Fraction organique des aérosols Méthodologie d'estimation des sources (FORMES)

ÉQUIPES PARTENAIRES
Coordinateurs et responsables scientifiques

Nicolas MARCHAND
Laboratoire de Chimie et Environnement
Université de Provence
3, place Victor-Hugo case 29
13 331 Marseille CEDEX 3
Nicolas.Marchand@univ-provence.fr

Jean-Luc JAFFREZO
Laboratoire de Glaciologie et
Géophysique de l'Environnement
Rue Molière, BP 96
38 402 St-Martin-d'Hères CEDEX
jaffrezo@lgge.obs.ujf-grenoble.fr

AUTRES MEMBRES
Paolo LAJ
laj@lgge.obs.ujf-grenoble.fr

AUTRES ÉQUIPES
ATMO PACA (Marseille)
Dominique ROBIN
dominique.robin@atmopaca.org
ASCOPARG (Grenoble)
Marie-Blanche PERSONNAZ
mbpersonnaz@atmo-rhonealpes.org
LCME (Chambéry)
Jean-Luc BESOMBES
Jean-Luc.Besombes@univ-savoie.fr
IRCELyon (Lyon)
Christian GEORGE
Christian.George@univ-lyon1.fr
LaMP (Clermont-Ferrand)

MOTS CLEFS ET GLOSSAIRE

Aérosol, PM (Particulate Matter), PM2,5 (fraction granulométrique inférieure à 2,5 µm), Fraction Organique, EC (Elemental carbon), OC (Organic carbon), Aéthalomètre, AMS (Aerosol Mass Spectrometer), FDMS (Filter Dynamics Measurement System), HGF (facteurs de croissance hygroscopiques), VHT-DMA (volatility-hygroscopicity tandem of two Differential Mobility Analyzers), PMF (Positive Matrix Factorization), CMB (Chemical Mass Balance), Sources, Traceurs, Marseille, Grenoble

Contenu et objectifs du projet

Les objectifs généraux proposés pour le programme FORMES étaient de développer une étude de démonstration pour une méthodologie de détermination quantitative de l'influence des différentes sources sur la fraction organique de l'aérosol urbain (primaires et secondaires). Il avait été proposé de mener une telle étude dans des environnements urbains et conditions météorologiques et photochimiques très différenciés : Marseille l'été et Grenoble l'hiver. Les objectifs spécifiques du programme FORMES étaient de :

- déterminer quantitativement l'évolution des contributions relatives des principales sources primaires de l'aérosol organique par une approche de type CMB (Chemical Mass Balance),
- évaluer la contribution des processus secondaires par confrontation de plusieurs approches (chimiques et physiques) permettant de prendre en compte les principales caractéristiques des particules atmosphériques,
- au terme du programme, de proposer une méthodologie simplifiée d'étude des sources de matière organique à la fois primaires et secondaires, opérationnelle pour une large gamme de sites.

Présentation des travaux de recherche

Résultats obtenus

La méthodologie adoptée était ambitieuse et pluri approches. Tout d'abord, il était proposé que la spéciation des sources primaires soit réalisée au moyen de l'approche CMB (Chemical Mass Balance), méthode de référence pour l'US EPA (Environmental Protection Agency), qui s'appuie principalement sur des traceurs organiques (hopanes, stéranes, lévoglucosan, alcanes linéaires, acides carboxyliques, HAP…). Cette méthodologie peut être contrainte par d'autres approches complémentaires, comme principalement, l'étude des isotopes du carbone. Ensuite, nous avions proposé que la contribution de la fraction secondaire, beaucoup plus complexe à appréhender, soit évaluée principalement selon deux approches. La première est basée sur les résultats obtenus par AMS (Aerosol Mass Spectrometer, Aerodyne) pouvant être traités en termes de fractions primaires et secondaires. La seconde était beaucoup plus exploratoire et visait à étudier les relations entre les propriétés physiques des particules (volatilité et hygroscopicité) et les processus photochimiques donnant naissance à l'aérosol organique secondaire. Au terme du programme, nous avons aussi testé une autre méthode de déconvolution de certaines sources de la matière carbonée, utilisant les propriétés optiques des PM (Particulate matter).

Le programme prévoyait que ces méthodologies de déconvolution des sources des aérosols soient testées sur les jeux de données obtenues lors de deux campagnes de terrain présentant des caractéristiques bien différenciées. Ces deux campagnes de 15 jours effectifs se sont tenues en juillet 2008 (Marseille) et janvier 2009 (Grenoble), Le taux de fonctionnement des appareillages sur les deux campagnes a été excellent, conduisant à une base de données de très grande qualité. Une première analyse conduit à considérer la composition

chimique des PM2,5 (cf. figure 1 pour le cas de Marseille). Pour les deux campagnes, la matière carbonée (EC+OM: Elemental Carbon + Organic Carbon) représente largement plus que 50 % de la masse des espèces mesurées dans les PM2,5 (env. 60 % pour Marseille ; env. 63 % pour Grenoble). Parmi ces dernières, on note la prépondérance des acides organiques et des phtalates pour Marseille, et la part majoritaire des saccharides anhydrides sur Grenoble. Les espèces ioniques majeures (sulfates, nitrates, ammonium) constituent la seconde composante importante en masse. Les fractions crustales et les métaux ne représentent finalement qu'une faible part de la masse analysée.

La mise en œuvre de la méthode CMB sur les données des campagnes a nécessité un important travail, qui est fondamental, sur la détermination des espèces cibles, ainsi que sur les profils de sources inclus dans le traitement. Ces étapes demandent des allers-retours permanents avec des moyens de validation (deux exemples sont donnés ci-dessous pour le cas de Grenoble). Pour les deux campagnes, les résultats finaux acquièrent ainsi un très bon degré de certitude.

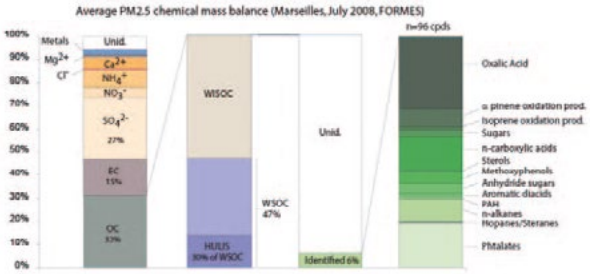


Figure1 • Bilan de masse moyen des PM2,5 sur l'ensemble de la campagne de Marseille.

la figure 2 montre que l'estimation des masses obtenues grâce à l'analyse CMB permet de très bien reconstruire la quantité de PM2,5 mesurée. La principale source de PM observée est la combustion de biomasse, représentant en moyenne 41 % des PM2,5. Cette contribution atteint 74 % sur épisodes. Les émissions véhiculaires, les autres sources organiques, et les espèces ioniques secondaires représentent respectivement en moyenne 10 %, 16 % et 31 % de la masse des PM2,5.

on montre que les émissions véhiculaires constituent la source majoritaire contribuant à 17 % du carbone organique (OC) et des PM2,5. Les sources industrielles contribuent à 2,5 % de l'OC, et à 7,1 % des PM2,5 en moyenne sur la période. Contrairement à Grenoble, la combustion de bois ne constitue qu'une source minoritaire, contribuant à 0,4 % des PM2,5. Toutefois, la principale information révélée par la déconvolution de sources par CMB est que les sources primaires considérées ne permettent d'expliquer en moyenne que 22 % de l'OC mesuré, 78 % du carbone restant non expliqués. Même si d'autres sources primaires non considérées dans les modélisations CMB peuvent expliquer une fraction de ce carbone non attribué, il est très probable que la très grande majorité de ce carbone soit d'origine secondaire, c'est-à-dire résultant de transfert gaz-particules suite à des processus de photo oxydation en phase gazeuse. Cette hypothèse est totalement validée par les mesures du ^{14}C, qui montrent que 66 % du carbone organique est de type biogénique secondaire et seulement 12 % seraient de type anthropique secondaire. Ainsi, même dans un milieu très anthropisé comme Marseille, la source biogénique secondaire apparaît, en été, comme une source prépondérante. Les données obtenues par le **couplage AMS + aéthalomètre** permettent de détailler la composition chimique de l'aérosol submicronique sur un pas de temps de quelques minutes, pour les composants majeurs de l'aérosol, à savoir la fraction organique, les ions nitrates, sulfates et ammonium ainsi que la fraction réfractaire BC_{PM1} (la fraction Black Carbon PM2,5 est mesurée par aéthalomètre et la fraction PM1 recalculée grâce aux comparaisons avec les mesures par impacteur). On note une très bonne correspondance pour les deux campagnes des valeurs moyennes sur l'ensemble de la campagne obtenues par AMS + aéthalomètre et par analyses off line des filtres haut volumes.

La déconvolution de type PMF (Positive Matrix Factorization) des données de la campagne de conduit à une analyse en trois composants permettant de reconstruire 99 % de la fraction organique mesurée tout en obtenant 3 spectres différents connus, à savoir OOA (Oxygenated Organic Aerosols), HOA (Hydrocarbon-like Organic Aerosols) et pBBOA (primary Biomass Burning Organic Aerosols). La fraction OOA est clairement dominante comme cela a été fréquemment observé, suggérant l'importance des aérosols organiques secondaires. Cette hypothèse est confortée par la corrélation entre OOA et différents éléments inorganiques secondaires. Ce facteur OOA peut néanmoins inclure une fraction non négligeable de particules issues de la combustion du bois. L'élément

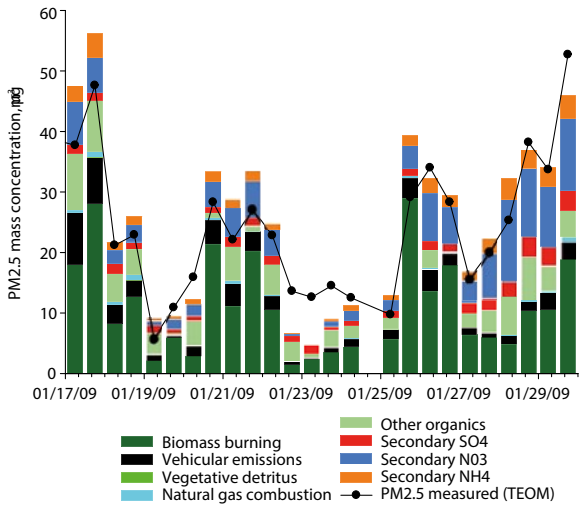


Figure2 • Contributions des sources d'émissions aux PM2,5 à Grenoble en janvier 2009.

pBBOA est associé avec la fraction primaire liée aux feux de bois, hypothèse confortée par une bonne corrélation avec les mesures sur filtres du lévoglucosan, et représente la fraction principale de la fraction organique primaire avec un rapport pBBOA/HOA proche de 5. Cette fraction HAO est corrélée aux NOx et est associée aux émissions primaires plutôt d'origine véhiculaire. Cette meilleure solution donne une contribution moyenne sur l'ensemble de la période de 10 %, 38 % et 50 %, respectivement, des constituants HOA, pBBOA et OOA.

L'approche PMF aboutit dans le cas de **Marseille** à une description des spectres de masses en quatre facteurs distincts, dont un hautement corrélé aux HAP observés durant certains épisodes particuliers. L'apparition de fortes teneurs en HAP n'est pas corrélée aux émissions du trafic mais à des épisodes issus de la zone industrielle de l'étang de Berre. La fraction HOA est d'origine primaire et issue du trafic routier ; elle est parfaitement corrélée à la teneur en NOx. Le second facteur est SV-OOA (ou OOA-2), qui correspond à une fraction organique semi-volatile. La fraction LV-OOA (Low Volatility) plus oxydée et moins volatile, est fortement secondaire de nature. La fraction secondaire (LV-OOA + SV-OOA) représente donc à Marseille 80 % de la masse organique totale (OM) de la fraction PM1.

Finalement, la déconvolution des propriétés optiques de la fraction organique totale obtenue via les mesures **par aéthalomètre** a permis d'estimer sur Grenoble les contributions relatives de ces principales sources. Cette approche montre que la combustion d'énergie fossile (OM_{ff}), de bois (OM_{wb}) et sources non liées à la combustion (OM_{other}) représentent respectivement 13 %, 60 %, et 28 % de la matière organique totale, en moyenne sur l'ensemble de la période de mesure. Une forte variation diurne est observée, très similaire à celle mise en évidence par les résultats AMS - PMF. Clairement, là encore, la source principale identifiée est liée à la combustion du bois, conclusion validée par l'intercomparaison avec les mesures de lévoglucosan. De même, on obtient de très bonnes corrélations entre les fractions « fossil fuel » et les NOx.

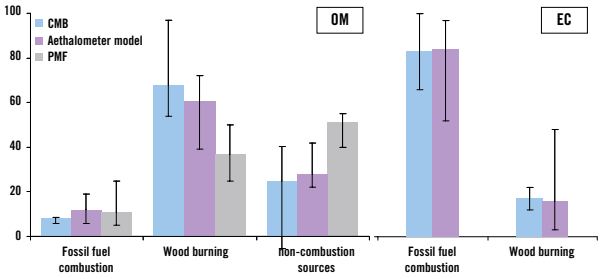


Figure 3 • Comparaisons des approches d'estimations des sources par les 3 approches : CMB, modèle Aéthalomètre, et AMS/PMF pour la campagne de Grenoble.

À Grenoble, trois approches d'estimations des sources ont été comparées pour OM et 2 pour EC (l'AMS ne pouvant pas détecter EC) (figure 3). Globalement, un très bon accord entre les méthodes est observé. La principale différence réside dans l'estimation de la contribution de la combustion de biomasse, et par extension celle des sources autres que la combustion, entre les approches CMB (en très bon accord avec les mesures de ^{14}C et en bon accord avec la méthode aéthalomètre), et l'approche AMS - PMF. Plusieurs hypothèses peuvent être avancées pour expliquer ces différences.

Implications pratiques

Les comparaisons des méthodes présentées ci-dessus indiquent d'assez bons accords des résultats obtenus par les différentes approches, ainsi que leur validation par d'autres types de données (mesures ^{14}C, détermination des groupements fonctionnels, approche ratio-ratio…). Si l'on tient compte des nombreux travaux internationaux qui sont maintenant présentés dans la littérature, on est autorisé à penser que le stade initial de démonstration est dépassé et que ces méthodes peuvent être mises en œuvre de façon plus large. Cela nécessite cependant une vision critique de leurs avantages et inconvénients respectifs. À la suite de ce programme, on peut présenter quelques réflexions sur le caractère plus ou moins opérationnel des méthodes de détermination des sources employées, c'est-à-dire en particulier leurs capacités respectives à apporter des réponses aux problématiques nationales de dépassement de seuils réglementaires et de diminution des niveaux d'exposition moyens, problématiques qui se posent à l'ensemble du dispositif national de surveillance de la qualité de l'air.
Dans ce cas, la notion d'opérationnalité est directement reliée à plusieurs facteurs. Ces méthodes doivent, en premier lieu, pouvoir être appliquées à des classes de particules soumises à réglementations (PM10 et PM2,5, dans un avenir proche) et ce, dans des environnements variés et simultanément sur plusieurs sites si besoin. Elles doivent également pouvoir renseigner sur des problématiques aussi bien locales (impact d'une source ponctuelle, par exemple) que nationales (impact du transport longue distance, par exemple). Enfin, elles doivent être raisonnablement simples à mettre en œuvre et d'un coût limité. Par ailleurs, et de façon implicite, leur résultat doit pouvoir être validé par un certain recul scientifique. Le tableau 1 ci-après propose une synthèse de l'adéquation entre les principales méthodes d'estimations des sources utilisées dans le cadre du programme FORMES et le cahier des charges imposé par une telle opérationnalité. Chacune de ces méthodes présente des avantages et des inconvénients et aucune ne peut être considérée comme universelle. Quoi qu'il en soit, aucune n'est totalement simple à mettre en œuvre et l'application en routine de l'une ou l'autre de ces méthodes dans le cadre du dispositif national de surveillance de la qualité de l'air ne peut être envisagée à l'heure actuelle sans le maintien de collaborations étroites avec des laboratoires de recherche.

	AMS/PMF	Méthode optique (Aéthalomètre)	Spéciation/CMB
PM10/ PM2,5	Le fonctionnement même des AMS (focalisation de l'aérosol) fait qu'ils ne peuvent analyser les particules de diamètre supérieur à 0.8 - 1 µm. L'approche PMF ne permet de déconvoluer que les sources de la matière organique. (Impossibilité de mesurer EC dans la configuration actuelle ; des développements sont en cours).	Possible, mais l'approche Aéthalomètre n'est relative qu'à la fraction carbonée (OM+BC).	Possible. Il faut cependant noter que les profils de référence aujourd'hui disponibles dans la littérature sont pour la plupart relatifs aux PM2,5. Leur application à la fraction PM10 nécessite quelques hypothèses.
Multi sites	La principale limitation à l'application de cette approche à plusieurs sites simultanément est la disponibilité et le coût de l'instrument (entre 350 et 450 k$ selon la version). En France, il n'existe pour le moment que 3 instruments de ce type (IRCELyon/LaMP, Université de Provence, et École des Mines de Douai). Des « mini » -AMS (ACSM) sont en cours de développement et commencent à être commercialisés. Leur coût demeure conséquent (~150 k$).	Possible à condition de disposer de plusieurs instruments, ou de travailler off line sur des filtres prélevés in situ. Il est difficile de faire un inventaire de tous les instruments de ce type disponible en France, mais ces derniers sont beaucoup plus répandus que ne le sont les AMS.	Possible, via des prélèvements simultanés par DA80. La réduction du jeu de données et la rationalisation des surfaces de filtres nécessaires à l'analyse effectuées au cours de ce projet montrent qu'il est possible de travailler sur un échantillon haut volume unique de 24 h (diamètre 150 mm) ; 12 h pour les zones polluées ou en périodes hivernales. Possibilité de s'appuyer sur les prélèvements réalisés par les ASQAA (mesures HAP, dispositif CARA…). Il n'est pas nécessaire de disposer d'une longue série de données ; dans l'absolu, 1 seul échantillon peut suffire.
Multi sources	Les approches AMS-PMF permettent de déconvoluer des facteurs. La difficulté réside dans l'attribution de ces facteurs à une source (individuelle ou groupe de sources de type similaire) ou à des processus. Sans trop d'ambiguïté, il est maintenant possible de quantifier les émissions véhiculaires (HOA) et la combustion de biomasse (BBOA). En fonction des spécificités du territoire étudié d'autres sources peuvent être déconvoluées, mais il apparaît nécessaire de disposer de données complémentaires. La richesse des données AMS permet d'aborder plus finement les fractions secondaires de l'OA, sans qu'il soit toutefois encore possible de discriminer sans ambiguïté l'AOS (traditionnel) du vieillissement. Les problématiques de pollution transfrontières peuvent être abordées qualitativement en considérant l'état d'oxydation de l'OA.	Ne permet d'estimer que les sources véhiculaires et la combustion de biomasse (pour OM et BC). La quantification d'autres sources apparaît, à l'heure actuelle, comme peu probable.	Conceptuellement, l'approche CMB permet de déconvoluer l'ensemble des sources primaires (majeures). La principale difficulté réside dans l'existence des profils d'émissions correspondant. La principale limitation de l'approche CMB réside dans sa capacité à appréhender la fraction secondaire. Cette fraction ne peut être estimée que de façon indirecte (à condition que l'ensemble des sources primaires ait pu être estimé). Les problématiques de pollution transfrontière ne peuvent être abordées par cette approche (sauf sources primaires très spécifiques).
Simplicité et coûts	L'AMS est un instrument de haute technologie qui nécessite l'emploi de personnel hautement qualifié. Il en est de même pour l'analyse des résultats. Le coût de ces instruments demeure très élevé (voir section Multi sites).	L'aethalomètre est un instrument robuste et simple d'utilisation. Son coût demeure modéré pour de l'instrumentation scientifique (~ 25 k€). La déconvolution du signal est, en soi, raisonnablement aisée (par rapport aux autres méthodes), mais repose sur des hypothèses non triviales. La validité des résultats est encore en débat au sein de la communauté scientifique internationale. Manque de recul.	Cette approche repose principalement sur la spéciation de la fraction organique. La qualité de ces mesures est un point essentiel. Ces analyses ne sont pas triviales et leur coût demeure relativement élevé. Ces méthodes ne sont pour l'heure maîtrisées que par un faible nombre de laboratoires en Europe (intercomparaison en cours pour certaines fractions et marqueurs organiques). L'application du CMB nécessite une très bonne connaissance de la synergie entre les marqueurs organiques et des spécificités locales en termes d'émissions.

Tableau 1 • Bilan sur l'opérationnalité des méthodes.

Figure 4 • Localisation des sites de travail sur lesquels a été appliquée la méthodologie CMB.

Valorisation des résultats

À la suite de ce programme de démonstration, il convenait de mettre plus avant ces méthodologies à l'épreuve du terrain, pour continuer à en tester les limites et les points faibles. Une telle démarche a pris place pour la méthodologie CMB, avec notre implication actuelle dans plusieurs programmes en collaboration étroite avec de nombreuses AASQA : travaux avec ATMO PACA sur la vallée du Peillon et avec AIR APS sur plusieurs vallées Alpines, travaux dans le cadre du programme MEGAPOLI (subventions EU-FP7 et ANR, implication d'AirParif), et développement de cette méthodologie dans le cadre du programme Particul'Air (8 AASQA régionales et financement ADEME) (cf. figure 4). La méthodologie a aussi été appliquée dans le cadre du dispositif CARA du LCSQA.

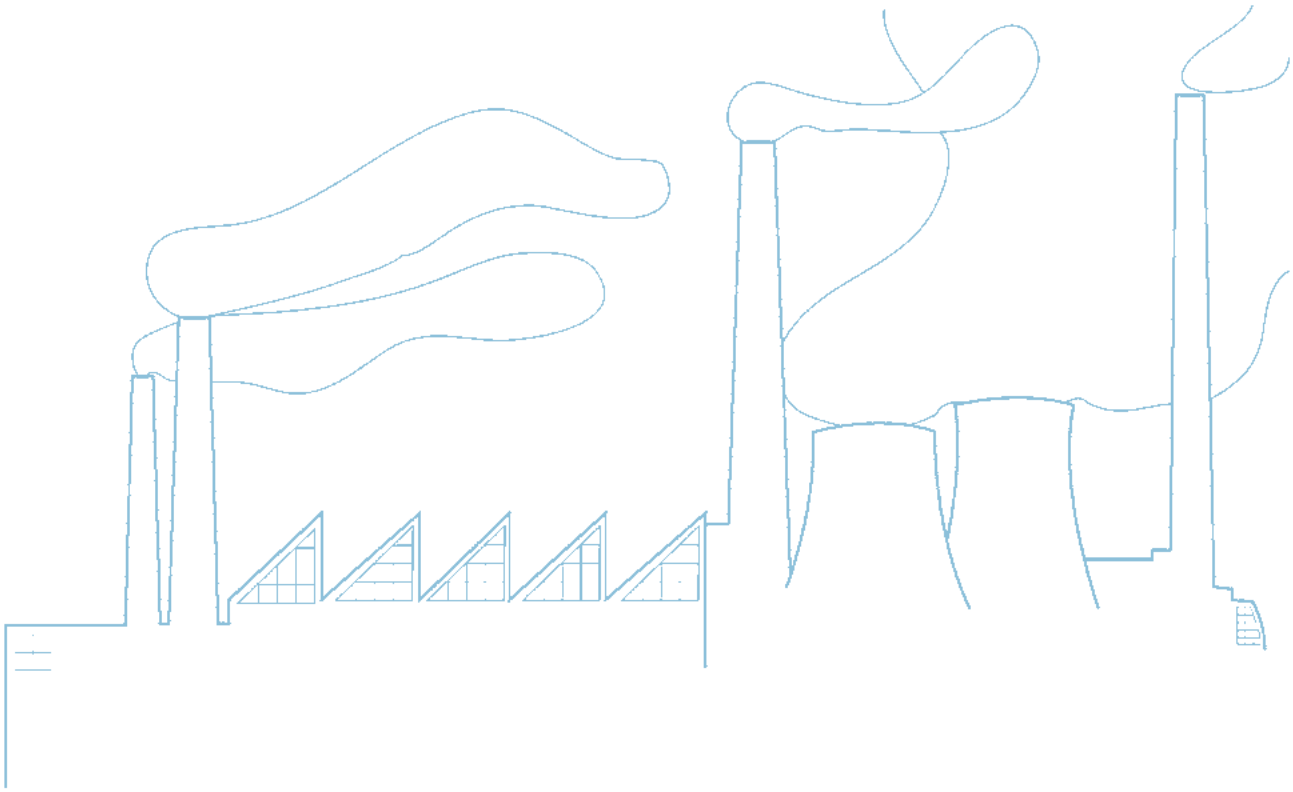
On voit que les situations envisagées sont très différentes : impact industriel, grandes zones urbaines, zones rurales bien différenciées. Cette diversité de situations constitue un très bon test pour la méthode. De plus, cette méthode CMB a été confrontée à l'approche AMS – PMF dans le cadre du projet MEGAPOLI. On retiendra de plus que plusieurs autres programmes sont en cours de mise en place, pour l'application de la méthodologie CMB (programmes CAMERA, APICE, CHARMEX, travaux sur sites ACTRIS, collaboration franco-suisse…), qui n'apparaissent pas sur cette carte. L'ensemble de ces actions a été en France systématiquement en appui aux politiques publiques, en étroite concertation avec les AASQA.

Valorisation et formations

Les travaux de FORMES ont été présentés dans de nombreux colloques et conférences internationales (plus d'une vingtaine). L'expérience obtenue dans le cadre de FORMES a été largement utilisée par les différents acteurs dans le cadre de leur enseignement, dans des formations extrêmement variées. L'ensemble de ces activités d'enseignement est trop large pour être synthétisé ici. De nombreux stages de formation (niveaux DUT, L3, M1 et M2) ont été réalisés dans le cadre de FORMES. Leur nombre peut être évalué à une bonne vingtaine. Finalement, 5 thèses s'appuient (en tout ou partie) sur des données FORMES :

- **Michaud Vincent.** « *Étude des propriétés hygroscopiques des aérosols atmosphériques* ». Thèse de l'Université Blaise Pascal, Clermont-Ferrand. Direction P. Laj et K. Sellegri. Soutenue le 10/12/2009.
- **Baduel Christine**. « *Fraction organique de l'aérosol : quantification et caractérisation de la fraction HUmic LIke* ». Thèse de l'Université de Grenoble. Direction : D. Voisin et M. Legrand. Soutenue le 14/01/10.
- **El Haddad Imad.** « *Fractions primaire et secondaire de l'aérosol organique : Méthodologies et application à un environnement urbain méditerranéen, Marseille* » Thèse de l'Université de Provence. Direction : N. Marchand et H. Wortham. Soutenance le 17/01/11.
- **Piot Christine.** « *Polluants atmosphériques organiques particulaires en Rhône Alpes : caractérisation chimique et sources d'émission* ». Thèse de l'Université de Chambéry. Direction : J.-L. Besombes et J.-L. Jaffrezo. Soutenance prévue fin 2011.
- **Guillon Amélie.** « *Étude des sources des HAP atmosphériques par isotopie* ^{13}C ». Thèse de l'Université Bordeaux 1. Direction : E. Villenave et H. Budzinski. Soutenance prévue fin 2011.
- **Ringuet Johany.** « *Étude des artéfacts de mesure dans l'évaluation du Benzo(a)pyrène atmosphérique* ». Thèse de l'Université Bordeaux 1. Direction : E. Villenave et E. Leoz-Garziandia. Soutenance prévue fin 2011.

Publications

- **Albinet A., Suptil J., Combet E., Piot C., El Haddad I., Marchand N. and Besombes J.-L.** (2009). Development and evaluation of a high flow atmospheric denuder (HFAD) for the study of organic particulate matter. *Atmos. Envir.,* submitted.
- **Baduel C., Voisin D. and Jaffrezo J.-L.** (2010). Seasonal variations of concentrations and optical properties of water soluble HULIS collected in urban environments. *Atmos. Chem. Phys.,* 10, 4085-4095.
- **Dron J., El Haddad I., Temime-Roussel B., Jaffrezo J.-L., Wortham H. and Marchand N.** (2010). Functional group composition of ambient and source aerosols determined by tandem mass spectrometry. *Atmos. Chem. Phys.,* 10, 7041-7055, 2010. doi :10.5194/acp-10-7041-2010
- **Favez O., El Haddad I., D'Anna B., Boréave X., Piot C., Themine B., Voisin D., Besombes J.-L., Sciare J., George C., Marchand N. and Jaffrezo J.-L.** (2010). Inter-comparison of source apportionment models for the estimation of wood burning aerosols at wintertime in a French Alpine city (Grenoble, France). *Atmos. Chem. Phys.,* 10, 5295-5314. doi :10.5194/acp-10-5295-2010.

- **Lanz V.-A., Prévôt A.S.H., Alfarra M.-R., Mohr C., DeCarlo P.-F., Weimer S., Gianini M.F.D., Hueglin C., Schneider J., Favez O., D'Anna B., George C. and Baltensperger U.** (2010). Characterization of aerosol chemical composition by aerosol mass spectrometry in Central Europe: an overview. Atmos. Chem. Phys., 10, 10453-10471, doi:10.5194/acp-10-10453-2010, 2010. net/9/24985/2009/acpd-9-24985-2009.pdf
- **Piot C., Jaffrezo J.-L., Besombes J.-L., Pissot N., Cozic J., El Haddad I. and Marchand N.** (2010). Determination of levoglucosan and its isomers by High Performance Liquid Chromatography-Electrospray Ionization tandem Mass Spectrometry and its application to atmospheric and soils samples. In preparation.
- **El Haddad I., Marchand N., Wortham H., Piot C., Besombes J.-L., Jaffrezo J.-L., Cozic J. and Robin D.** (2010a). Primary sources of PM2.5 particles in an industrial Mediterranean city, Marseille. *Atmos. Chem. Phys. Discuss., 10, 25435-25490, 2010.*
- **El Haddad I., Marchand N., Temime-Roussel B., Wortham H., Piot C., Besombes J.-L. , Baduel C., Voisin D. and Jaffrezo J.-L.** (2010b). Insights into the secondary fraction of the organic aerosol in a Mediterranean urban area: Marseille. *Atmos. Chem. Phys. Discuss., 10, 25491-25544, 2010.*.
- **El Haddad I., Marchand N., Dron J., Temime-Roussel B., Wortham H. and Jaffrezo J.-L.** (2010). Influences of sources and chemical processes on the functionalization of organic aerosol. En preparation.
- **Michaud *et al.*** (2010). Fermeture chimie/hygroscopicité de l'aérosol en zone urbaine (Marseille): influence de l'état de mélange. In preparation.
- **Piot *et al.*** (2010). Caractérisation chimique de l'aérosol et études de la contribution des différentes sources sur Grenoble et la Région Rhône-Alpes. En preparation.
- **D'Anna *et al.*** (2010). Analyse des influences industrielles sur la campagne FORMES Marseille: étude par AMS-PMF et comparaison avec la méthode CMB. En preparation.