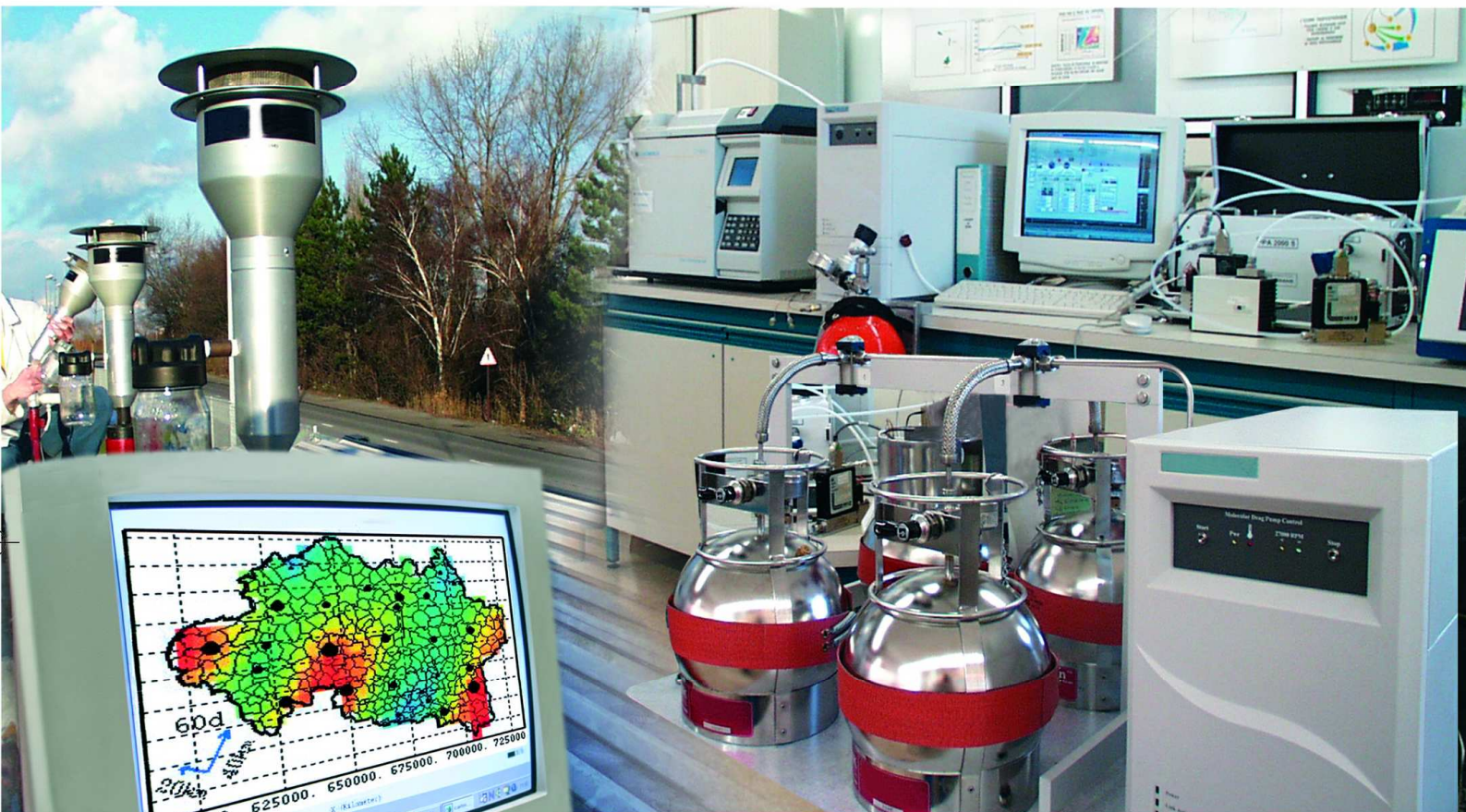




Laboratoire Central de Surveillance de la Qualité de l'Air



Métrologie des particules PM_{10} et $PM_{2.5}$

**Modélisation des épisodes de pollution 2008 – 2009
dans le cadre du dispositif CARA – Caractérisation
chimique des particules**

Octobre 2009

Programme 2009

B. BESSAGNET





PREAMBULE

Le Laboratoire Central de Surveillance de la Qualité de l'Air

Le Laboratoire Central de Surveillance de la Qualité de l'Air est constitué de laboratoires de l'École des Mines de Douai, de l'INERIS et du LNE. Il mène depuis 1991 des études et des recherches finalisées à la demande du Ministère chargé de l'environnement. Ces travaux en matière de pollution atmosphérique supportés financièrement par la Direction Générale de l'Énergie et du Climat du Ministère de l'Écologie, de l'Énergie, du Développement Durable et de la Mer sont réalisés avec le souci constant d'améliorer le dispositif de surveillance de la qualité de l'air en France, coordonné au plan technique par l'ADEME, en apportant un appui scientifique et technique 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.



Etude des épisodes de pollution 2008 – 2009 dans le cadre du dispositif CARA

Laboratoire Central de Surveillance
de la Qualité de l'Air

Métrologie des particules PM₁₀ et PM_{2.5}

Programme financé par la
Direction Générale de l'Énergie et du Climat (DGECC)

Octobre 2009

B. BESSAGNET, F. MELEUX, A. COLETTE, L. CHIAPPINI, S. VERLHAC

Ce document comporte 29 pages (hors couverture et annexes)



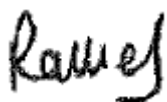
	Rédaction	Vérification	Approbation
NOM	Bertrand BESSAGNET	Laurence ROUÏL	Martine RAMEL
Qualité	Responsable Unité MOCA Direction des Risques Chroniques	Responsable du Pôle DECI Direction des Risques Chroniques	Responsable LCSQA/INERIS Direction des Risques Chroniques
Visa			

TABLE DES MATIÈRES

1. INTRODUCTION	10
2. SITES ET PERIODES DE PRELEVEMENTS	11
3. MISE ŒUVRE DE LA MODELISATION.....	11
4. ANALYSE PAR EPISODES	12
4.1 Episode 1 : 13 - 24 Février 2008	12
4.2 Episode 2 : 5 - 14 Avril 2008	14
4.3 Episode 3 : 25 Juin - 2 Juillet 2008	15
4.4 Episode 4 : 18 - 29 Septembre 2008.....	16
5. EPISODE DE JANVIER 2009.....	17
5.1 Observation de l'épisode – Prévion PREV'AIR.....	17
5.2 Observation de l'épisode avec le dispositif CARA.....	19
5.3 Influence potentielle des sources extérieures à la France.....	20
5.4 Explication possible de la sous-estimation des concentrations de PM10 lors de l'épisode 5	21
5.5 Impact potentiel du chauffage au bois.....	22
6. SYNTHÈSE DES RESULTATS DE COMPARAISON ENTRE LA MODELISATION ET LES DONNEES CARA	23
6.1 Sources ou espèces manquantes	23
6.2 Météorologie	24
7. CONCLUSION.....	26
8. REFERENCES	27
9. LISTE DES ANNEXES	29

RESUME

Ce rapport présente la mise en œuvre de la modélisation sur des épisodes identifiés dans le rapport DRC-09-103337-10781A afin de mieux comprendre les aptitudes et lacunes des modèles. Les épisodes de l'année 2008 et janvier 2009 ont été simulés avec le modèle de qualité de l'air CHIMERE. Ainsi, les analyses du dispositif CARA ont permis de montrer que :

- a) Les concentrations en sulfates sont globalement sous-estimées par le modèle CHIMERE surtout durant l'été,
- b) Les concentrations en nitrate et l'ammonium sont correctement simulées mais semblent parfois surestimées,
- c) Les concentrations en matière organique sont nettement sous-estimées essentiellement l'hiver
- d) Les concentrations en carbone élémentaire sont légèrement sous-estimées
- e) Les « autres » espèces sont largement sous-estimées par le modèle

La sous-estimation de la production de sulfate provient essentiellement d'une sous-production par chimie gazeuse l'été. Concernant le point c), la sous-estimation chronique du modèle pourrait être liée à une source manquante ou mal redistribuée temporellement comme la combustion du bois. Les « autres » espèces pourraient être mal représentées dans les inventaires utilisées, il s'agirait de particules primaires non carbonées émises par les activités humaines.

En 2010 certains des épisodes de 2009 seront à nouveau étudiés en considérant les aspects **météorologie et émissions**. Avant de régler le problème des émissions, un travail sur les simulations météorologiques sera réalisé et seulement ensuite, un travail sur les émissions sera effectué pour mieux caler les émissions de combustion de bois et suivre la part de ces émissions dans le bilan des particules prélevées et analysées. Un travail particulier sur les profils temporels d'émission sera réalisé en collaboration avec les AASQA. Bien que l'essentiel du travail soit réalisé sur des échantillons typiques de certaines régions, ce travail devra être extrapolable au plan national.

Une évolution du système de mesure et d'analyse CARA sera envisagée dans le sens suivant:

- Mesures des couples **Nitrate/Acide nitrique** et **Ammonium/Ammoniaque** en gardant une veille sur les mesures de concentrations de ces espèces ;
- Avoir un ou deux points de mesures avec à la fois des analyses sur filtre des PM_{2,5} et des PM₁₀ en privilégiant un site de fond suburbain voire rural, ceci permettant de voir si la sous-estimation des composés « autres » existe aussi dans la fraction fine des PM ;
- Avoir un site de mesures permettant d'évaluer les concentrations de fond de poussières naturelles, ce site devrait être situé près des zones de terres arables.

1. INTRODUCTION

Les épisodes de pollution par les PM₁₀ observés en France au printemps 2007 ont montré le besoin d'affiner la compréhension de l'origine de ces pics. Ce constat a conduit le LCSQA à déclencher une étude, basée sur une approche couplée entre la caractérisation chimique des particules (spéciation) et la modélisation (rapport LCSQA de juillet 2007¹). Cette étude a permis de faire des hypothèses sérieuses sur les sources de PM₁₀ lors de ces épisodes de pollution importants.

Afin d'anticiper d'éventuels futurs épisodes de ce type, et d'apporter des éléments sur les niveaux moyens de concentrations mesurés, le LCSQA a mis en œuvre, depuis le début de l'année 2008, un dispositif de caractérisation chimique des PM, appelé **CARA**. Ce dispositif consiste, en pratique, à effectuer ponctuellement dans le temps des prélèvements de particules sur quelques sites en France, en vue de réaliser une spéciation chimique des particules sur une sélection de ces échantillons (épisodes de forte pollution ou situations de fond d'intérêt). L'étude d'un certain nombre d'espèces apporte ainsi des informations sur l'origine des PM mais n'est pas suffisante pour une étude quantitative des sources de particules. Un premier rapport en 2009, du LCSQA référencé **DRC-09-103337-10781A** a permis de produire de premiers résultats. Ainsi, on notera notamment que les profils chimiques mesurés lors des 87 échantillons correspondants à des dépassements du seuil de 50 µg m⁻³ montrent une contribution forte de la matière carbonée (1/3 des PM₁₀) et des espèces inorganiques secondaires (nitrate, sulfate et ammonium). Ce profil est "normal" par rapport à des profils annuels moyens de la littérature, et indique que les dépassements ne sont pas liés (en première approximation) à une montée en puissance d'une source spécifique, mais bien à des conditions de dispersion favorisant l'accumulation d'un ensemble de sources. Enfin, l'évolution saisonnière de ce profil est relativement faible.

La fiche descriptive de l'étude est rappelée en annexe 1. Ce rapport présente la mise en œuvre de la modélisation sur des épisodes identifiés dans le rapport DRC-09-103337-10781A afin de mieux comprendre les aptitudes et lacunes des modèles. Les épisodes de l'année 2008 et janvier 2009 ont été simulés avec le modèle CHIMERE. Le paragraphe 2 rappelle les différents prélèvements effectués en 2008 et début 2009. Le paragraphe 3 résume les résultats de modélisation sur l'ensemble des épisodes. Les paragraphes 4 et 5 sont dédiés à l'étude de modélisation de chacun des épisodes. Le paragraphe 6 synthétise les premiers résultats obtenus en proposant des explications du comportement du modèle.

¹ Téléchargeable sur : <http://www.lcsqa.org/thematique/metrologie/les-episodes-de-pm10-en-france-durant-le-printemps-2007>

2. SITES ET PERIODES DE PRELEVEMENTS

Les prélèvements de particules ont eu lieu au cours de l'année 2008 sur sept stations urbaines décrites dans le Tableau 1 ci-dessous.

Villes	AASQA	Code	Longitude	Latitude	Station	Type	Dpt
Martigues	Airfobep	02005	5.05	43.40	Lavera	urbaine	13
Montferrand	Atmo Auvergne	07004	3.10	45.79	Montferrand	urbaine	63
Mulhouse	Aspa	16057	7.34	47.75	Mulhouse Nord	urbaine	68
Lyon	Atmo Rhône-alpes	20062	4.85	45.86	LYON Centre	urbaine	69
Rouen	Air Normand	25043	1.09	49.40	Centre Hospitalier	urbaine	76
Lens	Atmo NPdC	28002	2.83	50.43	Lens	urbaine	62
Talence	Airaq	31002	-0.58	44.80	Talence	urbaine	33

Tableau 1 : Caractéristiques des sites d'échantillonnage du dispositif CARA en 2008

La mise en œuvre des prélèvements sur les différents sites pour 2008 a été pratiquement conforme à la feuille de route décrite dans la fiche programme acceptée en CPT (Comité de Pilotage Technique) du LCSQA. Seul le site proposé par AirBrezh n'a finalement pas pu être équipé d'un préleveur au 1^{er} septembre 2008 : afin de maintenir la densité de prélèvements sur la zone allant de la Bretagne au Nord – Pas-de-Calais, zone très touchée lors des épisodes du printemps 2007, les prélèvements ont pu être continués sur le site d'Atmo Nord – Pas-de-Calais pour le dernier trimestre 2008. Pour plus d'information, concernant les prélèvements nous conseillons au lecteur de lire le rapport LCSQA référencé DRC-09-103337-10781A.

3. MISE ŒUVRE DE LA MODELISATION

La modélisation a été mise en œuvre en utilisant la version du modèle CHIMERE décrite dans l'annexe 2. La concentration en matière organique (OM) est calculée à partir de la concentration en carbone organique (OC) par la formule : **OM = 1.6 × OC**.

Le Tableau 2 montre la comparaison entre la composition chimique des PM₁₀ obtenue par modélisation et par analyse chimique, pour l'ensemble des échantillons analysés dans le cadre de CARA en 2008.

Pour ces échantillons, on observe que la moyenne des PM₁₀ modélisées est de 23 µg m⁻³, alors que la moyenne mesurée est de 43 µg m⁻³. Les résultats montrent que la plus forte sous-estimation est liée à la matière carbonée, avec 2,1 µg.m⁻³ modélisés contre 7,3 mesurés pour OC (soit une sous-estimation d'un facteur 3,5), et une sous-estimation d'un facteur 2 pour EC. La concentration moyenne en sulfate est aussi assez largement sous-estimée, alors que les concentrations moyennes en nitrate et ammonium sont beaucoup plus proches de la valeur mesurée. La corrélation proposée pour les PM₁₀ de 0.48 est plus faible que celle généralement observées avec la dernière version du modèle CHIMERE entre 0.6 et 0.8, notamment celle utilisée en 2009 dans PREV'AIR. Pour les inorganiques (sulfates, nitrates et ammonium), les corrélations mentionnées entre 0.53 et 0.59 correspondent à l'état de l'art.

En ce qui concerne les sources naturelles, les sels marins sont aussi sous-estimés. Les poussières crustales semblent plutôt surestimées, mais il est important de garder à l'esprit que la masse de poussières crustales sur les échantillons a été estimée à partir des mesures de calcium. Un approfondissement de la méthodologie utilisée pour l'estimation de ces contributions pourrait être envisagé.

	Mesure	Modèle	Biais	r
PM ₁₀	43,2	23,0	-20,2	0,48
EC	2,7	1,4	-1,3	0,43
OC	7,3	2,1	-5,2	0,35
SO ₄ ²⁻	3,9	2,4	-1,5	0,53
NO ₃ ⁻	6,9	7,6	0,7	0,59
NH ₄ ⁺	2,8	2,9	0,1	0,59
Salt_mes	4,6	1,0	-3,7	0,39
Dust_mes	2,6	4,3	1,8	0,30

Tableau 2 : Comparaison des résultats de spéciation chimique obtenus par modélisation (version 1 du modèle) et par analyse chimique

L'étude par épisode aura notamment pour objectif d'apporter des précisions sur les lacunes à l'origine de la forte sous-estimation des niveaux de matière carbonée. Toutefois, on observe que la sous-estimation est proportionnellement plus forte sur OC que sur EC, ce qui justifie l'hypothèse de la sous-estimation des sources de combustions de biomasse (ayant pour signature un rapport OC/EC élevé).

4. ANALYSE PAR EPISODES

Cinq périodes ont été identifiées dans le rapport DRC-09-103337-10781A pour la plupart décrites comme des épisodes pertinents pour la modélisation.

Les épisodes ont été simulés avec la « version 1 » du modèle seul le dernier épisode a été simulé avec les « versions 1 et 2 » du modèle. L'annexe 2 détaille les versions 1 et 2 du modèle CHIMERE utilisées pour l'étude.

Ces épisodes ont une durée de dix jours environ, les situations météorologiques synoptiques correspondantes à ces épisodes sont présentées en annexe 3. L'épisode 5 de Janvier 2009 fait l'objet de la section 5 suivante.

4.1 EPISODE 1 : 13 - 24 FEVRIER 2008

Ce premier épisode de particules de l'année 2008 (Figure 1) est dû à la présence d'un anticyclone sur la France occasionnant des inversions de température notamment en début de période. La position de l'anticyclone s'étalant jusqu'au sud-est de l'Europe est propice à des températures relativement douces. Les concentrations moyennes journalières de PM₁₀ atteignent plus de 100 µg.m⁻³ dans la région Lyonnaise et plus de 80 µg.m⁻³ en début de période sur le sud-est du pays. A partir du 18 Février les concentrations deviennent plus importantes sur le Nord du pays notamment à Lens et Rouen.

Le modèle sous-estime nettement les concentrations totales, si les concentrations en nitrate et ammonium sont correctement prédites par le modèle, les concentrations en espèces carbonées, notamment la matière organique et les sulfates sont sous-estimées. Par ailleurs, les concentrations en autres espèces non analysées sont également largement sous-estimées.

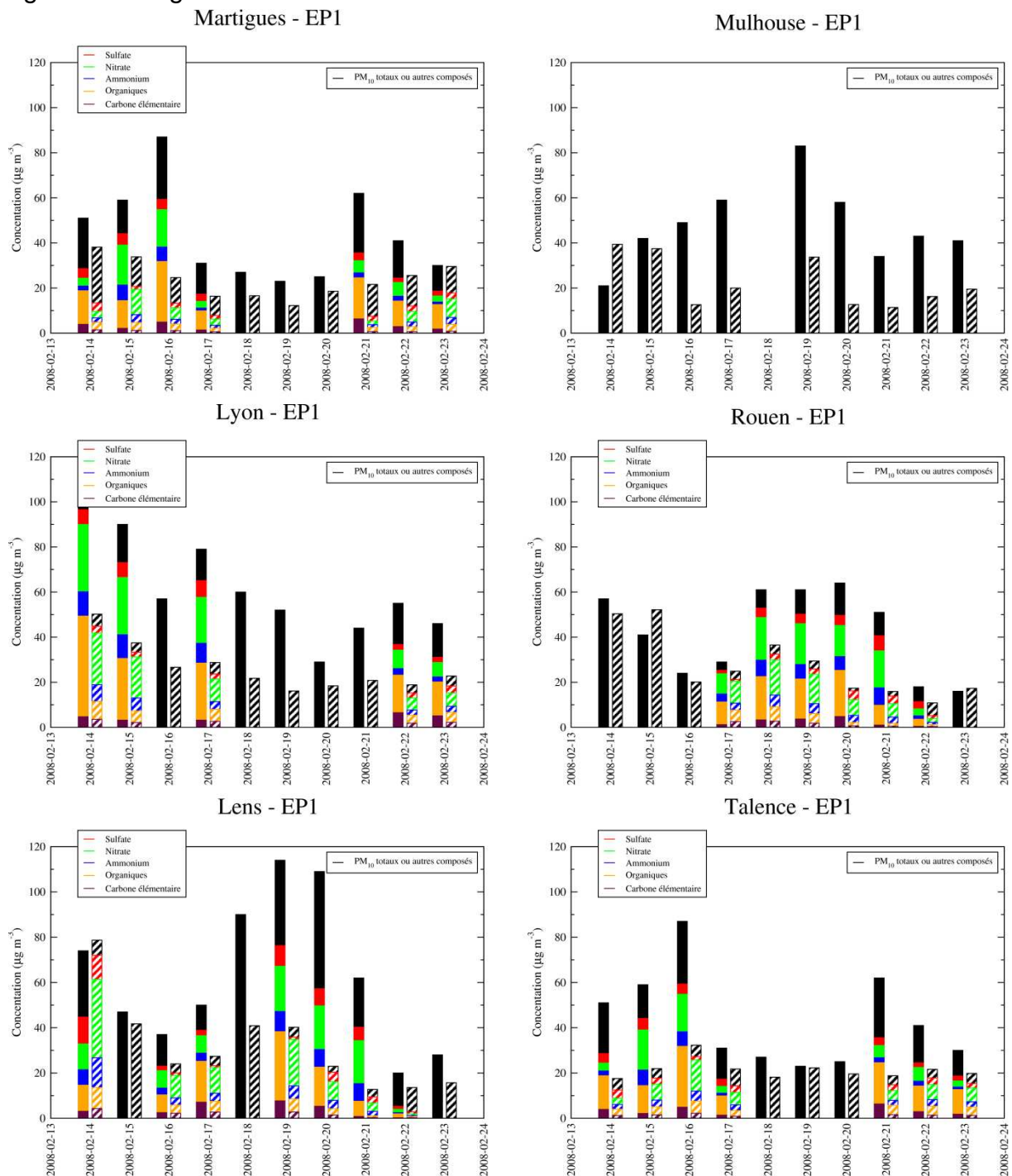


Figure 1 : Evolution des concentrations des espèces constitutives des PM10 lors de l'Episode 1 – Les barres pleines correspondent aux analyses CARA, les barres hachurées sont les résultats du modèle.

4.2 EPISODE 2 : 5 - 14 AVRIL 2008

Cet épisode est caractérisé par un faible anticyclone sur la France laissant passer de faibles perturbations sur la France. Les concentrations en PM10 atteignent les 60 $\mu\text{g}\cdot\text{m}^{-3}$ sur le Nord de la France (Figure 2). Les concentrations augmentent sensiblement en milieu de période sur le nord de la France, le modèle tend à surestimer les concentrations en nitrate d'ammonium alors que les concentrations en espèces carbonées et sulfates sont correctement simulées.

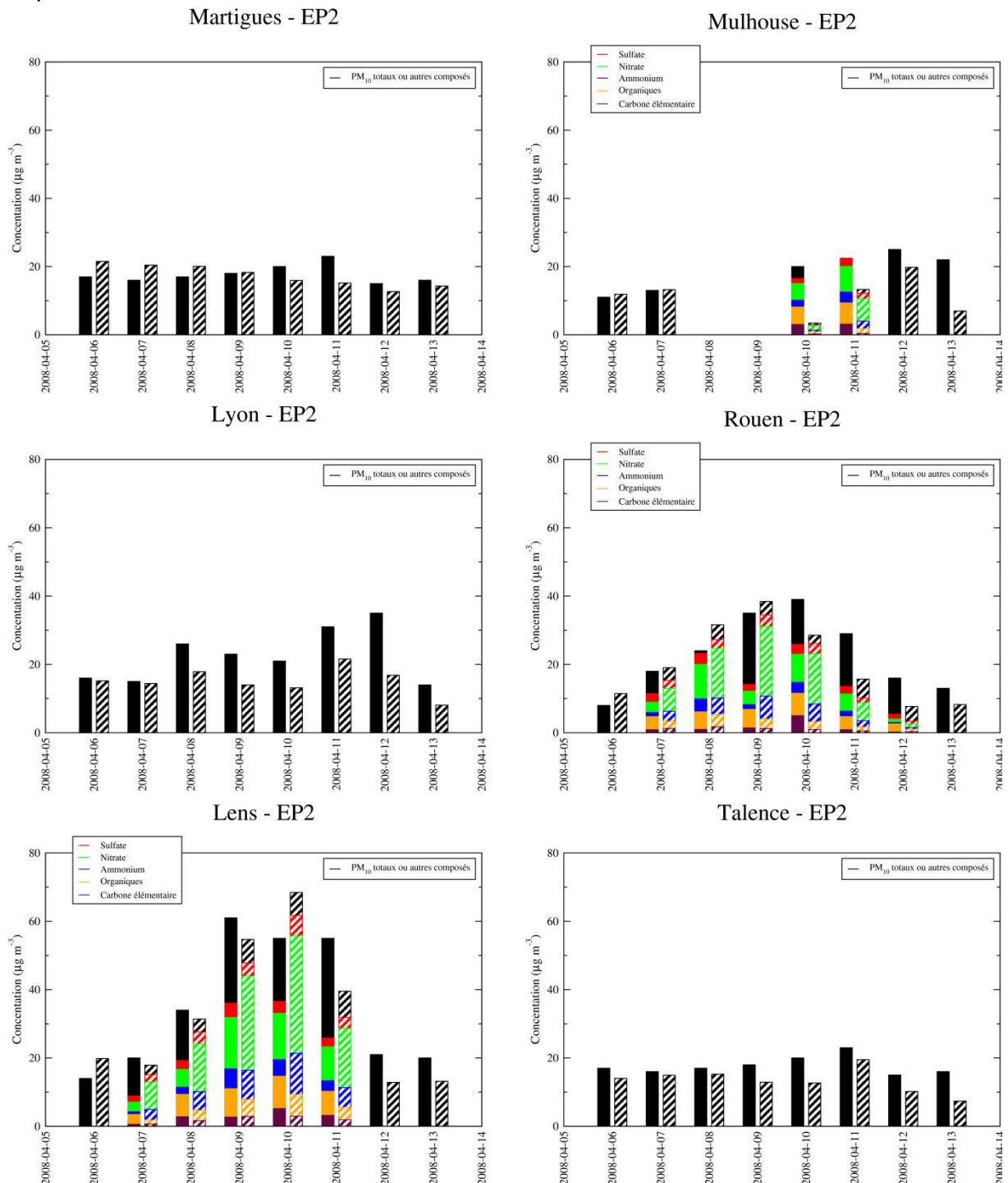


Figure 2 : Evolution des concentrations des espèces constitutives des PM10 lors de l'Episode 2 – Les barres pleines correspondent aux analyses CARA, les barres hachurées sont les résultats du modèle.

4.3 EPISODE 3 : 25 JUIN - 2 JUILLET 2008

Cette période ne constitue pas à proprement parler un épisode de PM, mais l'analyse des filtres de ces journées propose un état de la composition des PM en période estivale. Nous avons pendant cette période un anticyclone sur la France avec des températures normales pour la saison. Le modèle simule correctement l'ensemble des concentrations de chacune des espèces hormis les sulfates dont les concentrations sont sous-estimées (Figure 3). Le nitrate et l'ammonium ont une faible part dans le bilan massique total. Il est à noter une très large sous-estimation de la fraction de PM non analysée, expliquant au final une nette sous-estimation importante des concentrations de PM₁₀. La fraction de matière organique est bien reproduite par le modèle sur l'ensemble des sites, elle est constituée d'une bonne part d'espèces organiques secondaires dans le modèle. Ce point est très encourageant pour les développements récents du modèle concernant la formation des espèces organiques secondaires notamment à partir des COV biotiques.

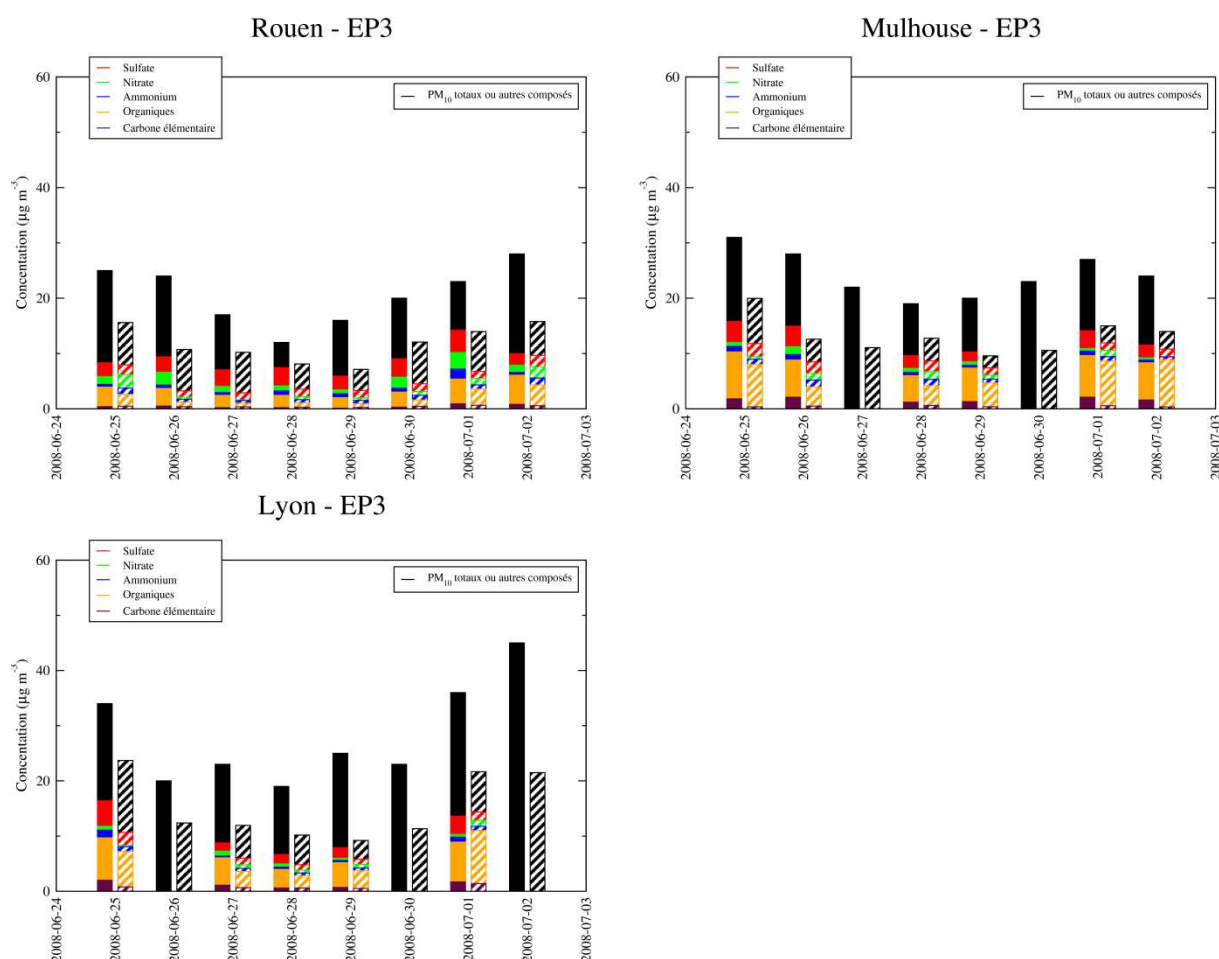


Figure 3 : Evolution des concentrations des espèces constitutives des PM₁₀ lors de l'Episode 3 – Les barres pleines correspondent aux analyses CARA, les barres hachurées sont les résultats du modèle.

La sous-estimation du modèle CHIMERE sur les concentrations en sulfate n'est pas une spécificité de CHIMERE ; pour les sites de fond du réseau MERA (déclinaison du réseau EMEP en France), une légère surestimation est plutôt observée. Ainsi, les sous-estimations observées seraient plutôt imputables à des sources locales mal et/ou non prises en compte.

4.4 EPISODE 4 : 18 - 29 SEPTEMBRE 2008

Cet épisode automnal (Figure 4) est caractérisé par la présence de haute pression sur la France, les concentrations sont relativement élevées notamment en fin de période sur Rouen. Les concentrations en composés identifiés sont assez bien reproduites par le modèle excepté le carbone organique qui est sous-estimé systématiquement. L'essentiel de la sous-estimation provient des concentrations en espèces « autres ». Il est à noter que le modèle ne sous-estime pas systématiquement les concentrations en PM₁₀ à Rouen, l'ordre de grandeur est correct.

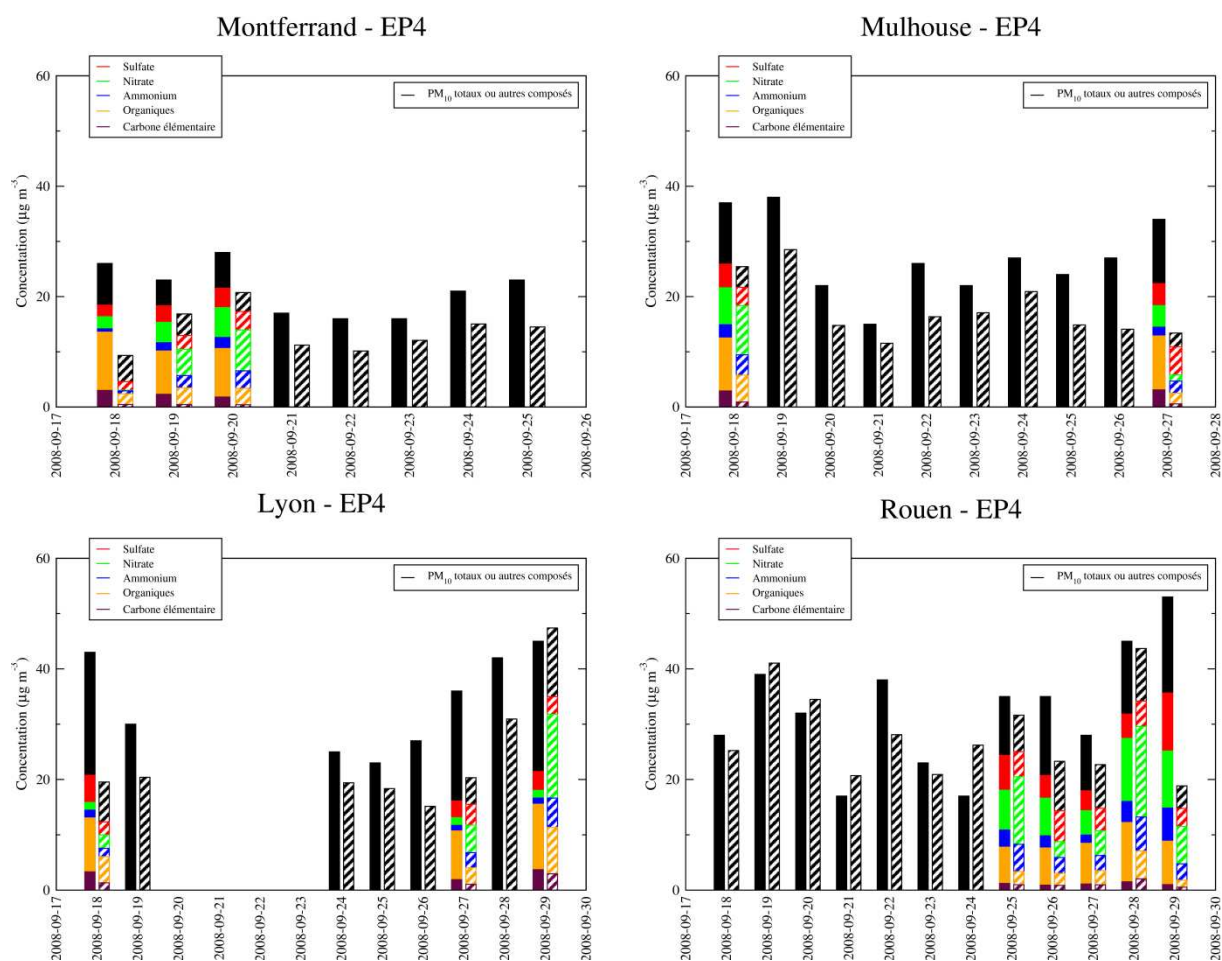


Figure 4 : Evolution des concentrations des espèces constitutives des PM₁₀ lors de l'Episode 4 – Les barres pleines correspondent aux analyses CARA, les barres hachurées sont les résultats du modèle.

5. EPISODE DE JANVIER 2009

5.1 OBSERVATION DE L'EPISODE – PREVISION PREV'AIR

Cet épisode est largement dû à la présence d'un anticyclone hivernal qui a stationné sur la France de fin Décembre 2008 jusqu'à mi-janvier 2009. De très fortes inversions thermiques ont été observées sur les radiosondages disponibles. Il en a résulté des dépassements importants des seuils réglementaires avec de très nombreux dépassements du seuil des $50 \mu\text{g m}^{-3}$ notamment les 10 et 11 Janvier 2009 (

Figure 5) où les concentrations en moyenne journalière dépassaient largement $100 \mu\text{g m}^{-3}$ en région Lyonnaise et en Ile-de-France

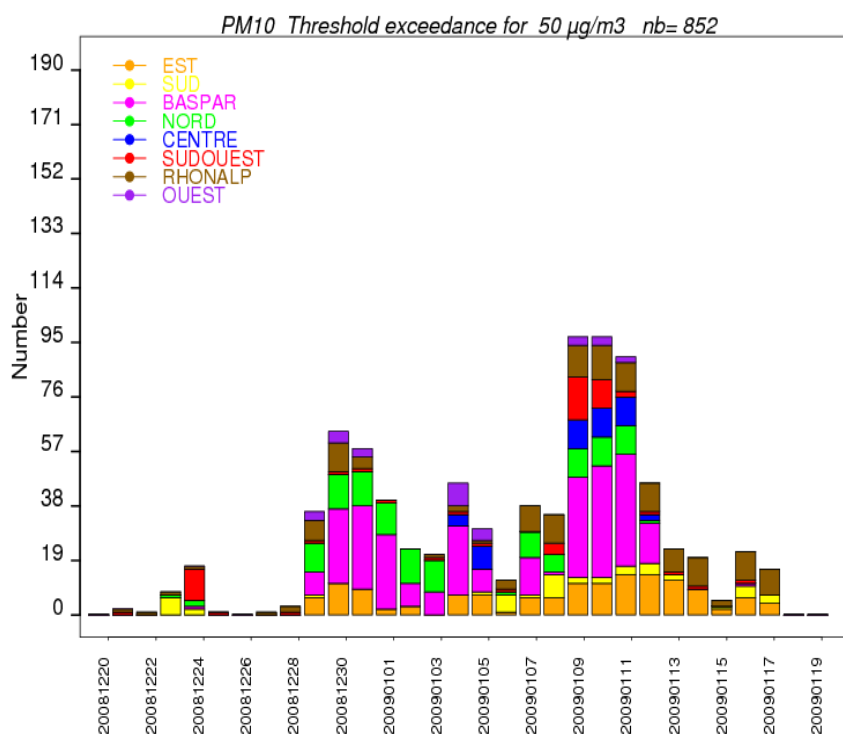


Figure 5: Nombre de dépassement en moyenne journalière du seuil de $50 \mu\text{g m}^{-3}$ pour les concentrations en PM10 observé par les réseaux de mesures.

Le modèle CHIMERE tel qu'utilisé dans PREV'AIR² a globalement sous-estimé cet épisode (Figure 6), avec néanmoins un meilleur comportement en début d'épisode de la version du modèle utilisant les données ARPEGE. Quelque soit le forçage météorologique utilisé (ARPEGE ou GFS), le modèle a sous-estimé largement le paroxysme de l'épisode les 9, 10 et 11 Janvier 2009.

² CHIMERE utilisé dans PREV'AIR utilise les forçages météorologiques américains (GFS) et français (ARPEGE)

En Rhône-Alpes, les concentrations en PM10 restent très fortes du 9 au 13 Janvier 2009. La Figure 7 montre des concentrations en PM10 similaires dans les deux configurations du modèle le 12/01, elles sont largement sous-estimées par rapport aux observations. Les différences entre les deux configurations sur le nord de la France sont dues à un artefact lié à des émissions trop fortes de poussières dans la filière ARPEGE/CHIMERE.

La Figure 7 montre que les concentrations en NO₂ le 12/01 étaient assez proches pour les deux configurations du modèle CHIMERE utilisé dans PREV'AIR. Sur la région Lyonnaise la concentration en NO₂ observée à Lyon (station 20062) est de 137 µg m⁻³ en moyenne journalière alors que le modèle ne simule qu'environ 40 µg m⁻³ dans les deux configurations. Le transport et le mélange vertical ont donc une influence sur les concentrations des polluants. Ce constat sur les concentrations en NO₂ montre que le transport et le mélange vertical pourraient être trop forts dans le modèle lors de cet épisode, ce point sera discuté au paragraphe 6.2.

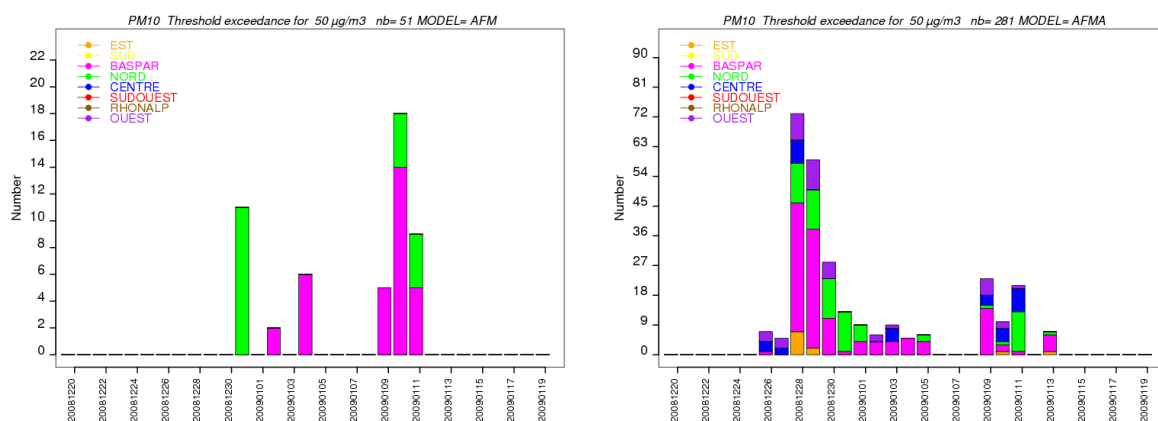


Figure 6 : Nombre de dépassement en moyenne journalière du seuil de 50 µg m⁻³ pour les concentrations en PM10, simulé par PREV'AIR (J+0) avec les données météorologiques Américaines GFS (figure de droite) et les données Françaises ARPEGE (figure de gauche)

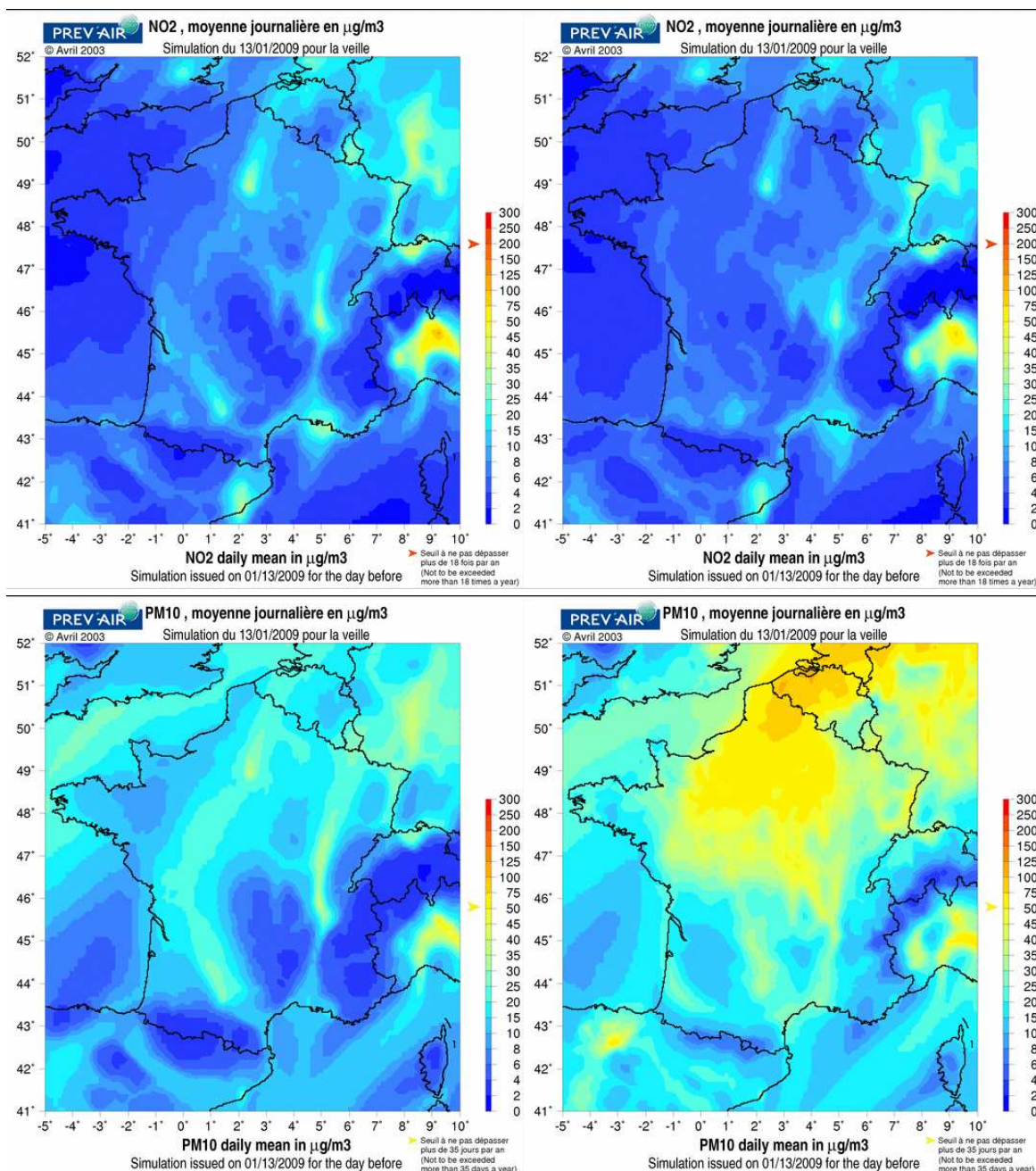


Figure 7 : Concentrations moyennes journalières en NO₂ (en haut) et PM₁₀ (en bas) le 12 Janvier 2009 simulées par CHIMERE dans PREV-AIR (J-1) pour la configuration GFS/CHIMERE (à gauche) et ARPEGE/CHIMERE (à droite)

5.2 OBSERVATION DE L'EPISODE AVEC LE DISPOSITIF CARA

L'épisode a été resimulé avec la « version 1 » du modèle CHIMERE décrite en annexe 2. Il est à noter une très forte sous-estimation des concentrations en PM₁₀ notamment en région Rhône-Alpes. Les concentrations en sulfates, particules « autres » par les analyses et surtout en matière organique sont largement sous-estimées. Les concentrations en carbone élémentaire ont en revanche le bon ordre de grandeur.

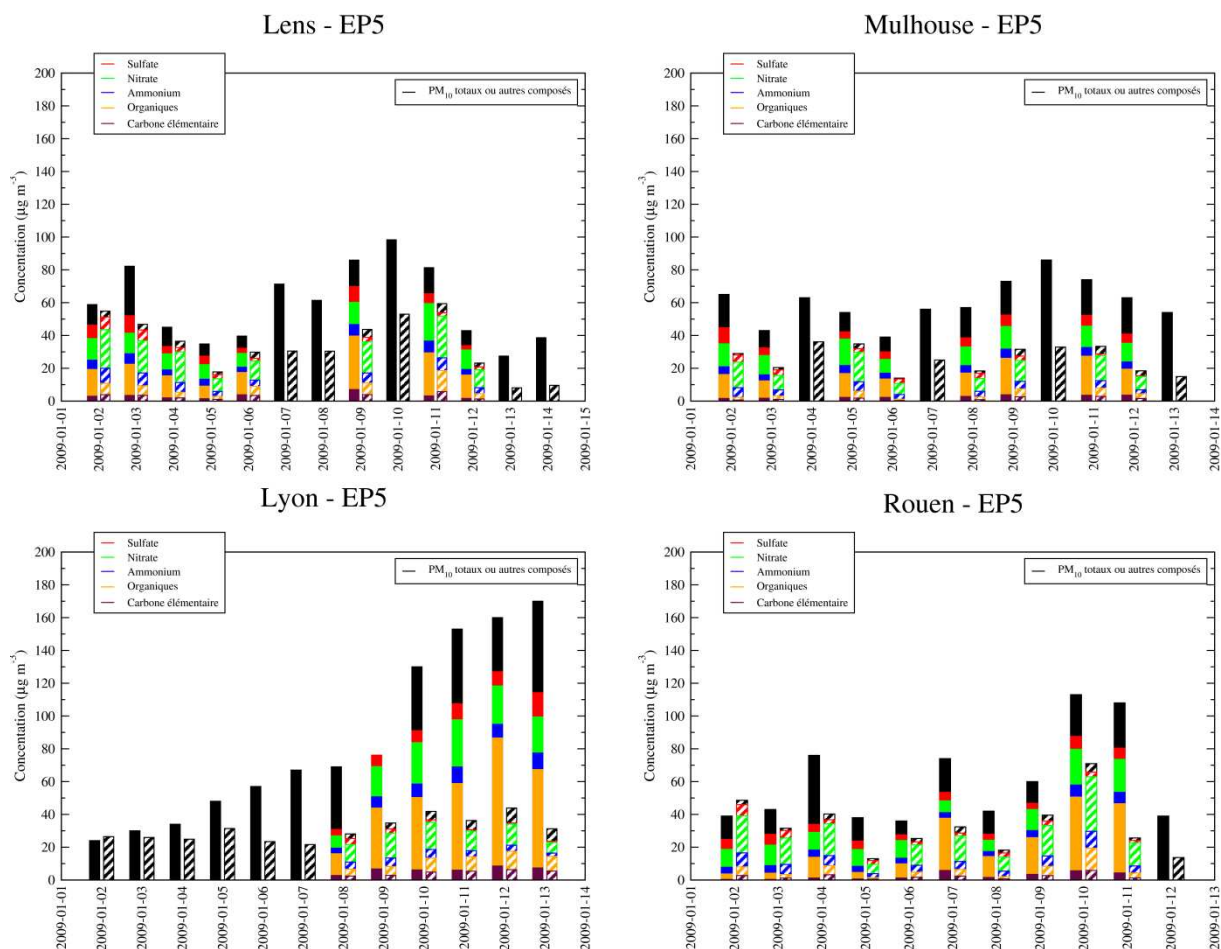


Figure 8 : Evolution des concentrations des espèces constitutives des PM₁₀ lors de l'Episode 5 – Les barres pleines correspondent aux analyses CARA, les barres hachurées sont les résultats du modèle.

5.3 INFLUENCE POTENTIELLE DES SOURCES EXTERIEURES A LA FRANCE

L'épisode 5 a été resimulé avec le modèle CHIMERE dans sa « version 2 » (détaillé en annexe 2) afin d'avoir un inventaire cohérent pour les particules et une météorologie à plus haute résolution. Cette nouvelle simulation n'a pas permis d'avoir de meilleurs résultats néanmoins à partir de cette configuration un scénario en retirant les émissions de la France a permis de voir l'influence des émissions extérieures à la France.

Sur la Figure 9, on constate que la région-Alpes est relativement protégée des émissions extérieures à la France, par contre, le Nord-est est largement soumis aux influences extérieures. En région Parisienne comme en région Lyonnaise la part transfrontière est voisine de 10 à 20% alors qu'elle représente de 60 à 100% en Alsace. Ces résultats sont crédibles dans l'hypothèse sous-jacente que l'inventaire utilisé a un biais homogène sur le domaine.

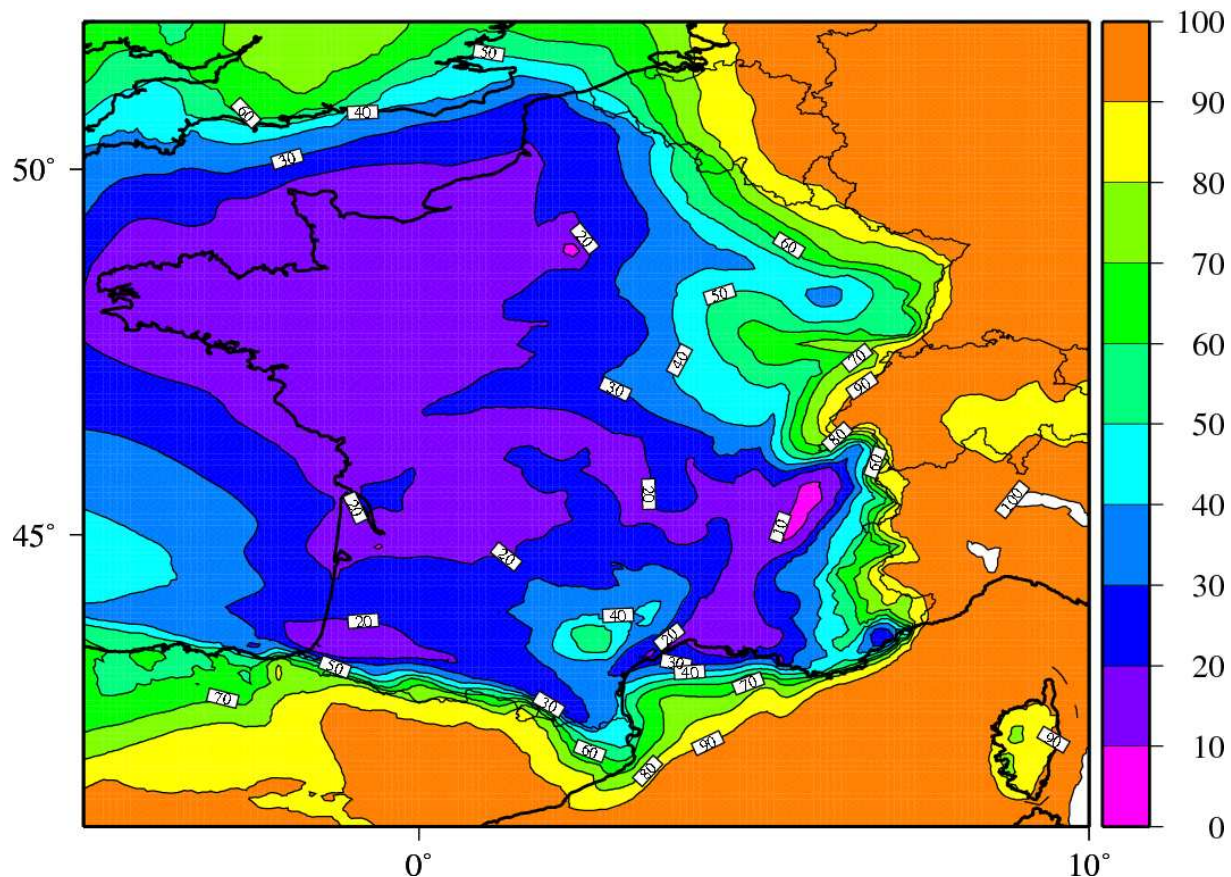


Figure 9 : Contribution (en %) des sources extérieures à la France le 10 Janvier 2009

5.4 EXPLICATION POSSIBLE DE LA SOUS-ESTIMATION DES CONCENTRATIONS DE PM10 LORS DE L'ÉPISODE 5

Les figures précédentes ont montré une très forte sous-estimation des concentrations en NO_2 lors du paroxysme de l'épisode ce qui tend à montrer que le modèle simulait mal le transport et le mélange vertical. Cependant, les concentrations en carbone élémentaire ne semblent pas trop sous-estimées ce qui est contradictoire avec l'hypothèse précédente. Mais, les inventaires de particules étant supposés être moins précis que les inventaires de NO_x , nous pouvons à ce stade diagnostiquer un problème sur le transport et le mélange dans le modèle CHIMERE dans certaines conditions extrêmes de fortes stabilités.

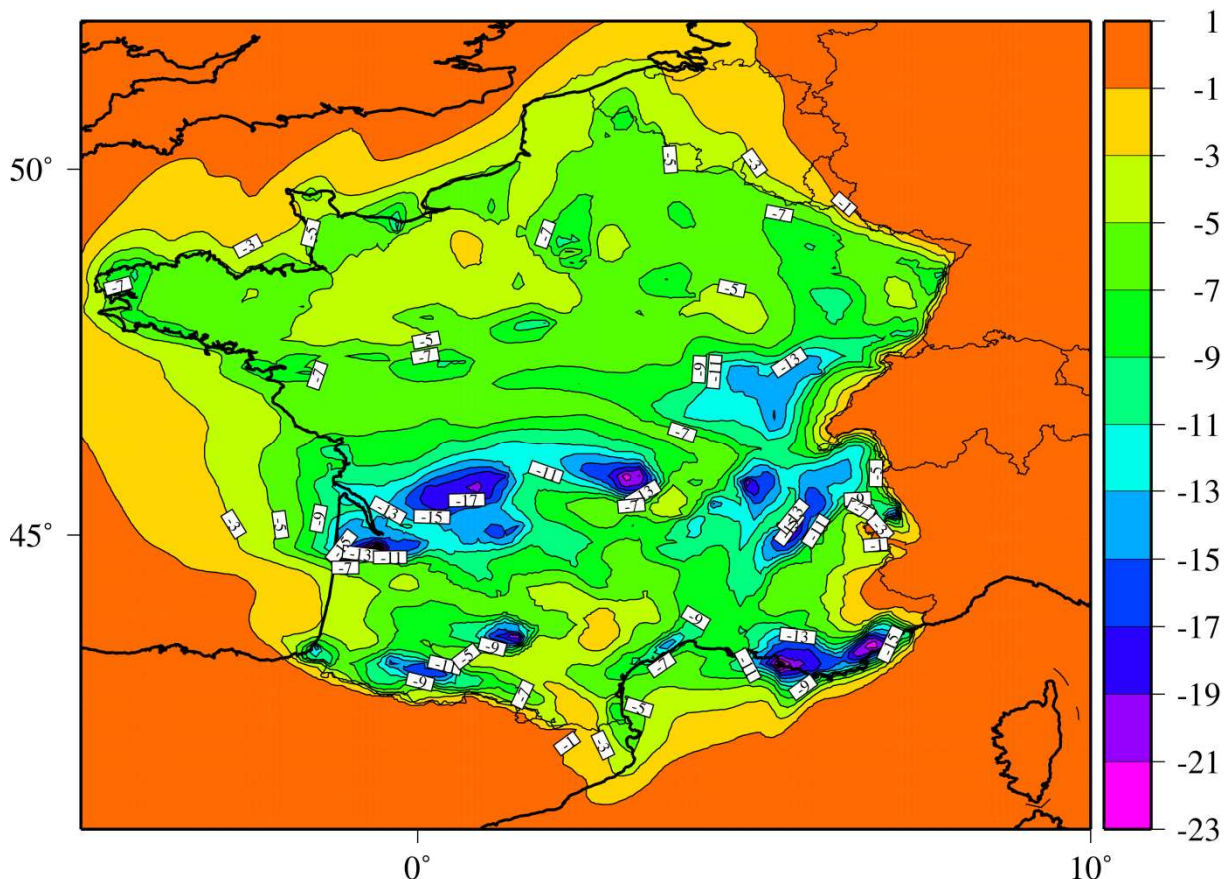
Néanmoins, cette explication ne sera pas suffisante pour expliquer un facteur 5 à 7 sur les concentrations en matière organique. En effet, pour l'ensemble des épisodes étudiés on note une sous-estimation chronique du modèle en concentration de matière organique (voir Tableau 2). Les fortes concentrations en levoglucosan (voir rapport DRC-09-103337-10781A) montrent une contribution significative des émissions issues de la combustion de biomasse. Cette source est donc suspectée d'être mal prise en compte dans les inventaires actuels en étant largement sous-estimée. La sous-estimation de cette source sera d'autant plus importante que les températures seront froides.

Nous reviendrons dans le paragraphe 6 sur les raisons possibles de telles sous-estimations en considérant l'ensemble des résultats de tous les épisodes.

5.5 IMPACT POTENTIEL DU CHAUFFAGE AU BOIS

Un exercice de modélisation consistant à supprimer à partir du 10 Janvier 2009 00:00 les émissions dues à la combustion du bois dans le secteur SNAP2 se référant au chauffage résidentiel tertiaire, permet de représenter l'étendue spatiale de l'importance de cette source. Ce scénario a été bâti à partir des données brutes de l'INS aujourd'hui disponibles (moyennes annuelles non spatialisées). Ainsi ces informations ont été moyennées par département afin d'isoler la combustion du bois de la SNAP2.

On constate Figure 10 que le sud est essentiellement touché par de fortes réductions, dans les grandes villes cette diminution peut atteindre 20%. Cette contribution déjà importante ne prend pas en compte la sous-estimation probable due aux températures très froides pendant la période étudiée.



Il est important de noter que les émissions de PM10 en France du chauffage résidentiel pour cette période là représentent environ 825 ton/jr dont 753 ton/jr de combustion du bois, d'où l'importance de la réduction.

6. SYNTHÈSE DES RESULTATS DE COMPARAISON ENTRE LA MODELISATION ET LES DONNEES CARA

6.1 SOURCES OU ESPECES MANQUANTES

Les différents épisodes étudiés montrent une claire sous-estimation de matière organique alors que les concentrations en carbone élémentaire semblent correctement simulées. Cette sous-estimation a lieu principalement l'hiver ce qui tend à accréditer la thèse d'une forte sous-estimation des émissions de combustion du bois évoquée dans le rapport DRC-09-103337-10781A à partir des mesures de levoglucosan. Cette sous-estimation pourrait avoir deux origines :

- Une sous-estimation de l'inventaire d'émission par défaut d'émissions de combustion de bois ;
- Un profil temporel d'émission trop lisse ne permettant pas de correctement redistribuer les émissions annuelles pendant les périodes froides.

Ces problèmes ont été soulevés par Simpson et al. (2007) et Bessagnet et al. (2009) à l'échelle de l'Europe. L'exercice POMI³ de modélisation dans la vallée du Pô a permis d'observer les mêmes lacunes d'un ensemble de modèles européens appliqués à l'échelle locale.

Une forte sous-estimation du modèle est également visible pour les espèces « autres » qui pourrait regrouper des espèces minérales d'origines anthropique et naturelle. Il existe un léger biais négatif du modèle pour le couple « poussières et sels marins » néanmoins l'essentiel de la sous-estimation semble avoir une autre origine. Différentes explications sont envisagées :

- Une certaine quantité d'eau subsisterait dans les mesures augmentant artificiellement les concentrations en PM10.
- Les sources de particules primaires anthropiques non-carbonées seraient mal prises en compte dans les inventaires d'émission.
- Le facteur de conversion pour obtenir la masse de matière organique serait très largement supérieur à 1.6 ($OM = 1.6 \times OC$)

La resuspension (dirigée par les paramètres météorologiques) telle que prise en compte dans le modèle CHIMERE n'est probablement un facteur essentiel sur les épisodes car ils surviennent par temps calme, néanmoins, ce processus est probablement important sur les niveaux de fond et les moyennes. La resuspension par les véhicules qui n'est pas prise en compte par le modèle ainsi que dans les inventaires pourrait avoir un rôle important notamment l'été lors des épisodes.

³ POMI est un exercice d'intercomparaison de modèles de chimie transport (coordonné par le JRC) sur la vallée du Pô permettant d'analyser les réponses à des scénarios de réduction d'émissions :

<http://aqm.jrc.ec.europa.eu/POMI>

6.2 METEOROLOGIE

La météorologie est d'une grande importance en période de forte stabilité pour le calcul des concentrations de polluants primaires, la modélisation des concentrations de NO_x en Janvier 2009 montre que des incertitudes de modélisation dans le transport et la diffusion verticale pouvait être responsable des sous-estimations du modèle. Nous rappelons ici que le pré-processeur de CHIMERE diagnostique certains paramètres météorologiques, notamment la diffusion verticale.

- *La diffusion verticale*

La formulation de la diffusion utilisée est celle de Troen and Mahrt (1986). Dans chaque colonne du modèle, la diffusivité $K(z)$ s'écrit:

$$K_z = kw_s z (1 - z/h)^{1/3}$$

où w_s est donnée par la formule:

- dans les conditions stables (flux de chaleur sensible < 0):

$$w_s = u_* / (1 + 4.7z/L)$$

- dans les cas instables : $w_s = (u_*^3 + 2.8ew_*^3)^{1/3}$

où $e = \max(0.1, z/h)$, L est la longueur de Monin Obukhov, w_* est la vitesse convective d'échelle, u_* la vitesse de friction et h la hauteur de couche limite. Enfin, un K_z minimal est imposé à une valeur seuil de $0.1 \text{ m}^2/\text{s}$. Cette dernière caractéristique est critique dans des cas de fortes stabilités comme en Janvier 2009 où fréquemment la diffusion turbulente dans CHIMERE a été limitée à cette valeur de $0.1 \text{ m}^2/\text{s}$, alors qu'elle était probablement plus basse.

Outre cette valeur minimale de K_z , c'est la paramétrisation même de Troen and Mahrt (1986) qui pourrait être remise en cause, un calcul plus juste pourrait en effet être réalisé à partir de certaines variables météorologiques issues de WRF⁴ (modèle météorologique) ou MM5.

- *La hauteur de couche limite*

Les problèmes de simulation de concentrations peuvent directement être liés au calcul de la hauteur de couche limite (Figure 11) qui est parfois surestimée dans le modèle engendrant une trop grande dispersion des polluants et une sous-estimation des concentrations.

La Figure 11 montre également les différences qui peuvent exister entre les modèles WRF et MM5 pour le calcul de la hauteur de couche limite, le modèle WRF semble donner des hauteurs de couche limite plus faibles lors de l'épisode.

⁴ WRF est un modèle météorologique développé aux Etats-Unis et remplaçant le modèle MM5, c'est un modèle de référence pour la prévision et la simulation en météorologie.

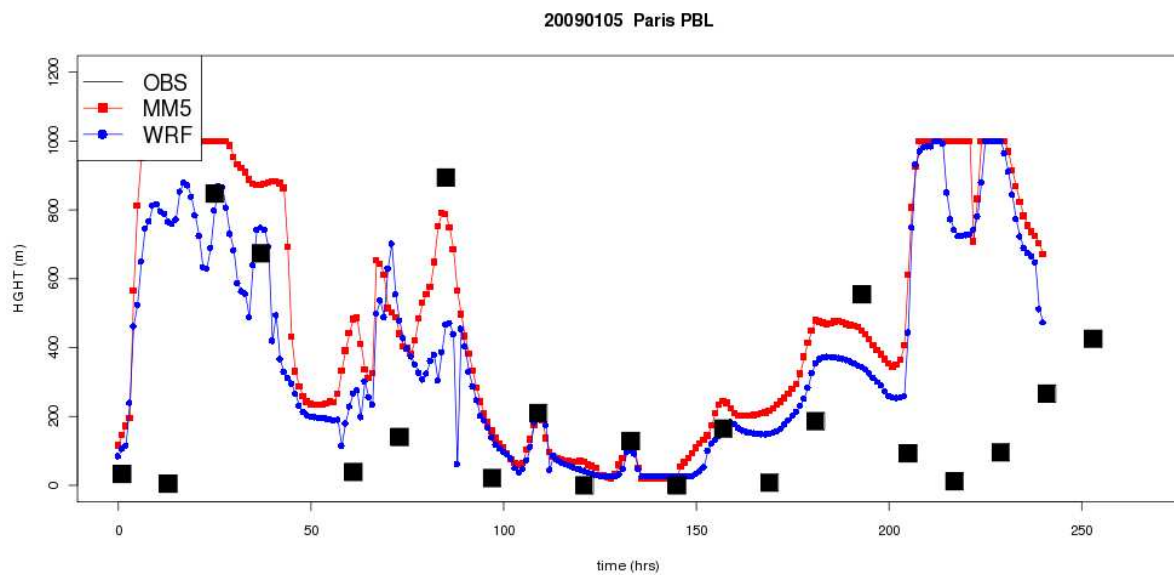
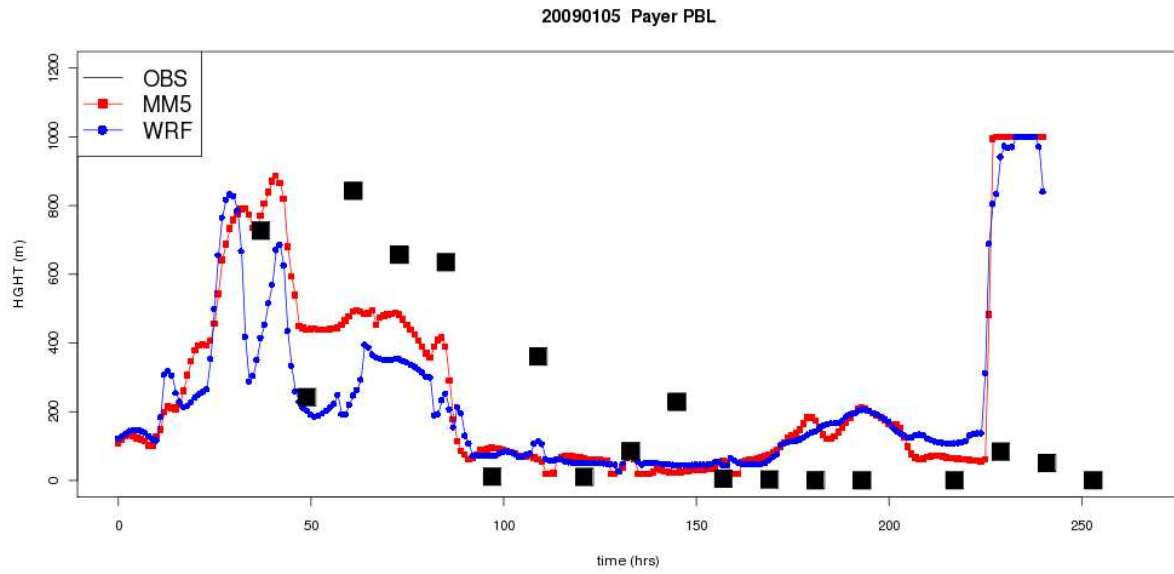


Figure 11 : Evolution de la hauteur de couche limite à Payerne en Suisse (en haut) et Paris (en bas) à partir du 5 Janvier 2009 00 :00 (et jusqu'au 15 Janvier 2009 00 :00) observée (carrés noirs) et simulée par MM5/CHIMERE et WRF/CHIMERE.

7. CONCLUSION

Les analyses CARA ont permis de montrer que :

- Les concentrations en sulfates sont globalement sous-estimées surtout durant l'été,
- Les concentrations en nitrates et l'ammonium sont correctement simulées mais semblent parfois surestimées,
- Les concentrations en matière organique sont nettement sous-estimées essentiellement l'hiver,
- Les concentrations en carbone élémentaire sont légèrement sous-estimées,
- Les « autres » espèces sont largement sous-estimées par le modèle.

La sous-estimation de la production de sulfates provient essentiellement d'une sous-production par chimie gazeuse l'été. La sous-estimation chronique du modèle en matière organique pourrait être liée à une source manquante ou mal redistribuée temporellement comme la combustion du bois. Les « autres » espèces pourraient être mal représentées dans les inventaires utilisés, il s'agirait de particules primaires non carbonées émises par les activités humaines.

Cette première analyse montre la prudence avec laquelle il faut interpréter les données, les explications pouvant venir de nombreux processus simultanément. En 2010 certains des épisodes de 2009 seront à nouveau étudiés en considérant les aspects **météorologie et émissions**. Avant de régler le problème des émissions, un travail sur les simulations météorologiques sera réalisé et seulement ensuite, un travail sur les émissions sera effectué pour mieux caler les émissions de combustion de bois et suivre la part de ces émissions dans le bilan des particules prélevées et analysées. Un travail particulier sur les profils temporels d'émission sera réalisé en collaboration avec les AASQA. Bien que l'essentiel du travail soit réalisé sur des échantillons typiques de certaines régions, ce travail devra être extrapolable au plan national.

Une évolution du système de mesure et d'analyse CARA sera envisagée dans le sens suivant:

- Mesures des couples **Nitrate/Acide nitrique** et **Ammonium/Ammoniaque** en gardant une veille sur les mesures de concentrations de ces espèces ;
- Avoir un ou deux points de mesures avec à la fois des analyses sur filtre des PM_{2,5} et des PM₁₀ en privilégiant un site de fond suburbain voire rural, ceci permettant de voir si la sous-estimation des composés « autres » existe aussi dans la fraction fine des PM ;
- Avoir un site de mesures permettant d'évaluer les concentrations de fond de poussières naturelles, ce site devrait être situé près des zones de terres arables.

8. REFERENCES

- Bessagnet, B., Hodzic A., Vautard R., Beekmann M., Cheinet S., Honoré C., Liousse C., Rouïl L., (2004) Aerosol modeling with CHIMERE - Preliminary evaluation at the continental scale, *Atmospheric Environment*, 38, 2803-2817.
- Bessagnet, B., Menut, L., Curci, G., Hodzic, A., Guillaume, B., Liousse, C., Moukhtar, S., Pun, B., Seigneur, C., Schulz, M., 2009. Regional modelling of carbonaceous aerosols over Europe - Focus on secondary organic aerosols. *J. Atmos. Chem.* 61 (3), 175-202, doi:10.1007/s10874-009-9129-2.
- Cheinet, S., 2002. The parameterization of clear and cloudy convective boundary layer. Doctoral Thesis, Ecole Polytechnique, Palaiseau, France.
- Dudhia, J., 1993: A nonhydrostatic version of the Penn State/NCAR mesoscale model: Validation tests and simulation of an Atlantic cyclone and clod front. *Mon. Wea. Rev.*, 121, 1493-1513.
- Ginoux, P., Chin, M., Tegen, I., Prospero, J. M., Holben, B., Dubovik, O., and Lin, S.-J., 2001: Sources and distributions of dust aerosols simulated with the GOCART model. *J. Geophys. Res.*, 106, 20255-20273.
- Guillaume B. and Liousse C. (2006) Development of a new Black carbon and Organic carbon emission inventory from Fossil Fuel and BioFuel sources over Europe - Zoom on road-traffic at European and regional scales, submitted to *Journal of Geophysical Research*.
- Hodzic, A., Bessagnet, B., Vautard, R., 2006, A model evaluation of coarse-mode nitrate heterogeneous formation on dust particles, *Atmospheric Environment*, 40, 22, 4158-4171.
- Hov, O., Stordal, F., Eliassen, A., 1985. Photochemical oxidant control strategies in Europe : a 19 day case study using a lagrangian model with chemistry. NILU TR5/95.
- Lattuati, M. 1997. Impact des émissions européennes sur le bilan d'ozone troposphérique à l'interface de l'Europe et de l'Atlantique Nord : apport de la modélisation lagrangienne et des mesures en altitude. Doctoral thesis. Université P&M Curie, Paris.
- Madronich, S., Flocke, S., 1998 The role of solar radiation in atmospheric chemistry. In : Boule, P (Ed.) *Handbook of Environmental chemistry*. Springer, Heidelberg, pp. 1-26.
- Monahan, E. C., Spiel, D. E., Davidson, K. L. (1986) A model of marine aerosol generation via whitecaps and wave disruption, *Oceanic Whitecaps and Their role in Air-Sea exchange Processes*, Reidel, Norwell, Mass., pp 167-174.
- Nenes, A., Pilinis, C., Pandis, S.N. (1998) ISORROPIA: A New Thermodynamic Model for Multiphase Multicomponent Inorganic Aerosols, *Aquat. Geochem.*, 4, 123-152.
- Schmidt, H., Derognat, C., Vautard, R., Beekmann, M., 2001. A comparison of simulated and observed ozone mixing ratios for the summer of 1998 in Western Europe. *Atmospheric Environment*, 35. 6277-6297.
- Simpson, D., Yttri, K.E., Klimont, Z., Kupiainen, K., Caseiro, A., Gelencsér, A., Pio, C., Puxbaum, H., Legrand, M.: 2007, Modeling carbonaceous aerosol over Europe: Analysis of the CARBOSOL and EMEP EC/OC campaigns. *J. Geophys. Res.* 112. DOI 10.1029/2006JD008158.

- Troen, I., Mahrt, L., 1986. A simple model of the atmospheric boundary layer : sensitivity to surface evaporation. *Bound. Layer Meteorol.*, 37, 129-148.
- Vautard, R., Beekmann, M., Roux, J., Gombert, D., 2001. Validation of a hybrid forecasting system for the ozone concentrations over the Paris area. *Atmospheric Environment*, 35, 2449-2461.
- Vautard, R., Martin, D., Beekmann, M., Drobinski, P., Friedrich, R., Jaubertie, A., Kley, D., Lattuati, M., Moral, P., Neininger, B., Theloke, J., 2003 Paris emission inventory diagnostics from ESQUIF airborne measurements and a chemistry transport model. *Journal of Geophysical Research* 108, No. D17.
- Vautard, R., Bessagnet, B., Chin, M., Menut, L., 2005 On the contribution of natural Aeolian sources to particulate matter concentrations in Europe : Testing hypotheses with a modelling approach. *Atmospheric Environment*, 39, 3291-3303.
- Vestreng, V.(2003) EMEP/MSC-W Technical report. Review and Revision. Emission data reported to CLRTAP. MSC-W Status Report 2003. EMEP/MSC-W Note 1/2003. ISSN 0804-2446.
- Warren, D. R., 1986. Nucleation and growth of aerosols. Thesis of the California Institute of Technology. Pasadena.

9. LISTE DES ANNEXES

Référence	Désignation	Nombre de pages
Annexe 1	Fiche descriptive de l'étude CARA	5
Annexe 2	Modélisation avec CHIMERE	2
Annexe 3	Situations météorologiques synoptiques pour chaque épisode	3

ANNEXE 1

Fiche descriptive de l'étude CARA

THEME 3 : Métrologie – Métrologie des particules PM₁₀ et PM_{2.5}

ETUDE N° 3/3 : DISPOSITIF CARA CARACTERISATION CHIMIQUE DES PARTICULES

Responsable de l'étude : INERIS

Contexte et objectif

Le besoin de développer au plan national la spéciation chimique des PM est lié à plusieurs problématiques :

1 - Besoin de compréhension des niveaux observés

La prise en compte, depuis le 1^{er} janvier 2007, de la fraction volatile des PM dans la surveillance réglementaire a engendré un saut des concentrations de PM, pouvant être accentué lors des situations de fortes concentrations. Parallèlement, le besoin de compréhension et de communication sur l'origine de ces pics a fortement augmenté. Le LCSQA a donc été chargé d'organiser un dispositif de caractérisation chimique des PM, appelé **CARA**. Ce dispositif a pour objectif de contribuer à apporter des informations sur l'origine des PM, en situation de fortes concentrations ou d'autres situations d'intérêts. Il est important de noter qu'il ne s'agit pas d'une étude quantitative des sources de particules.

2 – Besoins liés à la nouvelle directive

La nouvelle directive européenne prévoit la mesure de la composition chimique des PM sur plusieurs sites ruraux en France. Il est donc nécessaire de développer une méthodologie complète, et judicieuse que cette méthodologie soit cohérente avec la spéciation réalisée en sites urbains dans le cadre de CARA, et plus généralement avec les méthodes développées à l'échelle européenne. Un travail normatif débutera sur ce thème courant 2009.

Les objectifs de cette étude sont donc de :

- Développer une méthodologie robuste de spéciation chimique des PM, applicable sur des sites urbains et ruraux.
- Mettre en œuvre cette méthodologie sur quelques sites en France métropolitaine (collaboration avec les AASQA), en vue de réaliser une spéciation chimique des particules sur une sélection de ces échantillons (épisodes de forte pollution ou situations de fond d'intérêt), et de diffuser les résultats.

3 – Veille sur les études de source

Si la spéciation chimique telle que réalisée ici apportera des éléments très importants quant à la compréhension de l'origine des PM, une approche quantitative des contributions des différentes sources est plus complexe.

Les futurs enjeux de la surveillance de la qualité de l'air, en particulier les possibles objectifs de réduction de l'Indice d'Exposition Moyenne au PM_{2,5}, nécessiteront pourtant probablement ce type d'approche.

Il est donc proposé, en complément du dispositif CARA, de suivre les projets de recherche visant à définir l'origine des particules, notamment en milieu urbain, qui doivent se dérouler dans les prochaines années en France.

Travaux antérieurs

En cours d'année 2007, la commission de suivi "Surveillance des particules en suspension " a demandé à ce qu'une action soit engagée pour permettre l'étude des épisodes de concentrations importantes de particules. Le LCSQA a donc développé un dispositif de prélèvement de PM₁₀ sur filtres, organisé la collecte et l'analyse de ces filtres (composants majeurs des aérosols tels que décrit dans la nouvelle directive européenne pour la spéciation des PM_{2.5} en zone rurale), et exploité ces résultats, notamment par le biais de la modélisation.

L'ensemble de ces actions a été finalisé à la fin de l'année 2007, et le dispositif est entré en fonction au 1^{er} janvier 2008. Le choix des sites, devant être revu chaque année, a été validé à la suite de discussions entre les représentants des AASQA au CPT, le MEDAD, l'ADEME et le LCSQA. L'organisation retenue pour 2008 était la suivante :

- **3 sites « continus » : Lyon, Mulhouse, Rouen**, sur lesquels des prélèvements sont réalisés tout au long de l'année 2008.
- **6 sites « non continus » : Bordeaux, Lens, Rennes, Marseille, Clermont-Ferrand, La Mède** sur lesquels des prélèvements seront réalisés selon les possibilités et besoins des AASQA.

En pratique, le LCSQA met à disposition les filtres nécessaires et prend en charge le rapatriement et l'analyse des échantillons. Concernant la sélection des échantillons à analyser, le choix est opéré par le LCSQA sur les filtres non utilisés par l'AASQA pour ses propres besoins d'analyses de HAP. Les situations privilégiées pour effectuer les analyses sont :

- En priorité les épisodes de pointes de pollution (compte tenu de l'hétérogénéité des amplitudes et durées des épisodes, il n'est pas possible de définir un seuil de concentration à partir duquel les analyses seraient systématiques)
- D'autres épisodes d'intérêt (situations où les résultats de la modélisation ne sont pas en accord avec les valeurs mesurées et autres situations où des questions peuvent se poser sur les sources).

Il est à noter que les échantillons sont rapatriés tous les 3 mois environ, ce qui exclut des analyses rapides systématiques en cas d'événement.

Travaux proposés pour 2009

Les travaux proposés en 2009 visent à assurer une continuité du dispositif, une optimisation de la méthodologie et à poursuivre la veille sur les méthodes de détermination plus quantitatives des sources de PM.

La proposition initiale prévoyait, en 2010, un bilan de cette étude, basé sur l'ensemble des données accumulées en 2008 et 2009, pour adapter la suite à donner à ces travaux, en fonction des objectifs fixés par l'ensemble de la communauté de la surveillance de la qualité de l'air (continuité, format, espèces chimiques ciblées...).

Il a été demandé que ce bilan se fasse plus rapidement, courant 2009, afin de préparer des éléments de base pour une réflexion sur ces points lors d'un séminaire LCSQA à l'automne 2009. Notons que la préparation de ce premier bilan n'est pas triviale, du fait de la complexité de l'interprétation des données accumulées.

Il est donc proposé pour 2009 :

- d'assurer la continuité du dispositif, en fonction des réponses à l'appel à collaboration lancé en octobre 2008,
- de réaliser un bilan, préparatoire au séminaire LCSQA de l'automne 2009, à partir des résultats de mesures disponibles,
- de continuer les travaux sur le développement de la méthode de mesure,
- de continuer la veille sur les études quantitatives de source de particules,
- d'organiser un séminaire à l'automne 2009 sur la composition chimique des particules.

Continuité du dispositif

Le choix des sites, parmi ceux proposés par les AASQA volontaires, devra être opéré en Commission de Suivi "Surveillance des particules en suspension". Tout comme en 2008, des sites "non continus" peuvent être retenus, mais une ossature composée de quelques sites continus sur des sites de référence dispersés en France est préférable afin de faciliter le fonctionnement général du dispositif (depuis l'organisation à l'interprétation des résultats).

L'année 2008 a été une année de lancement de cette étude, qui a permis de répondre à des questions de faisabilité de mise en place du dispositif, de protocoles, et de prise en main de techniques analytiques (en particulier la mesure de EC et OC).

Liens avec la modélisation

Le lien avec la modélisation se situe à deux niveaux : lors du choix des échantillons à analyser, puis lors de l'interprétation des résultats :

Le choix des échantillons à analyser est ainsi, dans la mesure du possible, guidé par la modélisation afin de focaliser sur certains épisodes de forte pollution ou situations de fond d'intérêt. Il est proposé de continuer cette interaction en 2009.

Pour la partie consacrée à l'interprétation, les résultats de spéciation chimique obtenus par la mesure seront confrontés directement aux résultats de modélisation, afin :

- de mieux comprendre les éventuels écarts avec les observations (identification plus précise d'une, ou de plusieurs, espèce(s) chimique à l'origine du désaccord, lien avec le modèle en lui-même ou avec les cadastres des émissions, etc.)

- d'apporter des informations complémentaires à l'interprétation directe des données de spéciation chimique sur les sources de particules à l'origine des niveaux de PM observés.

Bilan sur le potentiel et les limites du dispositif CARA

Il est proposé que ce bilan soit focalisé sur l'interprétation des données 2008 (interprétation directe et couplée à la modélisation), et de réaliser un premier bilan sur les informations apportées ou non par le dispositif dans sa configuration actuelle. L'objectif est de donner les éléments de base à chacun pour définir l'orientation à donner à ce dispositif à partir de 2010. Ce document devra être disponible à la fin du premier semestre 2009.

Méthodologie / Mise en œuvre technique du dispositif

La mise en place s'est déroulée de manière assez satisfaisante sur l'année 2008. Un point important est que le prélèvement soit effectué dans des conditions de température proches de 20°C, afin de ne pas volatiliser les espèces chimiques sensibles à ce phénomène, de même que les conditions de transport et stockage des filtres doit être contrôlé.

Il apparaît que le maintien à 20°C de la température à l'intérieur des stations de mesure est assez difficile à réaliser, et que le transport à une température inférieure à 4°C est très coûteux. Il est donc proposé de tester l'influence de la température d'échantillonnage et lors du transport et stockage des échantillons.

Concernant la température de prélèvement, il est proposé de réaliser des prélèvements parallèles à deux températures différentes. Pour le transport et le stockage, il est proposé de conserver les portions de filtres à des températures différentes. Ces portions de filtres seront analysées à des temps différents, depuis quelques jours jusqu'à quelques mois.

L'influence sur les espèces volatiles (nitrates d'ammonium et espèces organiques) pourra ainsi être étudiée, et les protocoles de prélèvement et transport adaptés, le cas échéant. Les mêmes tests étant prévus pour l'étude des HAP, une mise en œuvre commune est proposée dans la mesure du possible.

Méthodologie / Analyse de EC et OC

La méthode d'analyse de EC et OC n'est pas encore fixée, mais des travaux de normalisation vont débuter. Cette normalisation s'appuiera notamment sur les résultats du programme européen EUSAAR, dont un objectif est de mettre au point une méthode robuste permettant d'envisager des mesures homogènes en Europe. De plus, il est possible que le JRC organise une intercomparaison européenne sur ce type d'analyse.

Il est donc proposé de suivre les travaux européens réalisés dans le cadre d'EUSAAR, et de participer aux éventuelles intercomparaisons qui seront organisées.

Veille sur les études de sources

Le LCSQA propose d'assurer des liens avec les projets de recherche basés sur des sites multi-instrumentés, futurs ou en cours, afin de profiter des synergies entre les différents travaux et de mutualiser les efforts. Cette approche permettra aussi de proposer un retour d'information à l'ensemble de la communauté de la surveillance de la qualité de l'air sur ces travaux de recherche : ils sont en effet généralement présentés comme d'intérêt à terme pour la surveillance opérationnelle.

En particulier, l'un des objectifs du projet FORMES, (Fraction Organique de l'aérosol urbain : Méthodologie d'Estimation des Sources), financé dans le cadre de Primequal 2 est de proposer une méthodologie simplifiée d'étude des sources de PM, opérationnelle pour une large gamme de sites urbains. Un rapprochement avec les AASQA partenaires et les coordinateurs du projet permettra de suivre l'avancement des travaux et éventuellement de participer à la campagne de terrain prévue en 2009 à Grenoble (implication déjà prévue dans le cadre de l'étude sur les particules submicroniques).

Le suivi, d'autres projets pourra être étudiée au cas par cas, et notamment sur proposition des AASQA impliquées, en fonction de l'objectif du projet et de la synergie pouvant être dégagée d'une participation du LCSQA.

Par ailleurs, et afin de renforcer l'étude de source initiée dans le cadre de CARA (à l'aide d'outils simple à mettre en œuvre par rapports aux projets de recherche mentionnés ci-dessus), il est proposé de continuer une veille sur les traceurs de sources non ambiguës permettant d'avoir, par une approche méthodologique simple, des informations plus précises sur des sources de PM d'intérêt, au travers des actions suivantes :

- renforcer les interactions avec l'étude des traceurs de combustion de biomasse (type lévoglucosan) de l'étude HAP. Les éventuelles analyses de lévoglucosan seront prises en charge dans le cadre de l'étude HAP.
- réaliser une bibliographie sur l'apport, en terme d'étude des sources, de mesures de carbone 14 (^{14}C , traceur non ambiguë des combustions d'énergie fossile), et, dans la mesure du possible, tester, sur une sélection d'échantillons ciblés, ce type d'analyses, très prometteur. Un premier retour de faisabilité (coût, contraintes) sera réalisé.

Renseignements synthétiques

Titre de l'étude		Dispositif CARA : caractérisation chimique des particules	
Personne responsable de l'étude		G. Aymoz, B. Bessagnet	
Travaux	Pérennes		
Durée des travaux pluriannuels			
Collaboration AASQA	OUI		
Heures d'ingénieur	EMD :	INERIS : 550	LNE : -
Heures de technicien	EMD :	INERIS : 900	LNE : -
Document de sortie attendu	1 Rapport d'étude 1 Bilan, préparatoire au séminaire prévu à l'automne 2009		
Lien avec le tableau de suivi CPT	CS Particules		
Matériel acquis pour l'étude			

ANNEXE 2

Modélisation avec CHIMERE

Deux versions du modèle ont été utilisées dans cette étude :

- *Version 1* : Résolution de $0.15 \times 0.1^\circ$ avec deux inventaires, EMEP pour les espèces gazeuses et les PM non carbonées et l'inventaire du Laboratoire d'Aérodologie pour les espèces carbonées. Les émissions de l'inventaire EMEP pour les PM_{2.5} étant remplacées par les émissions carbonées de l'inventaire du Laboratoire d'Aérodologie. L'inventaire du TNO a été utilisé pour réallouer les émissions pour les grilles CHIMERE.
- *Version 2* : Résolution plus fine de la météo et du domaine CHIMERE mais avec le seul inventaire EMEP, les émissions de PM englobent les espèces carbonées.

- **Présentation générale**

CHIMERE (version ch2008b) est un modèle eulérien de chimie transport développé conjointement par l'IPSL (CNRS), l'INERIS et le LISA (CNRS). Les processus physiques et chimiques pris en compte dans le modèle sont détaillés dans Schmidt et al. (2001), Vautard et al. (2001), Vautard et al. (2003) et Bessagnet et al. (2004) pour les développements relatifs aux aérosols. Les programmes sources ainsi qu'une documentation complète sont disponibles librement à l'adresse : <http://euler.lmd.polytechnique.fr/chimere>.

Le modèle utilise 8 niveaux sigma pression du sol à 500 hPa permettant d'englober la couche limite et une partie de la troposphère libre. Les réactions chimiques en phase gazeuse (schéma MELCHIOR) sont décrites dans Lattuati (1997) inspirées du schéma chimique de Hov et al. (1985). Les taux de photolyse sont tabulés par altitude à partir du modèle TUV (modèle "Tropospheric Ultraviolet and Visible" par Madronich and Flocke, 1998). Comme décrit par Schmidt et al. (2001), les colonnes sont supposées se trouver sous les nuages, en effet le coefficient d'atténuation est intégré sur chaque colonne.

Les processus physiques communs aux espèces gazeuses et particulaires incluent le transport, la diffusion turbulente, les dépôts sec et humides. Le transport horizontal est résolu par le schéma PPM (Parabolic Piecewise Method) pour l'ensemble des espèces. La diffusion verticale est maintenant paramétrée par un profil de diffusion (Troen and Mahrt, 1986), dépendant de la hauteur de couche limite, la vitesse de friction et la vitesse convective. La hauteur de couche limite est calculée en conditions stables selon Troen and Mahrt (1986) et à partir de la formulation de Cheinet (2002) pour les couches convectives.

Les aérosols atmosphériques sont représentés par une distribution sectionnelle s'étalant de 40 nm à 10 µm sur 8 sections avec une progression géométrique. Les processus microphysiques régissant l'évolution de la distribution sont décrits dans

Warren (1986). Les espèces constituant les aérosols sont le sulfate, nitrate, ammonium, espèces carbonées, poussières naturelles minérales et sels marins. Le schéma de formation d'aérosol organique secondaire (AOS) est celui décrit dans Bessagnet et al. (2009).

Les conditions limites utilisées par le domaine CONT5 sont des climatologies du modèle LMDzINCA du LSCE pour les gaz et GOCART (Ginoux et al., 2001) pour les espèces aérosols (Dust, OC, BC et sulfates). La base de données d'occupation des sols utilisée est la base GLCF à 1 km de résolution (Global Land Cover Facility, Hansen et al., 2000; accessible a l'adresse : <http://glcf.umiacs.umd.edu>).

- **Domaines**

Version 1

Dans cette étude, le domaine Europe (14°E / 25°W - 35°N / 58°N) d'une résolution de 0.5°x0.5° est utilisé pour forcer le domaine « France » (5°E / 10°W - 41°N / 52°N) d'une résolution de 0.15°x0.1°.

Version 2

Un domaine « France » à environ 8km de résolution à été élaborée.

- **Météorologie**

Version 1

Les simulations sont forcées par les données météorologiques GFS/AVN (1°x1°) raffinées à 54 km de résolution pour le domaine CHIMERE Europe (CONT5) et 18 km pour le domaine France (FRA10) grâce au modèle MM5 (Dudhia, 1993). Le modèle MM5 fournit l'ensemble des paramètres météorologiques 2D et 3D nécessaires aux calculs de chimie transport.

Version 2

Des champs météorologiques à 9km de résolution ont été préparés pour

- **Emissions**

Version 1

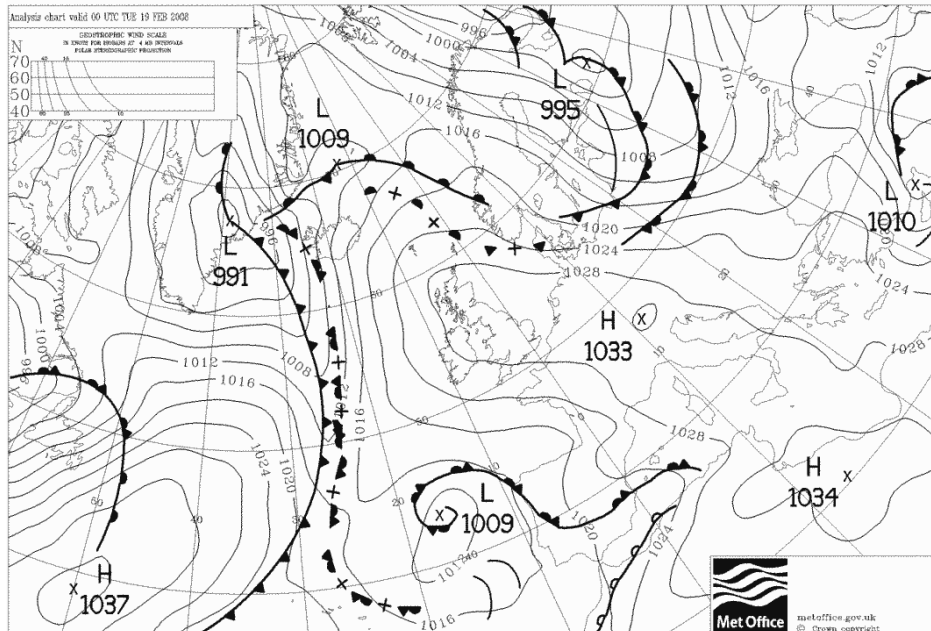
L'inventaire d'émissions EMEP (Vestreng, 2003) réinterpolé sur les émissions du TNO pour les NO_x, CO, SO_x, NMVOC, NH₃, PM et de l'inventaire du Laboratoire d'Aérodologie pour les espèces carbonées (Carbone organique - OC - et "black carbon - BC-", Guillaume and Liousse, 2006) est utilisé.

Version 2

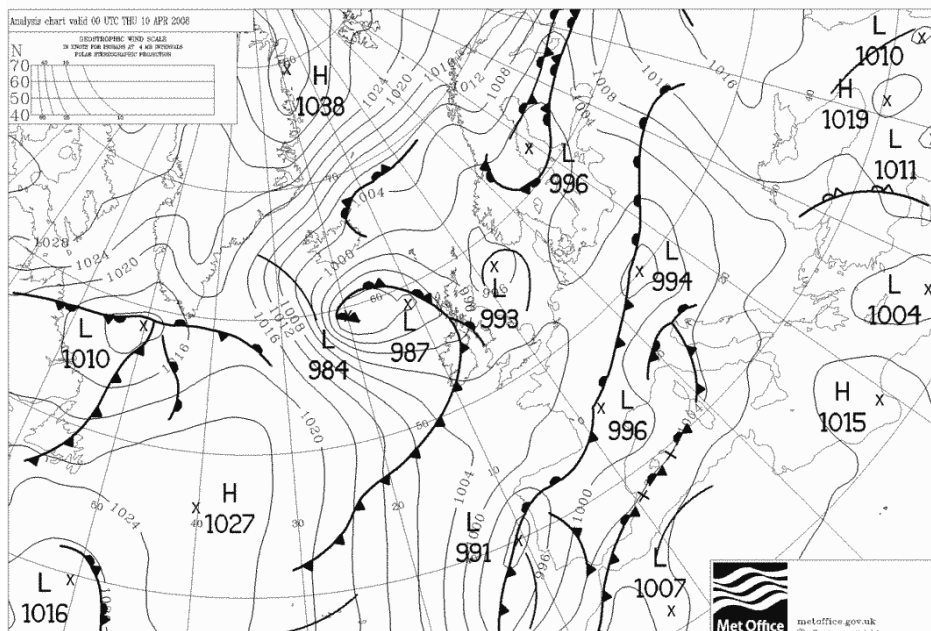
Seules les émissions EMEP (Vestreng, 2003) pour les NO_x, CO, SO_x, NMVOC, NH₃ et PM ont été utilisées. L'information sur le carbone élémentaire et le carbone organique n'existe pas dans cette version, les espèces carbonées sont incluses dans l'espèce PM émise.

ANNEXE 3

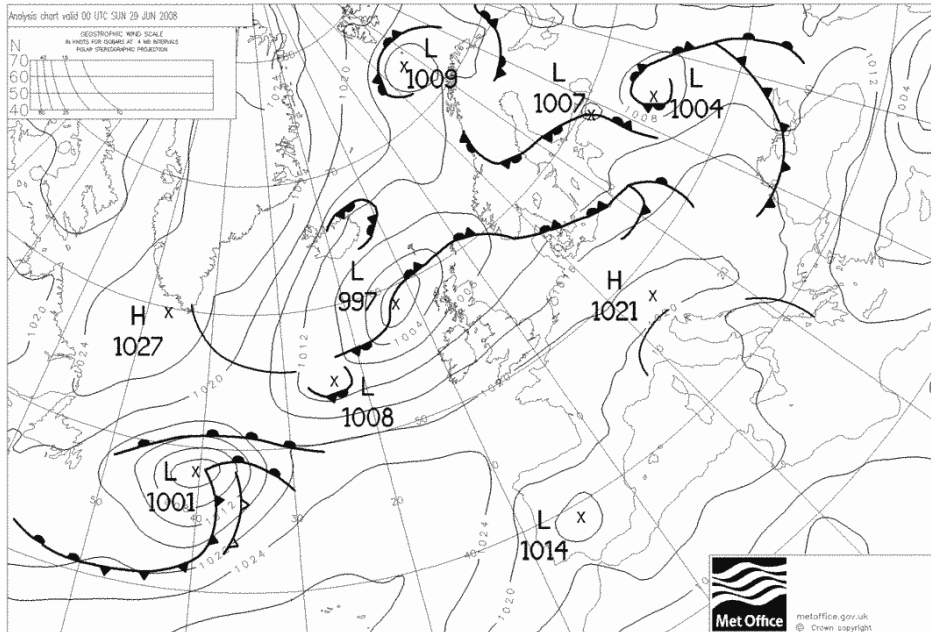
Situations météorologiques synoptiques pour chaque épisode



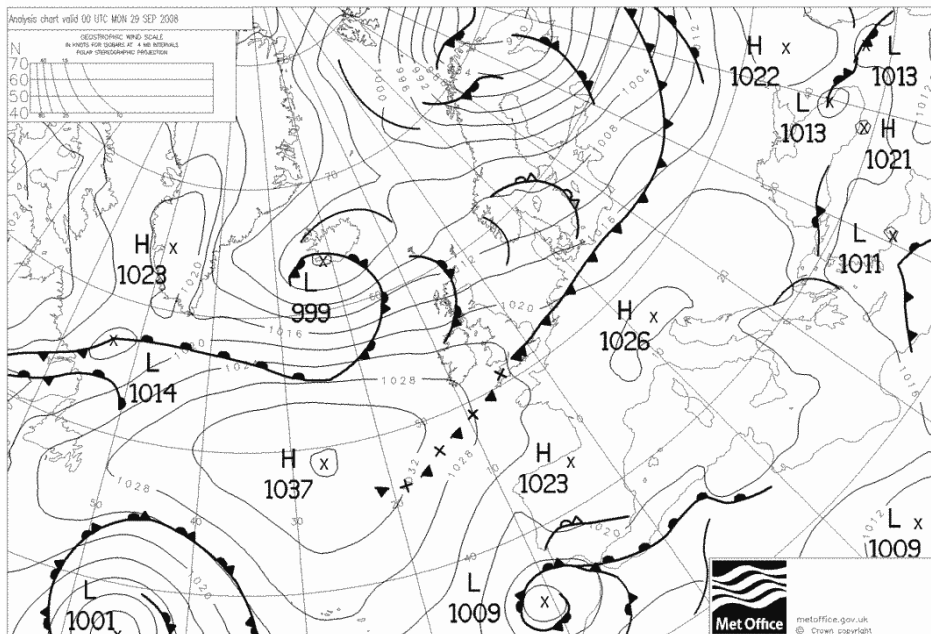
Episode 1



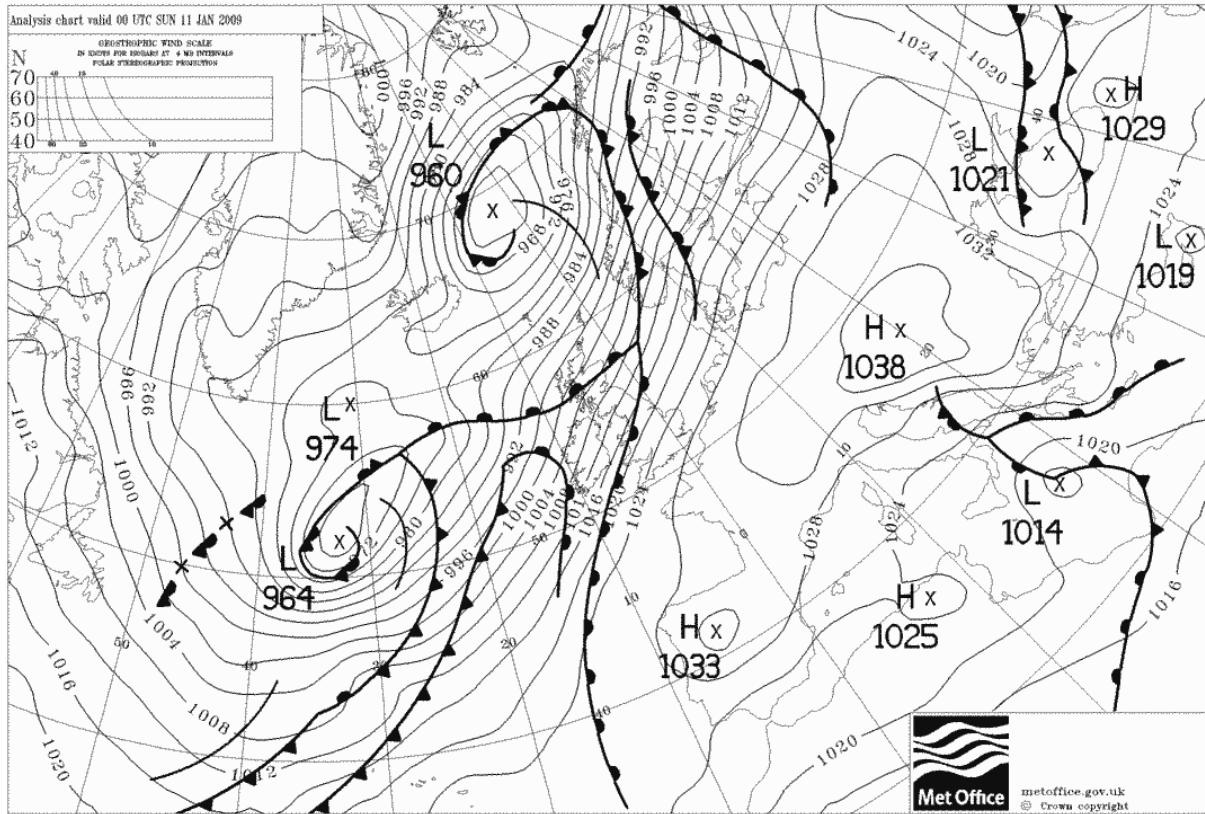
Episode 2



Episode 3



Episode 4



Episode 5