions aux limites) est très faible, et souvent du même ordre que les résidus. On peut en conclure qu'il n'est pas possible d'évaluer quantitativement ce facteur, même si l'on peut affirmer que son rôle est secondaire.

L'impact du choix de l'année météorologique est substantiel mais la décomposition proposée est sensible à l'année météorologique choisie. Les différences constatées entre les années 2000 et 2010, pourraient être très différentes entre les années 2001 et 2011. Ce facteur ne sera donc pas discuté ici mais dans la partie consacrée à la décomposition des tendances (Section 5.5).

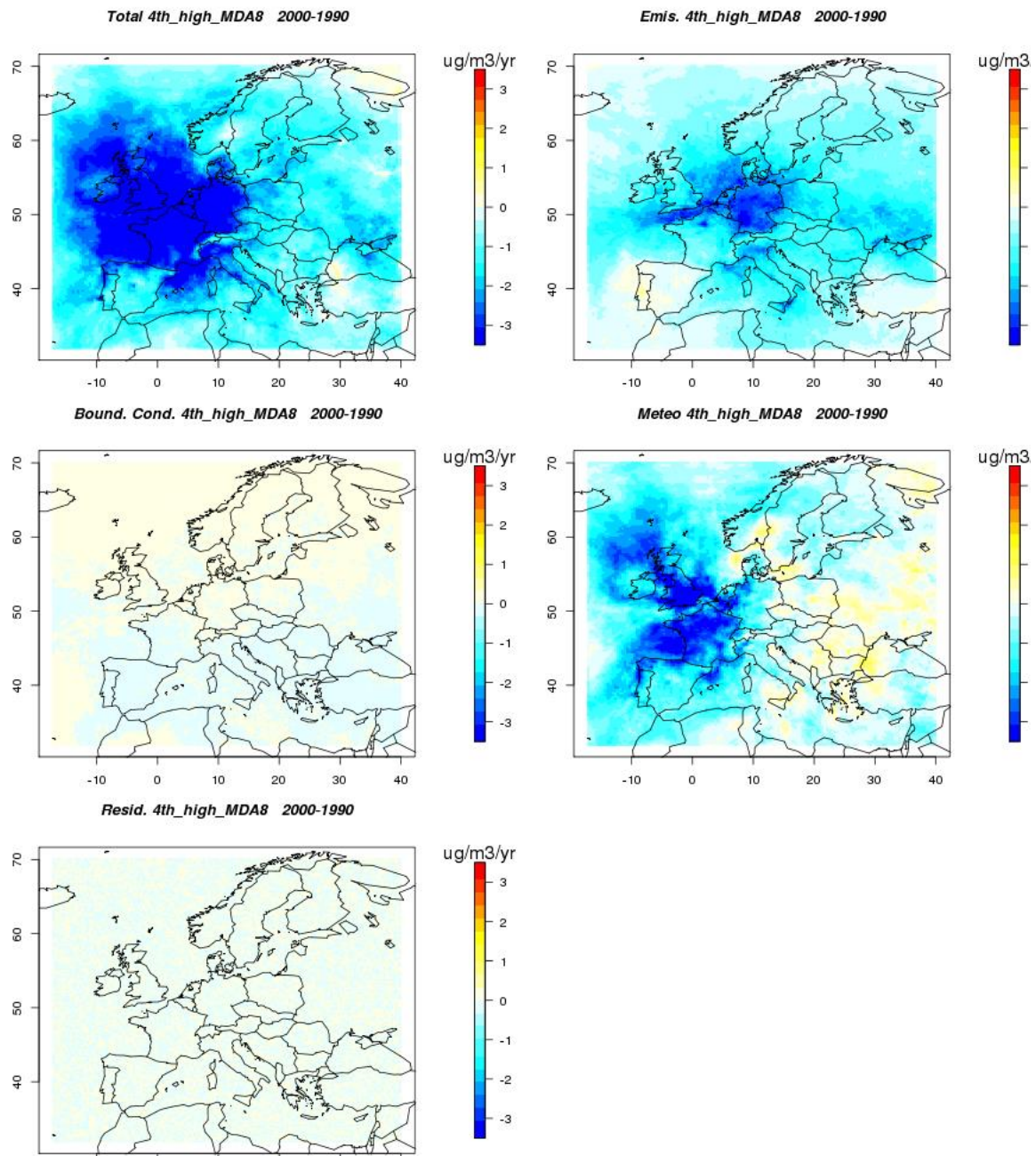


Figure 40: Cartographies calculées à partir des 8 modèles de l'ensemble Eurodelta-Trends de la contribution respective des principaux facteurs à la différence entre 2000 et 1990 des pics d'ozone (4^e valeur la plus élevée du maximum journalier des moyennes sur 8 heures). Total : tous facteurs confondus, Emis : émission anthropiques européennes, Meteo : météorologie, Resid : résidus et termes d'interaction.

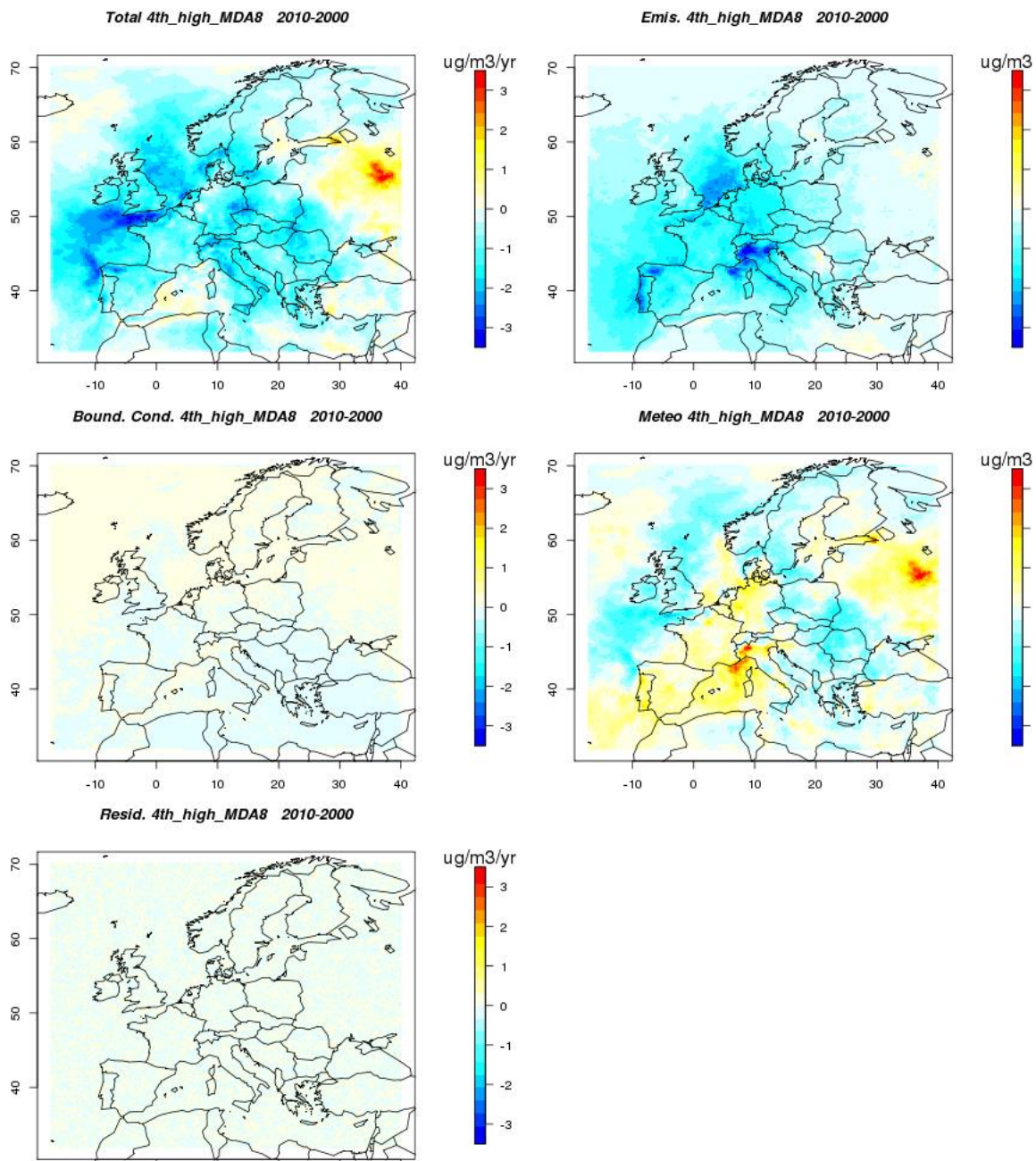


Figure 41: Identique à la Figure 40 pour la différence entre 2010 et 2000.

5.3.2 Aérosols

Les analyses de décomposition pour les PM_{10} sont présentées sur les Figure 42 et Figure 43 (pour 2000-1990 et 2010-2000, respectivement). On constate que les réductions d'émissions anthropiques européennes ont conduit à une baisse à travers l'ensemble de l'Europe au cours des années 1990, à l'exception de la péninsule ibérique où cette baisse est moins importante. Sur la période 2000-2010, les émissions ont conduit à une baisse moins importante, en particulier sur l'Europe de l'Est, même si des réductions appréciables sont constatées sur le Portugal, la France, l'Italie, l'Angleterre, le Benelux, l'Allemagne et la République Tchèque. En ce qui concerne la France, les réductions sont plus importantes pour la décennie 2000-2010, sur la première période, les fortes réductions concernaient principalement les régions frontalières du Nord-Est, et Rhône-Alpes.

L'impact des conditions aux limites est très limité pour l'ensemble du domaine, sauf sur sa partie la plus méridionale à cause de l'import de poussières désertiques. L'impact de la météorologie reste important, mais ne sera discuté que dans la partie consacrée aux tendances (5.5). Les résidus sont assez faibles, ce qui conforte la robustesse de l'approche utilisée.

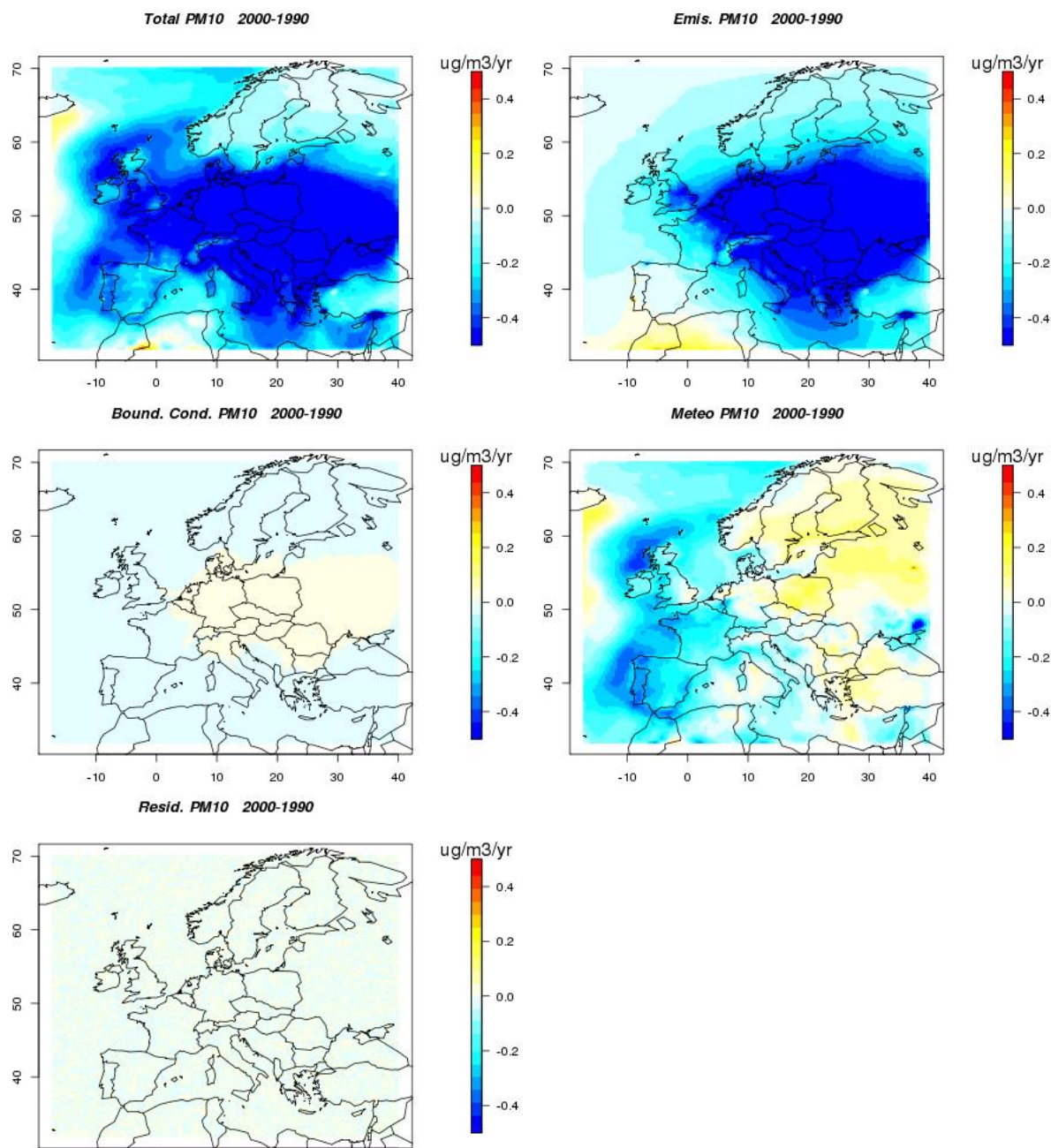


Figure 42: Cartographies calculées à partir des 8 modèles de l'ensemble Eurodelta-Trends de la contribution respective des principaux facteurs à la différence entre 2000 et 1990 des moyennes annuelles de PM₁₀. Total : tous facteurs confondus, Emis : émission anthropiques européennes, Meteo : météorologie, Resid : résidus et termes d'interaction.

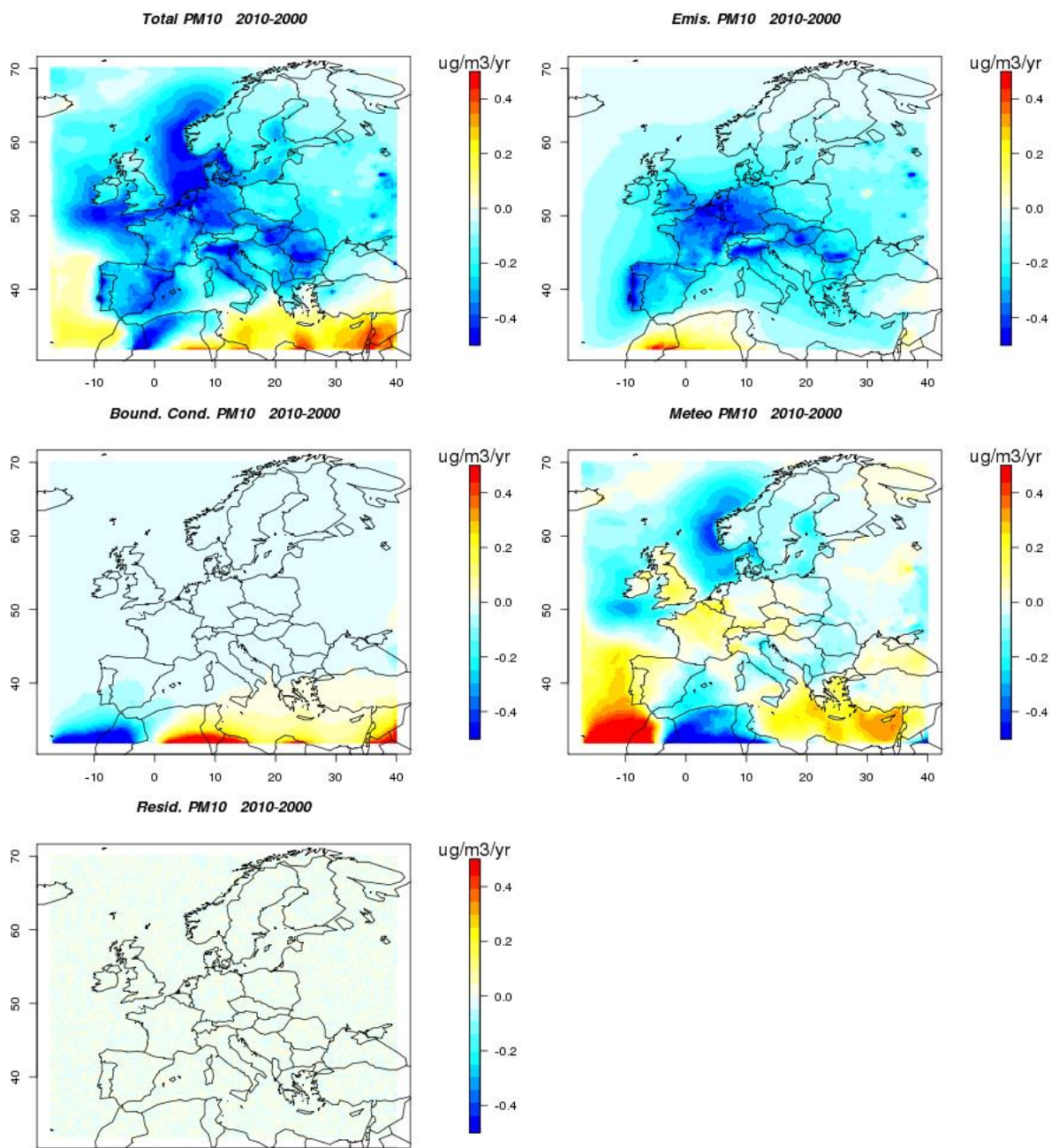


Figure 43: Identique à la Figure 42 pour la différence entre 2010 et 2000.

5.4 Incertitudes de la décomposition

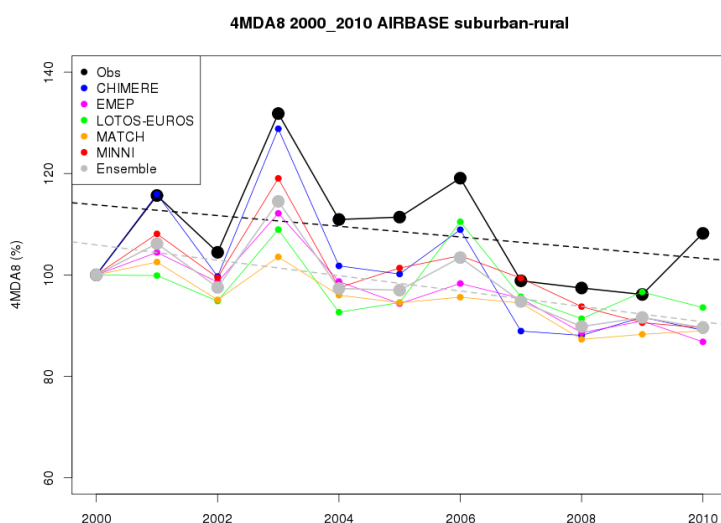
On s'intéresse ici à deux facteurs principaux d'incertitude : celle qui est attribuée aux modèles participant à l'expérience Eurodelta-Trends (qu'il s'agisse de la capacité des modèles à représenter la tendance de qualité de l'air ou de l'incertitude entre les différents modèles), et d'autre part celle qui est induite par l'approche de décomposition à trois facteurs.

5.4.1 Performances des modèles

Les modèles utilisés pour simuler l'évolution de la qualité de l'air en Europe sur la période 1990-2010 sont susceptibles de présenter une déviation par rapport aux tendances réellement observées. Un important travail de validation à l'échelle européenne est en cours afin d'évaluer ces modélisations et devrait conduire à la publication d'articles scientifiques. Les premiers éléments sont discutés dans un rapport du Centre Thématique de l'Agence Européenne (Colette et al., 2017b). On restreint ici l'ensemble de modèle aux cinq équipes ayant fourni les simulations continues sur la période 1990-2010 (Chimere, Emeep, Lotos-Euros, Match, et Minni).

En ce qui concerne les PM₁₀, même si tous les modèles présentent l'habituel biais négatif, ce biais est constant dans le temps, de telle sorte que la tendance est très bien capturée. Sur la période 2000-2010, la tendance moyenne sur l'ensemble des stations européennes de l'e-reporting database de l'agence Européenne est -1.94%/an, alors que dans l'ensemble de modèles on trouve -1.87%/an. Ce bon accord est aussi visible pour les stations françaises représentées sur la Figure 44 où l'on montre la série temporelle normalisée par la valeur obtenue en 2002 (dans les observations ou dans les modèles) car il s'agit de la première année où suffisamment d'observations sont disponibles. Malgré une certaine dispersion des modèles, on note que l'ensemble indiqué en gris est en bon accord avec les observations.

Pour l'ozone, la situation est moins claire. Sur l'ensemble de l'Europe, on constate dans l'ensemble une amélioration des performances de tous les modèles sur la période 1990-2010, mais c'est au prix d'un biais sur l'évaluation de la tendance avec en général sur l'Europe une surestimation de la baisse des pics d'ozone par rapport aux observations. On constate ainsi sur la Figure 44 que les modèles surestiment légèrement la baisse (même pour le modèle d'ensemble) par rapport aux observations.



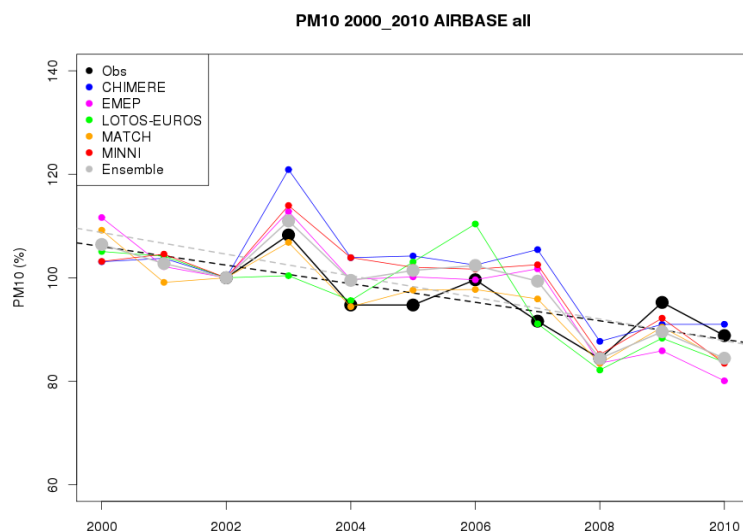


Figure 44 : Evolution interannuelle des pics d’ozone (en haut : en $\mu\text{g}/\text{m}^3$, 4^e maximum le plus élevé pour chaque année pour les stations rurales et suburbaines) et des moyennes annuelles de PM_{10} (en bas : normalisé par la valeur en 2002, en %, pour toutes les stations) pour les stations de mesure en France ainsi que pour chaque modèle participant à l’exercice Eurodelta-Trends ainsi que pour la moyenne des modèles.

5.4.2 Incertitude de l’ensemble de modèles

Les cartographies présentées dans les parties 5.3.1 et 5.3.2 sont des moyennes d’ensemble des huit modèles de chimie-transport participants aux simulations prioritaires de l’étude Eurodelta-Trends. Il s’agit ici de tirer parti de la force résidant dans l’utilisation d’un ensemble de modèles, qui consiste à offrir une quantification de l’écart entre les modèles, et donc de l’incertitude afférente.

Afin d’illustrer la variabilité au sein de l’ensemble de modèles, on s’intéresse à leurs écarts pour l’estimation de chaque facteur en moyenne sur la France représenté sous la forme de boîtes à moustaches en Figure 45. De la même manière que pour les discussions des parties 5.3.1 et 5.3.2, ces résultats sont sensibles à l’année considérée et doivent donc être appréhendés avec précaution en ce qui concerne l’impact de la variabilité météorologique.

Il apparaît que le signal attribué au changement des émissions anthropiques européennes est robuste à travers l’ensemble de modèles aussi bien pour les pics d’ozone que pour les moyennes annuelles de PM_{10} car la distance interquartile est située exclusivement dans les valeurs négatives. Les conditions aux limites sont en fait plus incertaines, mais très faibles dans les deux cas.

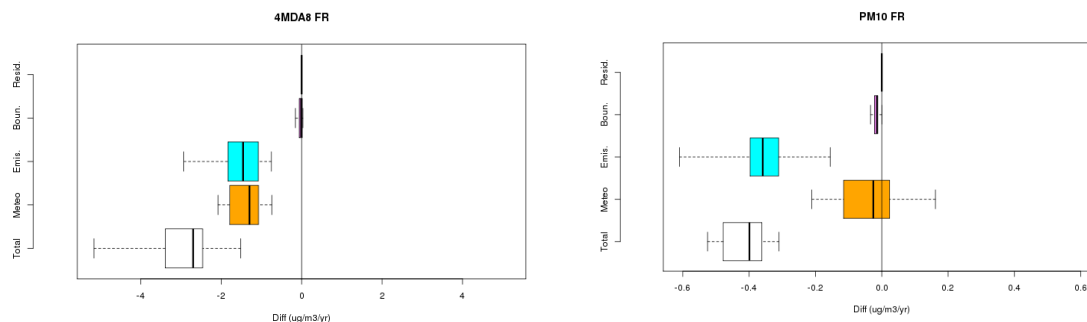


Figure 45: Incertitude évaluée à partir de l'ensemble de huit modèles de chimie-transport participant à l'expérience Eurodelta-Trends pour les différents facteurs d'intérêt entre 1990 et 2010 en moyenne pour la France et pour les pics d'ozone (gauche) ainsi que les moyennes annuelles de PM₁₀ (droite).

5.4.3 Incertitude de l'approche de décomposition

Afin de minimiser le coût en temps de calcul, il a été choisi de simplifier l'analyse de décomposition en trois facteurs en n'effectuant que 4 simulations de sensibilité au lieu des 8 combinaisons requises. Ainsi dans la décomposition présentée dans l'équation (5.1) on évalue l'impact du changement de météorologie entre 1990 et 2010 en utilisant arbitrairement des conditions aux limites et des émissions de 1990, alors que le résultat aurait pu être différent si 2010 avait été choisi. L'impact de cette approximation est quantifié ici à partir de simulations additionnelles avec le modèle CHIMERE qui a été utilisé pour explorer l'ensemble des 8 simulations requises.

Les cartes de l'importance relative de chaque facteur évaluée à partir des 8 simulations de sensibilité sont présentées en Figure 46 et Figure 47 pour l'ozone et les PM₁₀, respectivement. Si l'on s'intéresse à l'impact du changement d'émissions anthropiques européennes, nous avons pour le modèle CHIMERE, 4 couples de simulation à disposition :

- M10B10E10 – M10B10E90
- M10B90E10 – M10B90E90
- M90B90E10 – M90B90E90
- M90B10E10 – M90B10E90

On peut alors estimer l'influence des émissions à partir de la moyenne entre ces quatre combinaisons, mais on peut aussi calculer l'écart type entre ces combinaisons afin d'évaluer l'approximation faite lorsque l'on réduit le nombre de simulation de 8 à 4 pour la décomposition. Les Figure 46 et Figure 47 présentent à la fois la moyenne des différences et l'écart type.

Ces cartes démontrent que l'influence de l'année considérée pour la décomposition demeure limitée par rapport au signal qu'on cherche à évaluer. Pour les conditions aux limites, cet impact est négligeable. L'écart type devient plus important pour les émissions et la météorologie, mais toujours un facteur 10 en dessous de l'impact absolu de chacun de ces facteurs. Ce résultat démontre la robustesse de l'analyse de décomposition, même si toutes les combinaisons requises pour explorer l'espace des paramètres ne sont pas prises en compte.

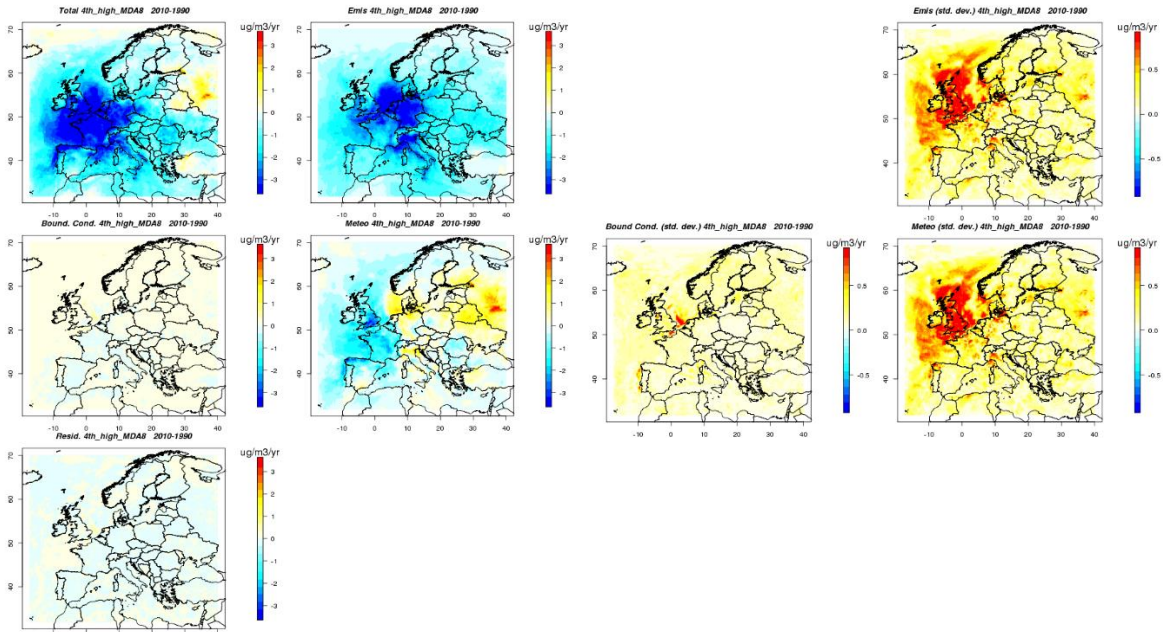


Figure 46: Décomposition de la tendance pour les pics d’ozone, en ($\mu\text{g}/\text{m}^3/\text{an}$), à gauche: différence moyenne attribuée à l’ensemble des facteurs (Total), aux émissions (Emis), aux conditions aux limites (Bound. Cond.), à la météorologie (Meteo) et aux résidus (Resid) en utilisant 8 combinaisons pour la décomposition à trois facteurs. A droite l’écart type entre les 4 combinaisons requises pour chacun des facteurs.

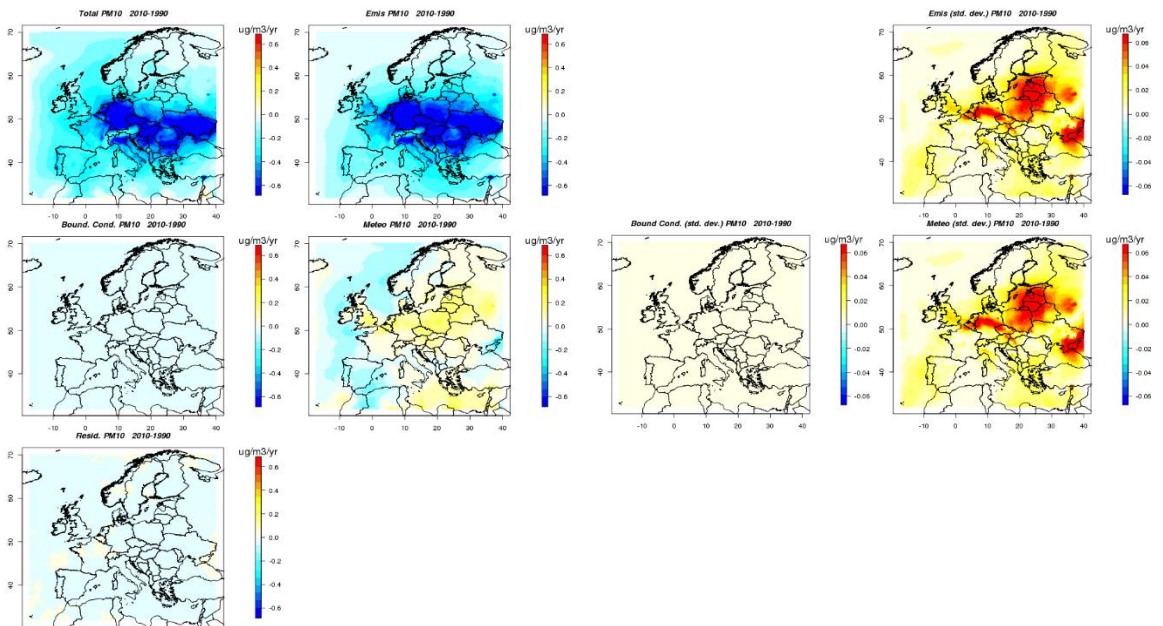


Figure 47: Identique à la Figure 46 pour la moyenne annuelle de PM_{10} .

5.5 Décomposition de la tendance entre 1990 et 2010

Afin de quantifier l'impact relatif des émissions, de la météorologie et des conditions aux limites sur la tendance de qualité de l'air et non plus sur la différence entre deux années ponctuelles, on applique la méthode de décomposition, en faisant aussi intervenir des simulations continues pour l'ensemble de la période.

On restreint ici l'ensemble de modèle aux cinq équipes ayant fourni les simulations continues sur la période 1990-2010 (Chimere, Emep, Lotos-Euros, Match, et Minni).

Les résultats sont présentés pour neuf grandes régions européennes avec un focus sur la France. Ces neuf régions sont inspirées du projet climatique PRUDENCE (Christensen and Christensen, 2007) et légèrement adaptées pour la qualité de l'air. Elles sont présentées sur la Figure 48, on retrouve l'Angleterre (EN), une région de flux entrant (*inflow*, IN) constituée par l'Irlande et l'Ecosse, la péninsule ibérique (IP : Espagne et Portugal), la partie occidentale de la France (FR), l'Europe Centrale (ME pour Mid-Europe), la Scandinavie (SC), l'Italie du Nord (NI), la Méditerranée (MD), et l'Europe de l'Est (East Europe : EA).

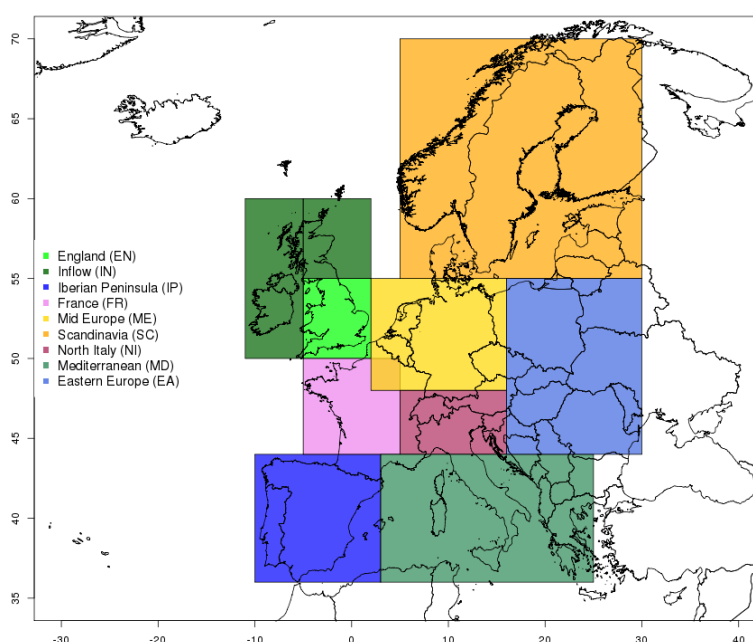


Figure 48 : Cartographie des neuf régions Européennes utilisées pour l'analyse de décomposition.

5.5.1 Ozone

La décomposition des facteurs qui jouent un rôle sur l'évolution des pics d'ozone sur la période 1990-2010 est présentée en Figure 49. L'évolution nette (tous facteurs inclus) est aussi donnée par les losanges rouges.

La tendance sur les pics d’ozone (le 4^e pic le plus élevé pour chaque année) est à la décroissance pour toutes les régions, aussi bien pendant les années 1990 que 2000. Cette évolution est cohérente avec les 10% de baisse constatés pour chaque période sur le réseau EMEP (Colette et al., 2016). On constate que la baisse sur la France est moins forte sur la période 2000-2010, ce qui est cohérent avec les 3.8% de réduction identifiés en Section 4.1.3.1 pour cette période.

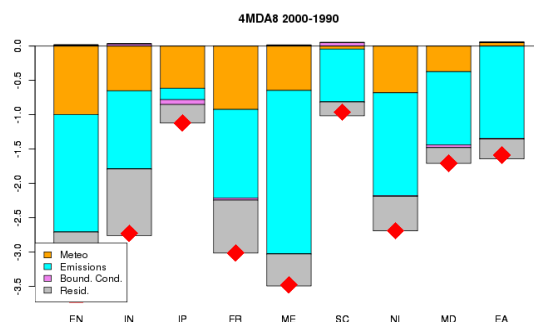
Le principal résultat à mettre en avant dans l’analyse d’attribution concerne l’importance des émissions anthropiques européennes sur les pics d’ozone qui dominent pour toutes les régions et les deux périodes considérées. L’impact le plus faible est trouvé en Espagne dans les années 1990.

Les impacts de la variabilité météorologique et des conditions aux limites sont plus faibles mais toujours importants. Le facteur météorologique domine dans l’ensemble, ce qui peut constituer une surprise lorsqu’on considère l’importance des conditions aux limites qui est souvent mise en avant pour les tendances d’ozone (Maas and Grennfelt 2016).

L’impact de la météorologie sur les pics d’ozone peut être directement relié aux épisodes anticycloniques d’été qui favorisent la production et l’accumulation de l’ozone. Dans presque toutes les régions et périodes temporelles, ce facteur a contribué à baisser les pics, ce qui peut s’expliquer par exemple par le fait que la canicule de 2003 se soit produite dans la première partie de la seconde période (2000-2010). Cette caractéristique mérite d’être soulignée car la variabilité météorologique est parfois mise en avant de manière spéculative pour expliquer les relativement faibles tendances d’ozone, alors que notre analyse démontre l’effet inverse : c’est-à-dire que la variabilité météorologique a plutôt contribué à faire baisser les pics.

La situation en France est globalement cohérente avec le paysage dressé au niveau européen. Les émissions contribuent majoritairement à la baisse constatée sur les pics d’été, avec aussi une contribution de la variabilité météorologique.

Comme on l’a vu dans la partie consacrée aux incertitudes, les résidus sont limités mais ils peuvent toutefois par endroit atteindre un ordre de grandeur similaire à certains facteurs. Il convient donc de rester prudent, même si les résultats sont robustes en ce qui concerne l’importance des émissions, et le rôle de la variabilité météorologique plus important qu’attendu, et plus important que celui du transport intercontinental à travers les conditions aux limites.



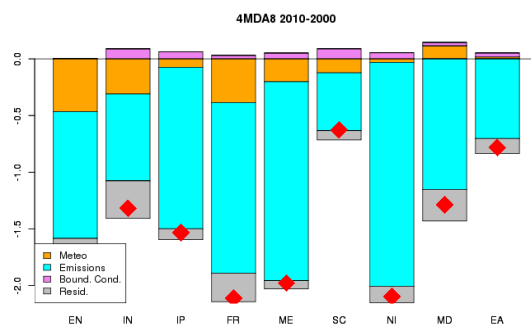
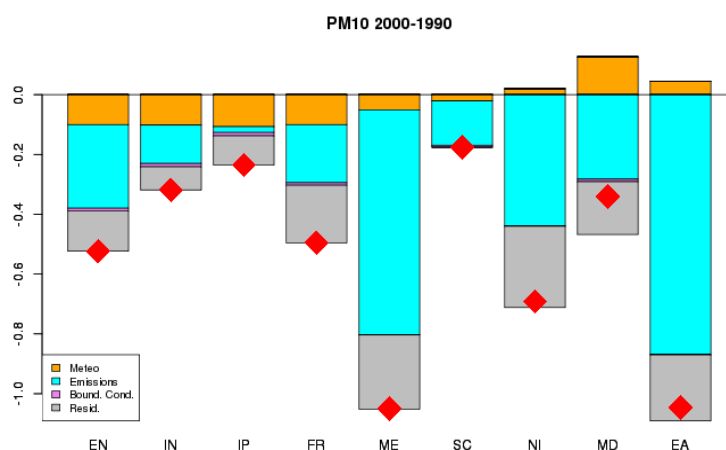


Figure 49: Attribution des tendances des pics d'ozone (4^e maximum journalier annuel) aux principaux facteurs (Meteo : météorologie, Emissions : émissions anthropiques européennes, Bound. Cond. : conditions aux limites, i.e. transport intercontinental, Resid. : résidus.) pour les années 1990 (haut) et 2000 (bas). Les losanges rouges indiquent la tendance nette, tous facteurs confondus.

5.5.2 Aérosols

La même décomposition est proposée pour les PM₁₀ en Figure 50. Ici, la contribution des changements d'émission domine encore plus largement. Les conditions aux limites sont négligeables dans les années 1990 et marginales dans les années 2000. La météorologie a un impact qui demeure beaucoup plus faible que l'impact des émissions dans les années 1990, sauf pour la péninsule ibérique, et dans une certainement mesure aussi en France où les deux facteurs sont proches. Dans les années 1990, ce facteur météorologique a contribué à la diminution des concentrations de PM₁₀ (sauf dans la région Méditerranée), mais au contraire pendant les années 2000, une augmentation est souvent constatée. Les résidus sont plus faibles que le signal induit par les changements d'émissions mais ils sont globalement plus élevés que pour l'ozone, et excèdent fréquemment l'impact des autres facteurs considérés.



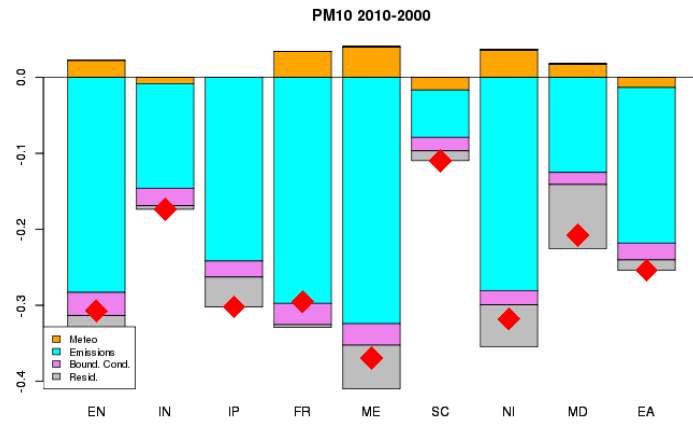


Figure 50: Identique à la Figure 49 pour les moyennes annuelles de PM₁₀.

6 CONCLUSIONS ET PERSPECTIVES

L'étude des tendances sur une longue période temporelle constitue un outil important pour comprendre les effets des politiques de protection de l'environnement et de la santé humaine. La mise en place de réseaux de surveillance de long terme dans le cadre des directives européennes et des protocoles liés à la convention sur la pollution atmosphérique transfrontalière à longue distance a permis depuis les années 1990 d'accompagner le développement des stratégies de réduction des émissions polluantes. Plus de vingt ans après l'établissement de ces programmes d'action, des réductions dans les concentrations des polluants dans l'air et dans les retombées atmosphériques ont pu être mises en évidence statistiquement.

Des tendances à la baisse substantielles en moyenne sur le territoire national métropolitain sont identifiées : 17,3% pour les oxydes d'azote et 15,1% pour les PM₁₀ sur la période 2000-2010. L'évolution est moins favorable pour l'ozone. Même si les pics baissent de 3,8% en amplitude, les moyennes augmentent de 5,5% sur la période. La densité du réseau ne permet de quantifier des tendances représentatives de l'ensemble du territoire qu'après 2000, et l'utilisation d'une technique d'agrégation géostatistique reposant aussi sur des modèles fait que l'on s'est limité pour O₃, NO₂ et PM₁₀ à la période 2000-2010. Or il faut souligner que du fait de la variabilité interannuelle, les tendances demeurent non-significatives pour l'ozone, en revanche la baisse est bien significative statistiquement pour le NO₂ et les PM₁₀.

La surveillance sur les stations du dispositif de la qualité de l'air en France a permis de détecter des réductions significatives dans les concentrations en métaux lourds et en HAP dans les PM₁₀ sur les périodes 1990-2015 (pour le plomb uniquement) et 1999-2012. D'importantes réductions dans les composés soufrés dans les particules et les retombées atmosphériques sont accompagnées de baisses moins importantes pour les composés azotés réduits et oxydés dans les retombées atmosphériques, voire inexistantes dans les particules. Mais c'est surtout pour les composés azotés dans les particules (nitrates et ammonium) et dans les retombées atmosphériques (surtout ammonium) qu'il demeure une préoccupation.

Les tendances dans les concentrations en COV sont globalement cohérentes avec les réductions des émissions. En revanche, pour l'éthane et le propane, les tendances observées ne reflètent pas les baisses rapportées dans les inventaires d'émissions.

Une étude de sensibilité des résultats de modélisation a conduit par ailleurs à évaluer l'importance relative des changements d'émissions, de la variabilité météorologique et de l'import de polluants aux frontières de l'Europe. L'efficacité des stratégies de réduction d'émissions de polluants est confirmée. La variabilité météorologique (et donc les évolutions climatiques) est également un facteur déterminant de l'évolution de long terme, mais l'impact de l'import intercontinental est moins important pour les pics d'ozone et les moyennes annuelles de particules fines.

En conclusion, il est important de rappeler que l'évaluation de l'efficacité des mesures de gestion en matière de qualité de l'air constitue l'une des raisons de l'établissement d'une surveillance de long terme grâce à des réseaux opérationnels mis en œuvre selon de strictes règles d'assurance qualité. La couverture spatiale et temporelle des réseaux français varie en fonction des polluants considérés. Pour les mesures automatiques (NO₂, O₃, PM₁₀), la couverture spatiale devient satisfaisante après les années 2000, permettant de proposer des indicateurs représentatifs de l'ensemble du territoire. Des tendances à la baisse sont identifiées mais elles demeurent statistiquement non significatives pour l'ozone, du fait de la variabilité météorologique, appelant dès lors à une poursuite de la surveillance pour identifier des évolutions plus significatives. Des observations sur le long terme sont également nécessaires à l'étude des interactions entre la qualité de l'air et l'évolution climatique. Pour les mesures manuelles, les données sont souvent disponibles sur des périodes plus longues mais la couverture spatiale est moins exhaustive. Les résultats issus des simulations numériques ré-analysées couvrant la période 1990-2010, permettent d'affiner l'interprétation des tendances issues des observations. Nous avons pour objectif de continuer l'exercice en modélisant des années plus récentes, et surtout de conduire des simulations raffinées spatialement sur la France.

7 REFERENCES

- Amann, M., Borken-Kleefeld, J., Cofala, J., Heyes, C., Klimont, Z., Rafaj, P., Purohit, P., Schoepp, W., and Winiwarter, W.: Future emissions of air pollutants in Europe - Current legislation baseline and the scope for further reductions., IIASA, Laxenburg, Austria, 2012.
- Banzhaf, S., Schaap, M., Kranenburg, R., Manders, A. M. M., Segers, A. J., Visschedijk, A. J. H., Denier van der Gon, H. A. C., Kuenen, J. J. P., van Meijgaard, E., van Ulft, L. H., Cofala, J., Bessagnet B., Malherbe L., Aymoz G. : Bilan de la première année de mesure des PM₁₀ ajustées en France et évaluation des outils de modélisation. Rapport LCSQA, www.lcsqa.org, 2008.
- Bessagnet B., Debry E., Malherbe L. : Bilan des mesures de PM₁₀ et PM_{2.5} ajustées et évaluation des outils de modélisation. Rapport LCSQA, www.lcsqa.org, 2010.
- Byun, D. W., and Schere, K. L.: Review of the governing equations, computational algorithms, and other components of the Models-3 Community Multiscale Air Quality (CMAQ) Modeling System, Appl. Mech. Rev., 59, 51-77, 2006.
- Christensen, J., a2017nd Christensen, O.: A summary of the PRUDENCE model projections of changes in European climate by the end of this century, Climatic Change, 81, 7-30, 2007.
- CITEPA, 2017. Inventaire d'émissions pour les polluants impliqués dans l'acidification, l'eutrophisation et la pollution photochimique, site internet, mise à jour octobre 2016.
- Coddeville, P., Nicolas, M., Mathias, E., Pascaud, A., Sauvage, S., Probst, A., Évolution des émissions, de la qualité de l'air et des dépôts atmosphériques dans les espaces ruraux (forestiers), Pollution atmosphérique, 229 - 230, doi :10.4267/pollution-atmospherique.5748, 2017.
- Colette, A., Granier, C., Hodnebrog, O., Jakobs, H., Maurizi, A., Nyiri, A., Bessagnet, B., D'Angiola, A., D'Isidoro, M., Gauss, M., Meleux, F., Memmesheimer, M., Mieville, A., Rouil, L., Russo, F., Solberg, S., Stordal, F., and Tampieri, F.: Air quality trends in Europe over the past decade: a first multi-model assessment, Atmos. Chem. Phys., 11, 11657-11678, 2011.
- Colette, A., Beauchamp, M., Malherbe, L., and Solberg, S.: Air Quality Trends in AIRBASE in the context of the LRTAP Convention, ETC/ACM Technical Paper 2015/4, 2015.
- Colette, A., Aas, W., Banin, L., Braban, C. F., Ferm, M., González Ortiz, A., Ilyin, I., Mar, K., Pandolfi, M., Putaud, J.-P., Shatalov, V., Solberg, S., Spindler, G., Tarasova, O., Vana, M., Adani, M., Almodovar, P., Berton, E., Bessagnet, B., Bohlin-Nizzetto, P., Boruvkova, J., Breivik, K., Briganti, G., Cappelletti, A., Cuvelier, K., Derwent, R., D'Isidoro, M., Fagerli, H., Funk, C., Garcia Vivanco, M., Haeuber, R., Hueglin, C., Jenkins, S., Kerr, J., de Leeuw, F., Lynch, J., Manders, A., Mircea, M., Pay, M. T., Pritula, D., Querol, X., Raffort, V., Reiss, I., Roustan, Y., Sauvage, S., Scavo, K., Simpson, D., Smith, R. I., Tang, Y. S., Theobald, M., Tørseth, K., Tsyro, S., van Pul, A., Vidic, S., Wallasch, M., and Wind, P.: Air pollution trends in the EMEP region between 1990 and 2012, NILU, Oslo, 2016.

Colette, A., Andersson, C., Manders, A., Mar, K., Mircea, M., Pay, M. T., Raffort, V., Tsyro, S., Cuvelier, C., Adani, M., Bessagnet, B., Bergström, R., Briganti, G., Butler, T., Cappelletti, A., Couvidat, F., D'Isidoro, M., Doumbia, T., Fagerli, H., Granier, C., Heyes, C., Klimont, Z., Ojha, N., Otero, N., Schaap, M., Sindelarova, K., Stegehuis, A. I., Roustan, Y., Vautard, R., van Meijgaard, E., Vivanco, M. G., and Wind, P.: EURODELTA-Trends, a multi-model experiment of air quality hindcast in Europe over 1990–2010, *Geosci. Model Dev.*, 10, 3255-3276, 10.5194/gmd-10-3255-2017, 2017a.

Colette, A., Solberg, S., Beauchamp, M., Bessagnet, B., Malherbe, L., and Guerreiro, C.: Long term air quality trends in Europe: Contribution of meteorological variability, natural factors and emissions, ETC/ACM, Bilthoven, 2017b.

Couvidat, F., 2017. Modelling of BaP concentrations over France, oral conference at the 18th EMEP Task Force on Measurements and Modelling (TFMM), Prague, the Check Republic, 3-5 May 2017.

De Leeuw F., 2012. AirBase: a valuable tool in air quality assessments at a European and local level. ETC/ACM Technical Paper 2012/4.

De Wit, H.A., Hettelingh, J-P., Harmens, H., Trends in ecosystem and health responses to long-range transported atmospheric pollutants. Norwegian Institute for Water Research, Report No. 6946-2015, ICP Waters report 125/2015. 92 p. 2016

Derwent, R.G., Field, R.A., Dumitrean, P., Murrells, T.P., Telling, S.P., Origins and trends in ethane and propane in the United Kingdom from 1993 to 2012, *Atmos. Environ.*, 156, 15-23, doi: 10.1016/j.atmosenv.2017.02.030, 2017.

Directive 2004/107/CE du Parlement européen et du Conseil du 15 décembre 2004 concernant l'arsenic, le cadmium, le mercure, le nickel et les hydrocarbures aromatiques polycycliques dans l'air ambiant.

Directive 2008/50/CE du Parlement européen et du Conseil du 21 mai 2008 concernant la qualité de l'air ambiant et un air pur pour l'Europe.

EEA (European Environment Agency), Air quality in Europe – 2016 report. EEA Report No 28/2016.

EMEP, 1996. EMEP Manual for Sampling and Chemical Analysis, rev 2014. EMEP/CCC Report 1/1995, Norwegian Institute for Air Research, Kjeller, URL: <http://www.nilu.no/projects/ccc/manual/>

Fowler, D., Muller, J., Smith, R. I., Cape, J. N., Erisman, J. W., Nonlinearities in source receptor relationships for sulfur and nitrogen compounds, *Ambio*, 34, 41-46, doi: 10.1579/0044-7447-34.1.41, 2005.

Fowler, D., Smith, R., Muller, J., Cape, J., Sutton, M., Erisman, J., Fagerli, H., Long term trends in sulphur and nitrogen deposition in Europe and the cause of non-linearities, *Water Air Soil Pollut. Focus*, 7, 41-47, doi:10.1007/s11267-006-9102-x, 2007.

Grell, G. A., Peckham, S. E., Schmitz, R., McKeen, S. A., Frost, G., Skamarock, W. C., and Eder, B.: Fully coupled “online” chemistry within the WRF model, *Atmospheric Environment*, 39, 6957-6975, <http://dx.doi.org/10.1016/j.atmosenv.2005.04.027>, 2005.

Guerreiro, C., Horalek, J., de Leeuw, F., Couvidat, F., Mapping ambient concentrations of benzo(a)pyrene in Europe. Population exposure and health effects for 2012. ETC/ACM Technical Paper 2014/6, 2014.

Hamaoui-Laguel, L., Meleux, F., Beekmann, M., Bessagnet, B., Générumont, S., Cellier, P., Létinois, L., Improving ammonia emissions in air quality modelling for France, *Atmos. Environ.*, 92, 584-595, doi:10.1016/j.atmosenv.2012.08.002, 2014.

Harmens, H., Norris, D.A., Sharps, K., Mills, G., Alber, R., Aleksiyenak, Y., Blum, O., Cucu-Man, S.-M., Dam, M., De Temmerman, L., Ene, A., Fernandez, J.A., Martinez-Abaigar, J., Frontasyeva, M., Godzik, B., Jeran, Z., Lazo, P., Leblond, S., Liiv, S., Magnússon, S.H., Mankovska, B., Karlsson, G.P., Piispanen, J., Poikolainen, J., Santamaria, J.M., Skudnik, M., Spiric, Z., Stafilov, T., Steinnes, E., Stihl, C., Suchara, I., Thöni, L., Todoran, R., Yurukova, L., Zechmeister, H.G., Heavy metal and nitrogen concentrations in mosses are declining across Europe whilst some “hotspots” remain in 2010. *Environmental Pollution*, 200, 93-104, doi :10.1016/j.envpol.2015.01.036, 2015.

Ilyin, I., Rozovskaya, O., Travnikov, O., Varygina, M., Aas, W., Heavy metals: Analysis of long-term trends, country-specific research and progress in mercury regional and global modelling. Moscow/Kjeller, Meteorological Synthesizing Centre - East/Chemical Coordinating Centre (EMEP Status Report 2/2015), 2015.

Klimont, Z., Hoeglund-Isaksson, L., Heyes, C., Rafaj, P., Schoepp, W., Cofala, J., Purohit, P., Borken-Kleefeld, J., Kupiainen, K., Kieseewetter, G., Winiwarter, W., Amann, M., Zhao, B., Wang, S., Bertok, I., and Sander, R.: Global scenarios of air pollutants and methane: 1990-2050, in prep., 2016a.

Klimont, Z., Kupiainen, K., Heyes, C., Purohit, P., Cofala, J., Rafaj, P., and Schoepp, W.: Global anthropogenic emissions of particulate matter, in preparation, 2016b.

Leclercq, B., Alleman, L.-Y., Perdrix, E., Riffault, V., Happillon, M., Strecker, A., Lo-Guidice, J.-M., Garçon, G., Coddeville, P., Particulate metal bioaccessibility in physiological fluids and cell culture media: Toxicological perspectives, *Environmental Research*, Vol 156, pp 148–157, doi:10.1016/j.envres.2017.03.029, 2017.

Lequy, E., Saby, N.P.A., Ilyin, I., Bourin, A., Sauvage, S., Leblond, S., Spatial analysis of trace elements in a moss bio-monitoring data over France by accounting for source, protocol and environmental parameters. *Science of The Total Environment*, 590-591, 602-610, doi: 10.1016/j.scitotenv.2017.02.240, 2017.

Maas, R., and Grennfelt, P.: Towards Cleaner Air - Scientific Assessment Report 2016, EMEP-Steering body and Working Group on Effects - Convention on Long-Range Transboundary Air Pollution 2016.

Malherbe L., Bessagnet B. : Bilan des deux premières années de mesure des PM10 ajustées en France et évaluation des outils de modélisation. Rapport LCSQA, www.lcsqa.org, 2009.

Mallet, V., Quélo, D., Sportisse, B., Ahmed de Biasi, M., Debry, É., Korsakissok, I., Wu, L., Roustan, Y., Sartelet, K., Tombette, M., and Foudhil, H.: Technical Note: The air quality modeling system Polyphemus, *Atmos. Chem. Phys.*, 7, 5479-5487, doi:10.5194/acp-7-5479-2007, 2007.

Mar, K. A., Ojha, N., Pozzer, A., and Butler, T. M.: Ozone air quality simulations with WRF-Chem (v3.5.1) over Europe: Model evaluation and chemical mechanism comparison, *Geosci. Model Dev. Discuss.*, 2016, 1-50, 10.5194/gmd-2016-131, 2016.

Menut, L., Bessagnet, B., Khvorostyanov, D., Beekmann, M., Blond, N., Colette, A., Coll, I., Curci, G., Foret, G., Hodzic, A., Mailler, S., Meleux, F., Monge, J. L., Pison, I., Siour, G., Turquety, S., Valari, M., Vautard, R., and Vivanco, M. G.: CHIMERE 2013: a model for regional atmospheric composition modelling, *Geosci. Model Dev.*, 6, 981-1028, 2013.

Mircea, M., Grigoras, G., D'Isidoro, M., Righini, G., Adani, M., Briganti, G., Ciancarella, L., Cappelletti, A., Calori, G., Cionni, I., Cremona, G., Finardi, S., Larsen, B. R., Pace, G., Perrino, C., Piersanti, A., Silibello, C., Vitali, L., and Zanini, G.: Impact of grid resolution on aerosol predictions: a case study over Italy, *Aerosol and Air Quality Research*, 1253–1267, doi: 10.4209/aaqr.2015.02.0058, 2016.

OMS, 2006. Lignes directrices OMS relatives à la qualité de l'air : particules, ozone, dioxyde d'azote et dioxyde de soufre. Mise à jour mondiale 2005. Synthèse de l'évaluation des risques.

OMS, 2013. Review of evidence on health aspects of air pollution –REVIHAAP Project. Technical Report.

Pascaud, A., Déterminants des évolutions spatio-temporelles des retombées atmosphériques acidifiantes et eutrophisantes en France et élaboration d'un modèle de projection. Thèse, École des Mines de Douai, université des Sciences et Technologies de Lille, 2013.

Pascaud, A., Sauvage, S., Wroblewski, A., Coddeville, P., Probst, A., Mansat, A., Roustant, O., Croisé, L., Nicolas, M., Mezdoor, A., 20 ans de mesures des retombées atmosphériques en France (projet SESAME), Programme PRIMEQUAL 2, Rapport final, septembre 2014, 137 p., 2014.

Pascaud, A., Sauvage, S., Coddeville, P., Nicolas, M., Croisé, L., Mezdoor, A., Probst, A., Contrasted spatial and long-term trends in precipitation chemistry and deposition fluxes at rural stations in France, *Atmospheric Environment*, 146, 28-43, doi:10.1016/j.atmosenv.2016.05.019, 2016.

Plaisance, H., Coddeville, P., Guillermo, R., and Roussel, I.: Spatial variability and source identification of rural precipitation chemistry in France, *The Science of the Total Environment*, 180, 257-270, 10.1016/0048-9697(95)04943-6, 1996.

Robertson, L., Langner, J., and Engardt, M.: An Eulerian Limited-Area Atmospheric Transport Model, *Journal of Applied Meteorology*, 38, 190-210, 1999.

Sauter, F., van der Swaluw, E., Manders-Groot, A., Wichink Kruit, R., Segers, A., and Eskes, H.: LOTOS-EUROS v1.8 Reference Guide, TNO, Utrecht, The Netherlands, 2012.

Schaap, M., Timmermans, R. M. A., Roemer, M., Boersen, G. A. C., Builtjes, P., Sauter, F., Velders, G., and Beck, J.: The LOTOS-EUROS model: description, validation and latest developments, *International Journal of Environment and Pollution*, 32, 270-290, 2008.

Shatalov V., Ilyin I., Gusev A., Rozovskaya O., Travnikov O., Heavy Metals and Persistent Organic Pollutants: Model Assessment of Pollution and Research Activities, EMEP/MSC-E Technical Report 4/2014, 76p., 2014.

Simpson, D., Benedictow, A., Berge, H., Bergstrom, R., Emberson, L. D., Fagerli, H., Flechard, C. R., Hayman, G. D., Gauss, M., Jonson, J. E., Jenkin, M. E., Nyiri, A., Richter, C., Semeena, V. S., Tsyro, S., Tuovinen, J. P., Valdebenito, A., and Wind, P.: The EMEP MSC-W chemical transport model - technical description, *Atmos. Chem. Phys.*, 12, 7825-7865, 2012.

Solberg., S., Colette, A., and Guerreiro, C.: Discounting the impact of meteorology to the ozone concentration trends ETC/ACM, Bilthoven, 2015.

Stegehuis, A. I., Vautard, R., Ciais, P., Teuling, A. J., Miralles, D. G., and Wild, M.: An observation-constrained multi-physics WRF ensemble for simulating European mega heat waves, *Geosci. Model Dev.*, 8, 2285-2298, 10.5194/gmd-8-2285-2015, 2015.

Vet, R., Artz, R.S., Carou, S., A global assessment of precipitation chemistry and deposition of sulfur, nitrogen, sea salt, base cations, organic acids, acidity and pH, and phosphorus, *Atmospheric Environment*, 93, 1-2, doi: 10.1016/j.atmosenv.2013.11.013, 2014.

Waked, A., Locoge, N., Sauvage, S., Mesure des COV précurseurs d'ozone, rapport d'étude LCSQA Mines Douai, convention 2200876095, 71p, 2014.

Waked, A., Sauvage, S., Borbon, A., Gauduin, J., Pallares, C., Vagnot, M.P., Leonardis, T., Locoge, N., Multi-year levels and trends of non-methane hydrocarbon concentrations observed in ambient air in France, *Atmospheric Environment*, 141, 263-275, doi: 10.1016/j.atmosenv.2016.06.059, 2016.

8.1 Polluants

Abréviations	Libellés
As	Arsenic
B[a]P	Benzo[a]pyrène
B[a]A	Benzo[a]anthracène
B[b]F	Benzo[b]fluoranthène
B[ghi]P	Benzo[g,h,i]pérylène
Cd	Cadmium
COV	Composé organique volatil
COVO	Composé organique volatil oxygéné
COVB	Composé organique volatil biogénique
DB[ah]A	Dibenzo[a,h]anthracène
IP	Indéno[1,2,3-cd]pyrène
HAP	Hydrocarbure aromatique polycyclique
HCnM	HydroCarbure non Méthanique
Ni	Nickel
Pb	Plomb
PM₁₀	Particules en suspension (<i>particulate matter</i>) de diamètre médian inférieur à 10 µm

8.2 Sigles

AASQA	Association Agréée de Surveillance de la Qualité de l’Air
AOT40	Accumulated Ozone over Threshold of 40 ppb
CATAENAT	Charges acides totales d’origine atmosphérique sur les écosystèmes naturels
CEPMET	Centre européen pour les prévisions météorologiques à moyen terme
CLRTAP	Convention on Long-range Transboundary Air Pollution
ECLIPSE	Evaluating the CLimate and Air Quality ImPacts of Short-livEd Pollutants
EMEP	Co-operative programme for monitoring and evaluation of the long-range transmission of air pollutants in Europe
ETC/ACM	European Topic Centre on Air pollution and Climate change Mitigation
ICP Forests	International Cooperative Programme on Assessment and Monitoring of Air Pollution Effects on Forests
IIASA	International Institute for Applied Systems Analysis
LATMOS	Laboratoire Atmosphères, Milieux, Observations Spatiales
LCSE	Laboratoire des sciences du climat et de l'environnement
MERA	Observatoire national de Mesure et d'Evaluation en zone Rurale de la pollution Atmosphérique à longue distance
MTES	Ministère de la Transition Ecologique et Solidaire
PM	Particulate Matter
RENECOFOR	Réseau National de suivi à long terme des ECOsystèmes FORestiers
SOMO35	Sum of Ozone Means over 35 ppb
TFMM	Task Force on Measurement and Modelling
ZAS	Zone Administrative de Surveillance

9 LISTE DES ANNEXES

Annexe	Titre
Annexe 1	Correction des données de PM₁₀ antérieures à 2007 : étude du ratio PM₁₀/PM₁₀ non volatiles
Annexe 2	Tendances absolues (en µg/m³/an) et relatives (en %/an) par ZAS pour les polluants mesurés par des méthodes automatiques
Annexe 3	Stations de mesures de l'observatoire MERA et du sous-réseau CATAENAT
Annexe 4	Tendances absolues et relatives sur les stations de mesures manuelles

ANNEXES

Annexe 1

Correction des données de PM₁₀ antérieures à 2007 : étude du ratio PM₁₀/PM₁₀ non volatiles

Les données disponibles pour cette analyse sont issues des stations de surveillance des PM₁₀ mises en place à partir de 2007 pour assurer l'équivalence avec la méthode de référence (stations dites « de référence », cf. Bessagnet et al., 2008). Elles couvrent les années 2007 à 2012. Il s'agit :

- **des concentrations de PM₁₀** mesurées par TEOM-FDMS ou jauge Beta-RST (méthodes équivalentes à la méthode de référence) ;
- **des concentrations de PM₁₀ non volatiles** mesurées sur les mêmes sites par TEOM 50 ou jauge Beta.

Les stations sélectionnées sont celles pour lesquelles le pourcentage annuel de données valides est supérieur ou égal à 75%, aussi bien pour les PM₁₀ que les PM₁₀ non volatiles.

Pour chacune d'elles le rapport entre les concentrations moyennes annuelles de PM₁₀ et de PM₁₀ non volatiles a été calculé.

Les figures suivantes représentent, par année et toutes années confondues, la distribution de ce ratio.

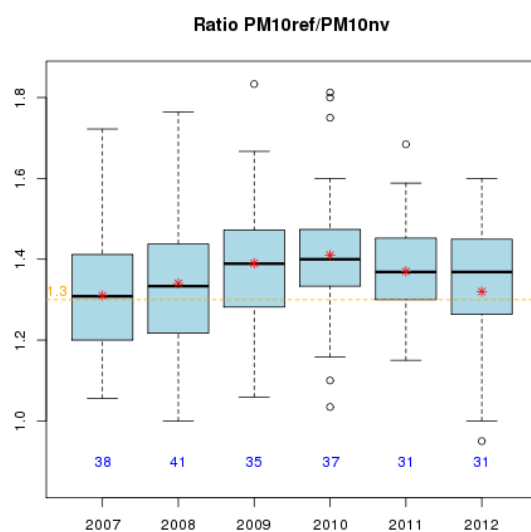


Figure 51 : Distribution par année, sous forme de boîte à moustaches, des ratios PM₁₀/PM₁₀ non volatiles sur les sites de référence. Le nombre de sites pris en compte est indiqué sous chaque boîte. La moyenne est représentée en rouge. La valeur de 1,3, matérialisée pour information par un trait pointillé, est une valeur moyenne couramment mentionnée pour ce ratio.

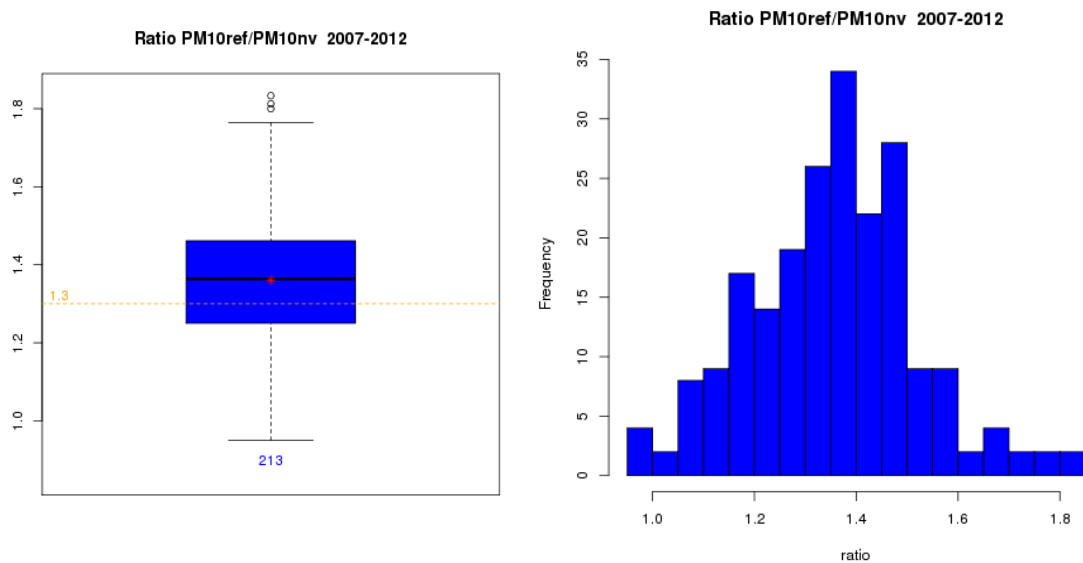


Figure 52 : Distribution toutes années confondues, sous forme de boîte à moustaches et d’histogramme, des ratios PM_{10}/PM_{10} non volatiles sur les sites de référence. La moyenne est représentée en rouge.

Tableau 15 : Statistiques sur le ratio PM_{10}/PM_{10} non volatiles calculé pour chaque année sur les sites de référence

Année	Moyenne	Ecart-type	Médiane	Effectif
2007	1.31	0.15	1.31	38
2008	1.34	0.17	1.33	41
2009	1.39	0.17	1.39	35
2010	1.41	0.17	1.4	37
2011	1.37	0.13	1.37	31
2012	1.32	0.18	1.37	31
2007-2012	1.36	0.16	1.36	213

Annexe 2

Tendances par ZAS pour les polluants mesurés par des méthodes automatiques

Tableau 16 : Tendances absolues (en $\mu\text{g}/\text{m}^3/\text{an}$) et relatives (en %) de la moyenne annuelle de NO_2 de fond agrégée par ZAS

Zone	Polluant	Période	Nombre d'années	Pente ($\mu\text{g}/\text{m}^3/\text{an}$)	Pente (%/an)	Pente (%/période)	Significativité
FR01A01	NO_2	2000-2010	11	-0.64	-1.88	-21	*
FR01N20	NO_2	2000-2010	11	-0.52	-2.04	-22	*
FR02N30	NO_2	2000-2010	11	-0.34	-1.06	-12	ns
FR03A01	NO_2	2000-2010	11	-0.54	-1.80	-20	*
FR03A02	NO_2	2000-2010	11	-0.26	-0.77	-8.5	ns
FR03A03	NO_2	2000-2010	11	-0.27	-0.81	-8.9	ns
FR03N10	NO_2	2000-2010	11	-0.30	-1.08	-12	+
FR03N20	NO_2	2000-2010	11	-0.52	-1.95	-21	ns
FR04A01	NO_2	2000-2010	11	-0.88	-2.09	-23	**
FR04N20	NO_2	2000-2010	11	-0.59	-2.03	-22	*
FR05N30	NO_2	2000-2010	11	-0.31	-1.11	-12	ns
FR06A01	NO_2	2000-2010	11	-0.45	-1.45	-16	+
FR07A01	NO_2	2000-2010	11	-0.13	-0.52	-5.7	ns
FR07N10	NO_2	2000-2010	11	-0.33	-1.42	-16	**
FR07N20	NO_2	2000-2010	11	-0.30	-1.33	-15	**
FR08A01	NO_2	2000-2010	11	-0.34	-1.29	-14	+
FR08N10	NO_2	2000-2010	11	-0.48	-1.69	-19	*
FR08N20	NO_2	2000-2010	11	-0.31	-1.37	-15	**
FR09N10	NO_2	2000-2010	11	-0.34	-1.68	-18	*
FR09N20	NO_2	2000-2010	11	-0.34	-1.62	-18	*
FR11A01	NO_2	2000-2010	11	-0.53	-1.48	-16	*
FR11N10	NO_2	2000-2010	11	-0.39	-1.29	-14	ns
FR11N20	NO_2	2000-2010	11	-0.40	-1.47	-16	+
FR12A01	NO_2	2000-2010	11	-0.58	-2.05	-23	***
FR12N10	NO_2	2000-2010	11	-0.23	-1.05	-12	**
FR12N20	NO_2	2000-2010	11	-0.29	-1.41	-15	**
FR14N10	NO_2	2000-2010	11	-0.30	-1.25	-14	**
FR14N20	NO_2	2000-2010	11	-0.41	-1.73	-19	*
FR15A01	NO_2	2000-2010	11	-0.72	-2.35	-26	**
FR16A01	NO_2	2000-2010	11	-0.65	-1.91	-21	**
FR16A02	NO_2	2000-2010	11	-0.60	-1.76	-19	**
FR16N10	NO_2	2000-2010	11	-0.69	-2.14	-24	*
FR16N20	NO_2	2000-2010	11	-0.57	-1.96	-22	*

Zone	Polluant	Période	Nombre d'années	Pente ($\mu\text{g}/\text{m}^3/\text{an}$)	Pente (%/an)	Pente (%/période)	Significativité
FR17N10	NO ₂	2000-2010	11	-0.49	-1.76	-19	**
FR17N20	NO ₂	2000-2010	11	-0.42	-1.67	-18	**
FR18N10	NO ₂	2000-2010	11	-0.31	-1.21	-13	ns
FR18N20	NO ₂	2000-2010	11	-0.42	-1.64	-18	+
FR19A01	NO ₂	2000-2010	11	-0.34	-1.53	-17	ns
FR19N10	NO ₂	2000-2010	11	-0.25	-1.27	-14	ns
FR19N20	NO ₂	2000-2010	11	-0.34	-1.73	-19	+
FR20A01	NO ₂	2000-2010	11	-0.75	-2.22	-24	**
FR20N10	NO ₂	2000-2010	11	-0.60	-2.05	-23	**
FR20N20	NO ₂	2000-2010	11	-0.67	-2.50	-27	*
FR21N10	NO ₂	2000-2010	11	-0.10	-0.43	-4.7	ns
FR21N20	NO ₂	2000-2010	11	-0.31	-1.44	-16	+
FR23A01	NO ₂	2000-2010	11	-0.47	-1.95	-21	*
FR23N10	NO ₂	2000-2010	11	-0.34	-1.42	-16	+
FR23N20	NO ₂	2000-2010	11	-0.37	-1.69	-19	*
FR24A01	NO ₂	2000-2010	11	-0.53	-1.60	-18	ns
FR25A01	NO ₂	2000-2010	11	-0.35	-1.22	-13	ns
FR25N10	NO ₂	2000-2010	11	-0.30	-1.28	-14	*
FR25N20	NO ₂	2000-2010	11	-0.29	-1.20	-13	ns
FR26N10	NO ₂	2000-2010	11	-0.40	-1.41	-16	ns
FR26N20	NO ₂	2000-2010	11	-0.37	-1.52	-17	**
FR29A01	NO ₂	2000-2010	11	-0.37	-1.32	-15	*
FR30A02	NO ₂	2000-2010	11	-0.41	-1.49	-16	**
FR31A01	NO ₂	2000-2010	11	-0.54	-2.07	-23	**
FR31N10	NO ₂	2000-2010	11	-0.29	-1.43	-16	*
FR31N20	NO ₂	2000-2010	11	-0.33	-1.60	-18	**
FR34A01	NO ₂	2000-2010	11	-0.36	-1.44	-16	+
FR34A02	NO ₂	2000-2010	11	-0.40	-1.68	-18	**
FR34N10	NO ₂	2000-2010	11	-0.37	-1.62	-18	*
FR34N20	NO ₂	2000-2010	11	-0.40	-1.77	-19	*
FR35N10	NO ₂	2000-2010	11	-0.20	-0.94	-10	*
FR35N20	NO ₂	2000-2010	11	-0.29	-1.42	-16	*
FR41N10	NO ₂	2000-2010	11	-0.79	-2.83	-31	+
FR41N20	NO ₂	2000-2010	11	-0.71	-2.61	-29	*

Tableau 17 : Tendances absolues (en $\mu\text{g}/\text{m}^3/\text{an}$) et relatives (en $\%/ \text{an}$ et $\%/ \text{période}$) de l'indicateur 4MDA8 (O_3 de fond) agrégé par ZAS

Zone	Polluant	Période	Nombre d'années	Pente ($\mu\text{g}/\text{m}^3/\text{an}$)	Pente ($\%/ \text{an}$)	Pente ($\%/ \text{période}$)	Significativité
FR01A01	O_3	2000-2010	11	-0.17	-0.10	-1.1	ns
FR01N20	O_3	2000-2010	11	-0.45	-0.28	-3.1	ns
FR02N30	O_3	2000-2010	11	-1.51	-0.85	-9.3	ns
FR03A01	O_3	2000-2010	11	-0.04	-0.03	-0.3	ns
FR03A02	O_3	2000-2010	11	-1.07	-0.60	-6.6	ns
FR03A03	O_3	2000-2010	11	-0.91	-0.52	-5.8	ns
FR03N10	O_3	2000-2010	11	-1.35	-0.78	-8.6	ns
FR03N20	O_3	2000-2010	11	-0.32	-0.20	-2.1	ns
FR04A01	O_3	2000-2010	11	-0.76	-0.48	-5.3	ns
FR04N20	O_3	2000-2010	11	-0.57	-0.36	-3.9	ns
FR05N30	O_3	2000-2010	11	-0.85	-0.58	-6.4	ns
FR06A01	O_3	2000-2010	11	-0.86	-0.55	-6.1	ns
FR07A01	O_3	2000-2010	11	-0.24	-0.15	-1.7	ns
FR07N10	O_3	2000-2010	11	-0.20	-0.13	-1.4	ns
FR07N20	O_3	2000-2010	11	-0.58	-0.39	-4.2	ns
FR08A01	O_3	2000-2010	11	-1.22	-0.73	-8.0	ns
FR08N10	O_3	2000-2010	11	-0.68	-0.40	-4.4	ns
FR08N20	O_3	2000-2010	11	-0.74	-0.46	-5.1	ns
FR09N10	O_3	2000-2010	11	-0.94	-0.65	-7.2	ns
FR09N20	O_3	2000-2010	11	-0.60	-0.42	-4.6	ns
FR11A01	O_3	2000-2010	11	-0.82	-0.53	-5.8	ns
FR11N10	O_3	2000-2010	11	-1.39	-0.92	-10.2	ns
FR11N20	O_3	2000-2010	11	-0.69	-0.45	-5.0	ns
FR12A01	O_3	2000-2010	11	-0.86	-0.55	-6.1	ns
FR12N10	O_3	2000-2010	11	-0.79	-0.50	-5.5	ns
FR12N20	O_3	2000-2010	11	-0.43	-0.28	-3.1	ns
FR14N10	O_3	2000-2010	11	-0.44	-0.29	-3.2	ns
FR14N20	O_3	2000-2010	11	-0.25	-0.16	-1.8	ns
FR15A01	O_3	2000-2010	11	-1.32	-0.80	-8.8	ns
FR16A01	O_3	2000-2010	11	-0.26	-0.15	-1.7	ns
FR16A02	O_3	2000-2010	11	-0.70	-0.41	-4.5	ns
FR16N10	O_3	2000-2010	11	-1.18	-0.68	-7.5	ns
FR16N20	O_3	2000-2010	11	-1.01	-0.59	-6.5	ns
FR17N10	O_3	2000-2010	11	0.12	0.07	0.8	ns
FR17N20	O_3	2000-2010	11	-0.55	-0.35	-3.8	ns
FR18N10	O_3	2000-2010	11	-0.52	-0.35	-3.9	ns
FR18N20	O_3	2000-2010	11	-0.44	-0.29	-3.2	ns

Zone	Polluant	Période	Nombre d'années	Pente ($\mu\text{g}/\text{m}^3/\text{an}$)	Pente (%/an)	Pente (%/période)	Significativité
FR19A01	O ₃	2000-2010	11	-0.94	-0.64	-7.1	ns
FR19N10	O ₃	2000-2010	11	-1.02	-0.72	-7.9	+
FR19N20	O ₃	2000-2010	11	-0.90	-0.63	-6.9	ns
FR20A01	O ₃	2000-2010	11	-0.43	-0.26	-2.8	ns
FR20N10	O ₃	2000-2010	11	0.13	0.09	0.9	ns
FR20N20	O ₃	2000-2010	11	-0.20	-0.12	-1.4	ns
FR21N10	O ₃	2000-2010	11	-1.37	-0.98	-10.8	ns
FR21N20	O ₃	2000-2010	11	-0.87	-0.62	-6.9	ns
FR23A01	O ₃	2000-2010	11	-1.54	-1.06	-11.6	ns
FR23N10	O ₃	2000-2010	11	-0.63	-0.43	-4.8	ns
FR23N20	O ₃	2000-2010	11	-1.11	-0.75	-8.3	ns
FR24A01	O ₃	2000-2010	11	-1.15	-0.64	-7.1	ns
FR25A01	O ₃	2000-2010	11	-0.55	-0.38	-4.2	ns
FR25N10	O ₃	2000-2010	11	-1.05	-0.67	-7.4	ns
FR25N20	O ₃	2000-2010	11	-1.05	-0.69	-7.6	ns
FR26N10	O ₃	2000-2010	11	-1.22	-0.74	-8.1	ns
FR26N20	O ₃	2000-2010	11	-0.37	-0.23	-2.5	ns
FR29A01	O ₃	2000-2010	11	-0.96	-0.59	-6.5	ns
FR30A02	O ₃	2000-2010	11	-0.17	-0.11	-1.3	ns
FR31A01	O ₃	2000-2010	11	-0.55	-0.37	-4.0	ns
FR31N10	O ₃	2000-2010	11	-0.32	-0.21	-2.4	ns
FR31N20	O ₃	2000-2010	11	-0.53	-0.36	-4.0	ns
FR34A01	O ₃	2000-2010	11	-0.76	-0.48	-5.3	ns
FR34A02	O ₃	2000-2010	11	-0.58	-0.37	-4.1	ns
FR34N10	O ₃	2000-2010	11	-0.70	-0.46	-5.0	ns
FR34N20	O ₃	2000-2010	11	-0.84	-0.53	-5.9	ns
FR35N10	O ₃	2000-2010	11	0.16	0.11	1.2	ns
FR35N20	O ₃	2000-2010	11	-0.26	-0.18	-2.0	ns
FR41N10	O ₃	2000-2010	11	-0.88	-0.54	-5.9	ns
FR41N20	O ₃	2000-2010	11	-0.59	-0.36	-4.0	ns

Tableau 18 : Tendances absolues (en $\mu\text{g}/\text{m}^3/\text{an}$) et relatives (en $\%/ \text{an}$ et $\%/ \text{période}$) de la moyenne annuelle d' O_3 de fond agrégée par ZAS

Zone	Polluant	Période	Nombre d'années	Pente ($\mu\text{g}/\text{m}^3/\text{an}$)	Pente ($\%/ \text{an}$)	Pente ($\%/ \text{période}$)	Significativité
FR01A01	O_3	2000-2010	11	0.02	0.04	0.4	ns
FR01N20	O_3	2000-2010	11	-0.05	-0.08	-0.9	ns
FR02N30	O_3	2000-2010	11	0.15	0.24	2.6	ns
FR03A01	O_3	2000-2010	11	0.45	0.76	8.4	*
FR03A02	O_3	2000-2010	11	0.00	-0.01	-0.1	ns
FR03A03	O_3	2000-2010	11	0.06	0.09	1.0	ns
FR03N10	O_3	2000-2010	11	0.42	0.67	7.3	ns
FR03N20	O_3	2000-2010	11	0.05	0.07	0.7	ns
FR04A01	O_3	2000-2010	11	0.33	0.73	8.1	ns
FR04N20	O_3	2000-2010	11	0.28	0.56	6.2	ns
FR05N30	O_3	2000-2010	11	0.45	0.89	9.8	*
FR06A01	O_3	2000-2010	11	0.15	0.32	3.6	ns
FR07A01	O_3	2000-2010	11	0.23	0.41	4.5	ns
FR07N10	O_3	2000-2010	11	0.15	0.28	3.1	ns
FR07N20	O_3	2000-2010	11	0.43	0.73	8.0	ns
FR08A01	O_3	2000-2010	11	0.47	0.75	8.3	ns
FR08N10	O_3	2000-2010	11	0.25	0.41	4.5	ns
FR08N20	O_3	2000-2010	11	0.50	0.77	8.5	ns
FR09N10	O_3	2000-2010	11	0.12	0.20	2.2	ns
FR09N20	O_3	2000-2010	11	0.25	0.47	5.2	ns
FR11A01	O_3	2000-2010	11	0.15	0.35	3.8	ns
FR11N10	O_3	2000-2010	11	0.06	0.14	1.5	ns
FR11N20	O_3	2000-2010	11	0.13	0.26	2.9	ns
FR12A01	O_3	2000-2010	11	0.67	1.27	14.0	+
FR12N10	O_3	2000-2010	11	0.23	0.38	4.2	ns
FR12N20	O_3	2000-2010	11	0.42	0.72	7.9	ns
FR14N10	O_3	2000-2010	11	0.07	0.13	1.5	ns
FR14N20	O_3	2000-2010	11	0.04	0.07	0.8	ns
FR15A01	O_3	2000-2010	11	0.02	0.03	0.3	ns
FR16A01	O_3	2000-2010	11	-0.09	-0.17	-1.9	ns
FR16A02	O_3	2000-2010	11	0.12	0.26	2.8	ns
FR16N10	O_3	2000-2010	11	0.09	0.19	2.1	ns
FR16N20	O_3	2000-2010	11	-0.07	-0.13	-1.4	ns
FR17N10	O_3	2000-2010	11	-0.02	-0.04	-0.5	ns
FR17N20	O_3	2000-2010	11	0.14	0.25	2.7	ns
FR18N10	O_3	2000-2010	11	0.16	0.33	3.6	ns
FR18N20	O_3	2000-2010	11	0.25	0.51	5.6	*
FR19A01	O_3	2000-2010	11	0.29	0.56	6.1	ns

Zone	Polluant	Période	Nombre d'années	Pente ($\mu\text{g}/\text{m}^3/\text{an}$)	Pente (%/an)	Pente (%/période)	Significativité
FR19N10	O ₃	2000-2010	11	0.12	0.20	2.2	ns
FR19N20	O ₃	2000-2010	11	0.24	0.43	4.7	ns
FR20A01	O ₃	2000-2010	11	0.34	0.70	7.7	ns
FR20N10	O ₃	2000-2010	11	-0.13	-0.24	-2.6	ns
FR20N20	O ₃	2000-2010	11	0.36	0.60	6.6	ns
FR21N10	O ₃	2000-2010	11	0.70	1.42	15.6	ns
FR21N20	O ₃	2000-2010	11	0.41	0.76	8.3	ns
FR23A01	O ₃	2000-2010	11	0.44	0.79	8.7	ns
FR23N10	O ₃	2000-2010	11	0.68	1.29	14.1	*
FR23N20	O ₃	2000-2010	11	0.50	0.91	10.0	+
FR24A01	O ₃	2000-2010	11	0.76	1.23	13.5	ns
FR25A01	O ₃	2000-2010	11	0.45	0.92	10.1	*
FR25N10	O ₃	2000-2010	11	0.14	0.26	2.9	ns
FR25N20	O ₃	2000-2010	11	0.37	0.71	7.8	*
FR26N10	O ₃	2000-2010	11	0.36	0.72	7.9	ns
FR26N20	O ₃	2000-2010	11	0.09	0.16	1.7	ns
FR29A01	O ₃	2000-2010	11	0.19	0.34	3.8	ns
FR30A02	O ₃	2000-2010	11	0.00	0.01	0.1	ns
FR31A01	O ₃	2000-2010	11	0.62	1.17	12.9	*
FR31N10	O ₃	2000-2010	11	0.49	0.94	10.3	ns
FR31N20	O ₃	2000-2010	11	0.19	0.34	3.7	ns
FR34A01	O ₃	2000-2010	11	0.26	0.50	5.5	ns
FR34A02	O ₃	2000-2010	11	0.31	0.61	6.7	ns
FR34N10	O ₃	2000-2010	11	0.18	0.34	3.8	ns
FR34N20	O ₃	2000-2010	11	0.25	0.46	5.1	ns
FR35N10	O ₃	2000-2010	11	0.21	0.38	4.2	ns
FR35N20	O ₃	2000-2010	11	0.33	0.57	6.2	ns
FR41N10	O ₃	2000-2010	11	-0.20	-0.28	-3.0	ns
FR41N20	O ₃	2000-2010	11	0.22	0.30	3.3	ns

Tableau 19 : Tendances absolues (en $\mu\text{g}/\text{m}^3/\text{an}$) et relatives (en %) de la moyenne annuelle de PM_{10} de fond agrégée par ZAS

Zone	Polluant	Période	Nombre d'années	Pente ($\mu\text{g}/\text{m}^3/\text{an}$)	Pente (%/an)	Pente (%/période)	Significativité
FR01A01	PM_{10}	2000-2010	11	-0.02	-0.07	-0.81	ns
FR01N20	PM_{10}	2000-2010	11	-0.41	-1.42	-16	+
FR02N30	PM_{10}	2000-2010	11	-0.39	-0.98	-11	ns
FR03A01	PM_{10}	2000-2010	11	-0.44	-1.23	-14	ns
FR03A02	PM_{10}	2000-2010	11	-0.84	-2.07	-23	+
FR03A03	PM_{10}	2000-2010	11	-1.08	-2.63	-29	*
FR03N10	PM_{10}	2000-2010	11	-0.31	-0.84	-9.3	ns
FR03N20	PM_{10}	2000-2010	11	-0.84	-2.31	-25	*
FR04A01	PM_{10}	2000-2010	11	-0.31	-0.99	-11	ns
FR04N20	PM_{10}	2000-2010	11	-0.39	-1.32	-15	*
FR05N30	PM_{10}	2000-2010	11	-0.33	-1.12	-12	*
FR06A01	PM_{10}	2000-2010	11	0.04	0.12	1.4	ns
FR07A01	PM_{10}	2000-2010	11	-0.68	-2.41	-26	*
FR07N10	PM_{10}	2000-2010	11	-0.49	-1.76	-19	*
FR07N20	PM_{10}	2000-2010	11	-0.58	-2.01	-22	**
FR08A01	PM_{10}	2000-2010	11	-0.97	-2.83	-31	**
FR08N10	PM_{10}	2000-2010	11	-0.85	-2.39	-26	*
FR08N20	PM_{10}	2000-2010	11	-0.76	-2.42	-27	**
FR09N10	PM_{10}	2000-2010	11	-0.08	-0.29	-3.17	ns
FR09N20	PM_{10}	2000-2010	11	-0.28	-1.04	-11	ns
FR11A01	PM_{10}	2000-2010	11	0.31	1.02	11	ns
FR11N10	PM_{10}	2000-2010	11	0.28	0.95	10	ns
FR11N20	PM_{10}	2000-2010	11	0.11	0.39	4.3	ns
FR12A01	PM_{10}	2000-2010	11	-0.75	-2.33	-26	**
FR12N10	PM_{10}	2000-2010	11	-0.89	-2.77	-30	**
FR12N20	PM_{10}	2000-2010	11	-0.75	-2.43	-27	**
FR14N10	PM_{10}	2000-2010	11	-0.11	-0.42	-4.57	ns
FR14N20	PM_{10}	2000-2010	11	-0.27	-0.95	-10	*
FR15A01	PM_{10}	2000-2010	11	-0.46	-1.40	-15	***
FR16A01	PM_{10}	2000-2010	11	-0.36	-1.11	-12	ns
FR16A02	PM_{10}	2000-2010	11	-0.53	-1.63	-18	+
FR16N10	PM_{10}	2000-2010	11	-0.39	-1.21	-13	*
FR16N20	PM_{10}	2000-2010	11	-0.46	-1.47	-16	*
FR17N10	PM_{10}	2000-2010	11	-0.37	-1.20	-13	+
FR17N20	PM_{10}	2000-2010	11	-0.41	-1.36	-15	+
FR18N10	PM_{10}	2000-2010	11	0.19	0.69	7.6	ns
FR18N20	PM_{10}	2000-2010	11	-0.07	-0.25	-2.7	ns
FR19A01	PM_{10}	2000-2010	11	-0.37	-1.39	-15	*

Zone	Polluant	Période	Nombre d'années	Pente ($\mu\text{g}/\text{m}^3/\text{an}$)	Pente (%/an)	Pente (%/période)	Significativité
FR19N10	PM ₁₀	2000-2010	11	0.01	0.06	0.62	ns
FR19N20	PM ₁₀	2000-2010	11	-0.19	-0.74	-8.1	ns
FR20A01	PM ₁₀	2000-2010	11	-0.32	-1.00	-11	+
FR20N10	PM ₁₀	2000-2010	11	-0.49	-1.53	-17	*
FR20N20	PM ₁₀	2000-2010	11	-0.65	-2.05	-23	**
FR21N10	PM ₁₀	2000-2010	11	-0.56	-1.98	-22	*
FR21N20	PM ₁₀	2000-2010	11	-0.42	-1.53	-17	*
FR23A01	PM ₁₀	2000-2010	11	-0.24	-0.89	-10	*
FR23N10	PM ₁₀	2000-2010	11	-0.46	-1.66	-18	*
FR23N20	PM ₁₀	2000-2010	11	-0.31	-1.14	-13	*
FR24A01	PM ₁₀	2000-2010	11	-0.43	-1.13	-12	ns
FR25A01	PM ₁₀	2000-2010	11	-0.24	-0.81	-8.9	ns
FR25N10	PM ₁₀	2000-2010	11	-0.30	-1.06	-12	+
FR25N20	PM ₁₀	2000-2010	11	-0.28	-0.99	-11	+
FR26N10	PM ₁₀	2000-2010	11	-0.30	-1.09	-12	ns
FR26N20	PM ₁₀	2000-2010	11	-0.46	-1.61	-18	*
FR29A01	PM ₁₀	2000-2010	11	-0.23	-0.81	-8.9	ns
FR30A02	PM ₁₀	2000-2010	11	-0.49	-1.64	-18	+
FR31A01	PM ₁₀	2000-2010	11	-0.31	-1.10	-12	ns
FR31N10	PM ₁₀	2000-2010	11	-0.79	-2.54	-28	*
FR31N20	PM ₁₀	2000-2010	11	-0.47	-1.65	-18	*
FR34A01	PM ₁₀	2000-2010	11	-0.34	-1.19	-13	ns
FR34A02	PM ₁₀	2000-2010	11	-0.18	-0.67	-7.3	ns
FR34N10	PM ₁₀	2000-2010	11	-0.31	-1.16	-13	*
FR34N20	PM ₁₀	2000-2010	11	-0.34	-1.23	-14	+
FR35N10	PM ₁₀	2000-2010	11	-0.50	-1.90	-21	**
FR35N20	PM ₁₀	2000-2010	11	-0.52	-1.95	-21	**
FR41N10	PM ₁₀	2000-2010	11	-0.86	-2.23	-25	ns
FR41N20	PM ₁₀	2000-2010	11	-1.03	-2.59	-28	ns

Annexe 3

Stations de mesures de l'observatoire MERA et du sous-réseau CATAENAT

Tableau 20: Stations retenues pour les concentrations en ions inorganiques majeurs et pH dans les retombées atmosphériques de l'observatoire MERA

Stations	AASQA / Partenaire	Code GEOd'air	Période
Foret Brotonne	AIR NORMAND	FR05053	1993-2007
Le Casset	AIR PACA	FR15031	1993-2015
La Cruzille	COGEMA		1993-2003
Donon (Vosges Moyennes 2)	ATMO GRAND EST	FR16302	1993-2015
Iraty	ATMO NOUVELLE-AQUITAINE	FR31027	1993-2008
La Coulonche MERA	AIR NORMAND	FR21050	2008-2015
La Hague	COGEMA		1993-2003
La Tardière	AIR PAYS DE LA LOIRE	FR23124	2002-2015
Montandon Baresans	ATMO FRANCHE-COMTÉ	FR82030	1998-2015
Le Montfranc (La Nouaille - MERA)	ATMO NOUVELLE-AQUITAINE	FR35012	2003-2015
Morvan	ATMOSF'AIR BOURGOGNE	FR26012	1993-2015
Peyrusse-Vieille	ATMO OCCITANIE	FR12020	1995-2015
Revin	ATMO GRAND EST	FR14008	1993-2015

Tableau 21: Stations retenues pour les concentrations en ions inorganiques majeurs et pH dans les retombées atmosphériques du sous-réseau CATAENAT

Station	Période
CHP 40	1993-2015
CHP 59	1993-2015
CHS 35	1993-2015
CHS 41	1993-2015
CPS 77	1993-2015
DOU 71	1993-2015
EPC 08	1993-2015
EPC 63	1993-2015
EPC 74	1993-2015
EPC 87	1993-2015
HET 30	1993-2015
HET 54a	1993-2015
HET 64	1993-2015
PL 20	1993-2015
PM 17	1993-2015
PM 40c	1993-2015
PM 72	1993-2015
PM 85	1993-2015
PS 44	1993-2015
PS 67a	1993-2015
PS 76	1993-2015
SP 05	1993-2015
SP 11	1993-2015
SP 25	1993-2015
SP 38	1993-2015
SP 57	1993-2015
SP 68	1993-2015

Annexe 4

Tendances absolues et relatives sur les stations de mesures manuelles

Tableau 22 : Tendances absolues (en $\mu\text{g}/\text{m}^3/\text{an}$) et relatives (en $\%/ \text{an}$ et en $\%/ \text{période}$) des HAP mesurés dans les PM_{10}

Station	Polluants	Période	Nombre d'années	Pente ($\mu\text{g}/\text{m}^3/\text{an}$)	Pente ($\%/ \text{an}$)	Pente ($\%/ \text{période}$)	Significativité
GEN	B[a]P	2002-2011	10	0.002	0.46	5	ns
GEN	B[a]A	2002-2011	10	-0.018	-4.62	-46	+
GEN	B[b]F	2002-2011	10	-0.02	-3.44	-34	ns
GEN	B[j]F	2005-2010	6	-0.03	-5.73	-34	ns
GEN	B[k]F	2002-2011	10	-0.007	-2.97	-30	ns
GEN	DB[ah]A	2002-2011	10	-0.003	-5.62	-56	ns
GEN	IP	2002-2011	10	-0.02	-4.23	-42	+
GEN	B[ghi]P	2002-2010	9	-0.04	-5.92	-53	*
LIL	B[a]P	2002-2009	8	-0.054	-8.91	-71	**
LIL	B[b]F	2002-2009	8	-0.048	-5.65	-45	**
LIL	B[a]A	2002-2009	8	-0.036	-6.9	-55	*
LIL	DB[ah]A	2002-2009	8	-0.003	-3.56	-28	ns
LIL	B[k]F	2002-2009	8	-0.023	-5.86	-47	*
LIL	B[ghi]P	2002-2009	8	-0.071	-10.26	-82	**
LIL	IP	2002-2009	8	-0.037	-7.45	-60	**
MAR	B[a]P	2002-2012	11	-0.051	-7.55	-83	***
MAR	B[b]F	2002-2012	11	-0.07	-6.84	-75	***
MAR	B[a]A	2002-2012	11	-0.037	-6.05	-67	*
MAR	DB[ah]A	2002-2012	11	-0.001	-1.49	-16	ns
MAR	B[k]F	2002-2012	11	-0.03	-6.19	-68	***
MAR	B[ghi]P	2002-2012	10	-0.056	-7.73	-77	**
MAR	IP	2002-2012	11	-0.043	-7.3	-80	**
NEU	B[a]P	2002-2011	9	0.002	0.79	7	ns
NEU	B[a]A	2002-2011	9	-0.008	-3.34	-30	ns
NEU	B[b]F	2002-2011	9	-0.008	-2.17	-20	ns
NEU	B[k]F	2002-2011	9	-0.001	-0.95	-9	ns
NEU	B[j]F	2005-2011	7	-0.015	-4.5	-32	ns
NEU	DB[ah]A	2002-2011	9	-0.001	-2.74	-25	ns
NEU	IP	2002-2011	9	-0.01	-3.22	-29	*
NEU	B[ghi]P	2002-2010	8	-0.025	-4.83	-39	ns
PAR	B[a]P	2002-2009	8	0.004	1.9	15	ns
PAR	B[a]A	2002-2009	8	-0.012	-4.92	-39	*
PAR	B[b]F	2002-2009	8	-0.01	-2.52	-20	ns
PAR	B[j]F	2004-2009	5	0.004	1.95	10	ns
PAR	B[k]F	2002-2009	8	-0.003	-1.96	-16	ns
PAR	DB[ah]A	2002-2009	8	-0.002	-7.28	-58	*
PAR	IP	2002-2009	8	-0.015	-4.56	-36	ns
PAR	B[ghi]P	2002-2009	8	-0.024	-4.96	-40	ns
VEN	B[b]F	2005-2011	7	0.383	5.64	39	ns
VEN	B[k]F	2005-2011	7	0.063	3.42	24	ns
VEN	IP	2005-2011	7	0.006	0.4	3	ns
VEN	B[a]A	2005-2011	7	0.118	4.66	33	ns
VEN	DB[ah]A	2005-2011	7	0.02	9.65	68	ns
VEN	B[ghi]P	2005-2010	7	-0.003	-0.17	-1	ns
VEN	B[a]P	2005-2011	7	-0.052	-2.93	-21	ns
VEN	B[j]F	2005-2011	7	0.238	14.8	104	*

Tableau 23 : Tendances absolues (en $\mu\text{g}/\text{m}^3/\text{an}$) et relatives (en $\%/ \text{an}$) des métaux lourds (Ni, As et Cd) mesurés dans les PM_{10}

Station	Polluant	Période	Nombre d'années	Pente ($\mu\text{g}/\text{m}^3/\text{an}$)	Pente ($\%/ \text{an}$)	Pente ($\%/ \text{période}$)	Significativité
CHP	As	2004-2012	9	-0.045	-6.52	-59	+
CHP	Cd	2004-2012	9	-0.016	-7.37	-66	***
CHP	Ni	2004-2012	9	-0.193	-8.75	-79	*
EIS	As	2004-2012	9	-0.096	-9.07	-82	+
EIS	Cd	2004-2012	9	-0.016	-6.72	-60	*
EIS	Ni	2004-2012	9	-0.18	-8.33	-75	*
LUN	As	2000-2012	9	-0.058	-5.79	-52	*
LUN	Cd	2000-2012	12	-0.004	-1.67	-20	+
LUN	Ni	2000-2012	12	-0.126	-5.9	-71	**
PAR	As	2002-2009	8	-0.028	-4.21	-34	ns
PAR	Cd	2002-2009	8	-0.048	-9.38	-75	***
PAR	Ni	2002-2009	6	-0.2	-5.88	-35	**
PVB	As	1999-2005	6	0.042	16.54	99	ns
PVB	Cd	1999-2005	6	-0.043	-4.2	-25	*
PVB	Ni	1999-2005	3	0.425	35.42	106	ns
SEST	As	2005-2012	7	-0.028	-6.46	-45	**
SEST	Cd	2005-2012	8	0	0	0	ns
SEST	Ni	2005-2012	8	-0.042	-2	-16	ns

Station	Polluant	Période	Nombre d'années	Pente ($\mu\text{g}/\text{m}^3/\text{an}$)	Pente ($\%/ \text{an}$)	Pente ($\%/ \text{période}$)	Significativité
Donon	Ethane	1997-2007	11	-0.014	-0.77	-8	ns
Donon	Propane	1997-2007	11	-0.004	-0.63	-7	ns
Donon	Butane	1997-2007	11	-0.012	-3.10	-34	+
Donon	Isobutane	1997-2007	11	-0.003	-1.30	-14	ns
Donon	Pentane	1997-2007	11	-0.004	-2.78	-31	+
Donon	Isopentane	1997-2007	11	-0.012	-4.55	-50	**
Donon	Acétylène	1997-2007	11	-0.015	-2.57	-28	ns
Donon	Ethylène	1997-2007	11	0.005	0.86	9	ns
Donon	Benzène	1997-2007	11	-0.009	-4.27	-47	*
Donon	Toluène	1997-2007	11	-0.013	-5.97	-66	***
Donon	M/P.xylène	1997-2007	11	-0.003	-4.31	-47	*
Donon	Isoprène	1997-2007	11	0.003	0.73	8	ns
Paris	Ethane	2003-2013	3	0.068	1.49	4	ns
Paris	Propane	2003-2013	3	0.090	3.57	11	ns
Paris	Butane	2003-2013	3	-0.020	-0.47	-1	ns
Paris	Isobutane	2003-2013	2	0.000	0.00	0	ns
Paris	Pentane	2003-2013	3	0.078	12.34	37	ns
Paris	Isopentane	2003-2013	3	-0.245	-5.25	-16	ns
Paris	Acétylène	2003-2013	3	-0.055	-5.16	-15	ns
Paris	Ethylène	2003-2013	3	-0.017	-0.87	-3	ns
Paris	Benzène	2003-2013	3	-0.063	-4.56	-14	ns
Paris	Toluène	2003-2013	3	-0.257	-4.55	-14	ns
Paris	M/P.xylène	2003-2013	2	0.350	19.13	38	ns
Paris	Isoprène	2003-2013	3	-0.002	-0.95	-3	ns
Peyrusse	Ethane	2002-2013	12	-0.010	-0.63	-8	ns
Peyrusse	Propane	2002-2013	11	0.005	0.85	9	ns
Peyrusse	Butane	2002-2013	11	0.000	0.00	0	ns
Peyrusse	Isobutane	2002-2013	11	0.005	4.55	50	ns
Peyrusse	Pentane	2002-2013	11	0.000	0.00	0	ns
Peyrusse	Isopentane	2002-2013	11	-0.007	-4.55	-50	*
Peyrusse	Acétylène	2002-2013	11	-0.010	-2.50	-28	*
Peyrusse	Ethylène	2002-2013	12	-0.017	-3.48	-42	*
Peyrusse	Benzène	2002-2013	12	-0.001	-1.12	-13	ns
Peyrusse	Toluène	2002-2013	11	-0.003	-2.70	-30	ns
Peyrusse	M/P.xylène	2002-2013	11	0.000	0.00	0	ns

Peyrusse	Isoprène	2002-2013	12	-0.017	-3.42	-41	+
Strasbourg	Ethane	2002-2013	9	0.011	0.32	3	ns
Strasbourg	Propane	2002-2013	9	-0.020	-0.85	-8	ns
Strasbourg	Butane	2002-2013	10	-0.078	-3.25	-33	+
Strasbourg	Isobutane	2002-2013	10	-0.075	-4.22	-42	**
Strasbourg	Pentane	2002-2013	10	-0.020	-1.65	-16	ns
Strasbourg	Isopentane	2002-2013	10	-0.120	-4.76	-48	*
Strasbourg	Acétylène	2002-2013	9	-0.057	-5.00	-45	**
Strasbourg	Ethylène	2002-2013	10	-0.144	-5.42	-54	**
Strasbourg	Benzène	2002-2013	8	-0.056	-5.01	-40	**
Strasbourg	Toluène	2002-2013	5	-0.087	-5.46	-27	ns
Strasbourg	M/P.xylène	2002-2013	3	-0.098	-6.77	-20	ns
Strasbourg	Isoprène	2002-2013	5	-0.006	-2.39	-12	ns
Tardière	Ethane	2003-2013	11	-0.030	-1.71	-19	ns
Tardière	Propane	2003-2013	11	-0.018	-2.46	-27	+
Tardière	Butane	2003-2013	11	-0.015	-4.69	-52	**
Tardière	Isobutane	2003-2013	11	-0.004	-2.50	-28	ns
Tardière	Pentane	2003-2013	8	0.018	11.11	89	ns
Tardière	Isopentane	2003-2013	11	-0.014	-5.47	-60	**
Tardière	Acétylène	2003-2013	11	-0.017	-3.29	-36	**
Tardière	Ethylène	2003-2013	11	-0.037	-4.87	-54	**
Tardière	Benzène	2003-2013	11	-0.004	-2.67	-29	+
Tardière	Toluène	2003-2013	11	-0.017	-6.49	-71	*
Tardière	M/P.xylène	2003-2013	11	-0.013	-7.04	-77	*
Tardière	Isoprène	2003-2013	11	-0.008	-4.82	-53	ns
Lyon	Ethane	2007-2013	5	-0.182	-3.14	-16	ns
Lyon	Propane	2007-2013	5	0.057	1.46	7	ns
Lyon	Butane	2007-2013	5	-0.419	-5.88	-29	ns
Lyon	Isobutane	2007-2013	5	-0.076	-3.93	-20	ns
Lyon	Pentane	2007-2013	5	-0.123	-4.12	-21	ns
Lyon	Isopentane	2007-2013	5	-0.225	-5.46	-27	ns
Lyon	Acétylène	2007-2013	4	0.080	15.53	62	ns
Lyon	Ethylène	2007-2013	5	0.024	0.77	4	ns
Lyon	Benzène	2007-2013	5	-0.025	-1.53	-8	ns
Lyon	Toluène	2007-2013	5	0.189	3.55	18	ns
Lyon	M/P.xylène	2007-2013	4	0.139	6.07	24	ns
Lyon	Isoprène	2007-2013	5	-0.026	-8.60	-43	ns