



Laboratoire Central de Surveillance de la Qualité de l'Air



Traitements numériques

**Modélisation pour la recherche de sources expliquant
l'épisode de pollution particulaire 2008/2009 en France
avec le modèle de chimie-transport CHIMERE**

Mars 2013

Programme 2013

EDOUARD DEBRY





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'Ecole 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, 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'Energie et du Climat (bureau de la qualité de l'air) du Ministère de l'Ecologie, du Développement durable, des Transports et du Logement. 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 MEDDE 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.



Modélisation pour la recherche de sources expliquant l'épisode de pollution particulaire 2008/2009 en France avec le modèle de chimie-transport Chimere

Laboratoire Central de Surveillance
de la Qualité de l'Air

Traitements numériques

Programme financé par la
Direction Générale de l'Energie et du Climat (DGEC)

2013

Edouard Debry

Ce document comporte 57 pages (hors couverture et annexes)




	Rédaction	Vérification	Approbation
NOM	Edouard Debry	Bertrand Bessagnet	Laurence Rouïl
Qualité	Ingénieur de l'Unité Modélisation Atmosphérique et Cartographie Environnementale Direction des Risques Chroniques	Responsable de l'Unité Modélisation Atmosphérique et Cartographie Environnementale Direction des Risques Chroniques	Responsable du Pôle Modélisation Environnementale et Décision Direction des Risques Chroniques
Visa			

TABLE DES MATIÈRES

RESUME	6
1. INTRODUCTION.....	7
2. SIMULATION CHIMERE ORIENTEE RECHERCHE DE SOURCES.....	9
3. CONSTRUCTION D'UN INVENTAIRE D'EMISSION CROISE INS/EMEP ...	12
3.1 Les émissions du secteur 2 de l'INS	13
3.2 Répartition des polluants de l'inventaire sur les espèces du modèle	15
3.2.1 Rapport OM/OC.....	17
3.2.2 Spéciation du chauffage au bois.....	18
3.2.3 Spéciation du chauffage non bois.....	20
3.2.4 Spéciation du trafic routier	20
4. SIMULATIONS CHIMERE	24
5. COMPARAISONS MODELE / MESURE.....	27
5.1 Comparaison sur le réseau de mesure des AASQAs	28
5.2 Comparaison sur le site de Rouen	33
5.3 Comparaison sur le site de Lyon.....	39
5.4 Discussion.....	45
6. ANALYSE DE SENSIBILITE	48
7. CONCLUSION ET PERSPECTIVES	51
8. REFERENCES.....	55
9. ANNEXES.....	57
8.2.1 Site de Rouen.....	59
8.2.2 Site de Lyon.....	69
8.3.1 Coefficients de sensibilité des PM ₁₀	79
8.3.2 Coefficients de sensibilité de la fraction inorganique des PM ₁₀	80
8.3.3 Coefficients de sensibilité de la fraction organique des PM ₁₀	81
8.3.4 Coefficients de sensibilité des PPM.....	82
8.3.5 Coefficients de sensibilité des poussières et les sels marins des PM ₁₀ ..	83

RESUME

Ce rapport présente une étude orientée recherche de sources effectuée avec le modèle de chimie-transport *Chimere* sur un épisode particulier de pollution particulaire, survenu en janvier 2009. Il s'inscrit dans le contexte plus large de la modélisation orientée recherche de sources, dont le développement à l'INERIS a pour but d'accompagner la mise en place des politiques de réduction d'émission.

Il existe plusieurs méthodes pour évaluer la contribution des différentes sources connues à la pollution particulaire. L'analyse chimique de prélèvements sur filtre et leur analyse statistique ultérieure par *Chemical Mass Balance* en est une, dont on compare, dans ce rapport, les résultats ([20, 24]) aux simulations *Chimere* effectuées.

La façon dont on choisit de modéliser les sources pour ces simulations est de type mécanistique ([1]) par opposition à une approche d'analyse de sensibilité : les sources d'intérêts (chauffage au bois et trafic routier) sont particularisées au moyen de traceurs passifs, ce qui permet de suivre de manière explicite leur contributions à un même polluant, tel le carbone suie. Les émissions du chauffage au bois bénéficient par ailleurs des données de l'*Inventaire National Spatialisé*.

Néanmoins, l'analyse de sensibilité n'est pas sans intérêt si elle prend en compte les effets non linéaires des modèles de chimie-transport. C'est ce que l'on présente aussi dans ce rapport en évaluant la sensibilité du modèle à ses différents paramètres, dont les émissions et champs météorologiques, au moyen de simulations Monte Carlo.

En définitive, nous rejoignons les conclusions de [20, 24] selon lesquelles l'épisode de pollution survenu à Rouen et Lyon en janvier 2009 est essentiellement le fait de conditions météorologiques propices à l'accumulation de particules, dont la présence s'explique largement par les émissions du chauffage au bois et du trafic.

Les difficultés de *Chimere* à reproduire cet évènement semblent principalement le fait d'une mauvaise représentation des paramètres météorologiques. L'amélioration des inventaires d'émission et du modèle *Chimere* lui-même, notamment son modèle d'aérosols, ne sont bien évidemment pas à exclure. En effet, la pollution enregistrée lors de ces évènements est majoritairement de nature organique, fraction de la pollution qui reste un sujet de recherche ouvert tant à cause des incertitudes sur les émissions directes de composés semivolatiles, actuellement non prises en compte dans les inventaires, que par la faculté des modèles à modéliser leur vieillissement dans l'atmosphère.

1. INTRODUCTION

L'année 2009 a commencé par un épisode de pollution particulaire remarquable sur plusieurs régions françaises. Durant la première quinzaine de janvier, plusieurs stations d'observations ont relevé un pic de concentrations en $PM_{2.5}$ et PM_{10} anormalement élevé. Pour les PM_{10} , la moyenne journalière a en effet atteint près de $80 \mu\text{g.m}^{-3}$ le 10 et 11 janvier (Figure 1), alors que, sur une période assez large recouvrant ces deux jours, la moyenne journalière oscille autour de $29 \mu\text{g.m}^{-3}$ plus ou moins $11 \mu\text{g.m}^{-3}$.

Si l'on considère les prévisions de PM_{10} fournies par la filière de référence¹ de la plateforme Prev'Air, le biais du modèle Chimere sur une période assez longue recouvrant cette épisode est de $14 \mu\text{g.m}^{-3}$. Sur l'épisode en question, le biais s'élève à $29 \mu\text{g.m}^{-3}$, différence qui dépasse nettement l'écart type sur l'hiver 2009 ($8 \mu\text{g.m}^{-3}$). Par comparaison, en janvier 2010, le biais s'élève à $18 \mu\text{g.m}^{-3}$ mais reste dans les limites de l'écart type.

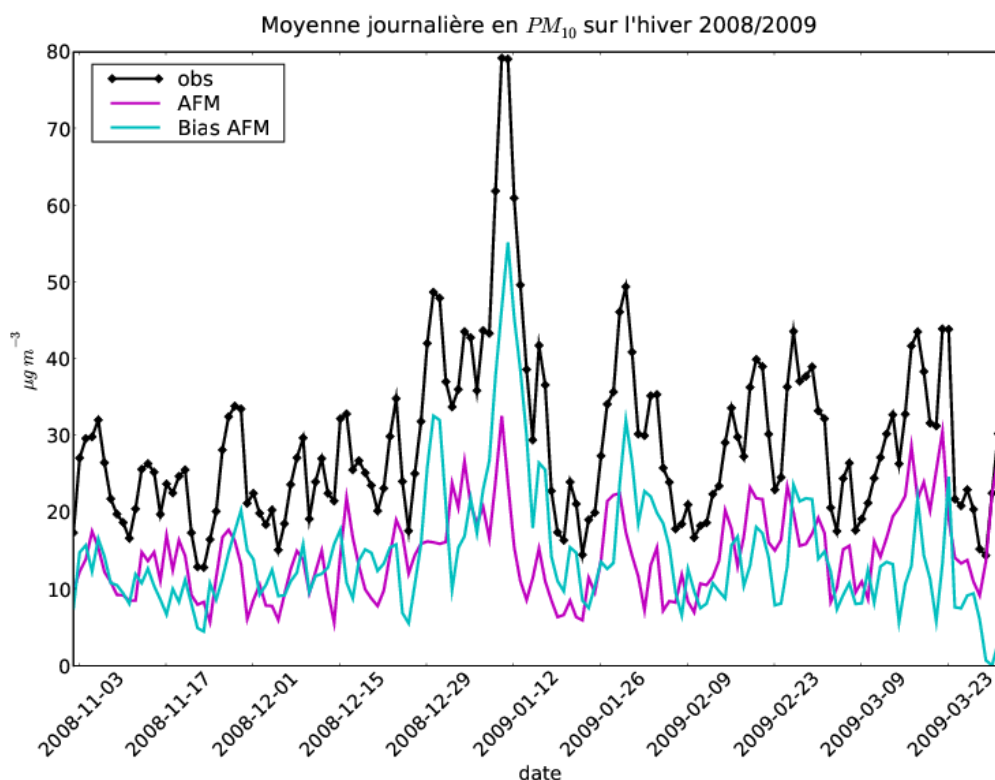


Figure 1 : Moyenne journalière et biais du modèle Chimere (AFM).

Il y a plusieurs raisons pour lesquelles le modèle de dispersion sous-estime l'intensité réelle de l'épisode, et pour aller de la moins probable à la plus vraisemblable, on peut citer une modélisation imparfaite des particules, un ou plusieurs champs météorologiques déficient, la finesse de la résolution spatiale, des activités et ou facteurs d'émissions sous-estimés dans les inventaires, sans compter que ceux-ci ne prennent pas en compte les épisodes exceptionnels.

¹ La filière de référence de la plateforme Prev'Air consiste en le modèle CHIMERE forcé par les prévisions météorologiques issues de GFS (Global Forecast System) du NCEP/NOAA/NWS, USA.

L'objet de cette étude est de reproduire le mieux possible cet épisode avec le modèle *Chimere*, et partant, de l'améliorer autant que d'expliquer la ou les causes de cet épisode. C'est aussi l'un des objets de l'étude [20] qui montre, par l'analyse chimique de prélèvements et leur décomposition en sources d'émission, que cet épisode est très certainement la combinaison d'importantes émissions locales en chauffage au bois et d'une météorologie propice à l'accumulation des polluants. En nous aidant de ces conclusions, nous avons effectué une simulation Chimere « orientée recherche de sources » afin de distinguer les contributions de plusieurs types d'émission, dont celles du chauffage au bois. Pour ces dernières, l'*Inventaire National Spatialisé* (INS) a été utilisé afin de disposer d'émissions plus fines sur la France.

Dans les deux premières parties, nous détaillons l'approche « orientée recherche de sources » appliquée à Chimere et les inventaires d'émissions utilisés. Dans les deux dernières parties, nous comparons les résultats de simulation aux données de mesures de l'étude [20], et complétons ce travail par une étude de sensibilité du modèle à ses principaux paramètres.

2. SIMULATION CHIMERE ORIENTEE RECHERCHE DE SOURCES

Le modèle *Chimere* est un modèle eulérien de dispersion atmosphérique qui simule le transport, la diffusion et la transformation chimique des polluants tels que l'ozone, le dioxyde d'azote et bien sûr, les particules. Celles-ci sont traitées par un modèle sectionnel prenant en compte les principales espèces chimiques inorganiques ([2]), la fraction organique ([3]), la poussière minérale et le carbone élémentaire.

D'après [20], les PM_{10} lors de l'épisode de pollution sont composés en majeure partie de matière organique et de carbone élémentaire, ce qui correspond aux traceurs suivants dans le modèle chimique de *Chimere* :

Tableau 1 : Principaux composés primaire de *Chimere*

nom court Chimere	dénomination
OCAR	matière organique non volatile
BCAR	carbone élémentaire
PPM	matière particulaire anthropique

Ce sont tous des composés primaires, c'est-à-dire émis dans l'atmosphère directement sous forme de particules, par opposition à celles qui se forment dans l'atmosphère (secondaires). OCAR et PPM ne sont pas à proprement parler des composés chimiques, ce sont des traceurs agrégeant différentes espèces chimiques, ils sont désagrégés au moment du calcul lorsqu'une description plus fine de la composition des particules est nécessaire. Par exemple, PPM se répartit entre la poussière minérale, la matière organique, le carbone élémentaire, et certains constituants inorganiques. OCAR et BCAR ne sont utilisés que lorsque l'on dispose de données d'émissions spécifiques pour eux. Dans le cas contraire, toutes les émissions sont intégrées aux PPM.

Effectuer une simulation « orientée recherche de source » signifie que l'on va démultiplier chacun des composés en autant de sources que l'on souhaite suivre. Toujours d'après [20], l'analyse par *Chemical Mass Balance* (CMB) montre que matière organique et carbone élémentaire viennent en grand partie de la combustion du bois et du trafic routier.

Ainsi, si l'on décompose les traceurs du Tableau 1 suivant les secteurs d'activité incriminés, on obtient la répartition pressentie dans le Tableau 2.

Tableau 2 : Composés primaires orientés recherche de source

nom court Chimere	signification
OCAR _{s2} ^w	OCAR secteur 2, combustible bois en France
OCAR _{s2} ^{nw}	OCAR secteur 2, combustible hors bois en France
OCAR _{s7}	OCAR secteur 7, trafic en France
BCAR _{s2} ^w	BCAR secteur 2, combustible bois en France
BCAR _{s2} ^{nw}	BCAR secteur 2, combustible hors bois en France
BCAR _{s7}	BCAR secteur 7, trafic en France
PPM _e	PPM tous secteurs hors France
PPM _o	PPM tous secteurs en France
	sauf OCAR et BCAR des secteurs 2 et 7

Dans le Tableau 2, OCAR se répartit en OCAR_{s7}, OCAR_{s2}^w et OCAR_{s2}^{nw}, suivant qu'il provient respectivement du trafic ou d'une activité de combustion ayant pour combustible le bois ou non. On procède de même pour le carbone suie (BCAR). Les secteurs 2 et 7 des inventaires d'émissions correspondent respectivement aux activités de « Combustion hors-industrie » et de transport. Le OCAR restant, qui ne serait dû ni au secteur 2 ni au secteur 7 est placé dans le traceur PPM_o.

A ce premier découpage par secteur d'activité se superpose un découpage par secteur géographique, suivant que la source se trouve sur le territoire français ou en dehors, mais toujours en Europe.

Cette deuxième partition s'effectue sur les PPM. Ainsi, PPM_e constitue le traceur de *Chimere* pour toutes les émissions particulaires hors du territoire français. A l'opposé, PPM_o est le traceur de toutes les émissions particulaires produites en France hormis le OCAR et BCAR des secteurs 2 et 7.

Il faut faire ici quelques remarques :

- par construction du « source apportement », PPM_o et PPM_e contiennent potentiellement de la matière organique et du carbone élémentaire provenant soit d'une source non française, soit d'un secteur d'activité en France autre que le transport et la combustion hors-industrie.

- cette matière organique, qu'elle se retrouve dans un des traceurs OCAR, dans PPM_e ou dans PPM_o, a les mêmes propriétés physico-chimiques et est traitée de la même manière par le modèle. Il s'agit simplement d'une vue de l'esprit qui n'a pas de réalité concrète.

- cette partition en source n'est licite que dans la mesure où elle a été appliquée à des polluants primaires, c'est-à-dire non chimiquement réactifs. En effet, si le OCAR du trafic routier réagissait au cours de son transport pour former d'autres composés, l'information de la source serait beaucoup plus difficile à suivre, et les conclusions de l'étude très limitées.

A cette partition en source des polluants suivis par *Chimere* nous devons maintenant faire correspondre une partition de l'inventaire d'émission.

3. CONSTRUCTION D'UN INVENTAIRE D'EMISSION CROISE INS/EMEP

Dans cette partie, nous décrivons brièvement les deux inventaires et de quelle manière nous les avons associés.

Nous disposons de deux inventaires :

- EMEP² (www.emep.int) est l'inventaire européen de référence. Il fournit des données d'émissions anthropiques pour les PM_{2.5} et les PM_{coarse}, rapportées par les pays ayant ratifié la Convention sur le Transport des Polluants Atmosphériques à Longue Distance (www.clrtap.int). Les émissions sont spatialisées sur une grille de 50*50 km² sur l'Europe, et réparties en 11 secteurs d'activité (selon la nomenclature SNAP).

- l'INS est *l'Inventaire National Spatialisé* français. Il délivre des données d'émissions pour les PM_{2.5}, PM₁₀ et TSP³, au niveau kilométrique et horaire sur tout (et seulement) le territoire français, avec une description en trois niveaux SNAP⁴ du secteur d'activité, auxquels s'ajoute un code *rubric* et un code *napfue*.

Ce dernier code se révèle très utile car il précise le type de combustible, et permet de partitionner les émissions de la SNAP 2 (« Combustion hors-industrie ») en émissions utilisant, ou non, le bois comme combustible. En effet, un code *napfue* permet d'isoler le combustible « Bois et déchets assimilés ».

L'INS constitue la source d'information la plus précise sur la France, tant spatialement que temporellement. Aussi a-t-on souhaité l'utiliser pour fournir des émissions aux traceurs de *Chimere* OCAR et BCAR, dont on suppose qu'ils jouent un rôle crucial dans l'épisode de pollution de janvier 2009. Néanmoins, il n'a pas été possible de l'utiliser pour tous les secteurs d'activité, et seules les émissions en particules du secteur 2 « Combustion hors-industrie » y font appel dans la présente étude. Tout les autres secteurs, dont le trafic routier, sont basés sur les émissions rapportées selon EMEP.

Associer les deux inventaires d'émissions ne va pas sans poser une question : y-a-t-il bien équivalence entre les secteurs d'activité 2 de chaque inventaire ?

Le secteur 2 d'EMEP, « installations de combustion non industrielles », se subdivise en 4 sous-secteurs selon la nomenclature NFR09, utilisée pour le rapportage EMEP. Le Tableau 3 les rassemble avec leur équivalent dans l'INS, s'il existe.

² European Monitoring and Evaluation Programme

³ Total Suspended Particles

⁴ Selected Nomenclature for Air Pollution.

Tableau 3 : Correspondance entre activités d'EMEP et de l'INS pour le secteur 2

EMEP		INS	
NFR09	désignation	SNAP	désignation
A 4 a i	Commercial/institutional Stationary	0201	Commercial et institutionnel
A 4 b i	Residential Stationary plants	0202	Résidentiel
A 4 c i	Agricultural/Forestry/Fishing Stationary	0203	Agriculture, sylviculture et aquaculture
A 5	Other stationary (including military)	?	

On n'a pas trouvé d'équivalent dans l'INS pour la dernière activité NFR09 d'EMEP, en quoi les secteurs 2 respectifs de chaque inventaire ne sont pas strictement équivalents, c'est-à-dire que certaines sources peuvent être présentes dans l'un mais pas dans l'autre. Néanmoins, on verra dans la partie 3.1 que la principale source du secteur 2, le chauffage urbain de type « Résidentiel », commun aux deux inventaires, constitue plus de 95% des émissions en particules du secteur 2 (cf. Figure 1), en particulier pour l'INS. Aussi, puisque c'est justement ce dernier secteur qui nous importe, nous considérons les deux inventaires comme globalement équivalents et interchangeables.

3.1 LES EMISSIONS DU SECTEUR 2 DE L'INS

La Figure 2 détaille, par ordre décroissant, la répartition des émissions en TSP suivant le secteur SNAP et les codes *rubric* et *napfue*. Attention ! les pourcentages sont à l'échelle logarithmique. Le plus gros contributeur, à plus de 95%, est le chauffage résidentiel au bois (020202/R01/111), suivi de très loin par le chauffage résidentiel au fioul domestique, avec quelques 3%. Toutes les autres contributions ne dépassent pas les 0.5%.

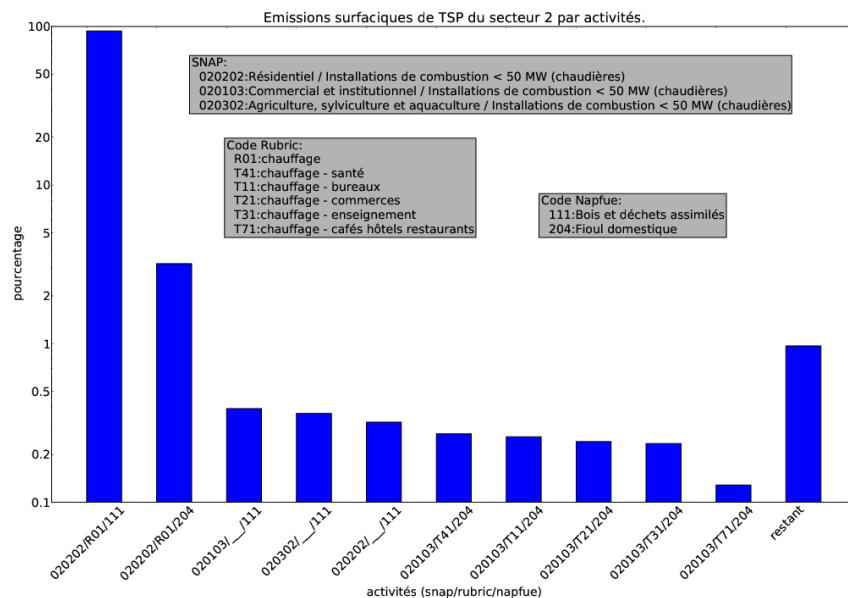


Figure 2 : Répartition par activité des émissions de particules du secteur 2.

La majeure partie des émissions en particules du secteur 2 se concentrent dans les $PM_{2.5}$, que ce soient celles de la combustion du bois ou hors bois.

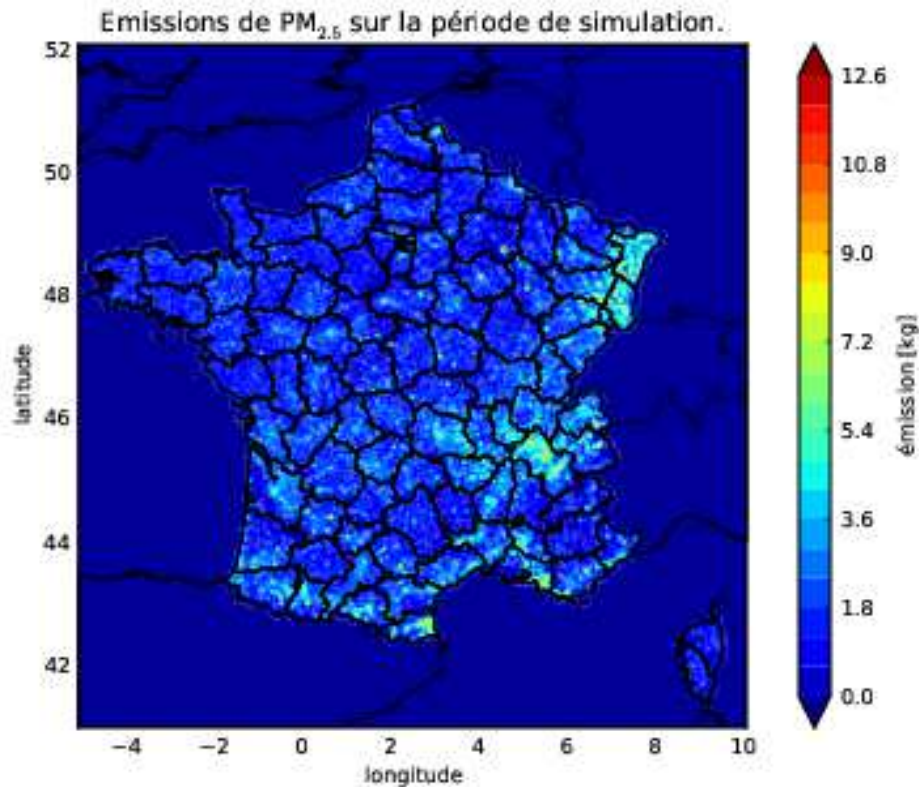


Figure 3 : Moyenne des émissions de $PM_{2.5}$ de la combustion du bois selon INS 2004.

La Figure 3 et Figure 4 illustrent les émissions brutes de $PM_{2.5}$ sur la période de simulation, de décembre 2008 à janvier 2009, les données de l'INS elles-mêmes datant de 2004.

La Figure 3 montre que les émissions de la combustion du bois sont assez bien réparties sur le territoire, car davantage de nature surfacique, alors que les émissions de combustion hors bois, Figure 4, sont plutôt issues de sources ponctuelles, et donc presque invisibles sur une carte. Les émissions de la combustion du bois sont en moyenne 16 fois plus importantes que les émissions de combustion hors bois. En revanche, ces dernières présentent localement des pics plus importants.

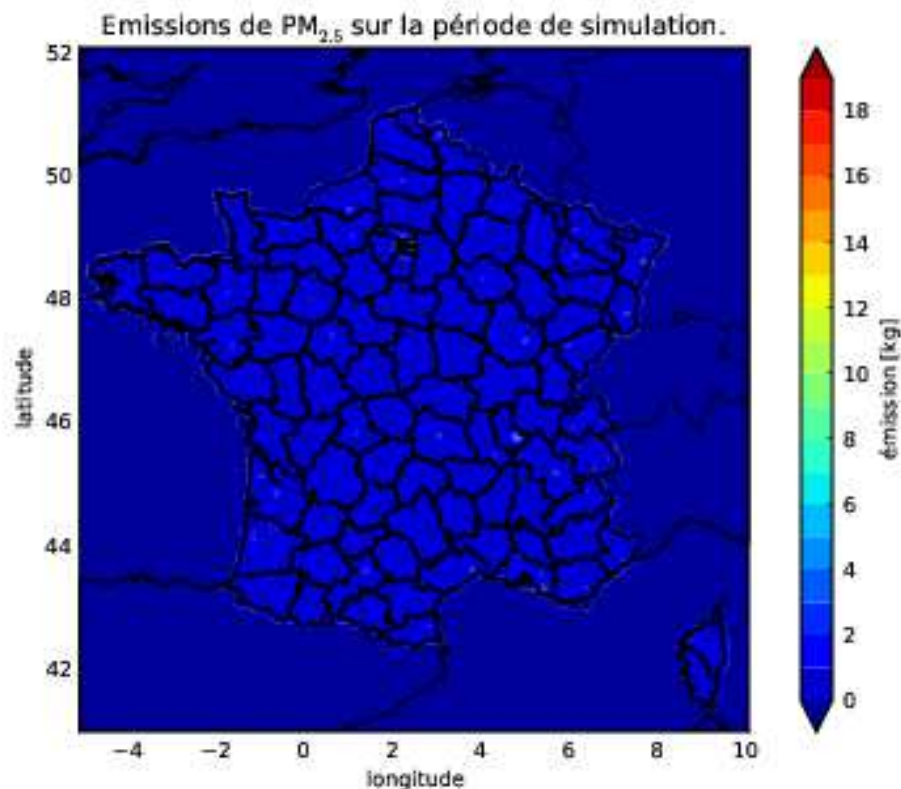


Figure 4 : Moyenne des émissions de $PM_{2.5}$ de la combustion hors bois selon INS 2004.

3.2 REPARTITION DES POLLUANTS DE L'INVENTAIRE SUR LES ESPECES DU MODELE

On dispose à présent de données d'émissions appropriées pour chaque traceur du Tableau 2. Mais les émissions sont des quantités intégrées ($PM_{2.5}$, PM_{coarse}) sur l'ensemble des tailles de particules et toutes espèces chimiques confondues. Il faut encore les répartir sur les classes de taille et les polluants du modèle.

Pour la répartition en classe de taille, on suppose que la distribution de particules émise est de forme tri-modale. Les modes sont des distributions log-normales, c'est-à-dire gaussiennes suivant le logarithme du diamètre, caractérisées chacune par un diamètre moyen et un écart-type géométriques.

Le Tableau 4 rassemble les caractéristiques utilisées pour chaque mode. On distingue un mode sub-micronique plus spécifiquement associé aux particules fines, un mode grossier (ou « coarse ») pour les particules microniques et un dernier (noté « énorme ») pour les très grosses particules.

Tableau 4 : Caractéristiques des modes utilisés pour la répartition en classe de taille dans CHIMERE.

mode	diamètre moyen	écart-type
	géométrique (µm)	géométrique
fin	0.11	1.6
grossier	4.0	1.1
énorme	25.0	1.3

La répartition sur les polluants, c'est-à-dire la spéciation, est plus délicate. D'abord parce qu'elle est, pour les particules, propre au processus d'émission et au combustible, donc au secteur d'activité, au contraire du CO₂ ([13]); ensuite parce que les concentrations du modèle y sont directement sensibles, de part les émissions, et aussi indirectement, de part la chimie des particules, bien que celle-ci soit limitée pour des espèces primaires.

On s'appuie ici sur les études, faites notamment outre-atlantique, de la caractérisation chimique des particules issues de la combustion. Le Tableau 5 résume les spéciations que nous allons utiliser pour chaque secteur.

Tableau 5 : Spéciation des particules suivant le secteur d'activité.

Secteur d'activité	Rapport	Fraction	Fraction	Source
	OM/OC	OC	BC(EC)	
chauffage au bois	1.7	0.65	0.15	[13] et partie 3.2.1
chauffage non bois	1.4	0.05	0.29	[11]
trafic routier	1.2	0.24	0.60	partie 3.2.4, Eqs 7 et 8

EC désigne le carbone « élémentaire » ou graphitique, que l'on identifie souvent avec le BC, bien que celui-ci désigne plus spécifiquement le carbone suie, issu de la combustion, à la morphologie plus complexe. Ce composé correspond à la famille BCAR dans la spéciation CHIMERE.

OC désigne le carbone organique, mais primaire uniquement, bien qu'une partie des émissions de carbone organique particulaire puisse être de nature semi-volatile. Cette part n'est pas comptée ici. Attention, OC n'est pas équivalent au traceur OCAR de Chimere, contrairement à ce que laisserait penser leur ressemblance, le premier désigne le carbone organique et le second la matière organique, on passe donc de l'un à l'autre par un facteur qui fait l'objet du paragraphe 3.2.1 Rapport OM/OC.

La part restante de la spéciation est le plus souvent constituée de matière inorganique et d'autres constituants tels que potassium, calcium, zinc, silice, ... que l'on compte dans le traceur PPM_o.

Le Tableau 5 mérite quelques explications.

3.2.1 RAPPORT OM/OC

Les appareils de mesure ne peuvent détecter la masse de matière organique elle-même, mais seulement la quantité de carbone équivalente. Pour reconstruire la quantité de matière organique dont ont besoin les CTMs, on applique généralement un rapport OM/OC ($R_{om/oc}$). En règle générale, plus les composés organiques sont oxygénés, plus le rapport est élevé.

Les valeurs classiquement utilisées vont de 1.2 à 1.4. Pour le chauffage au bois, [9, 10, 8] utilisent un rapport de 1.4, et [7] de 1.2. Pour le trafic routier, on peut estimer à partir des données de [14, 15] un rapport voisin de 1.2, c'est aussi la valeur utilisée par [19].

[4] propose de réévaluer ce rapport, jugé trop faible, à 1.6 ± 0.2 pour les particules urbaines et 2.1 ± 0.2 pour les particules non urbaines. Toujours selon [4], ce rapport peut aller jusqu'à 2.6 pour le feu de bois, et dans tous les cas, la valeur de 1.4 devrait être considérée comme la plus petite valeur possible.

La fraction en matière organique du chauffage au bois devient irréaliste. La faute, expliquée en partie 3.2.2, à une surestimation de la mesure en carbone organique. Pour revenir à une fraction réaliste, on procède de manière inverse. Sachant que la fraction en carbone élémentaire est de 15%, et que celle en composés ioniques et élémentaires ne dépasse pas 5% ([7, 9, 10, 8]), on attribue le reste à la matière organique, soit 80%.

Dans la suite, nous adoptons les $R_{om/oc}$ utilisés dans [20], sauf pour le chauffage non bois, afin de rester cohérent avec le travail de caractérisation chimique. La fraction de matière organique est alors simplement le produit de la fraction de carbone organique par ce rapport.

Tableau 6 : Fraction de matière organique

Secteur d'activité	fraction OM (f_{om})
chauffage au bois	1.105 et 0.8 après correction
chauffage non bois	0.06
trafic routier	0.29

3.2.2 SPECIATION DU CHAUFFAGE AU BOIS

Le bois est le combustible pour lequel on trouve le plus de références, et aussi une grande disparité des résultats suivant le type de bois, le mode de combustion et la région géographique. Le Tableau 7 rassemble les différentes estimations des fractions en OC et BC/EC rapportées à la masse de $PM_{2.5}$

Tableau 7 : Fraction de carbone élémentaire et carbone organique rapportées à la masse de $PM_{2.5}$, suivant le type de bois.

type de bois	mode de combustion	région	fraction	fraction	source
			OC	BC/EC	
—	—	—	0.400	0.120	[5]
					[6]
conifère (c)	Atre	—	0.690	0.170	[7]
feuillu (f)	-	—	0.730	0.080	
Feuillu	Cuisinière	—	0.760	0.080	
(f) érable rouge	Atre	Nord-Est	0.855	0.067	[9]
(f) chêne rouge	-	Des	0.875	0.038	
(f) bouleau à papier	-	Etats-Unis	0.868	0.220	
(c) pin blanc d'Est	-		0.734	0.313	
(c) pruche du Canada	-		1.023	0.054	
(c) sapin	-		1.063	0.07	
(f) peuplier jaune	Atre	Sud des	0.849	0.034	[10]
(f) frêne blanc	-	Etats-Unis	0.768	0.064	
(f) copalme	-		0.788	0.027	
(f) carya tomentosa	-		0.742	0.012	
(c) pin raide	-		1.004	0.179	
(c) pin d'Elliott	-		1.006	0.142	
(f) érable rouge	Cuisinière	Etats-Unis	0.594	0.228	[8]
(f) chêne blanc	Sans catalyseur		0.554	0.033	
(f) chêne blanc	Avec		0.551	0.104	
(f) érable à sucre	Sans		0.512	0.058	
(c) pin raide	Sans		0.436	0.134	
(c) sapin de Douglas	Sans		0.778	0.076	
(c) sapin de Douglas	Avec		0.647	0.219	

Les fractions du Tableau 7 se rapportent à la masse de $PM_{2.5}$, car l'on considère que les processus de combustion du bois ne génèrent guère de particules au-delà de 2.5 μm . C'est vrai en général pour les autres combustibles, à l'exception notable du charbon ([13]).

Les fractions de carbone élémentaire et de carbone organique varient respectivement de 3.4% à 31%, et de 43.6% à plus de 100%. La matière organique est ainsi le principal produit de la combustion du bois, même si l'on observe une grande variabilité suivant le type de bois⁵ (et son degré d'humidité), et le mode de combustion ([7, 8]).

Le cas des fractions de carbone organique supérieures à l'unité s'explique par l'adsorption de composés organiques volatiles sur les filtres de mesure. La masse de carbone organique ainsi recueillie peut excéder la masse totale de particules fines lorsque celle-ci est mesurée par un autre procédé. Notons que rien n'interdit que ces composés organiques adsorbés soient semi-volatiles, à l'état gazeux au moment du prélèvement.

Il reste une inconnue, les parts relatives des modes de combustion en France, avec laquelle nous devrions moduler les fractions du Tableau 7. Aux Etats-Unis, la cuisinière est responsable de 50% à 66% de la combustion du bois ([8]). En Europe, on admet que cette part vaut 25%, l'âtre contribuant pour 5%, et le reste est attribué aux chaudières ([13]), pour lesquelles nous n'avons pas d'informations de spéciation.

Dans cette étude, nous nous basons sur les valeurs centrales de [13], cohérentes avec les fourchettes de fraction du Tableau 7. Il faut bien admettre cependant combien les valeurs utilisées sont un peu ... l'arbre qui cache la forêt.

⁵ S'agissant du bois de chauffage, on regarde en particuliers les feuillus.

3.2.3 SPECIATION DU CHAUFFAGE NON BOIS

Comme on l'a vu dans la partie 3.1, le fioul domestique est le deuxième combustible après le bois le plus largement utilisé en France, pour le secteur 2. C'est donc pour lui que l'on cherche une spéciation. Le gaz naturel, quant à lui, contribue assez peu aux émissions de particules carbonées ([12]).

L'étude [11] est la seule à notre connaissance à recenser des expériences avec une chaudière à fioul. Bien que celle-ci soit plutôt de caractère industriel, on se sert des fractions calculées, qui valent respectivement (en arrondissant au décimal supérieur) 5% et 29% pour le carbone organique et élémentaire. A l'inverse du bois, c'est le carbone élémentaire qui domine les émissions, dont une part non négligeable est aussi composée de soufre (9.1%), de sulfate (31.5%) et d'ammonium (6.2%). Les fractions se rapportent à la masse de $PM_{2.0}$.

Comme pour le chauffage au bois, une part des émissions de carbone organique particulaire vient potentiellement d'espèces en phase gazeuse. On retranche cette part, estimée à 1%, de la fraction en carbone organique, soit 4%, qui devient alors la fraction en OC primaire.

3.2.4 SPECIATION DU TRAFIC ROUTIER

Les émissions du trafic routier sont certainement les plus complexes à prendre en compte. La quantité émise et la spéciation chimique dépendent non seulement du type de moteur et du carburant, mais aussi de la phase du moteur (démarrage, croisière, accélération), de la présence d'un pot catalytique, de la vitesse du véhicule et, dans une moindre mesure, de la température.

Le Tableau 8 liste les différentes spéciations trouvées dans la littérature pour chaque type de véhicule.

Tableau 8 : Fraction de carbone élémentaire et carbone organique suivant le type de véhicule.

type de véhicule	fraction OC	fraction BC/EC	Source
voiture à essence :			[11]
- avec pot catalytique	0.501	0.226	
- sans pot catalytique	0.655	0.080	
poids lourd diesel	0.326	0.405	
camion moyen diesel :			[14]
a) avant dénudeur	0.304	0.308	
b) après dénudeur	0.197	0.308	
voiture à essence :			[15]
-avec pot catalytique :			
a) avant dénudeur	0.437	0.103	
b) après dénudeur	0.318	0.103	
- sans pot catalytique :			

a) avant dénudeur	0.839	0.014	
b) après dénudeur	0.583	0.014	
véhicule essence	0.36	0.34	[17]
véhicule diesel	0.21	0.66	[13]
tous véhicules	0.21	0.60	[19]

Pour les véhicules à essence, les fractions de carbone organique et élémentaire s'étendent respectivement de 31.8% à 83.9% et de 1.4% à 22.6%, pour les véhicules diesel, de 19.7% à 32.6% et de 30.8% à 40.5%. D'une manière générale, les véhicules diesel émettent plus de suie que de matière organique, et les véhicules à essence plus de matière organique que de suie.

La fraction de carbone organique des véhicules à essence semble à première vue très dispersée, elle se réduit de 31.8% à 65.5% si l'on ne tient pas compte des valeurs mesurées avant dénudeur. Le dénudeur est une partie du dispositif de mesure servant à recueillir la matière pour analyse. Il a pour fonction de sécher les particules. De ce fait, après leur passage par le dénudeur, toute la matière semi-volatile des particules s'est évaporée, ne restent que les composants organiques non volatiles, c'est-à-dire primaires.

C'est bien ces derniers composés qui nous intéressent ici, les fractions d'intérêts sont donc celles « après dénudeur ». Mais on touche du doigt le fait que les émissions de carbone organique des véhicules contiennent une part non négligeable de composés potentiellement semi-volatiles, à la réactivité autrement plus complexe, susceptibles de générer des particules secondaires. Dans la suite, nous retenons les valeurs centrales de [17, 13] qui sont en accord avec les fourchettes précédentes.

EMEP ne dispose que des émissions intégrées sur tous les types de véhicules. Aussi ne peut-on pas appliquer directement les fractions du Tableau 8. Dans la suite, nous calculons des fractions moyennes, f_{oc} et f_{bc} , c'est-à-dire tout type de véhicules confondus.

Voici comment on procède pour la fraction en carbone organique. Celle-ci se définit comme le rapport de la quantité émise totale de carbone organique et la quantité émise totale de particules (EM) :

$$EM_{oc} = f_{oc} EM \quad (1)$$

Les quantités émises se partitionnent en celles dûes au véhicules diesel (d) et à essence (e) :

$$EM_{oc} = EM_{oc}^d + EM_{oc}^e, \quad EM = EM^d + EM^e \quad (2)$$

On considère que l'émission pour chaque type de véhicules est le produit du nombre de véhicules de ce type par l'émission unitaire d'un moteur :

$$EM = N_d \times em^d + N_e \times em^e, \quad EM_{oc} = N_d \times em_{oc}^d + N_e \times em_{oc}^e \quad (3)$$

Les fractions du Tableau 8 se définissent de la façon suivante :

$$em_{oc}^d = f_{oc}^d \times em^d, \quad em_{oc}^e = f_{oc}^e \times em^e \quad (4)$$

En remplaçant les résultats de (2), (3) et (4) dans (1) on obtient :

$$f_{oc} = \frac{N_d f_{oc}^d em^d + N_e f_{oc}^e em^e}{N_d em^d + N_e em^e} \quad (5)$$

Soit en normalisant par le nombre total de véhicules ($N_d + N_e = N$) :

$$f_{oc} = \frac{f_{oc}^d \times n_d em^d + f_{oc}^e \times n_e em^e}{n_d em^d + n_e em^e} \quad (6)$$

où l'on voit que la fraction recherchée est une combinaison linéaire des fractions du Tableau 8, pondérée non seulement par la part relative des types de véhicules dans le parc automobile, mais aussi par l'émission unitaire de chaque véhicule.

D'après [14, 15], la quantité totale de particules fines émises pour 1 km par un véhicule diesel est de $em^d = 185 \text{ mg}$, de 7.5 mg par un véhicule à essence avec pot catalytique, et de 593 mg sans pot catalytique. Si l'on suppose que 90% des véhicules à essence sont équipés d'un pot catalytique, l'émission moyenne vaut alors $em^e = 7.5 \times 0.9 + 593 \times 0.1 = 66.1 \text{ mg}$.

Il reste à déterminer « le taux de diésélisation ». En France, le parc automobile, et plus précisément le parc roulant, est constitué en 2009 de 40% ($= n_e$) de véhicules essence et 60% ($= n_d$) de véhicules diesel ([16]), tout type de véhicules (léger, poids lourd) confondu.

Remarquons au passage que si le diesel est devenu majoritaire en France, ainsi qu'en Autriche, Belgique, Espagne et Luxembourg, ce n'est pas le cas de la plupart de l'ensemble des pays européens, pour lesquels la part du diesel reste minoritaire, en moyenne⁶ à 34% le 1er janvier 2009 ([18]).

D'après 6, on calcule la fraction moyenne en carbone organique, ainsi que celle du carbone élémentaire :

$$f_{oc} = \frac{0.21 \times 0.6 \times 185 + 0.36 \times 0.4 \times 66.1}{0.6 \times 185 + 0.4 \times 66.1} = 0.24 \quad (7)$$

$$f_{bc} = \frac{0.66 \times 0.6 \times 185 + 0.34 \times 0.4 \times 66.1}{0.6 \times 185 + 0.4 \times 66.1} = 0.60 \quad (8)$$

Par comparaison, si l'on utilisait le taux de diésélisation européen, nous obtiendrions :

$$f_{oc} = \frac{0.21 \times 0.34 \times 185 + 0.36 \times 0.66 \times 66.1}{0.34 \times 185 + 0.66 \times 66.1} = 0.27 \quad (9)$$

$$f_{bc} = \frac{0.66 \times 0.34 \times 185 + 0.34 \times 0.66 \times 66.1}{0.34 \times 185 + 0.66 \times 66.1} = 0.53 \quad (10)$$

⁶ Moyenne sur 17 pays européens.

Ces calculs et les fractions du Tableau 8 s'appuient sur des mesures en laboratoire. A l'opposé, les fractions tirées de [19] reposent sur des mesures directes en sortie d'un tunnel de Marseille. Elles ne peuvent donc être déclinées suivant le type de véhicules⁷. Il est cependant intéressant de noter qu'elles sont cohérentes avec les fractions moyennes calculées en 7 et 8.

⁷ Sauf à effectuer une analyse en composante principale.

4. SIMULATIONS CHIMERE

Nous avons expliqué dans la partie 2 le principe de la simulation *Chimere* orientée recherche de sources. La partie 3 a ensuite été consacrée à l'établissement d'un inventaire d'émission, lui aussi orienté recherche de sources. Nous détaillons à présent le protocole des simulations *Chimere*.

La période de simulation est fixée du 1er décembre 2008 au 31 janvier 2009 inclus, période qui recouvre bien l'épisode. Il est en général nécessaire de débiter la simulation bien avant la période d'intérêt, ceci afin d'éviter l'effet premier des conditions initiales⁸. Le début du mois de décembre 2008 n'est pas sans intérêt non plus, le biais du modèle pour les PM_{10} y est relativement constant et proche de celui de l'hiver 2008/2009. Cette période est donc plus représentative du comportement général du modèle.

Pour des raisons de coût calcul, on ne peut faire tourner un CTM sur un domaine correspondant à l'Europe avec une résolution voisine de celle de de l'INS. On a recours à des simulations imbriquées :

- **CONT5** une première simulation continentale sur un domaine européen avec une résolution de 0.5×0.5 degrés.
- **FRA05** une seconde simulation centrée sur la France avec une résolution plus précise de 0.075×0.05 degrés.

La Figure 5 illustre les deux domaines.

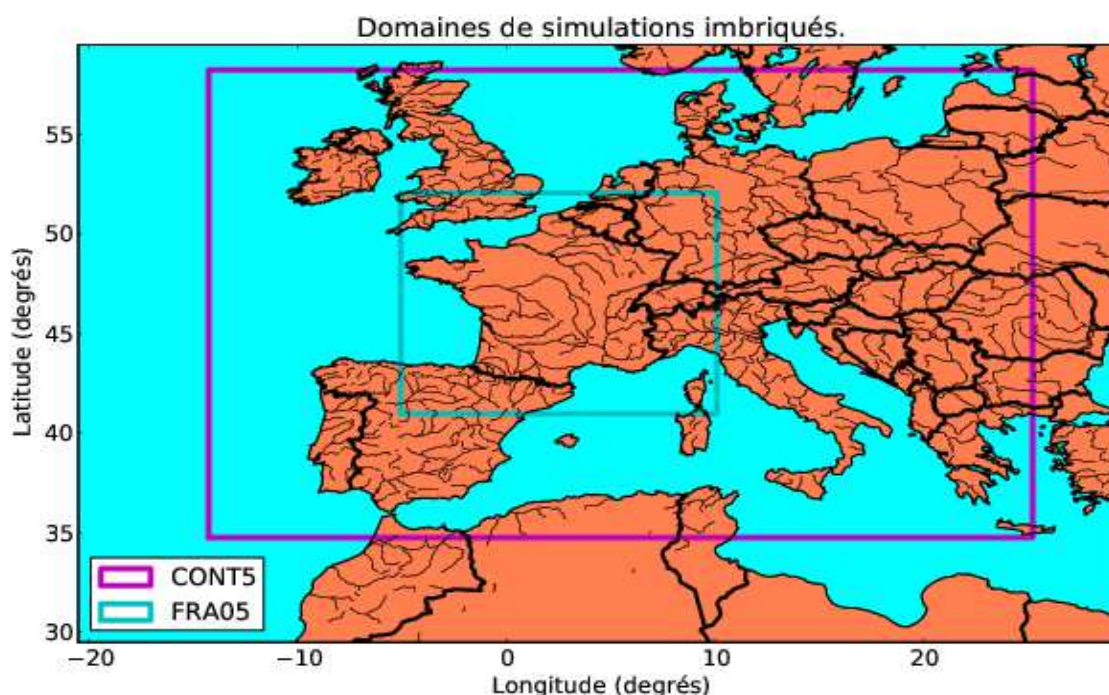


Figure 5 : Domaines de simulations imbriqués.

⁸ On parle de durée de spin-up, quelques jours suffisent en général.

Le Tableau 9 et le Tableau 10 détaillent respectivement pour les simulations CONT5 et FRA05 les conditions initiales, conditions aux limites du domaine et émissions de chaque traceur.

Tableau 9 : Conditions initiales, aux limites et émissions des traceurs de Chimere pour la simulation CONT5.

nom court Chimere	conditions	conditions	émissions
	initiales	aux limites	
OCAR _{s2} ^w	0	0	INS
OCAR _{s2} ^{nw}	0	0	INS
OCAR _{s7}	0	0	EMEP
BCAR _{s2} ^w	0	0	INS
BCAR _{s2} ^{nw}	0	0	INS
BCAR _{s7}	0	0	EMEP
PPM _e	LMDZAERO	LMDZAERO	EMEP
	et 0 sur FRA05		
PPM _o	LMDZAERO sur FRA05	0	INS + EMEP
	et 0 en dehors		

On peut s'étonner à première vue de voir les traceurs OCAR et BCAR dans la simulation CONT5, alors qu'ils sont associés uniquement aux émissions du territoire français. Cependant, si ces traceurs n'existaient pas dans la simulation CONT5, leur flux sortant du domaine FRA05 serait perdu. En pratique, ils seraient ajoutés au PPM_e ou au PPM_o, dont le flux entrant dans le domaine FRA05 contiendrait alors potentiellement des polluants qui ne correspondent pas à sa définition (cf. Tableau 2).

On est donc obligé de tenir compte de tous les traceurs dès le premier niveau de simulation, pour que la recherche de sources garde tout son sens. C'est ce qui donne le Tableau 9, dans lequel les traceurs OCAR et BCAR n'ont pas de conditions aux limites, et partent d'une concentration initiale nulle. Le PPM_o n'a pas davantage de conditions aux limites. En revanche, on lui assigne des conditions initiales tirées de LMDZAERO sur le domaine FRA05, et nulles partout ailleurs. Le PPM_e est le seul à avoir des conditions aux limites du domaine CONT5, il est initialisé à zéro sur le domaine FRA05 et par LMDZAERO partout ailleurs.

On peut remarquer que, en l'absence de conditions aux limites, les concentrations des traceurs OCAR ou BCAR qui sortent du domaine CONT5 par advection sont perdues. Les concentrations sur le territoire français n'en seraient sensiblement affectées que si la direction du vent changeait durablement de sens au cours de la simulation. C'est possible localement, mais à l'échelle européenne, on n'oublie pas que les vents dominants sont d'Ouest en Est.

Tableau 10 : Conditions initiales, aux limites et émissions des traceurs de Chimere pour la simulation FRA05.

nom court Chimere	conditions	conditions	émissions
	initiales	aux limites	
OCAR _{s2} ^w	CONT5	CONT5	INS
OCAR _{s2} ^{nw}	CONT5	CONT5	INS
OCAR _{s7}	CONT5	CONT5	EMEP
BCAR _{s2} ^w	CONT5	CONT5	INS
BCAR _{s2} ^{nw}	CONT5	CONT5	INS
BCAR _{s7}	CONT5	CONT5	EMEP
PPM _e	CONT5	CONT5	EMEP
PPM _o	CONT5	CONT5	INS + EMEP

La simulation CONT5 sert de conditions initiales et aux limites à tous les traceurs pour le domaine FRA05. Il n'y a pas de différences dans les émissions, hormis la résolution. Le traceur PPM_e, attachée aux émissions hors France, conserve des émissions sur le domaine FRA05, qui n'est pas que le territoire français.

Dans la suite, nous notons « sa » cette simulation orientée recherche de source, et « ref » une simulation de référence, qui est similaire à la simulation sa pour la résolution, les champs météo et d'émissions biogéniques, mais n'utilise que l'inventaire d'EMEP pour les émissions anthropiques, sans traceur aucun.

5. COMPARAISONS MODELE / MESURE

Nous avons évoqué en introduction les causes possibles du biais en PM₁₀ du modèle. L'objet de cette partie est d'essayer d'apporter des réponses aux questions suivantes :

- l'amélioration de l'inventaire réduit-elle le biais ?
- quels sont les traceurs responsables de ce biais ?
- le biais est-il simplement le reflet d'émissions sous-estimées ?
- quels processus physiques (transport, diffusion, vitesse de dépôt, ...) ou chimiques (formation de particules secondaires) viennent accentuer ce biais ?

On ne pourrait pas répondre à ces questions sans l'aide de données de mesures. Celles-ci nous sont fournies d'une part, par le réseau d'observation mis en œuvre par les AASQAs qui couvre toute la France métropolitaine (cf. Figure 28 en annexe 1), et d'autre part, par les données de mesures en PM₁₀ de l'étude CARA du LCSQA [20]. Ces dernières ont l'avantage d'être caractérisées chimiquement par une analyse CMB⁹. Le Tableau 10 présente la correspondance entre les traceurs détectés par l'analyse et les traceurs du modèle *Chimere*. Afin de faciliter la lecture, on associe à chaque traceur une couleur en suivant le plus possible les conventions du rapport [20].

Tableau 11 : Traceur équivalent et conventions de couleur

Polluant observé [20]	traceur équivalent de Chimere	Code couleur
SOA + other POA + VGD + NGC	Other_OM	
SO4 secondaire	pH2SO4	
NO3 secondaire	pHNO3	
NH4 secondaire	pNH3	
Sea salt	pSALT	
Min. Dust	pDUST	
PM BB	PM_carb_S2_w	
PM VEH	PM_carb_S7	
—	PM_ext	
—	Other_EC	
—	PM_int	
Bois (BBAHW)	{OM,OC,EC,TC}_S2_w	
Vehiculaire (VEH09)	{OM,OC,EC,TC}_S7	
Other + VGD + NGC	Other_{OM,OC,EC,TC}	

⁹ Chemical Mass Balance

Il n'existe pas toujours de traceur *Chimere* correspondant exactement au composant identifié par la mesure. Ainsi, le traceur de la mesure « SOA + other POA + VGD + NGC » désigne la matière organique issue de la combustion du gaz naturel (NGC), des débris végétaux (VGD) et la matière organique restante après la mesure, celle qui n'a pas pu être identifiée. Faute d'avoir des traceurs *Chimere* spécifiques à la combustion du gaz naturel et aux débris végétaux, on suppose que la matière organique secondaire du modèle (AOS) et celle issue de la combustion autre que du bois équivaut à ce traceur. On nomme « Other_OM » le traceur *Chimere* équivalent. Dans la suite on se réfère abusivement à AOS pour désigner ce dernier traceur.

Les trois derniers traceurs du Tableau 10 concernent plus spécifiquement la matière carbonée. On désigne respectivement par OM, OC, EC, TC, la matière organique, le carbone organique, le carbone élémentaire et le carbone total, somme des deux précédents. Le passage de la matière organique au carbone organique se fait à l'aide des rapports OM/OC définis dans la partie 3.2.1.

Dans la suite, nous nous intéressons tout d'abord au comportement général du modèle sur l'ensemble du réseau de mesures *français*. Puis, on s'intéresse aux sites de Lyon et Rouen, sur lesquels s'est faite l'étude CARA.

5.1 COMPARAISON SUR LE RESEAU DE MESURE DES AASQAS

Quel est l'apport de cette nouvelle simulation par rapport à la simulation de référence ? La Figure 6 illustre en parallèle les concentrations journalières en PM_{10} (tracés noirs) des observations et des deux simulations, moyennées sur le réseau de mesures, ainsi que les concentrations en chaque traceur (histogrammes). Attention ! le niveau de concentration des traceurs se lit à gauche, et celui des PM_{10} à droite.

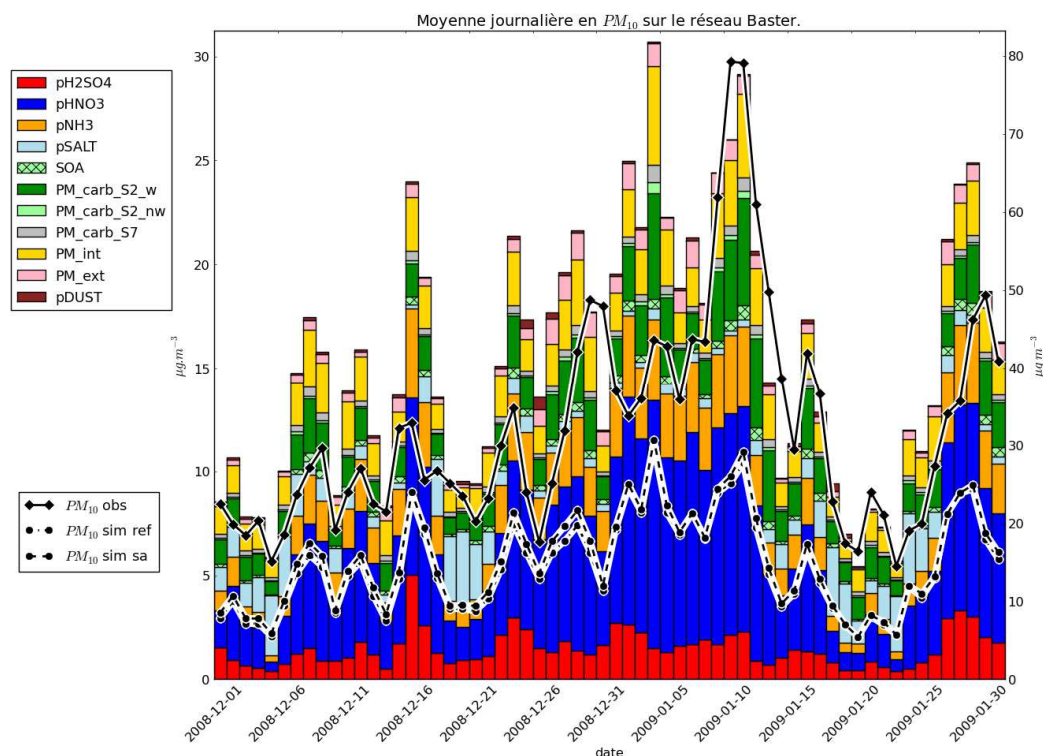


Figure 6 : Evolution des traceurs et des PM_{10} du modèle sur le réseau de mesures des AASQAs.

La nouvelle simulation ne se distingue pratiquement pas de celle de référence, elle améliore cependant la moyenne des concentrations, qui passe de $14.7 \mu\text{g.m}^{-3}$ à $15.4 \mu\text{g.m}^{-3}$, contre $32.5 \mu\text{g.m}^{-3}$ pour les observations. La corrélation gagne 2 points, de 45% à 47%, ce qui n'est pas négligeable.

Le changement d'inventaire, seule différence entre les deux simulations, ne suffit donc pas à expliquer l'épisode de pollution. On peut en conclure que les secteurs 2 de l'INS et d'EMEP sont équivalents en moyenne. L'amélioration qu'apporte l'INS est probablement le fait d'une meilleure distribution spatiale et résolution temporelle.

Y-a-t-il cependant un traceur davantage responsable de cet épisode ? Pour apporter un début de réponse, on peut se demander quels sont les traceurs les plus corrélés aux observations. La Figure 7 montre l'évolution séparée de plusieurs traceurs ou groupes de traceurs au regard des observations. Les groupes PM_inorg et PM_carb agrègent respectivement les traceurs des composés inorganiques et des composés carbonés du Tableau 11, pour plus de lisibilité

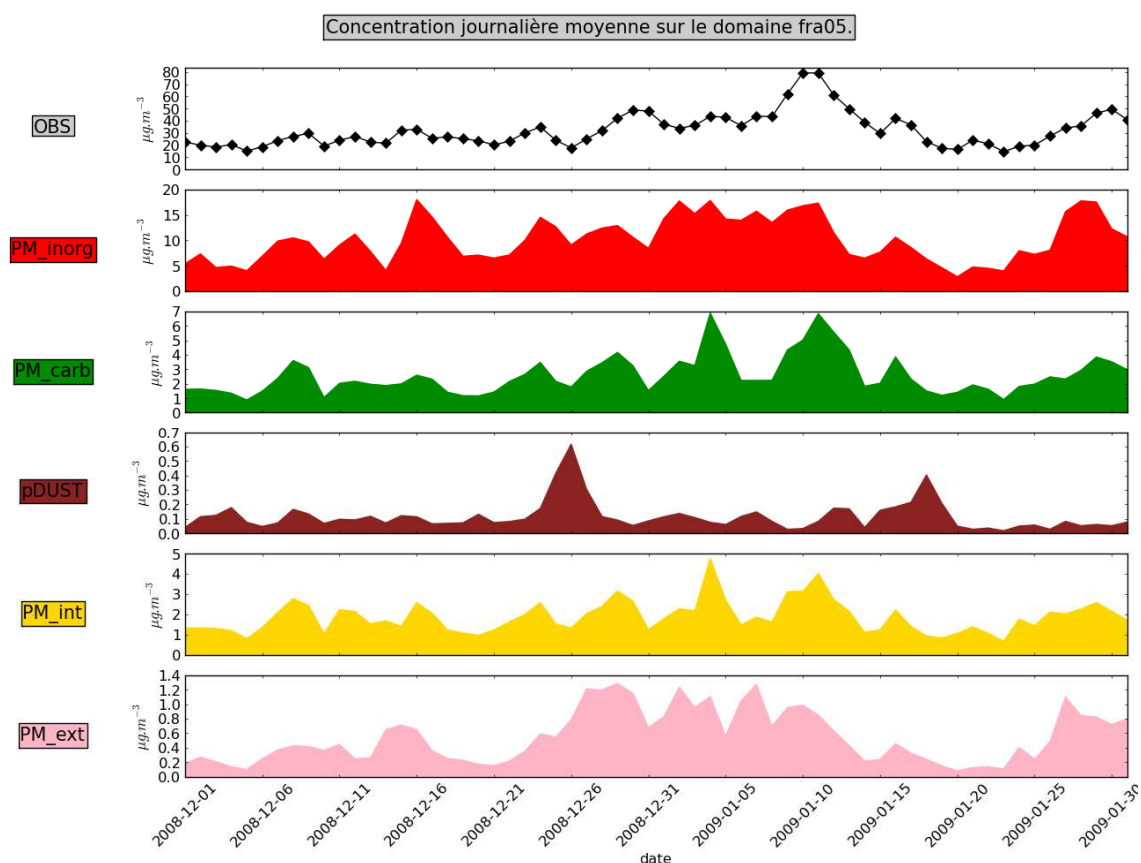


Figure 7 : Evolution comparée des principaux traceurs du modèle sur le réseau de mesures.

C'est le traceur PM_carb qui est le plus corrélé aux observations (80%), suivi par le PM_int (69%), puis PM_inorg (65%) et enfin PM_ext (58%). La poussière, quant-à-elle, est anti-corrélée (-16%).

Du point de vue du modèle, la matière carbonée apparaît donc comme le principal « vecteur » de l'épisode de pollution. Et plus précisément, en regardant l'évolution des différents traceurs carbonés qui composent le PM_carb, on note, sur la Figure 8, que le traceur du chauffage au bois (PM_carb_S2_w) est corrélé à plus de 80% aux observations, celui du trafic (PM_carb_S7) à 66%, et celui du chauffage autre que bois (PM_carb_S2_nw) à 59%.

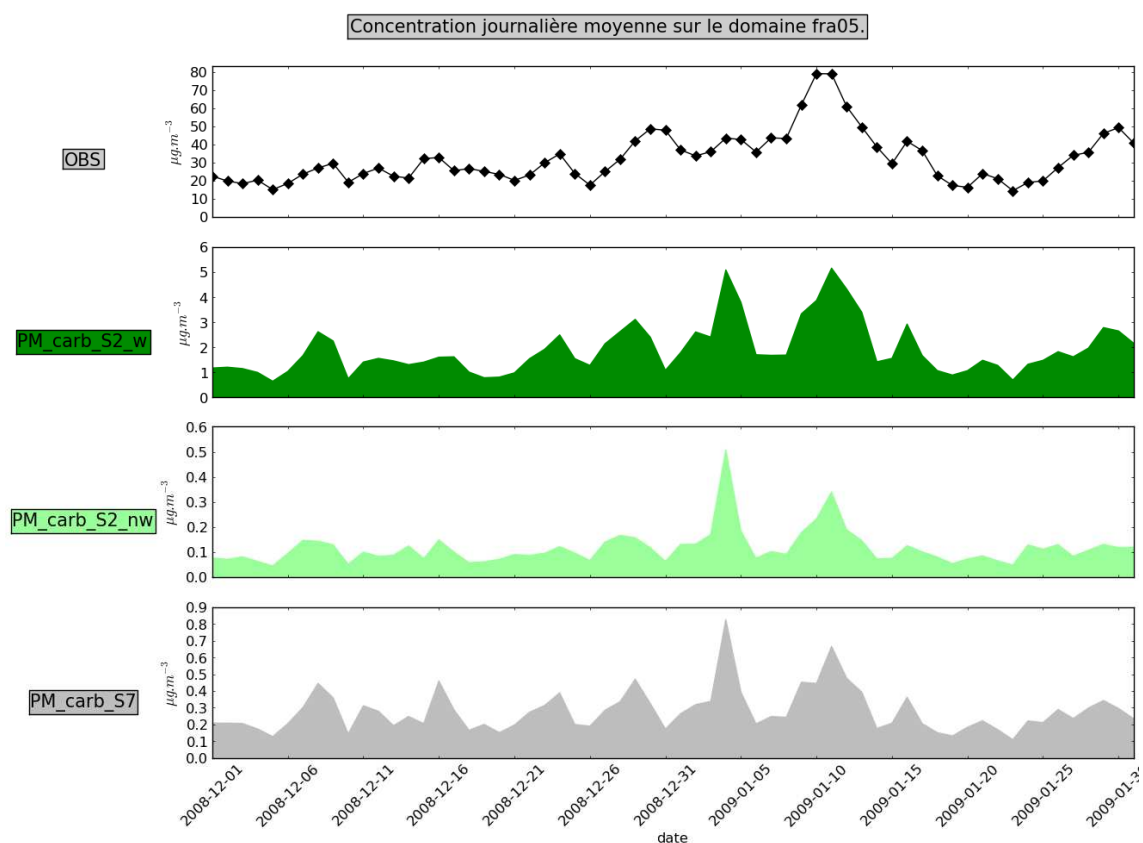


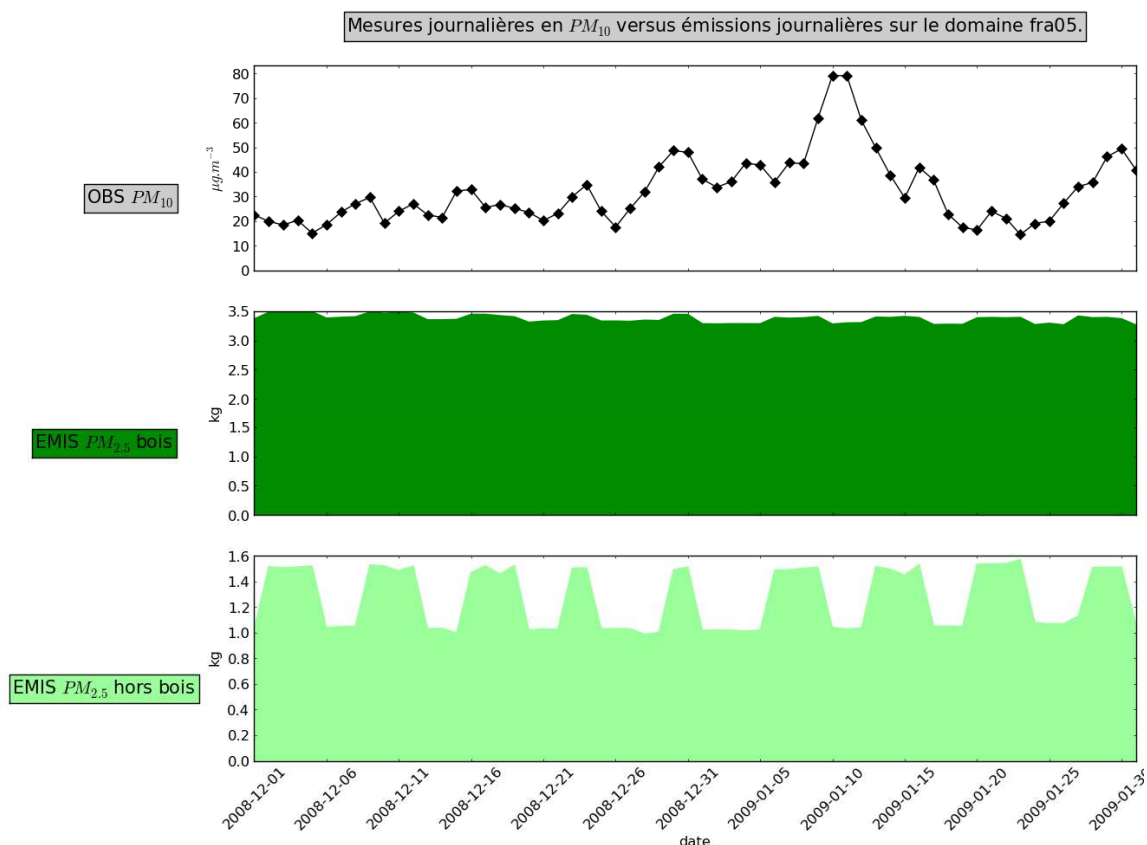
Figure 8 : Evolution comparée des traceurs carbonés du modèle sur le réseau de mesures.

Mais cette corrélation n'est pas une raison suffisante pour déduire que seules les émissions elles-mêmes sont responsables de l'épisode en question.

La Figure 9 montre justement l'évolution des émissions en $PM_{2.5}$ du secteur 2 de l'INS, moyennées sur le réseau de station.

Les champs d'émissions en $PM_{2.5}$ sur le réseau de mesures ne sont pas corrélés aux observations, -3% pour le hors bois, voire anti-corrélées, -21% pour le bois. Les émissions carbonées seules ne sont donc pas responsables du pic de pollution, tel que le modèle le voit. On remarque ici au passage que les émissions spécifiques au chauffage ne tiennent pas compte de la température.

Figure 9 : Evolution comparée des émissions sur le réseau de mesures.



C'est aussi ce que suggère aussi la composition chimique moyenne des PM_{10} du Tableau 12.

Tableau 12 : Composition chimique moyenne des PM_{10} du modèle Chimere sur le réseau de mesure.

Traceur	composition moyenne (%)	écart type (%)
pHNO3	32.9	9.1
pNH3	13.0	2.9
PM _{int}	12.6	2.6
PM _{carb_S2_w}	12.5	3.5
pH2SO4	9.5	3.2
PM _{carb_S7}	1.9	0.5
SOA	1.8	0.5
PM _{carb_S2_nw}	0.8	0.2
pSALT	10.8	12.3
PM _{ext}	3.3	1.5
pDUST	0.9	0.8

Les composés inorganiques sont majoritaires, plus de 60%, parmi lesquels les nitrates dominent. Les composés émis localement en France, carbonés ou non, ont une part de l'ordre de 20 à 25%, avec une prédominance des particules issues du chauffage au bois. On remarque aussi que les particules issues du trafic routier français ont une contribution plus faible en moyenne (mais sans doute plus forte localement). Par ailleurs, au regard de ce dernier traceur, la présence d'AOS n'est pas à négliger. L'écart type montre que la part de chaque traceur est plutôt stable. Nous avons volontairement placé dans la deuxième partie du Tableau 12 les traceurs dont la part est plus variable, c'est-à-dire ceux dont l'écart type est du même ordre, voire plus grand, que la moyenne.

Au cours de la période étudiée, la composition chimique journalière des PM_{10} sur le réseau de station *françaises* (Figure 10) reste relativement constante et perturbée seulement par les émissions intermittentes de sels marins, de poussière et dans une moindre mesure, du transport des particules transfrontalières.

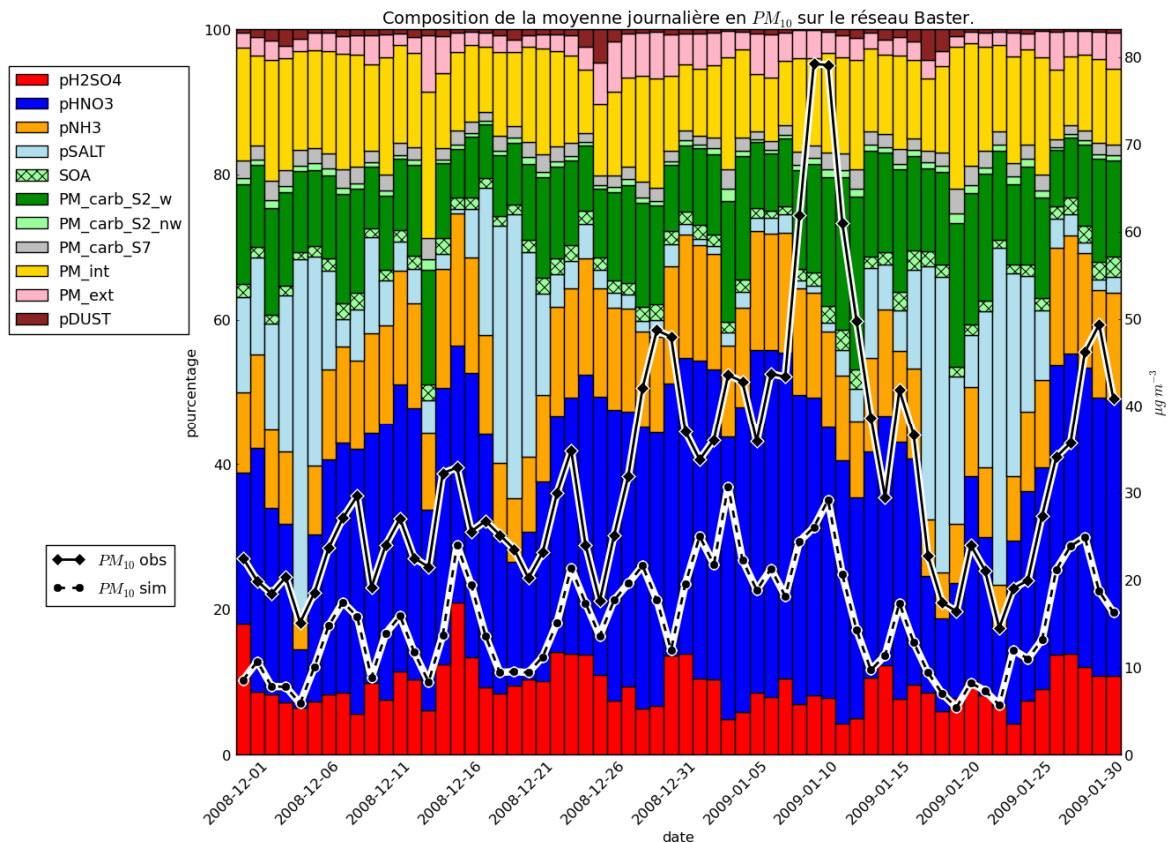


Figure 10 : Composition des PM_{10} du modèle sur le réseau des stations des AASQAs.

Dans cette partie, nous avons caractérisé l'évolution et la composition chimique moyenne des PM_{10} sur l'ensemble du réseau de mesures français. Les deux parties suivantes sont consacrées à deux sites particuliers pour lesquels on dispose de mesures détaillées grâce au dispositif CARA, Rouen et Lyon.

5.2 COMPARAISON SUR LE SITE DE ROUEN

Nous choisissons ici de présenter les comparaisons modèle / mesures sous forme d'histogrammes en absolu et relatif (pourcentages). Dans ces histogrammes, à chaque date correspond un couple de barres, à gauche la simulation *Chimere* à gauche et la mesure à droite, un peu (phonétiquement) comme dans le mot « cime ». Le lecteur qui préfère des comparaisons relatives sous forme de camembert se reportera en annexe 2.

On s'intéresse tout d'abord à la matière particulaire dans son ensemble. Nous examinons ensuite le carbone total, car celui-ci a l'avantage de s'affranchir des fractions OC et EC (cf. partie 3.2) qui répartissent les émissions brutes sur le carbone élémentaire et organique. On étudie ensuite le carbone élémentaire et organique, puis la matière organique qui ne diffère du carbone organique que par un coefficient multiplicatif fonction de la source d'émission (cf. Tableau 5). Par ailleurs, le modèle *Chimere* raisonne en quantité de matière organique et ne connaît pas la quantité de carbone associée, à l'inverse la mesure ne détecte qu'une masse de carbone. On passe de l'une à l'autre par les ratios OM/OC du Tableau 5.

La Figure 11 illustre la composition chimique des PM_{10} sur la ville de Rouen.

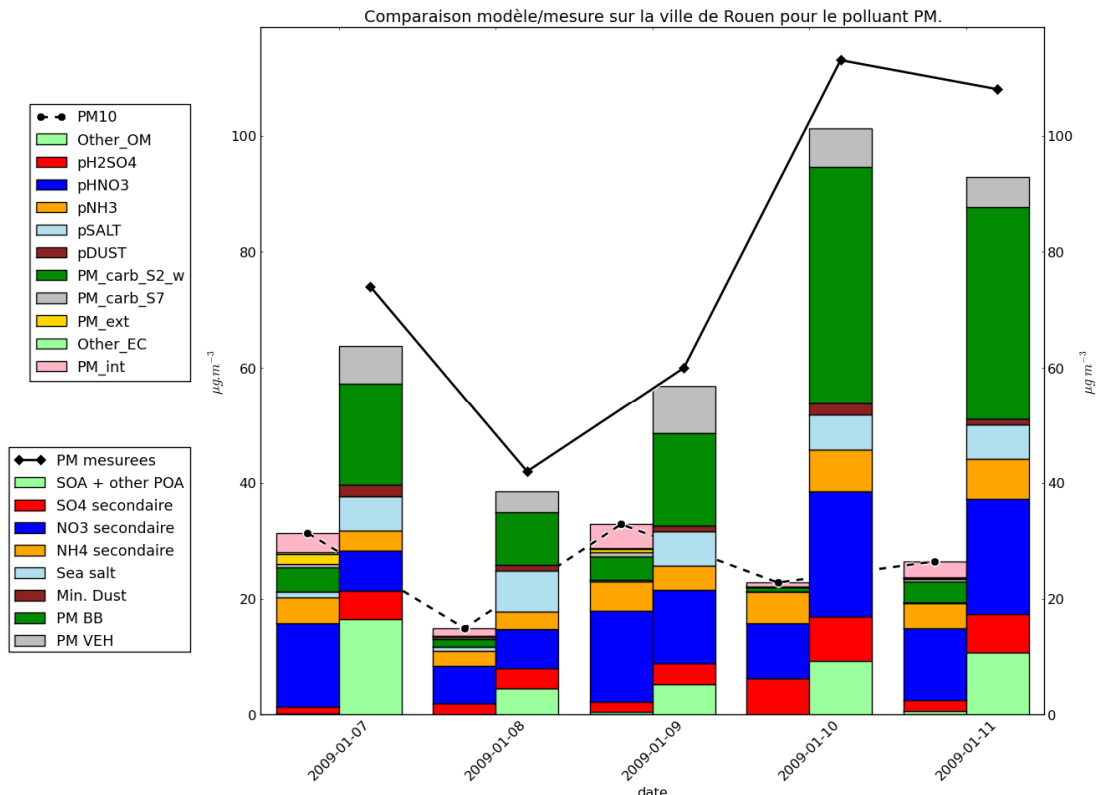


Figure 11 : Comparaison absolue modèle/mesure de la répartition des PM sur le site de Rouen.

On constate que le biais du modèle est à peu près constant durant les trois premiers jours, puis augmente brusquement. Les concentrations de nitrate et ammonium secondaires restent du même ordre de grandeur entre modèle et mesures, celles de sulfate sont sous-estimées par le modèle. En revanche, sels marins, poussière minérales, matière carbonée du trafic et AOS sont presque absents du modèle par rapport à ce que trouve l'analyse CMB. La matière carbonée provenant du chauffage au bois est le composant majoritaire des observations, au minimum 21%, alors qu'elle ne constitue, au plus, que 13% des PM_{10} du modèle, ce qui en fait malgré tout le composant majoritaire parmi les composés carbonés des PM_{10} du modèle.

La Figure 12 et Figure 13 présentent respectivement en absolu et en pourcentage la répartition du carbone total suivant son origine (chauffage au bois, trafic ou autre). On s'affranchit ici des fractions OC et EC qui introduisent une certaine erreur. En revanche, cette comparaison est indirectement sensible au rapport OM/OC, variable selon les sources (cf. Tableau 5).

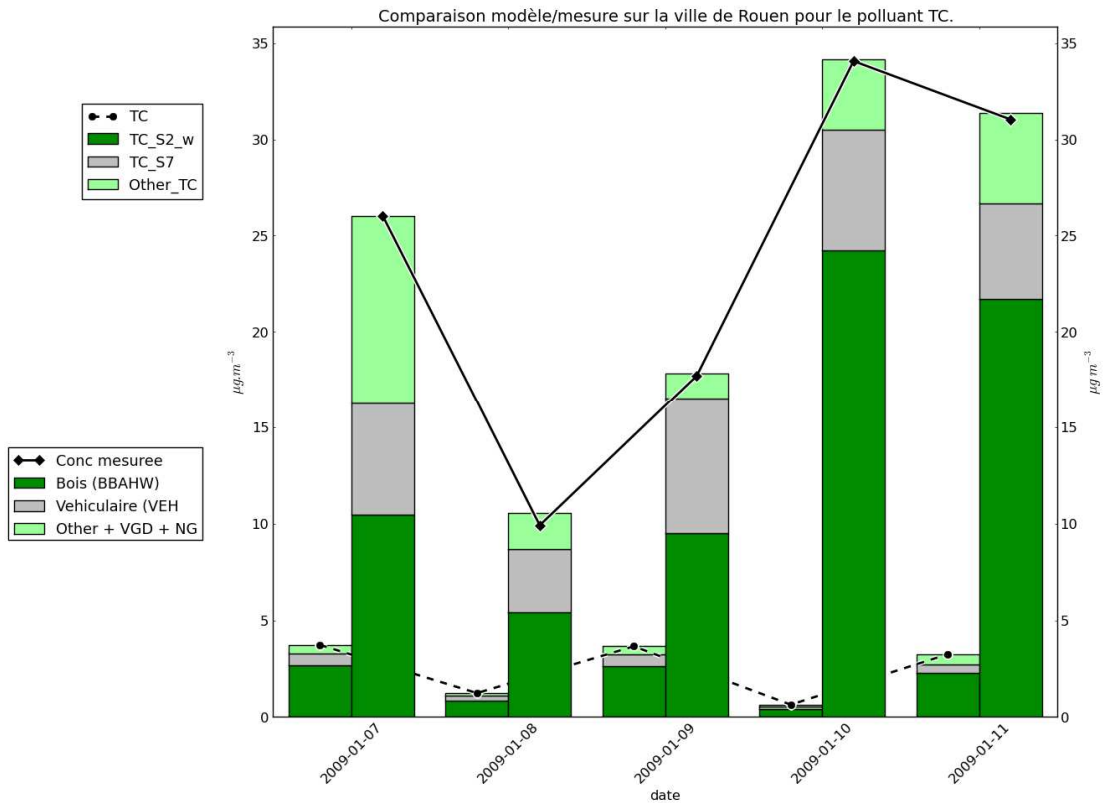


Figure 12 : Comparaison absolue modèle/mesure de la réparation du carbone total sur le site de Rouen.

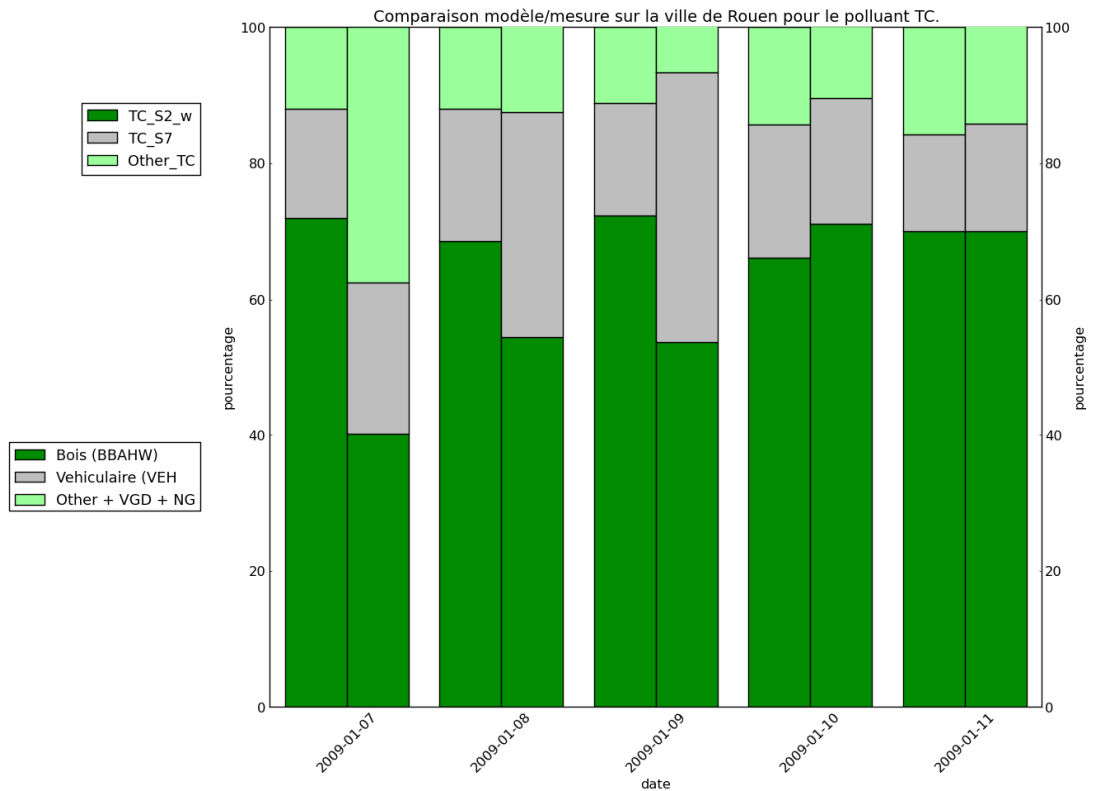


Figure 13 : Comparaison relative modèle/mesure de la réparation du carbone total sur le site de Rouen.

On constate que la part relative des différentes sources reste relativement stable selon le modèle, avec l'exception notable du 10 janvier, ce qui se voit davantage sur les camemberts (p. 61 et suivantes), alors qu'elle est plus variable selon les observations. Parmi les sources, celle du chauffage au bois est celle qui contribue le plus au biais du carbone organique. Son biais est relativement constant durant les trois premiers jours, $6.4 \pm 1.4 \mu\text{g.m}^{-3}$, et passe brusquement à $23.8 \mu\text{g.m}^{-3}$ à l'arrivée de l'épisode, alors que le biais du trafic reste constant durant l'épisode, $5.5 \pm 1.2 \mu\text{g.m}^{-3}$. Néanmoins, si l'on rapporte le biais à la concentration mesurée, on s'aperçoit que c'est la source du trafic qui est la plus sous-estimée, 93%, contre 88% pour le chauffage au bois. Ceci n'empêche pas le modèle d'être très proche de la réparation en pourcentage lors de l'épisode (deux derniers jours).

La Figure 14 et Figure 15 présentent la répartition du carbone élémentaire de la même manière que pour le carbone total. On constate, à la différence de ce dernier, que le biais est principalement le fait du trafic routier, qui est aussi le plus sous-estimé (91%), alors que les concentrations modèle en carbone élémentaire du chauffage au bois restent proche de celles mesurées, et parfois même supérieures.

La réparation relative montre que le carbone élémentaire vient en majorité du trafic, plus des trois-quart lors de l'épisode, ce que le modèle échoue à reproduire.

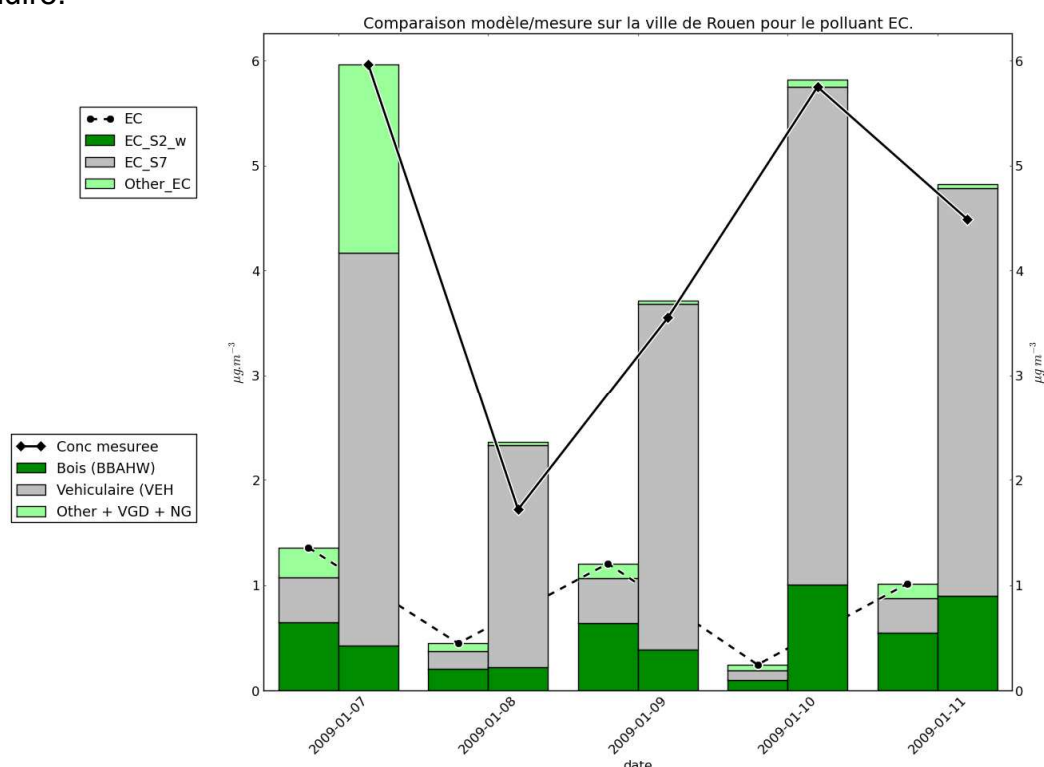


Figure 14 : Comparaison absolue modèle/mesure de la répartition du carbone élémentaire sur le site de Rouen.

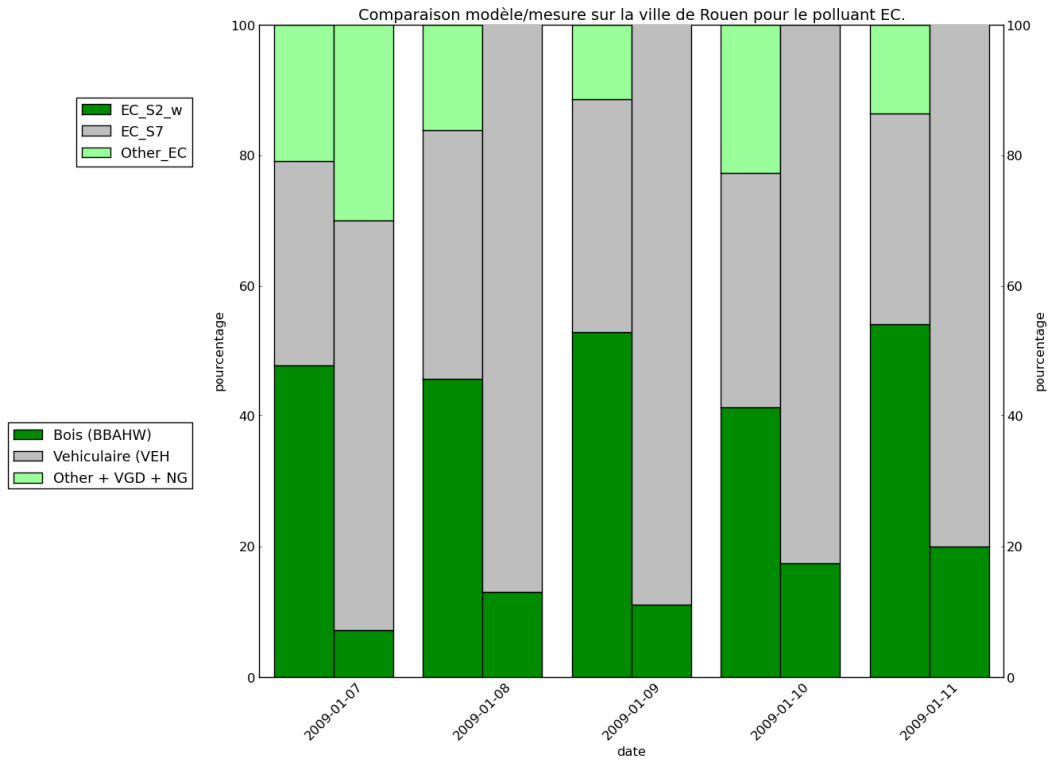


Figure 15 : Comparaison relative modèle/mesure de la répartition du carbone élémentaire sur le site de Rouen.

La Figure 16 et Figure 17 présentent la répartition du carbone organique de la même manière que pour le carbone total. Comme pour ce dernier, le biais en absolu est principalement le fait du chauffage au bois. Les sources sont toutes très sous-estimées, de 90 à 95%. On retrouve également une assez bonne comparaison relative sur les deux derniers jours.

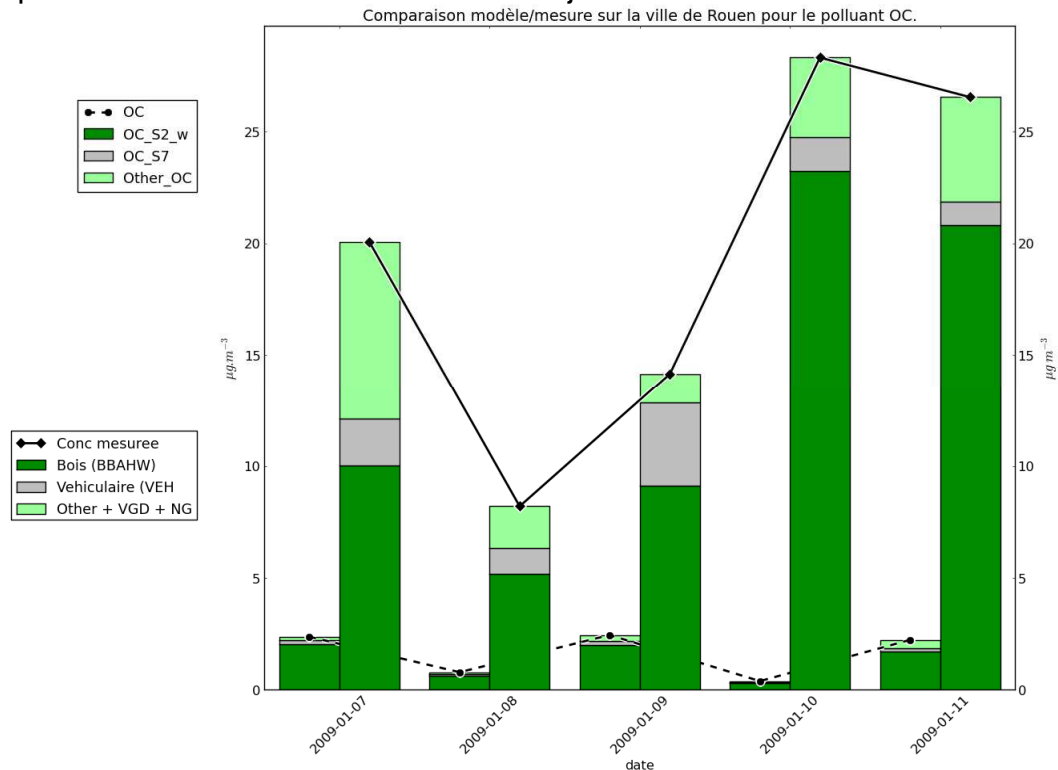


Figure 16 : Comparaison absolue modèle/mesure de la réparation du carbone organique sur le site de Rouen.

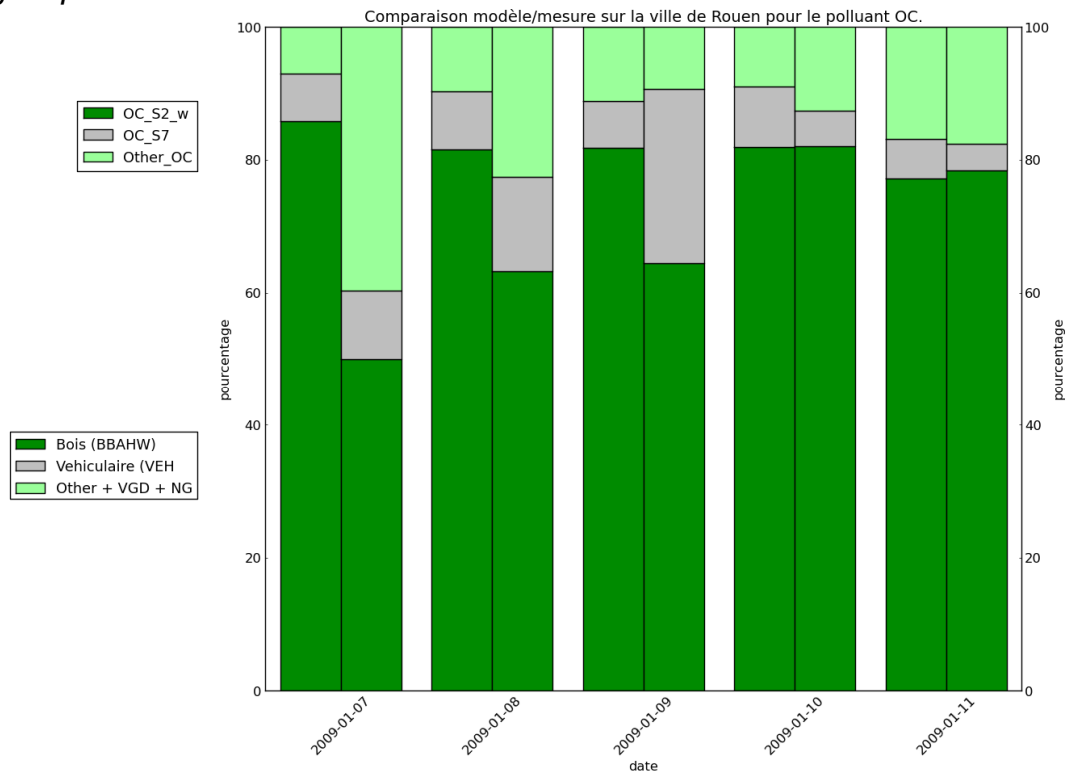


Figure 17 : Comparaison relative modèle/mesure de la réparation du carbone organique sur le site de Rouen.

La Figure 18 illustre la répartition relative de la matière organique suivant le type de sources. Comme précédemment dit, celle-ci ne diffère du carbone organique que par un coefficient caractéristique de chaque source. L'application de ce coefficient à la mesure de carbone organique a pour effet de dégrader la comparaison au modèle. Le biais de la matière organique constitue 62% du biais des PM_{10} .

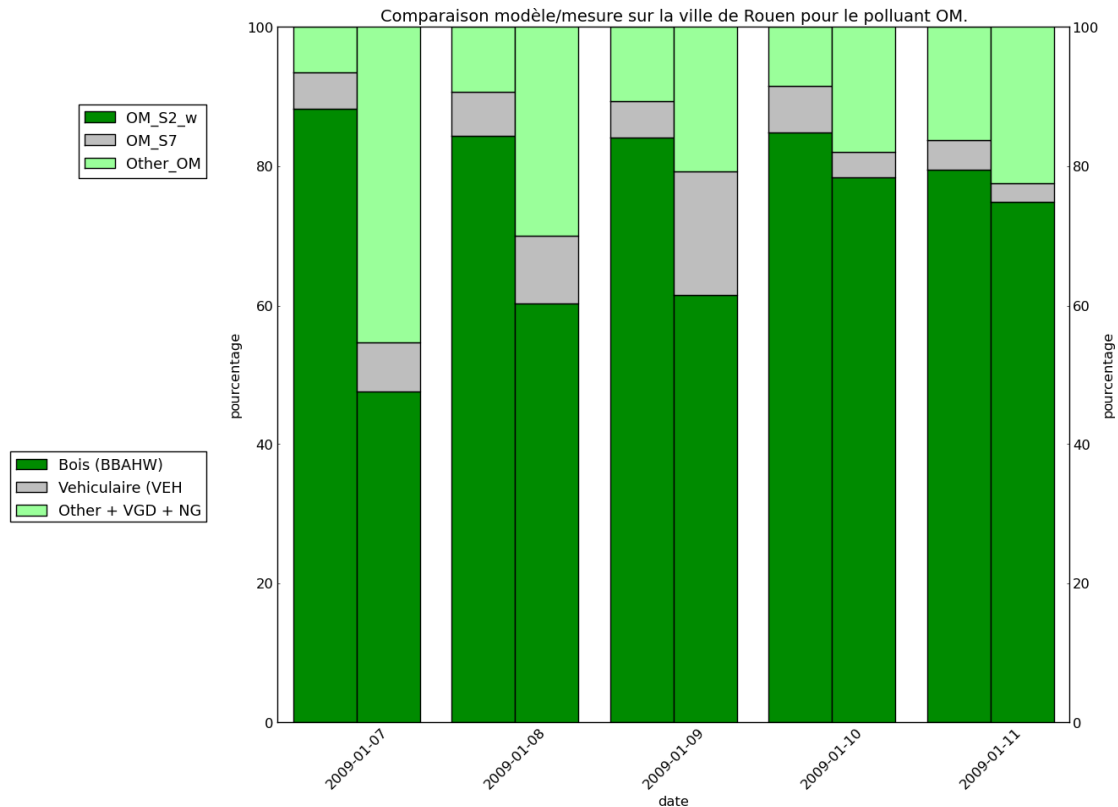


Figure 18 : Comparaison relative modèle/mesure de la répartition de la matière organique sur le site de Rouen.

5.3 COMPARAISON SUR LE SITE DE LYON

Dans cette partie, nous présentons la comparaison modèle / mesures sur le site de Lyon en suivant les mêmes conventions et le même déroulement que pour le site de Rouen. On rappelle que, sur les histogrammes, la barre de gauche concerne le modèle, et celle de droite, les mesures. On trouve en annexe 2 les camemberts relatifs à ce site.

La Figure 19 présente l'évolution des PM_{10} et leur composition chimique au cours de l'épisode. Le modèle arrive à suivre la tendance des observations en PM_{10} durant les quatre premiers jours, puis se décolle ensuite. Les mesures sont dominées durant toute la période par les PM du chauffage au bois, 25.8% 5.8%; tandis que celles du modèle le sont par le nitrate les quatre premiers jours, puis par les PM du chauffage au bois. Les AOS sont pratiquement absents du modèle, alors que leur concentration augmente continuellement dans les mesures, ce qui est également vrai pour la poussière. Comme pour le site de Rouen, les concentrations en nitrate et ammonium secondaires sont relativement proches entre modèle et mesure, tandis que celles de sulfate sont aussi sous-estimées. La contribution des PM transfrontalières, quant-à-elle, reste négligeable, au maximum 2.3%.

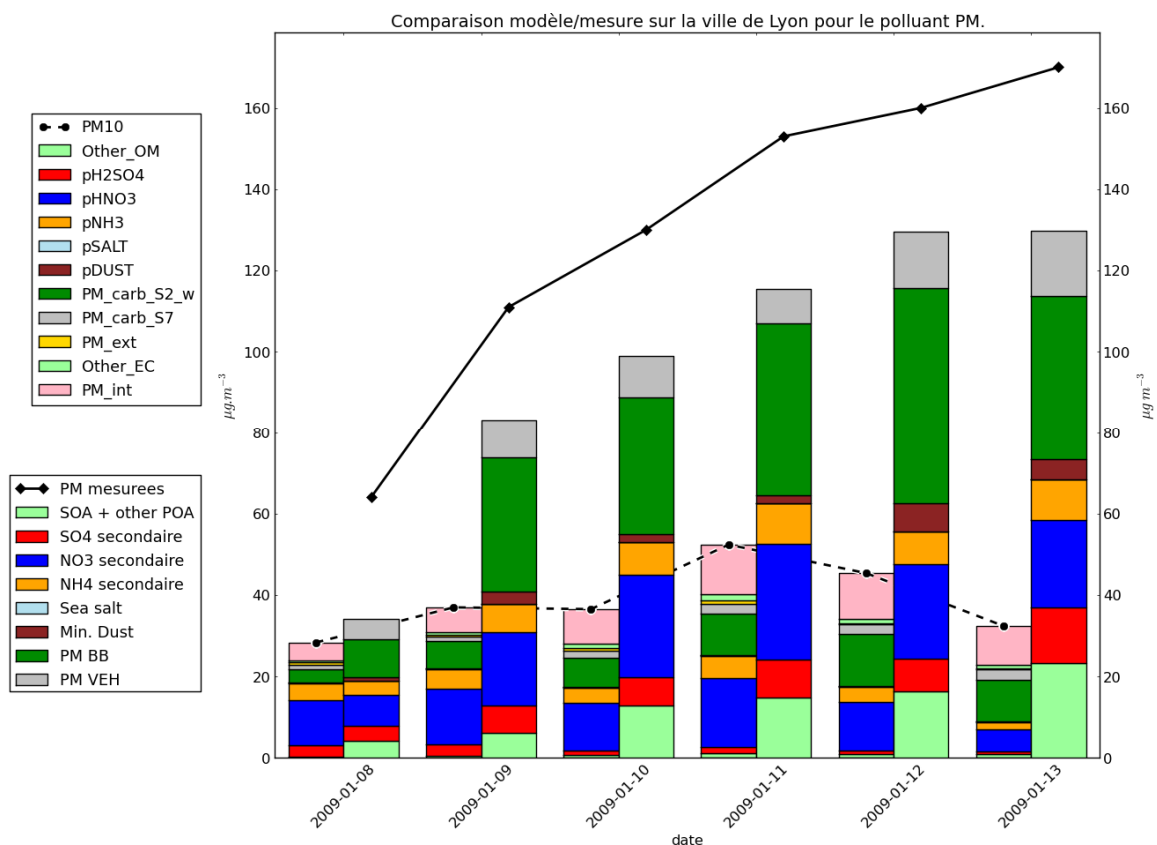


Figure 19 : Comparaison absolue modèle/mesure de la répartition des PM sur le site de Lyon.

La Figure 20 et Figure 21 montrent respectivement la répartition du carbone total en absolu et relatif sur les différents secteurs d'activité. D'une manière générale, on constate que les parts relatives du chauffage au bois et du trafic routier sont assez bien respectées. Néanmoins, le biais du carbone total reste important, il constitue près d'un tiers du biais des PM_{10} . Parmi les sources carbonées, c'est le trafic qui semble le plus sous-estimé, à 82%, mais suivi de très près par le chauffage au bois et les AOS.

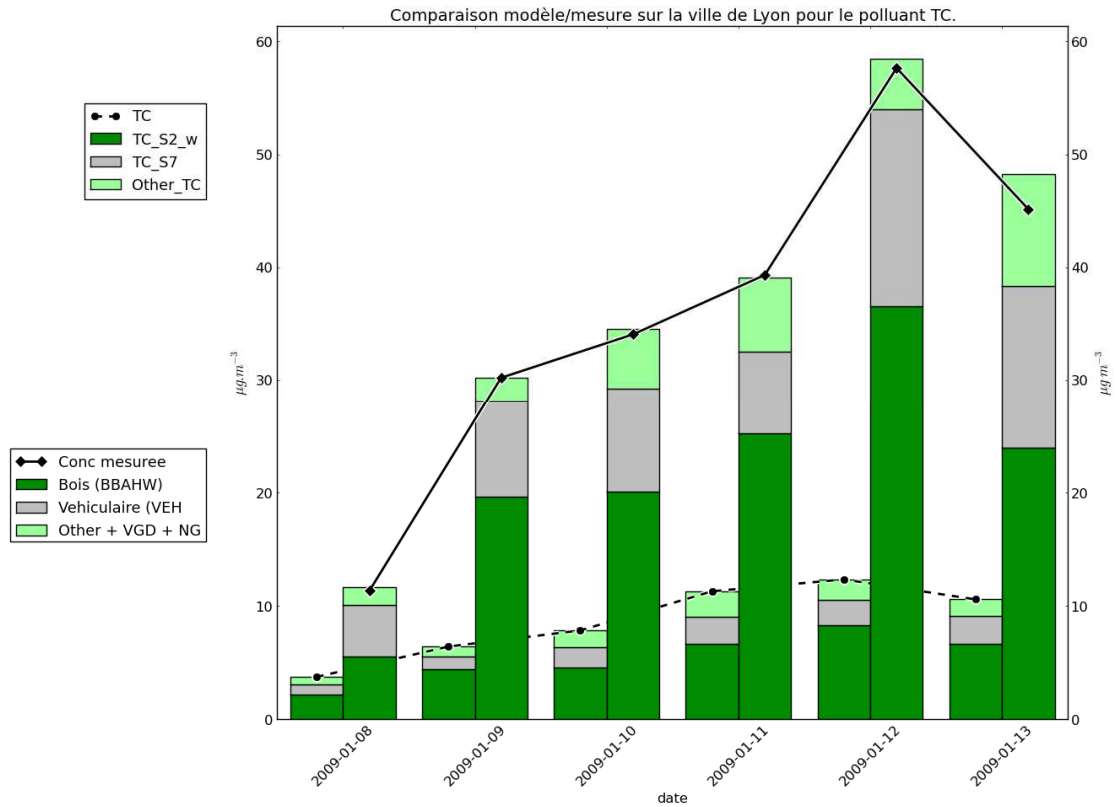


Figure 20 : Comparaison absolue modèle/mesure de la répartition du carbone total sur le site de Lyon.

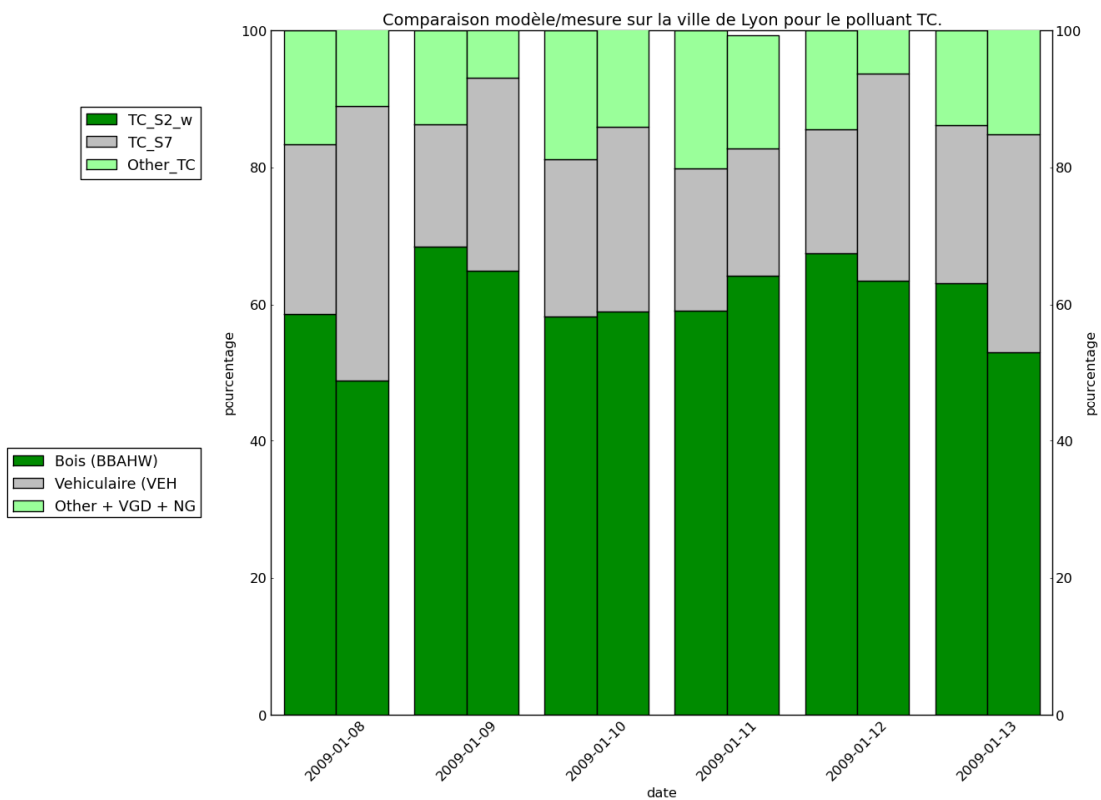


Figure 21 : Comparaison relative modèle/mesure de la répartition du carbone total sur le site de Lyon.

La Figure 22 et Figure 23 montrent respectivement la répartition du carbone élémentaire en absolu et relatif sur les différents secteurs d'activité. Comme pour le site de Rouen, les analyses par CMB attribuent une large part de ce carbone au trafic, ce que le modèle échoue à reproduire. Cependant, il est possible que les mesures des deux derniers jours soient surestimées, l'analyse par CMB reconstituant une masse plus importante que la masse de carbone effectivement mesurée.

Il est remarquable que les concentrations du modèle de carbone élémentaire venant du chauffage au bois excèdent celles des observations, tout en restant assez proche. Par ailleurs, le modèle attribue une part non négligeable, 25%, du carbone élémentaire aux sources autres que chauffage au bois et trafic. Il ne s'agit pas ici d'AOS, mais du carbone élémentaire provenant de la combustion hors bois du secteur 2, activité pour laquelle nous avons supposé que le combustible utilisé est le fioul domestique (cf. partie 3.2.3).

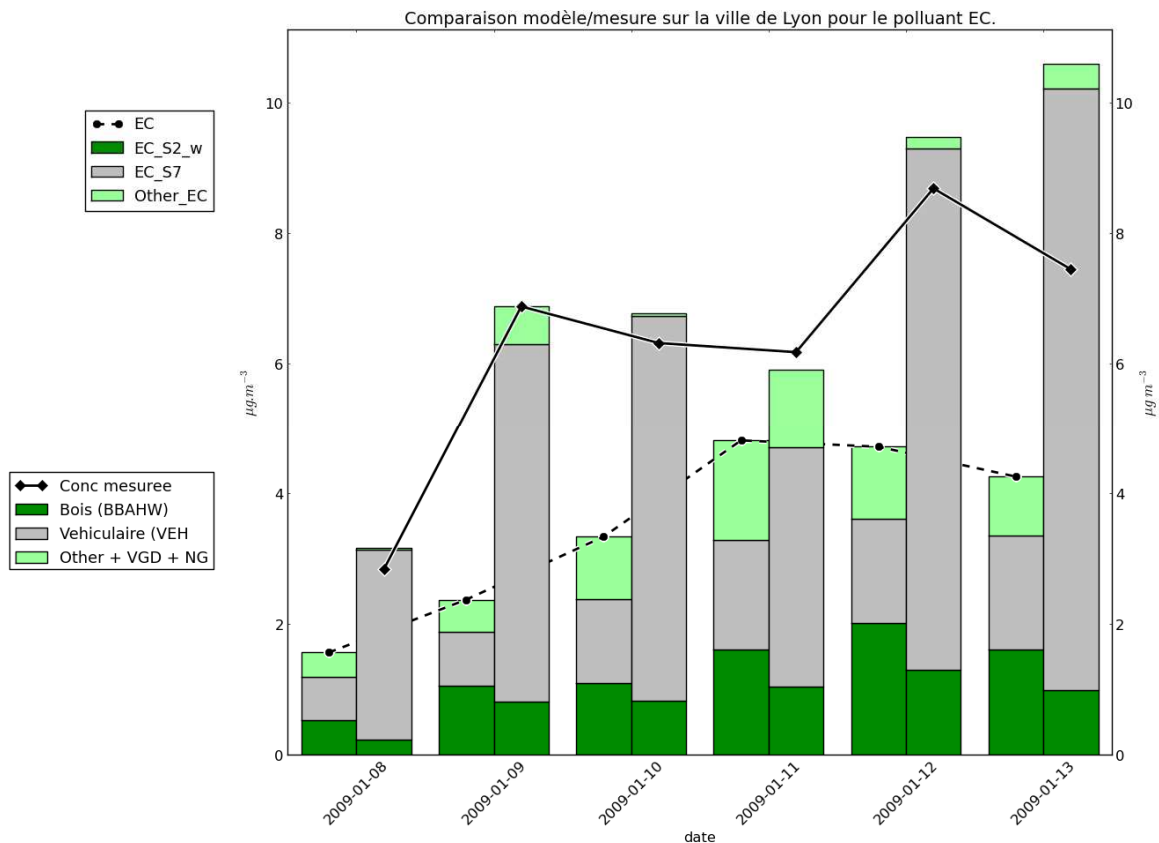


Figure 22 : Comparaison absolue modèle/mesure de la répartition du carbone élémentaire sur le site de Lyon.

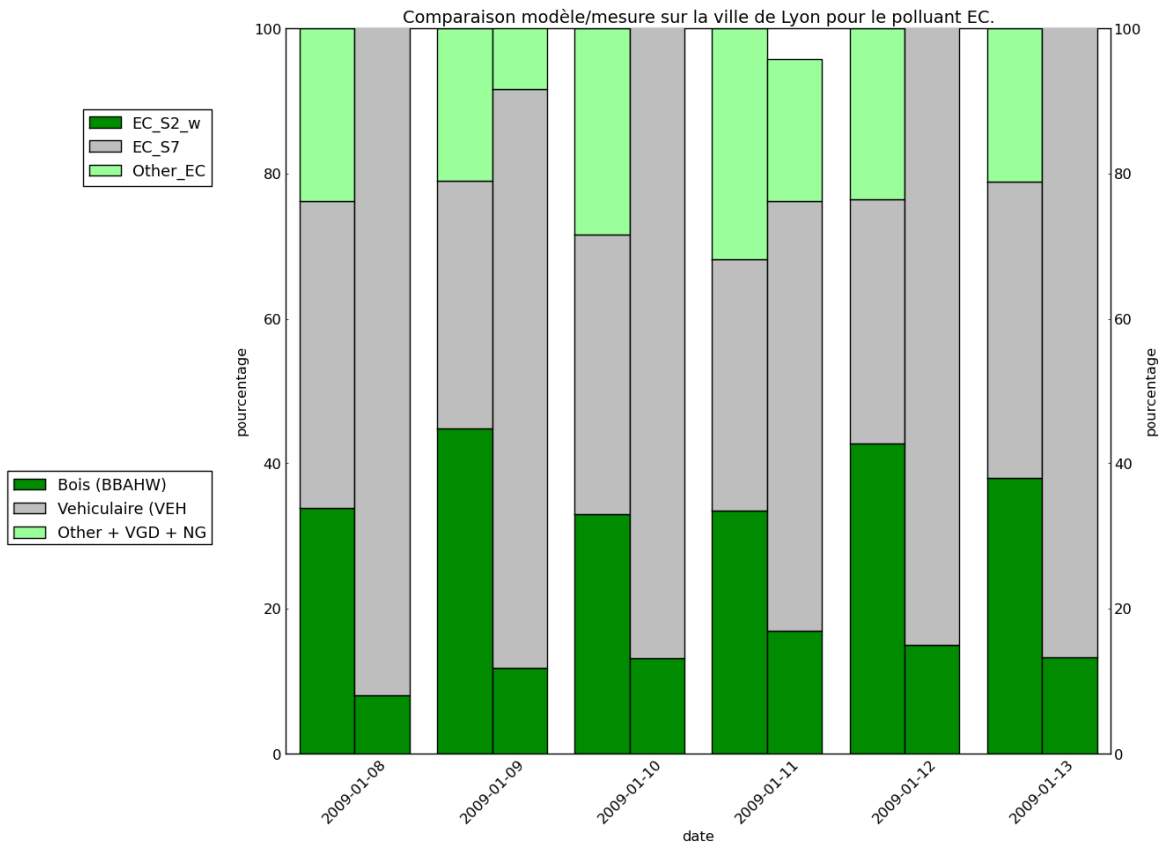


Figure 23 : Comparaison relative modèle/mesure de la répartition du carbone élémentaire sur le site de Lyon.

La Figure 24 et Figure 25 représentent la répartition du carbone organique en absolu et relatif sur les différents secteurs d'activité. Dès le deuxième jour, le biais en OC augmente considérablement, il passe de 3.7 à 15 μ g.m⁻³ rien que pour la source du chauffage au bois. C'est bien ce dernier qui contribue le plus largement au biais, mais si l'on rapporte le biais aux mesures, ce sont les sources du trafic et des AOS qui apparaissent les plus sous-estimées, 88%, contre 80% pour le chauffage au bois. En matière de répartition relative, modèle et observations s'accordent pour attribuer la majeure partie du carbone organique au chauffage au bois, le modèle ayant tendance à sur-estimer cette part. Les proportions de trafic et d'AOS entre le modèle et les mesures restent assez proches, mais plus variables, elles sont données dans le même ordre un jour sur deux.

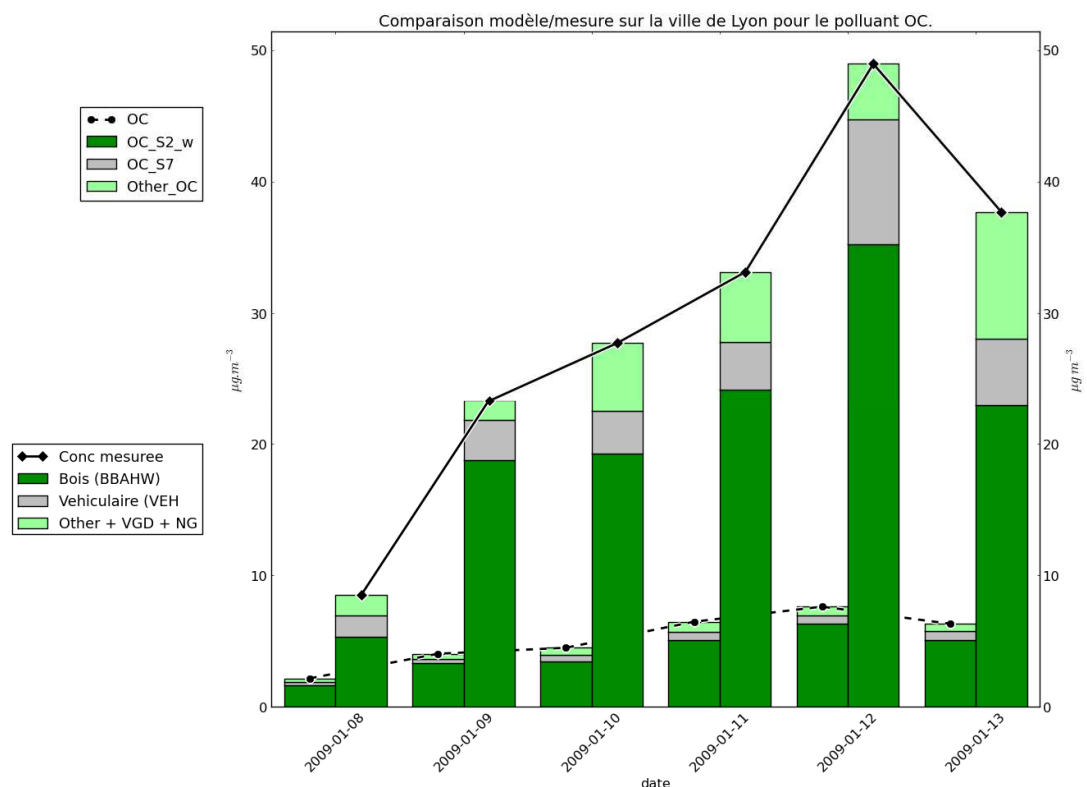


Figure 24 : Comparaison absolue modèle/mesure de la réparation du carbone organique sur le site de Lyon.

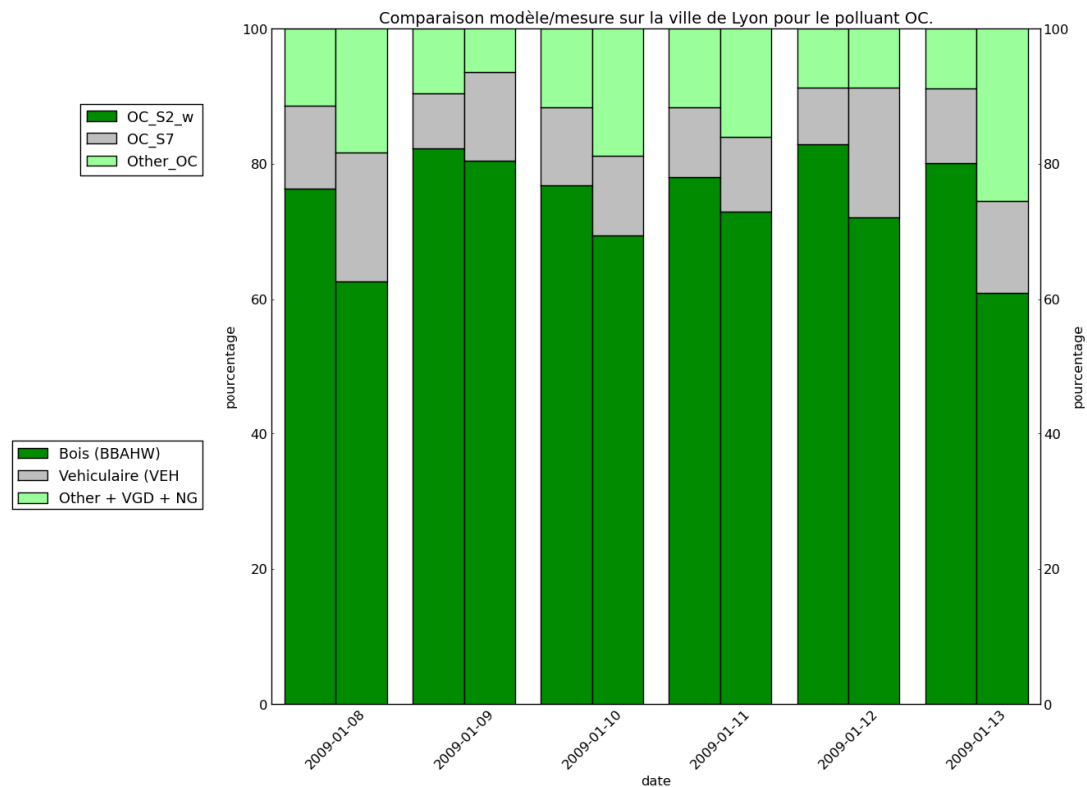


Figure 25 : Comparaison relative modèle/mesure de la réparation du carbone organique sur le site de Lyon.

De même que pour le site de Rouen, la Figure 26 montre la répartition de la matière organique, et illustre en cela l'effet du rapport OM/OC, propre à chaque source (cf. Tableau 5).

La part relative de chauffage au bois a tendance à s'écarter entre modèle et mesures, elle est augmentée dans le modèle et diminuée dans les mesures. La part liée au trafic a tendance à diminuer et dans le modèle et dans les mesures, au profit des AOS. Le biais de la matière organique constitue 47% en moyenne, et jusqu'à 65%, du biais des PM₁₀.

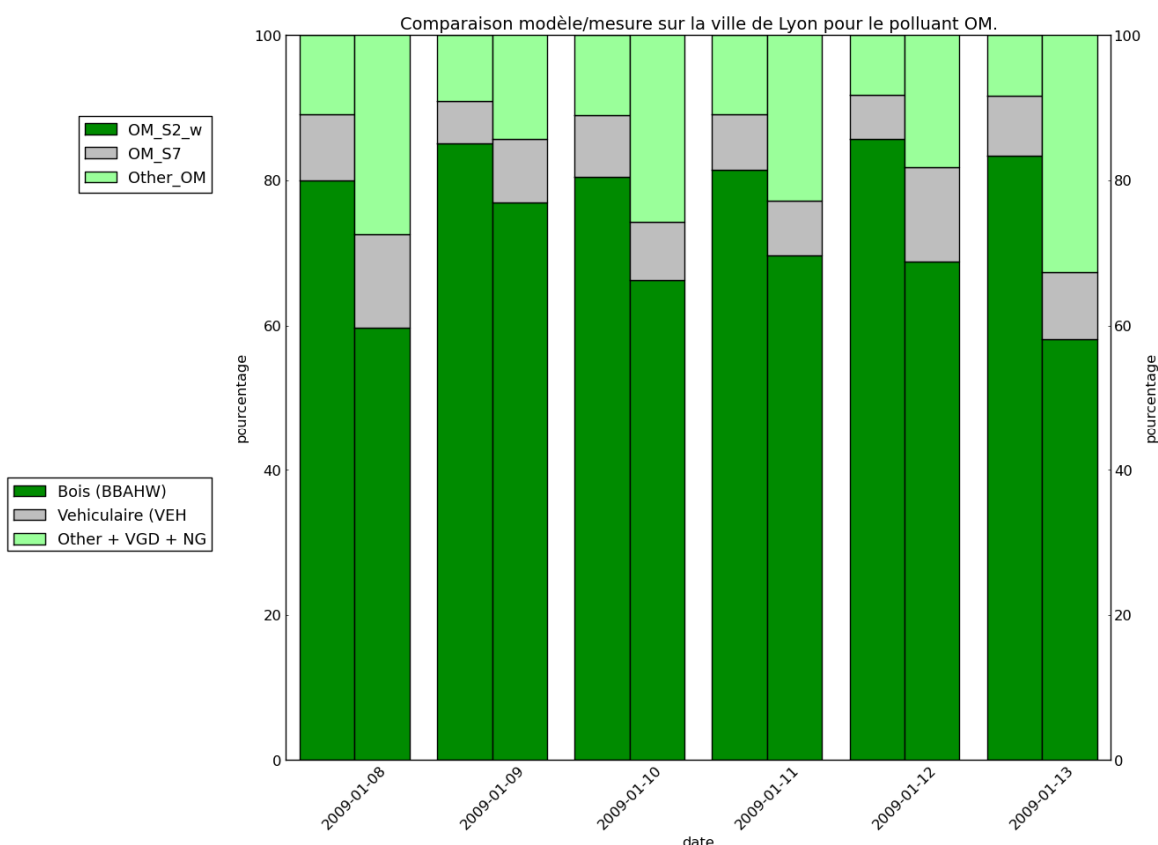


Figure 26 : Comparaison relative modèle/mesure de la répartition de la matière organique sur le site de Lyon.

5.4 DISCUSSION

Les parties précédentes ont tout d'abord mis en lumière le rôle négligeable des particules trans-frontalières dans cet épisode de pollution particulier, leur contribution n'excédant pas quelques pourcents. Ensuite, dans la partie 5.1, la faible corrélation entre champs d'émissions et observations de PM₁₀ indique que cet épisode de pollution ne peut s'expliquer seulement par une sous-estimation des émissions, bien que celles-ci, ne tenant pas compte des vagues de froid exceptionnelles, soient très certainement sous-estimées lors de ces événements.

Cette même partie 5.1 montre également que la matière carbonée provenant du chauffage au bois, et dans une moindre mesure du trafic routier en France, sont les principaux vecteurs de cet épisode de pollution. C'est aussi ce que suggère les comparaisons sur les sites locaux de Rouen et Lyon. On y observe tout d'abord une brusque augmentation du biais des PM_{10} , dont plus de la moitié se retrouve sur la matière carbonée. Ensuite, selon les mesures de carbone total, toutes les sources de carbone sont fortement sous-estimées.

On est donc plutôt en présence d'un phénomène d'accumulation de polluants émis localement, parmi lesquels non seulement les sources de carbone, mais aussi les sels marins (Rouen) et les poussières (Lyon).

On constate par ailleurs que les espèces chimiques de nature secondaires, comme les nitrate et l'ammonium, restent du même ordre de grandeur entre modèle et mesure.

La comparaison aux données de l'étude CARA met aussi en évidence que la sous-estimation du carbone total se retrouve davantage sur le carbone élémentaire pour le trafic, et presque uniquement sur le carbone organique pour le chauffage au bois. On constate même pour cette dernière source que les concentrations en carbone élémentaire sont très proches des mesures, voire supérieures sur Rouen. Attendu que le phénomène d'accumulation constaté doit agir dans les mêmes proportions sur tous les polluants particuliers, cette asymétrie du biais entre les sources de carbone amène à s'interroger sur les fractions EC et OC (cf. Tableau 5).

Le Tableau 13 donne le ratio EC/OC pour les différentes sources de carbone, à partir des concentrations du modèle et des analyses CMB des mesures. Les « autres sources » de carbone contiennent le chauffage hors bois et les COS pour le modèle, la matière organique issue de la combustion du gaz naturel, des détritiques végétaux et la matière organique non identifiée pour la mesure. Les COS, carbone organique secondaire, désignent les équivalents carbone des aérosols organiques secondaires (AOS), on passe de l'un à l'autre par un facteur OM/OC pris égal à 1.6.

Tableau 13 : Comparaison des ratios EC/OC des différentes sources de carbone entre modèle et mesure.

Secteur d'activité	ratio EC/OC	ratio EC/OC
	modèle	mesure
chauffage au bois		
- Rouen	0.32	0.04
- Lyon	0.32	0.04
trafic routier		
- Rouen	2.48	2.26 1.0
- Lyon	2.48	1.51 0.42
autres sources		
- Rouen	1.02 0.55	0.06 0.08
- Lyon	1.65 0.23	0.12 0.14

Le ratio EC/OC est une caractéristique de chaque source ([17]). Il est habituellement inférieur à l'unité pour les sources de combustion du bois, et supérieur à l'unité pour les sources de combustion d'énergies fossiles. Les ratios EC/OC calculés à partir du modèle sont une conséquence directe des fractions EC et OC du Tableau 5. En effet, pour le trafic les fractions EC et OC valent respectivement 0.60 et 0.24, soit un ratio EC/OC de 2.5; pour le chauffage au bois ces mêmes fractions valent respectivement 0.15 et 0.47, soit un ratio EC/OC de 0.32. Ce qui est nettement différent du même ratio tiré de la mesure, 0.04, presque dix fois plus faible. Le ratio de la mesure n'est pas étonnant en soi dans la mesure où il dépend aussi du type de bois, par exemple un des plus faibles ratios EC/OC que l'on puisse tirer des expériences en chambre est 0.043 pour le chêne rouge (cf. Tableau 7), valeur très proche de la mesure. A l'erreur de mesure près, on peut considérer que les fractions EC et OC du chauffage au bois sont ici respectivement surestimées et sous-estimées. Le ratio du trafic obtenu à partir de la mesure s'accorde davantage avec celui du modèle, mais est aussi plus variable. Plus précisément, lors de l'épisode de pollution, ce ratio augmente sur Rouen et diminue sur Lyon, ce que le modèle ne reproduit pas.

Le ratio EC/OC pour les autres sources est plus délicat à interpréter. Il a aussi moins de sens dans la mesure où sont comptés les AOS pour lesquels il n'y a pas de carbone élémentaire associé. Il est très variable pour la mesure. On constate sur les deux sites qu'il augmente brusquement, en conjonction avec la mesure de carbone élémentaire. Il est aussi variable pour le modèle, quoique moins que la mesure, et surtout, il ne reflète pas les fractions EC et OC prises pour la combustion hors bois. En effet, celles-ci ont été calibrées à partir du fioul domestique comme combustible, et valent respectivement 0.05 et 0.29, soit un ratio EC/OC de 5.8. Cette différence ne peut venir que de la présence des AOS qui, en augmentant la masse de carbone organiques, font baisser ce ratio.

6. ANALYSE DE SENSIBILITE

La partie précédente a montré que l'épisode de pollution est principalement dû à un processus d'accumulation d'émissions locales sous l'influence de conditions météorologiques très stables. Mais d'autres paramètres peuvent entrer en jeu, comme les vitesses de dépôt des particules, la température ou certaines réactions chimiques.

L'objet de cette partie est de classer les paramètres du modèle suivant leur effet sur le biais des PM_{10} . Autrement dit, on souhaite répondre à la question suivante : quels sont les paramètres qui sont le plus susceptibles de contribuer au biais du modèle ?

Nous nous appuyons ici sur les résultats de l'étude [21] sur les incertitudes de *Chimere* à l'aide d'un processus de Monte Carlo. Brièvement, celui-ci consiste à effectuer un assez grand nombre de simulations avec *Chimere* (ici 163) en perturbant à chaque fois l'ensemble des paramètres du modèle selon des lois de probabilité connues. Les simulations Monte Carlo prennent pour cadre l'épisode de pollution de janvier 2009, du 5 au 13 janvier inclus, mais sans source apportement et avec une résolution plus faible pour des raisons de coût calcul.

Il est important de noter que les perturbations appliquées au modèle dans le cadre cette étude sont du même ordre de grandeur que les concentrations elles-mêmes, et permettent ainsi d'évaluer la sensibilité réelle (ou non linéaire) du modèle, par opposition à des petites perturbations linéaires.

La sensibilité du modèle *Chimere* à ses paramètres consiste à mesurer la variation Δc des concentrations c du modèle suivant les perturbations Δp_i des paramètres p_i . La variation des concentrations du modèle peut se mettre sous une forme linéaire des perturbations :

$$\Delta c = \sum_i \omega_i \Delta p_i + b \quad (11)$$

où ω_i est le coefficient de sensibilité du paramètre p_i , b est un biais résiduel, éventuellement nul.

Dans la suite, on ne retient le coefficient de sensibilité que si son écart type est inférieur de moitié à sa valeur absolue. Le coefficient est alors dit « explicatif ».

Dans la suite, nous présentons et commentons l'histogramme 26 des principaux paramètres qui influent sur le biais des PM_{10} du modèle (observations du réseau *Baster* moins la simulation). On laisse en annexe 3 une étude plus détaillée sur la sensibilité des PM_{10} et de ses constituants.

Un coefficient de sensibilité s'interprète de la façon suivante. Si sa valeur est y , alors une perturbation de 10% du paramètre auquel il est associé entraîne une augmentation ou diminution de $0.1 y \mu g.m^{-3}$ du biais des PM_{10} , suivant le signe de y . Les histogrammes sont en magenta si le coefficient est positif, en cyan sinon.

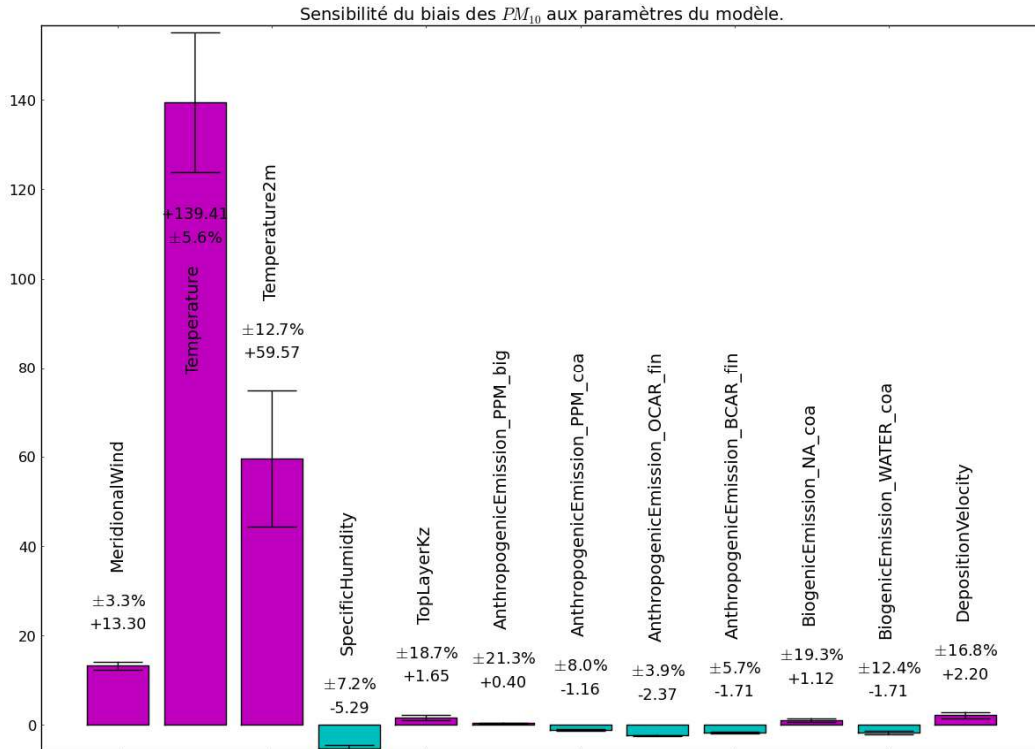


Figure 27 : Sensibilité du biais des PM_{10} aux paramètres du modèle.

La Figure 27 montre que le biais est très sensible à la température, puisqu'une diminution de 1% de la température, soit 3 degrés Celsius, suffit à diminuer le biais de $1.39 \mu\text{g.m}^{-3}$. Viens ensuite la vitesse du vent (MeridionalWind), si celle-ci diminue de 10%, le biais est diminué de $1.33 \mu\text{g.m}^{-3}$, ce qui est physiquement réaliste dans la mesure où les polluants ont plus tendance à s'accumuler avec un vent faible.

Les paramètres suivants sont l'humidité spécifique (SpecificHumidity), les vitesses de dépôt des particules (DepositionVelocity) et le coefficient de diffusion vertical (TopLayerKz). C'est seulement après ces paramètres que l'on retrouve la sensibilité du biais aux champs d'émissions (AnthropogenicEmission et BiogenicEmission). Par exemple, une augmentation de 100% des émissions en matière organique (OCAR_fin) entraîne une diminution du biais de $2.37 \mu\text{g.m}^{-3}$. Mais la sensibilité aux émissions n'est pas toujours dans le sens attendu, tel les émissions de sodium (NA_coa) et de (PPM_big). On touche du doigt ici l'effet non linéaire de certaines perturbations, évoqué plus haut. Autrement dit, même si les émissions de NA_coa font bien augmenter la concentration en sodium des particules, elles peuvent déséquilibrer l'équilibre thermodynamique des particules et provoquer l'évaporation d'autres constituants inorganiques.

Cette étude va dans le même sens que la comparaison aux données en montrant que le biais du modèle est plus sensible à certains paramètres météorologiques, dont notamment la température, la vitesse du vent, la diffusion verticale et l'humidité de l'air, qu'aux émissions elles-mêmes. Il est notable effectivement que celles-ci n'aient qu'une influence très secondaire sur les concentrations en PM_{10} , c'est moins le cas si l'on analyse la sensibilité des traceurs tels que matière organique, PPM, sels marins et poussières, pour qui l'on retrouve une dépendance plus forte à leurs émissions. Les figures analogues à la Figure 27 pour ces traceurs sont rassemblées en **Annexe 3 Etude de sensibilité**.

Néanmoins, pour correctement interpréter la Figure 27, il ne faut pas oublier que les champs d'émissions sont probablement plus incertains que les champs météo, s'il n'est pas impensable de multiplier par 2 un champ d'émission, on n'en fera pas autant pour la température. La sensibilité relative des concentrations aux différents paramètres du modèle reste tributaire du modèle lui-même et de la période considérée. Les modèles diffèrent par les paramétrisations physiques utilisées, comme celle de la diffusion verticale. Quant à la période, en été on verrait probablement une sensibilité plus grande aux émissions biogéniques, dont la répartition entre phase gaz et particules est le résultat de processus physico-chimiques qui dépendent eux-mêmes de plusieurs paramètres météorologiques, dont la température et le flux actinique.

7. CONCLUSION ET PERSPECTIVES

Cette étude fait suite aux rapports [20, 24] dont l'objet est de caractériser la composition chimique des particules à partir de données de mesures, lors d'un épisode de pollution particulaire survenu en janvier 2009.

L'objet de cette étude est de reproduire cet épisode avec le modèle de dispersion *Chimere* afin d'en expliciter les causes et aussi d'améliorer la prise en compte de tels épisodes par les modèles de dispersion.

Au cours de cette étude, la dispersion des particules a été simulée avec le modèle *Chimere* sur une période allant du 1er décembre 2008 au 31 janvier 2009 (inclus), en utilisant une résolution horizontale de 0.075×0.05 degrés sur la France.

Les nouveautés de cette étude par rapport à une simulation classique et directe des concentrations de PM_{10} et $PM_{2.5}$ sont d'une part l'utilisation du secteur 2 de l'inventaire national spatialisé (INS) et d'autre part la mise en œuvre d'une technique de « source apportement » avec le modèle de chimie transport *Chimere*. Quoique non encore validé, l'INS offre une meilleure résolution spatiale (kilométrique), temporelle (horaire) et surtout, dispose d'une description très fine en secteurs d'activité. La modélisation orientée recherche de source consiste à démultiplier les traceurs de *Chimere* en autant de sources que l'on souhaite suivre explicitement.

En nous aidant du rapport [20], cinq sources ont été identifiées : les particules provenant du chauffage au bois, celles émises par les activités du secteur 2 autres que le chauffage au bois, celles du trafic routier français, celles venant des autres secteurs situées en France métropolitaine, et enfin les particules provenant de tous types de sources en dehors du territoire français.

La première conclusion à tirer est pour l'inventaire utilisé. Celui-ci donne en moyenne les mêmes niveaux de concentrations qu'une simulation du système Prev'Air, qui s'appuie sur l'inventaire EMEP, mais améliore significativement la corrélation aux observations. Autrement dit, l'INS, à tout le moins son secteur 2, répartit plus finement une même quantité d'émission.

La seconde conclusion est que la comparaison aux mesures comme l'analyse de sensibilité témoignent davantage d'un phénomène d'accumulation de polluants émis localement.

La comparaison au réseau de stations des AASQAs montre que, si les PM_{10} sont relativement corrélées aux observations, les champs d'émissions, quant à eux ne le sont pas du tout. Autrement dit, le modèle *Chimere* rend compte, quoique qu'imparfaitement, d'une certaine réalité physique qui est complètement absente des champs d'émissions. Les analyses CMB du rapport [20] permettent de comparer les concentrations des traceurs des sources du chauffage au bois et du trafic à des données de mesure. Il en ressort que le biais du modèle est principalement le fait de ces traceurs lors de l'épisode, et plus généralement le fait de polluants émis localement (poussières et sels de mer).

L'analyse de sensibilité effectuée dans la dernière partie montre que le biais du modèle est plus sensible aux principaux champs météorologiques (température, vitesse et direction du vent ainsi que diffusion verticale) et aux vitesses de dépôt, qu'aux champs d'émissions.

Une meilleure prise en compte de tels épisodes par le modèle Chimere passe d'abord par des champs météorologiques plus affinés, parmi lesquels notamment la température, l'humidité spécifique, la vitesse et direction du vent ainsi que la diffusion verticale, les deux premiers ayant une influence directe sur les propriétés physicochimiques des particules. Mais on peut cependant dégager plusieurs perspectives d'améliorations pour le modèle lui-même, qui trouvent par ailleurs un écho dans les efforts de recherche actuels.

Parmi les composés organiques, les AOS¹⁰, bien que généralement d'importance moindre en hiver, ne sont sans doute pas à négliger.

Tout d'abord car la matière organique dans son ensemble reste difficile à mesurer de manière exhaustive : une part significative reste « non caractérisée »¹¹ et est généralement imputable à des composés organiques ayant subis plusieurs transformations physicochimiques complexes, donc plutôt des AOS.

Ensuite, car la quantité de matière particulaire recueillie lors des mesures des facteurs d'émissions dépend significativement du taux de dilution, lequel ne correspond pas toujours à celui de l'air ambiant ([22]), et du type de filtre utilisés (voir par exemple le Tableau 8 avec/sans dénudeur). De là, une possible sous-estimation des émissions dont la part semivolatile, majoritairement dans la phase gazeuse à dilution ambiante, n'est pas prise en compte. Ce point est d'autant plus crucial que l'on se sert également de la spéciation issue de la mesure, notamment EC/OC, pour répartir les émissions sur les traceurs du modèle. On peut s'interroger, par exemple, sur la validité d'attribuer à tout le secteur du chauffage au bois la spéciation obtenue à partir d'une essence particulière.

Enfin, il n'existe pas encore aujourd'hui de consensus sur leurs mécanismes physico-chimiques de formation et la façon de les modéliser : deux méthodes s'opposent, l'approche par VBS¹², qui répartit les AOS sur des classes de volatilité et établit des règles de passage de l'une à l'autre, et l'approche moléculaire, qui cherche à attribuer une formule chimique précise à chaque traceur du modèle.

Des trois points précédents les deux premiers visent à améliorer les inventaires d'émissions et plus particulièrement leurs facteurs d'émissions. Mais les concentrations émises dépendent également de la donnée d'activité. En ce sens, on peut également se demander si l'activité du chauffage au bois ne devrait pas être modulée par la température, comme le sont les émissions biogéniques¹³.

¹⁰ Aérosols Organiques Secondaires

¹¹ En témoignent les camemberts incomplets issus de la mesure.

¹² Volatility Basis Set.

¹³ Mais la comparaison s'arrête là, une hausse de température a tendance à faire monter les émissions biogéniques, tout le contraire des émissions du chauffage au bois.

Le troisième point concernant la modélisation des AOS est aussi à replacer dans le contexte plus général de l'amélioration des modèles d'aérosols qui ont pour tâche, à l'intérieur des modèles de Chimie transport comme Chimere, de simuler la dynamique des particules dans l'atmosphère, c'est-à-dire l'ensemble de leur transformations physico-chimiques. On distingue deux thématiques :

la prise en compte des particules ultrafines et des nanoparticules. Jusqu'à récemment, les modèles de chimie transport n'avaient qu'une représentation massique des plus petites particules, alors que celles-ci se caractérisent surtout par leur nombre et qu'elles constituent une part conséquente des particules émises par la combustion, dont le diamètre moyen se situe autour de 0.1-0.2 μm .

la modélisation du degré de mélange des particules de différentes sources, c'est-à-dire dans quelle mesure les particules de même taille ont des compositions chimiques différentes. Le degré de mélange est généralement ignoré dans la plupart des applications¹⁴, or des études récentes ([23]) montrent que les populations d'aérosols transportées restent dans une certaine mesure non mélangées et gardent, pour ainsi dire, la trace de la composition chimique des particules initialement émises.

Ces deux thématiques ont fait l'objet de deux thèses financées par l'INERIS et soutenues en décembre 2012, dont les résultats sont actuellement repris dans le développement d'un nouveau modèle d'aérosols visant à mieux représenter les particules ultra fines ainsi que les différentes sources d'aérosols en milieu urbain. Ce modèle a vocation à être intégré à Chimere dans un contexte opérationnel.

¹⁴ A l'exception notable de l'étude de l'effet radiatif des aérosols.

8. REFERENCES

[1] Debry, E. Un point sur les techniques de recherche de contribution de sources. Technical report, INERIS, 2010.

[2] Bessagnet, B. and Hodzic, A. and Vautard, R. and Beekmann, M. and Cheinet, S. and Honoré, C. and Liousse, C. and Rouil, L. Aerosol modeling with CHIMERE—preliminary evaluation at the continental scale. *Atmospheric Environment*, 38(18):2803-2817, 2004.

[3] Bessagnet, B. and Menut, L. and Curci, G. and Hodzic, A. and Guillaume, B. and Liousse, C. and Moukhtar, S. and Pun, B. and Seigneur, C. and Schulz, M. Regional modeling of carbonaceous aerosols over Europe—focus on secondary organic aerosols. *Journal of Atmospheric Chemistry*, 61:175-202, 2008. 10.1007/s10874-009-9129-2.

[4] Turpin, B.J. and Lim, H.J. Species Contributions to PM_{2.5} Mass Concentrations: Revisiting Common Assumptions for Estimating Organic Mass. *Aerosol Science and Technology*, 35(1):602-610, 2001.

[5] Liousse, C. and Penner, J.E. and Chuang, C. and Walton, J.J. and Eddleman, H. A global three-dimensional model study of carbonaceous aerosols. *Journal of Geophysical Research*, 101(D14):19,411-19,432, 1996.

[6] Junker, C. and Liousse, C. A global emission inventory of carbonaceous aerosol from historic records of fossil fuel and biofuel consumption for the period 1860–1997. *Atmos. Chem. and Physics*, 8:1195–1207, 2008.

[7] McDonald, J.D. and Zielinska, B. and Fujita, E.M. and Sagebiel, J.C. and Chow, J.C. and Watson, J.G. Fine Particle and Gaseous Emission Rates from Residential Wood Combustion. *Environ. Sci. Technol.*, 34:2080-2091, 2000.

[8] Fine, P.M. and Cass, G.R. and Simoneit, B.R.T. Chemical Characterization of Fine Particle Emissions from the Wood Stove Combustion of Prevalent United States Tree Species. *Environmental Engineering Science*, 21(6), 2004.

[9] Fine, P.M. and Cass, G.R. and Simoneit, B.R.T. Chemical Characterization of Fine Particle Emissions from the Fireplace Combustion of Woods Grown in the Northern United States. *Environ. Sci. Technol.*, 35(7):2665–2675, 2001.

[10] Fine, P.M. and Cass, G.R. and Simoneit, B.R.T. Chemical Characterization of Fine Particle Emissions from the Fireplace Combustion of Woods Grown in the Southern United States. *Environ. Sci. Technol.*, 36(7):1442–1451, 2002.

[11] Hildemann, L.M. and Markowski, G.R. and Cass, G.R. Chemical composition of emissions from urban sources of fine organic aerosol. *Environ. Sci. Technol.*, 25(4):744–759, 1991.

[12] Rogge, W.F. and Hildemann, L. M. and Mazurek, M.A. and Cass, G.R. and Simoneit, B.R.T. Sources of fine organic aerosol. 5. Natural gas home appliances. *Environ. Sci. Technol.*, 27(13):2736–2744, 1993.

[13] Bond, C.T. and Streets, D.G. and Yarber, F.K. and Nelson, S.M. and Woo, J-H and Klimont, Z. A technology-based global inventory of black and organic carbon emissions from combustion. *Journal of Geophysical Research*, 109(D14203), 2004.

[14] Schauer, J. and Kleeman, M. J. and Cass, G. and Simoneit, B. Measurement of Emissions from Air pollution Sources. 2. C1 through C30 Organic Compounds from Medium Duty Diesel Trucks. *Environmental Science and Technology*, 33(10):1578-1587, 1999.

[15] Schauer, J. and Kleeman, M. J. and Cass, G. and Simoneit, B. Measurement of Emissions from Air pollution Sources. 5. C1 through C32 Organic Compounds from Gasoline-Powered Motor Vehicles. *Environmental Science and Technology*, 36(6):1169-1180, 2002.

[16] Béatrice Bourdeau. *Évolution du Parc Automobile Français entre 1970 et 2020*. PhD thesis, Université de Savoie - Chambéry - Laboratoire de Chimie et Ingénierie de l'Environnement, 1998.

[17] Gillies, J.A. and Gertler, A.W. Comparison and Evaluation of Chemically Speciated Mobile Source $PM_{2.5}$ Particulate Matter Profiles. *Journal of Air and Waste Management Association*, 50:1459-1480, 2000.

[18] Fels, X. The French Automotive Industry. Analysis and Statistics. Technical report, CCFA, 2010.

[19] El Haddad, I. and Marchand, N. and Drona, J. and Temime-Roussela, B. and Quiveta, E. and Worthama, H. and Jaffrezo, J.L. and Baduel, C. and Voisin, D. and Jean Luc Besombes, J.L. and Gille, G. Comprehensive primary particulate organic characterization of vehicular exhaust emissions in France. *Atmospheric Environment*, 43(19):6190-6198, 2009.

[20] Chiappini, L. Métrologie des particules PM_{10} et $PM_{2.5}$. Caractérisation Chimique des Particules. Veille sur les études de sources. Technical report, INERIS, 2009.

[21] Debry, E. and Malherbe L. and Mallet, V. and Bessagnet, B. and Rouïl, L. BCRD Incertitudes : Intégration probabiliste pour l'assimilation de données d'observation dans les modèles de qualité de l'air. Technical report, INERIS, 2010.

[22] Lipsky, E.M. and Robinson, A.L. Effects of Dilution on Fine Particle Mass and Partitioning of Semivolatile Organics in Diesel Exhaust and Wood Smoke. *Environmental Science and Technology*, 40(1):155-162, 2006.

[23] Hughes, L. S. and Allen, J. O. and Bhave, P. and Kleeman, M. J. and Cass, G. R. and Liu, D.-Y. and Ferguson, B. D. and Morrical, B. D. and Prather, K. A. Evolution of Atmospheric Particles along Trajectories Crossing the Los Angeles Basin. *Research*, 34(15):3058-3068, 2000

[24] Aymoz, G. and Chiappini, L. Métrologie des particules PM_{10} et $PM_{2.5}$. Caractérisation Chimique des Particules. Bilan des campagnes de janvier 2008 à janvier 2009. Technical report, INERIS, 2009.

9. ANNEXES

Repère	Désignation	Nombre de pages
Annexe 1	Distribution des stations du réseau de mesure des AASQAs en France	1
Annexe 2	Comparaison modèle / mesures	20
Annexe 3	Etude de sensibilité	5

Annexe 1 Distribution des stations du réseau de mesure des AASQAs en France

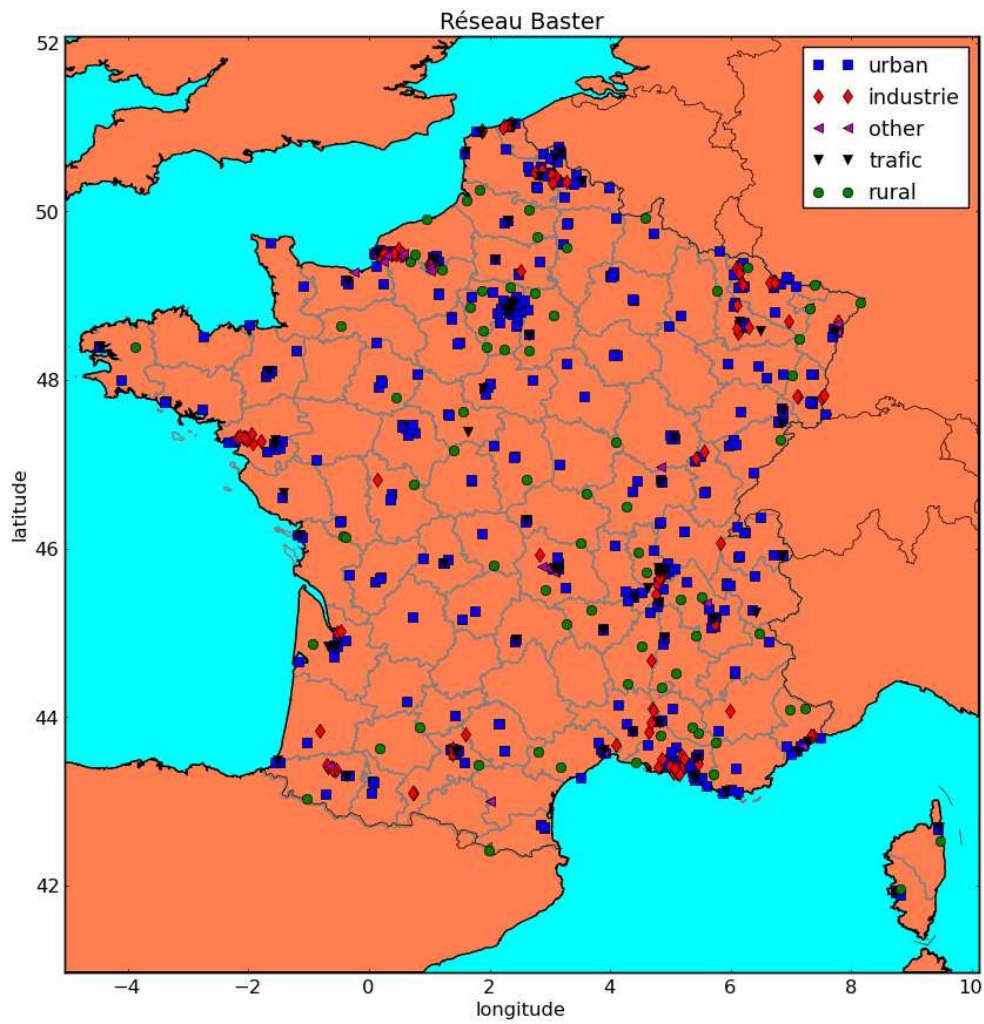


Figure 28 : Distribution des stations du dispositif de mesure français pour les PM_{10} .

Annexe 2 Comparaison modèle/mesures

8.2.1 SITE DE ROUEN

- PM

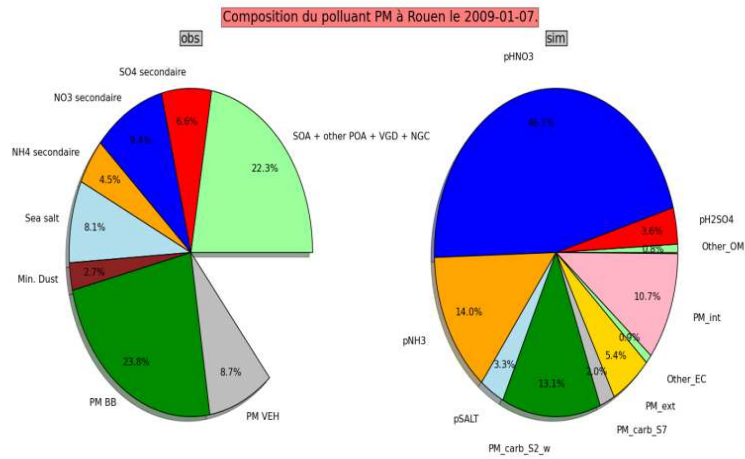


Figure 29 : Répartition des PM, Rouen le 2009-01-07.

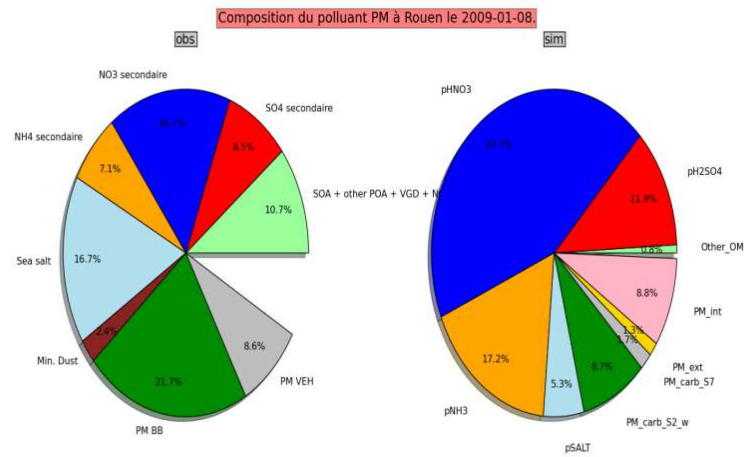


Figure 30 : Répartition des PM, Rouen le 2009-01-08.

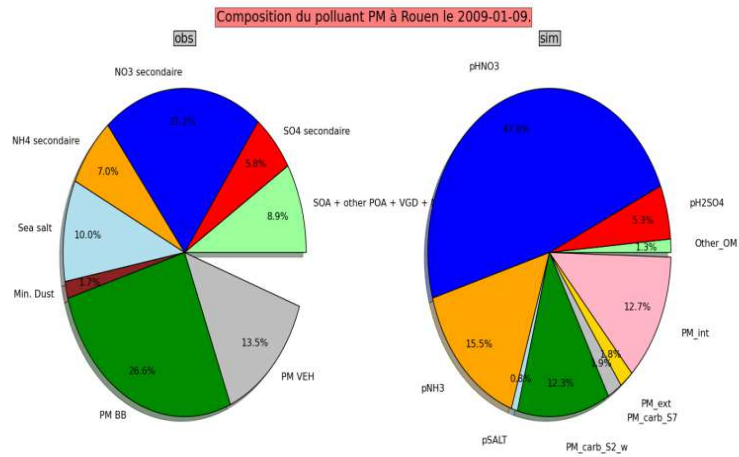


Figure 31 : Répartition des PM, Rouen le 2009-01-09.

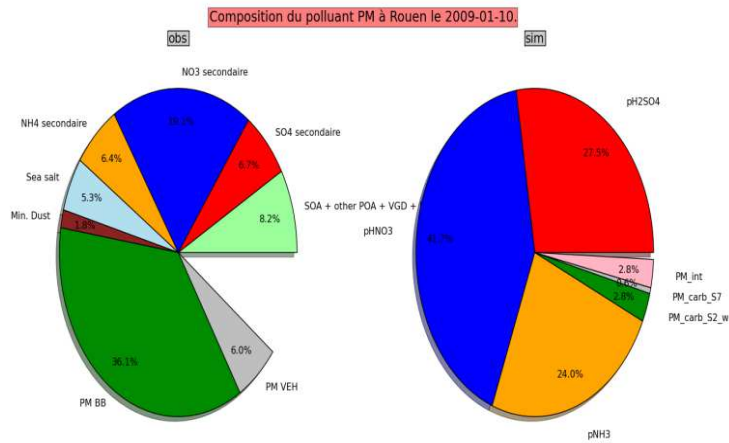


Figure 32 : Répartition des PM, Rouen le 2009-01-10.

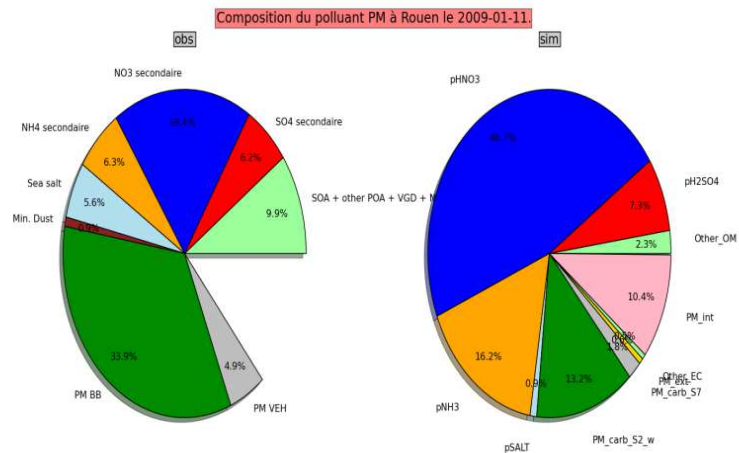


Figure 33 : Répartition des PM, Rouen le 2009-01-11.

• TC

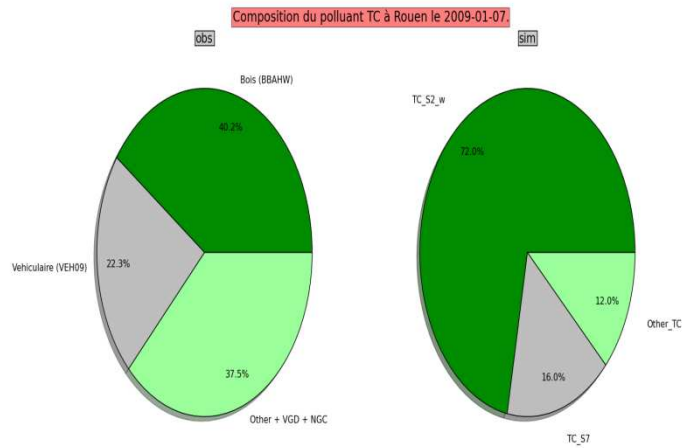


Figure 34 : Répartition du carbone total, Rouen le 2009-01-07.

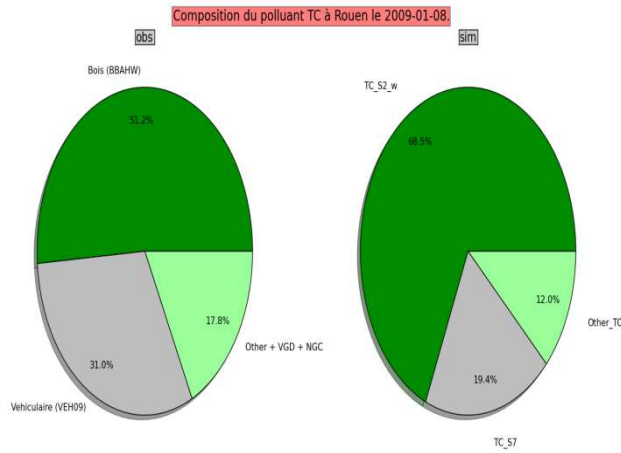


Figure 35 : Répartition du carbone total, Rouen le 2009-01-08.

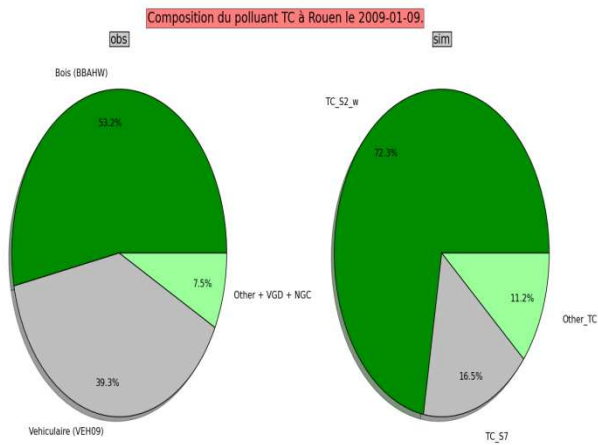


Figure 36 : Répartition du carbone total, Rouen le 2009-01-09.

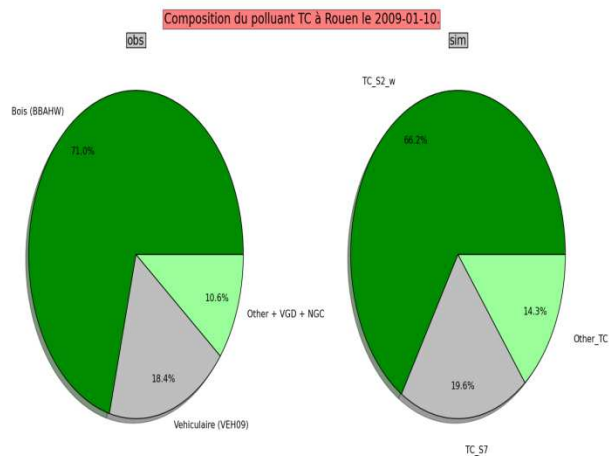


Figure 37 : Répartition du carbone total, Rouen le 2009-01-10.

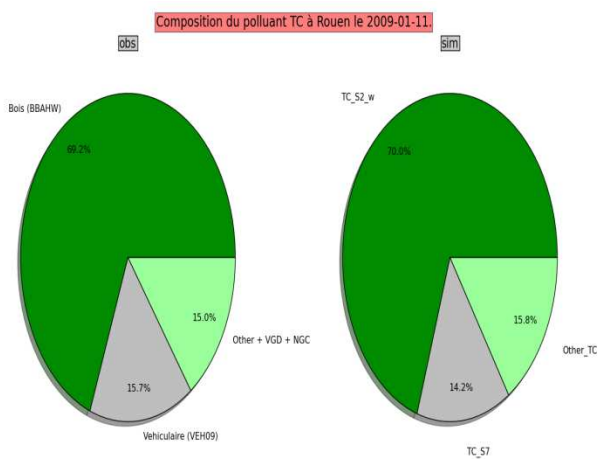


Figure 38 : Répartition du carbone total, Rouen le 2009-01-11.

• EC

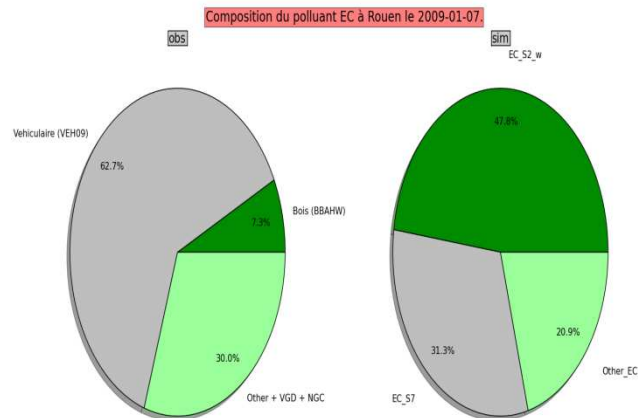


Figure 39 : Répartition du carbone élémentaire, Rouen le 2009-01-07.

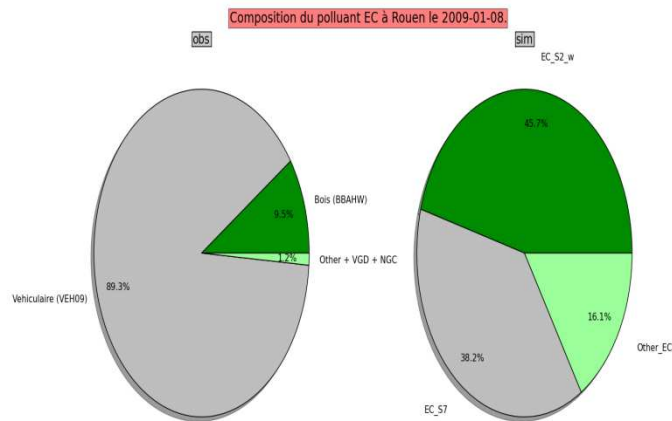


Figure 40 : Répartition du carbone élémentaire, Rouen le 2009-01-08.

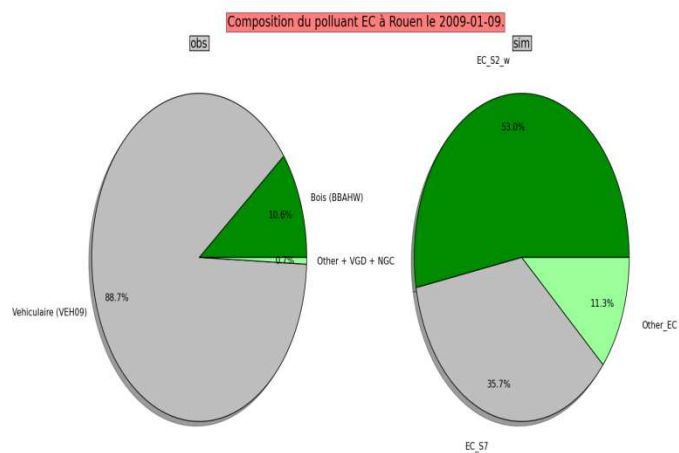


Figure 41 : Répartition du carbone élémentaire, Rouen le 2009-01-09.

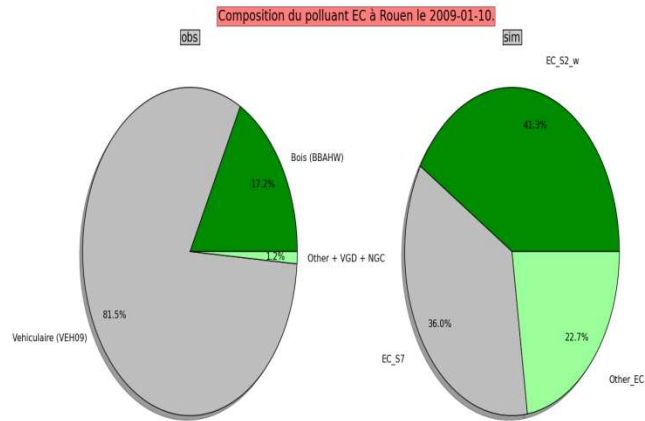


Figure 42 : Répartition du carbone élémentaire, Rouen le 2009-01-10.

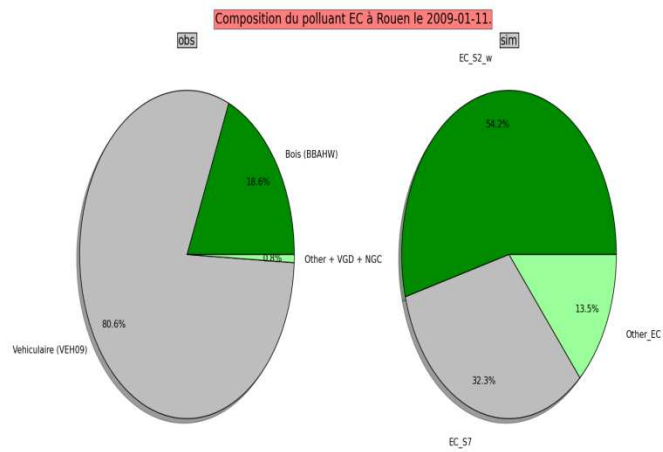


Figure 43 : Répartition du carbone élémentaire, Rouen le 2009-01-11.

• OC

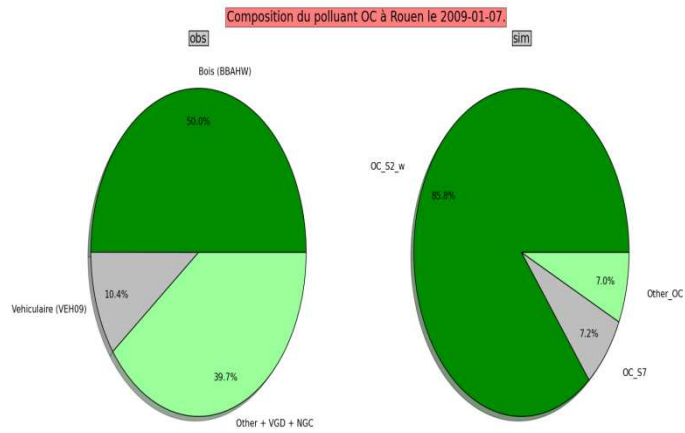


Figure 44 : Répartition du carbone organique, Rouen le 2009-01-07.

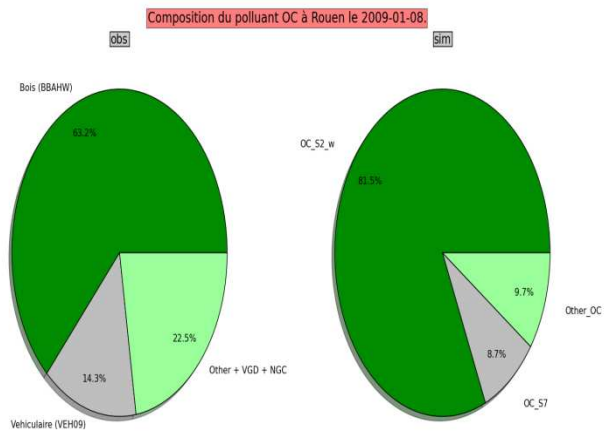


Figure 45 : Répartition du carbone organique, Rouen le 2009-01-08.

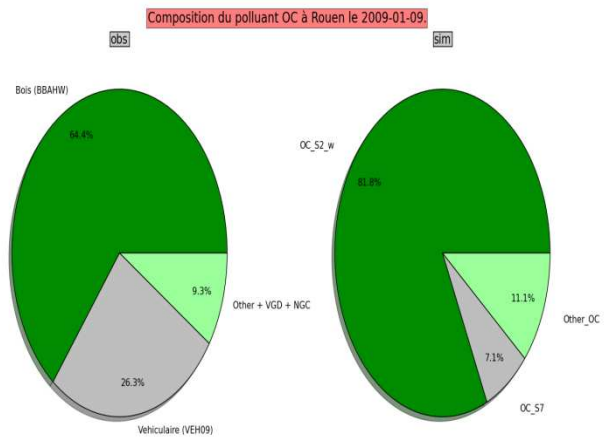


Figure 46 : Répartition du carbone organique, Rouen le 2009-01-09.

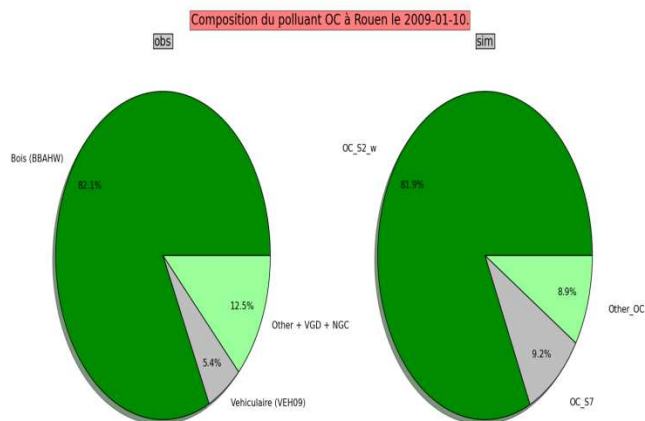


Figure 47 : Répartition du carbone organique, Rouen le 2009-01-10.

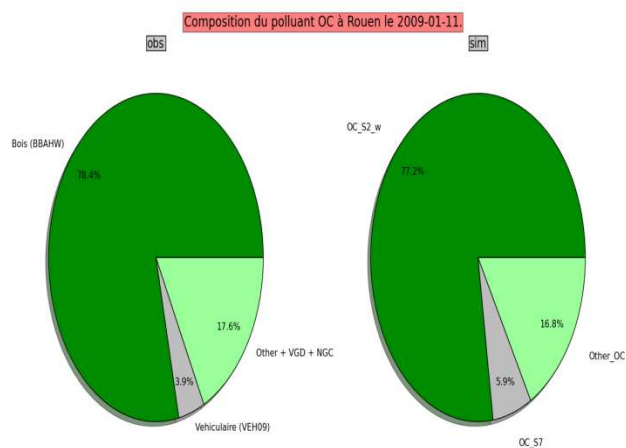


Figure 48 : Répartition du carbone organique, Rouen le 2009-01-11.

• OM

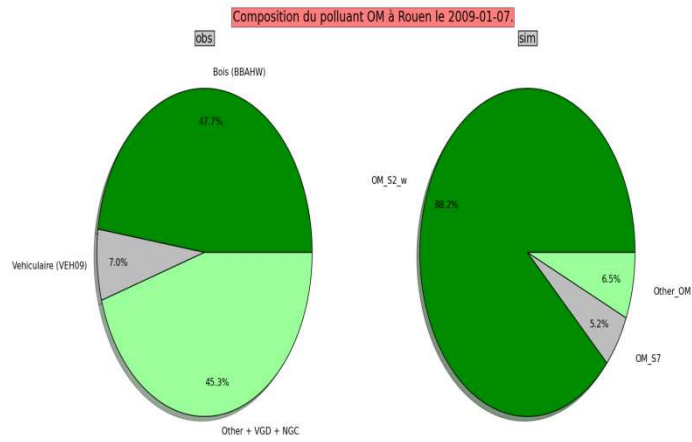


Figure 49 : Répartition de la matière organique, Rouen le 2009-01-07.

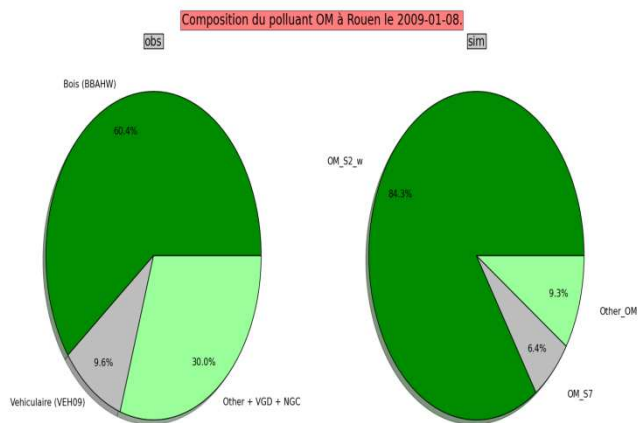


Figure 50 : Répartition de la matière organique, Rouen le 2009-01-08.

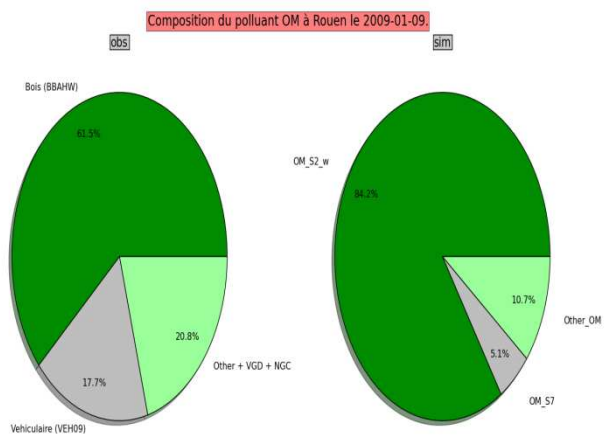


Figure 51 : Répartition de la matière organique, Rouen le 2009-01-09.

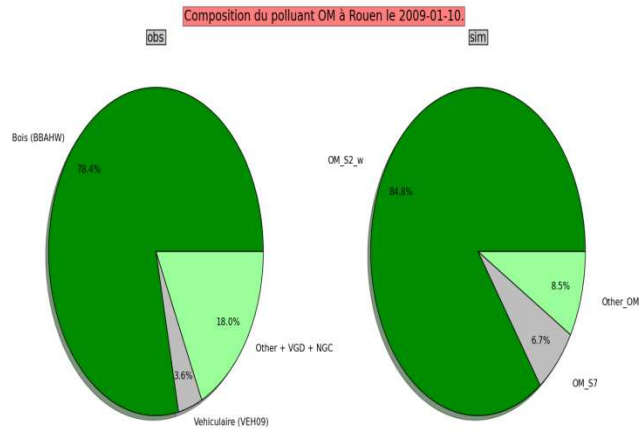


Figure 52 : Répartition de la matière organique, Rouen le 2009-01-10.

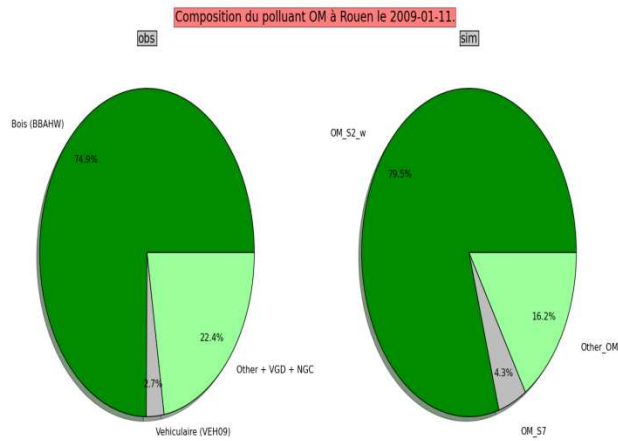


Figure 53 : Répartition de la matière organique, Rouen le 2009-01-11.

8.2.2 SITE DE LYON

- PM

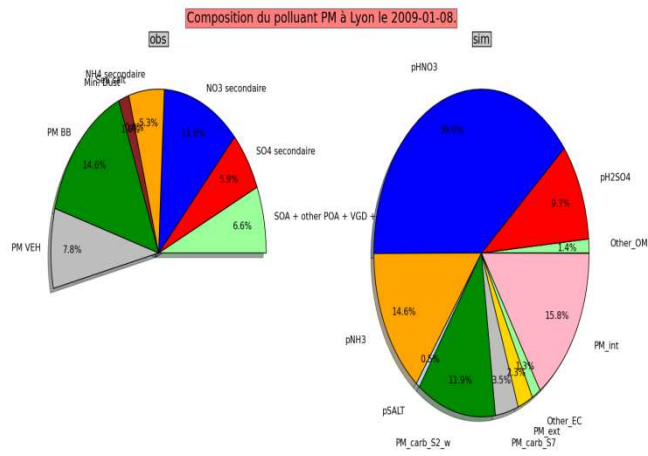


Figure 54 : Répartition des PM, Lyon le 2009-01-08.

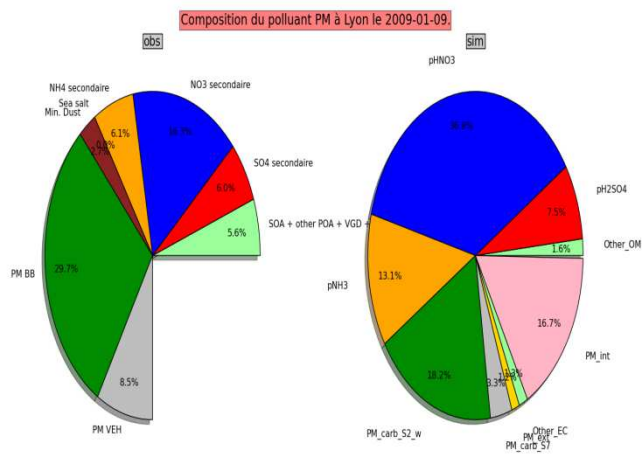


Figure 55 : Répartition des PM, Lyon le 2009-01-09.

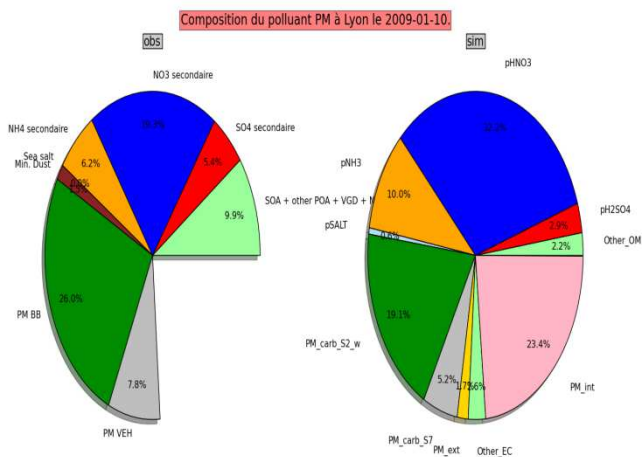


Figure 56 : Répartition des PM, Lyon le 2009-01-10.

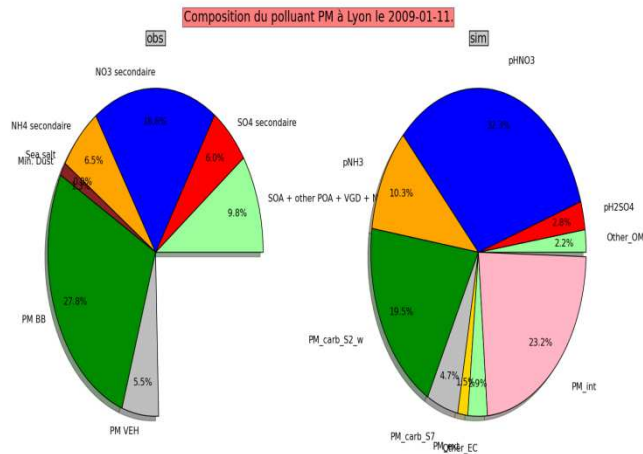


Figure 57 : Répartition des PM, Lyon le 2009-01-11.

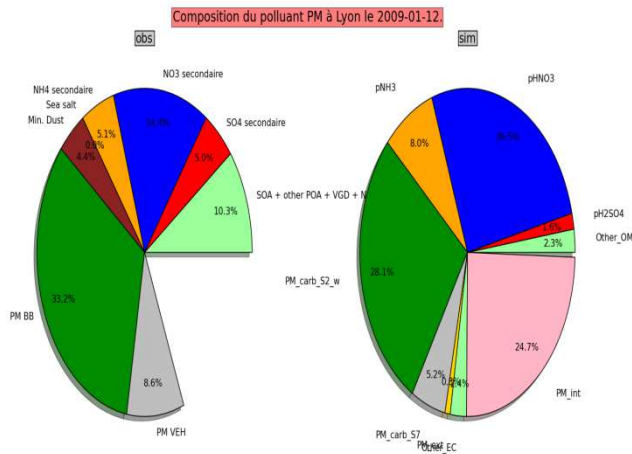


Figure 58 : Répartition des PM, Lyon le 2009-01-12.

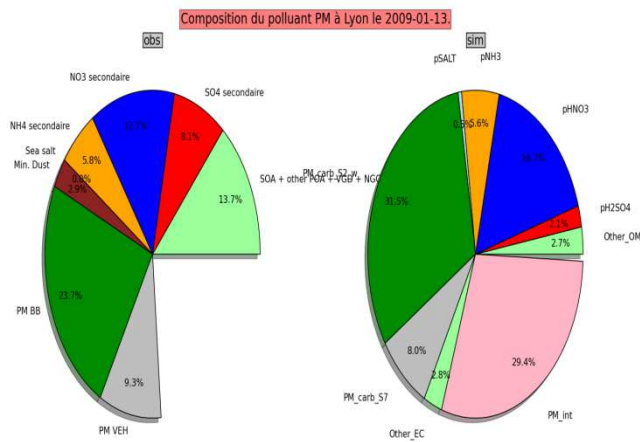


Figure 59 : Répartition des PM, Lyon le 2009-01-13.

• TC

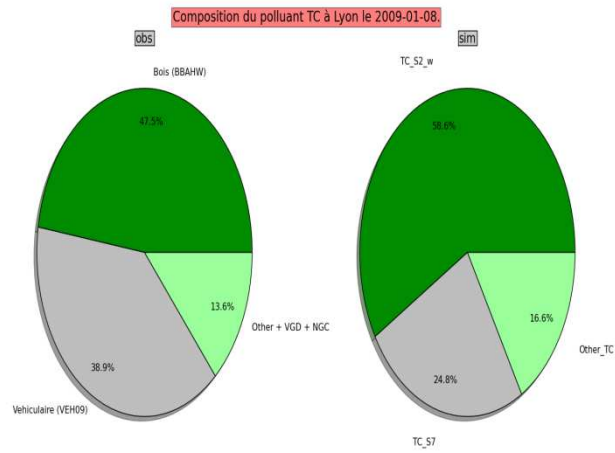


Figure 60 : Répartition du carbone total, Lyon le 2009-01-08.

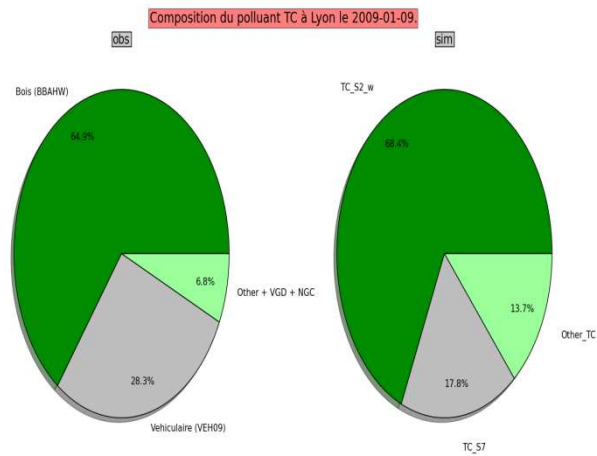


Figure 61 : Répartition du carbone total, Lyon le 2009-01-09.

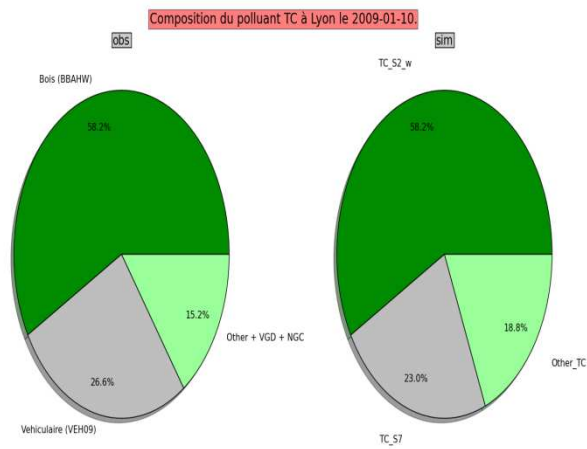


Figure 62 : Répartition du carbone total, Lyon le 2009-01-10.

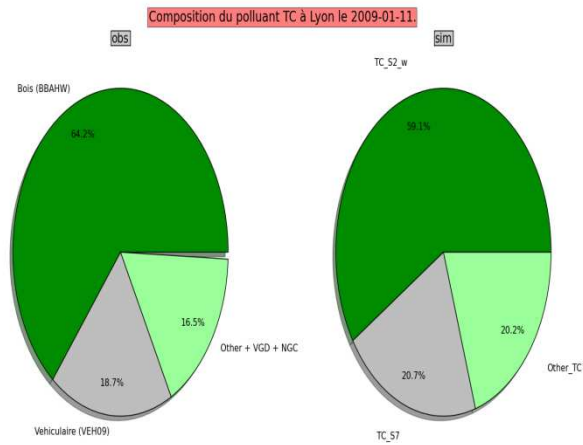


Figure 63 : Répartition du carbone total, Lyon le 2009-01-11.

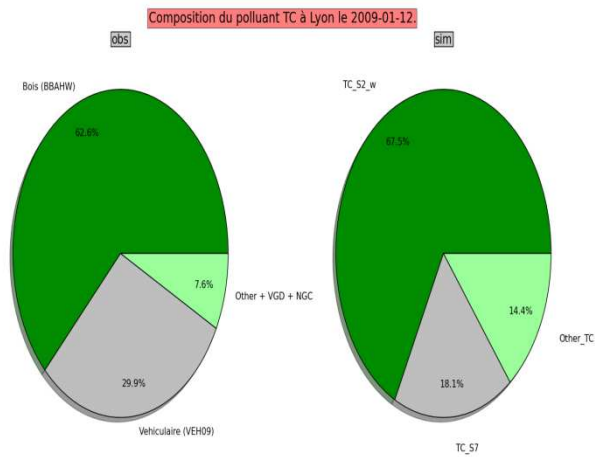


Figure 64 : Répartition du carbone total, Lyon le 2009-01-12.

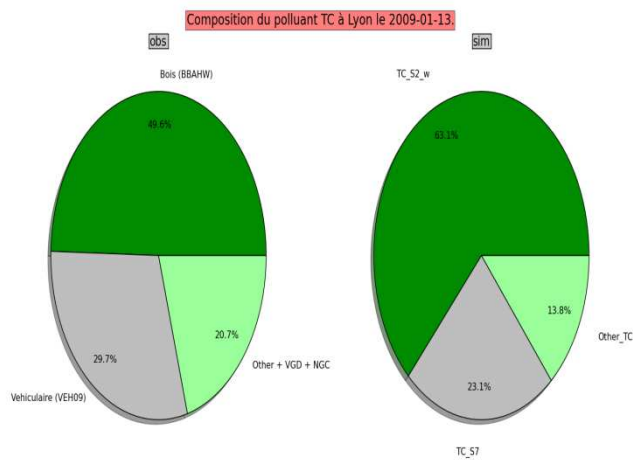


Figure 65 : Répartition du carbone total, Lyon le 2009-01-13.

• EC

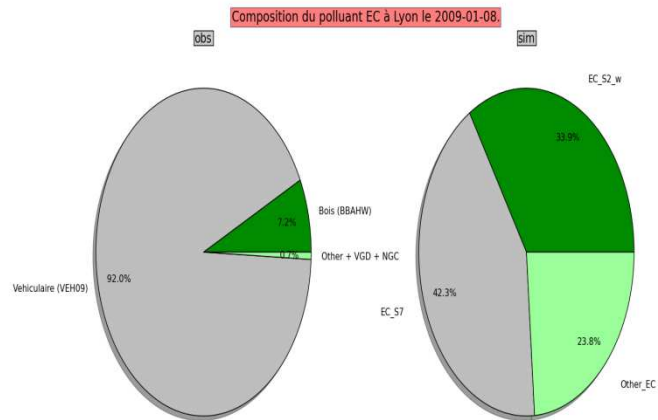


Figure 66 : Répartition du carbone élémentaire, Lyon le 2009-01-08.

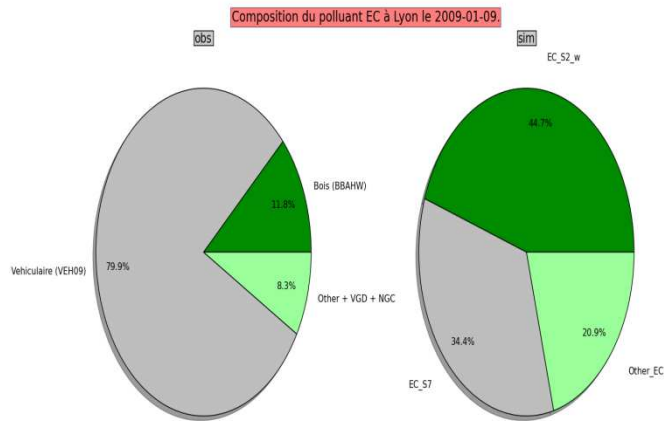


Figure 67 : Répartition du carbone élémentaire, Lyon le 2009-01-09.

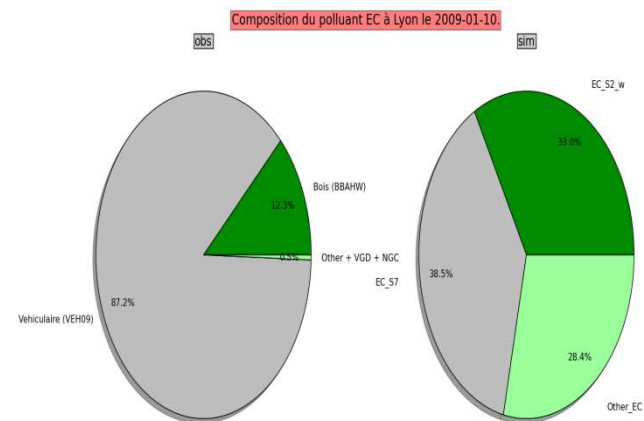


Figure 68 : Répartition du carbone élémentaire, Lyon le 2009-01-10.

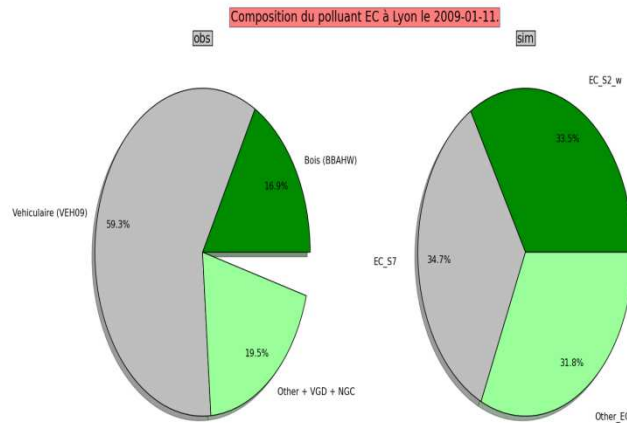


Figure 69 : Répartition du carbone élémentaire, Lyon le 2009-01-11.

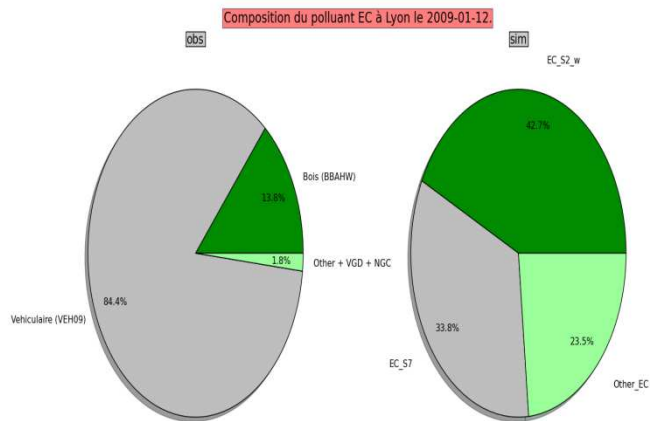


Figure 70 : Répartition du carbone élémentaire, Lyon le 2009-01-12.

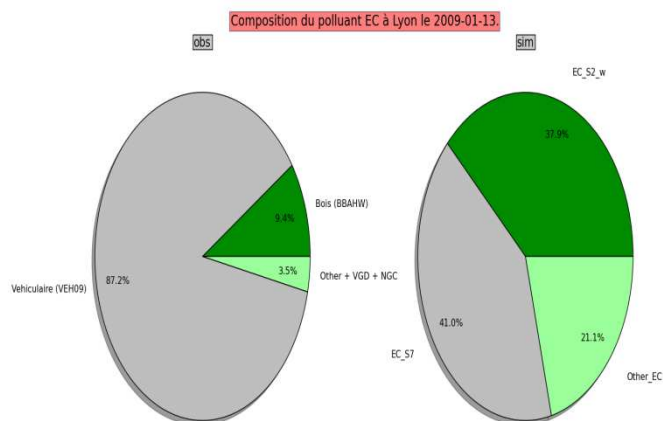


Figure 71 : Répartition du carbone élémentaire, Lyon le 2009-01-13.

• OC

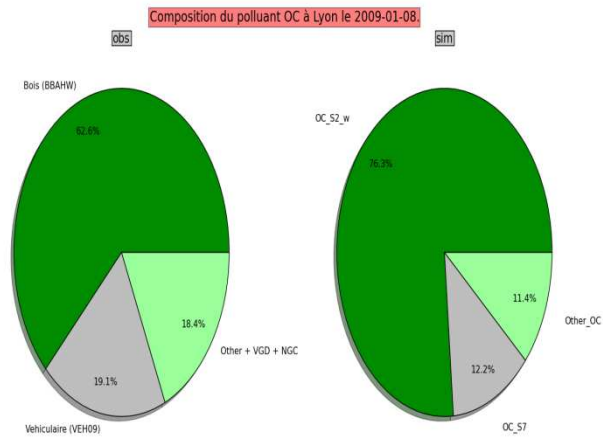


Figure 72 : Répartition du carbone organique, Lyon le 2009-01-08.

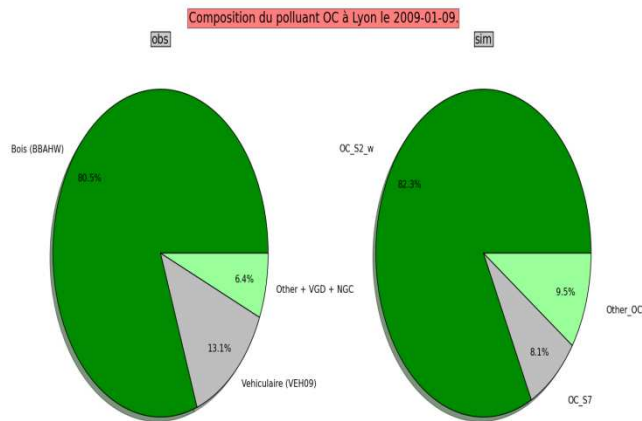


Figure 73 : Répartition du carbone organique, Lyon le 2009-01-09.

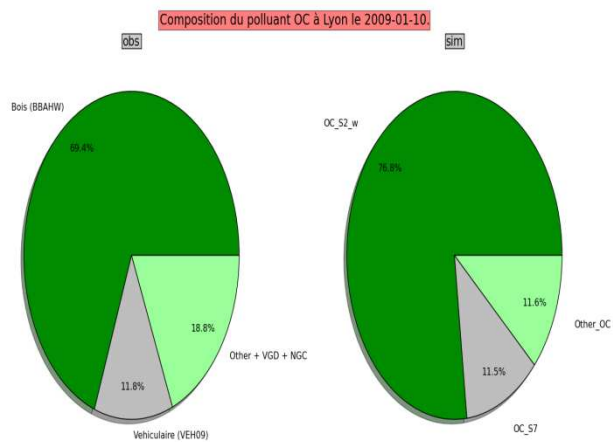


Figure 74 : Répartition du carbone organique, Lyon le 2009-01-10.

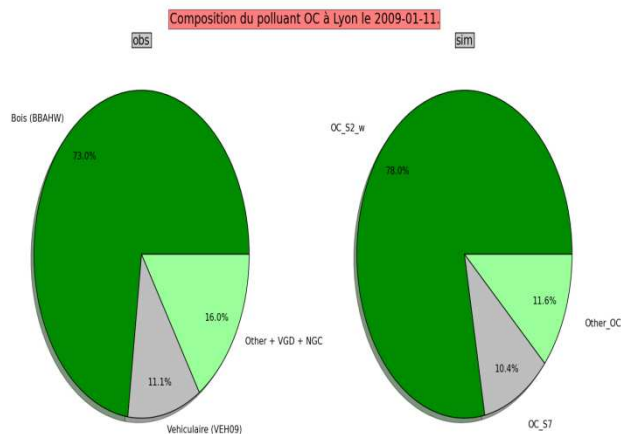


Figure 75 : Répartition du carbone organique, Lyon le 2009-01-11.

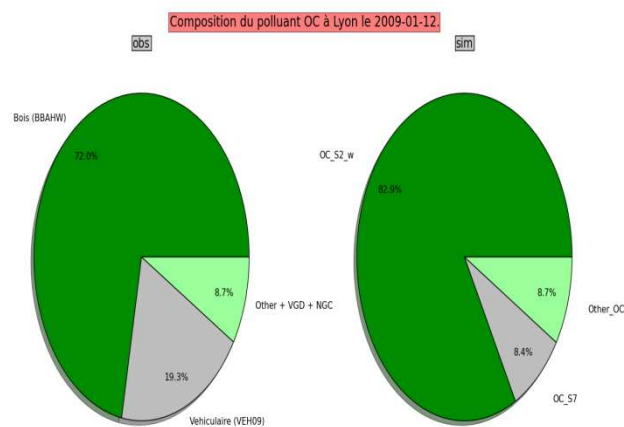


Figure 76 : Répartition du carbone organique, Lyon le 2009-01-12.

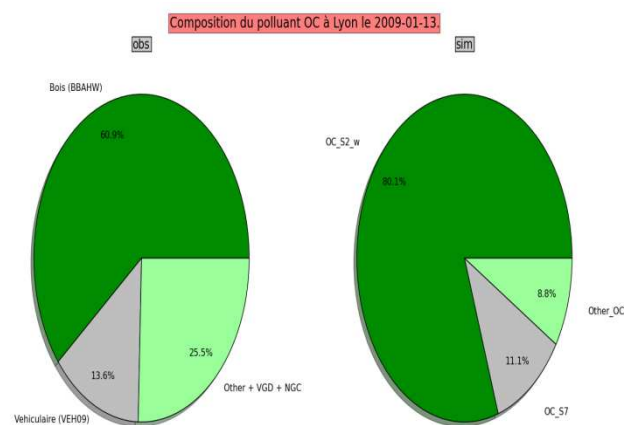


Figure 77 : Répartition du carbone organique, Lyon le 2009-01-13.

- OM

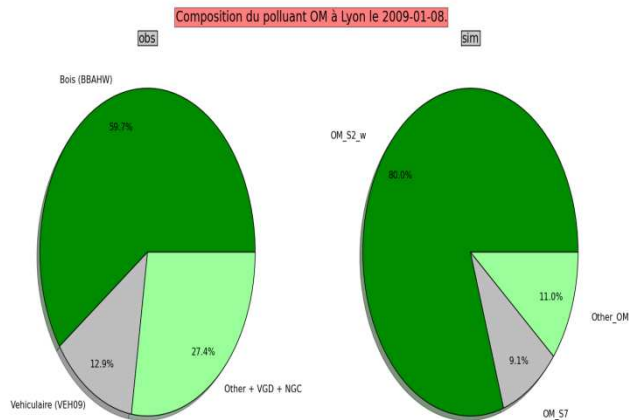


Figure 78 : Répartition de la matière organique, Lyon le 2009-01-08.

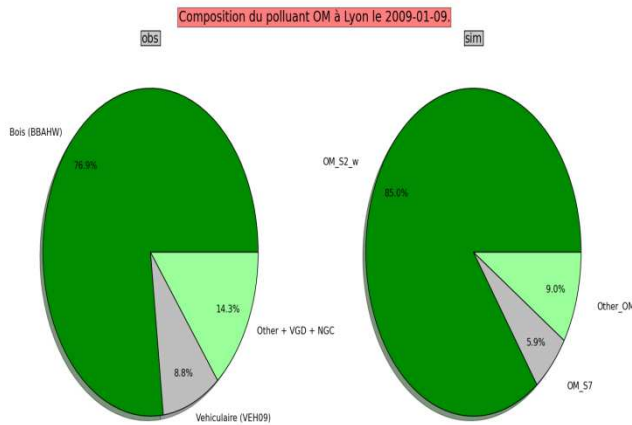


Figure 79 : Répartition de la matière organique, Lyon le 2009-01-09.

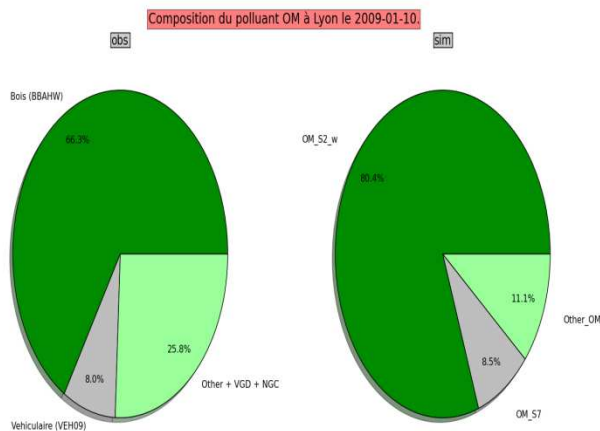


Figure 80 : Répartition de la matière organique, Lyon le 2009-01-10.

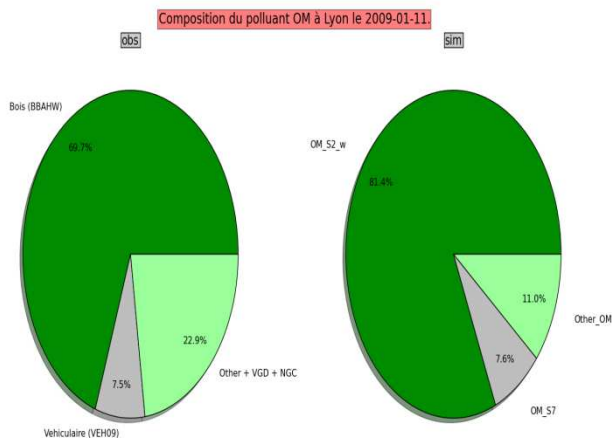


Figure 81 : Répartition de la matière organique, Lyon le 2009-01-11.

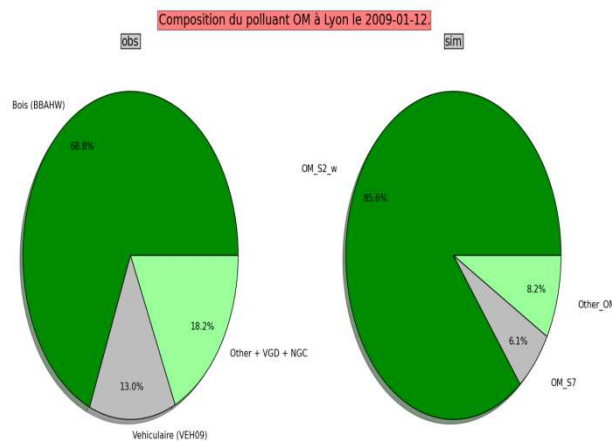


Figure 82 : Répartition de la matière organique, Lyon le 2009-01-12.

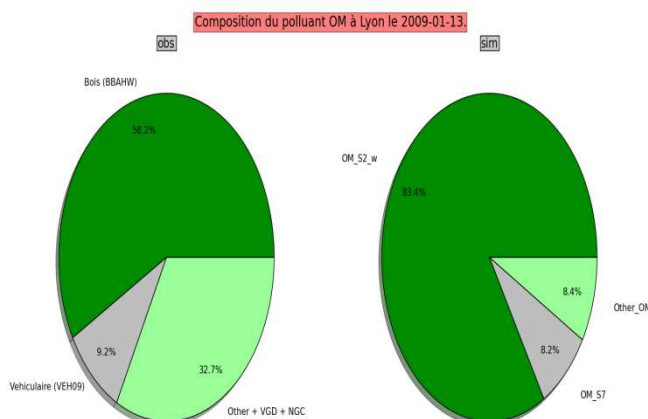


Figure 83 : Répartition de la matière organique, Lyon le 2009-01-13.

Annexe 3 Etude de sensibilité

8.3.1 COEFFICIENTS DE SENSIBILITE DES PM₁₀

La Figure 84, Figure 85, Figure 86, Figure 87, Figure 88 et Figure 89 présentent respectivement les coefficients de sensibilité explicatifs pour les PM₁₀, la matière carbonée, la matière inorganique, les PPM, les sels marins et la poussière.

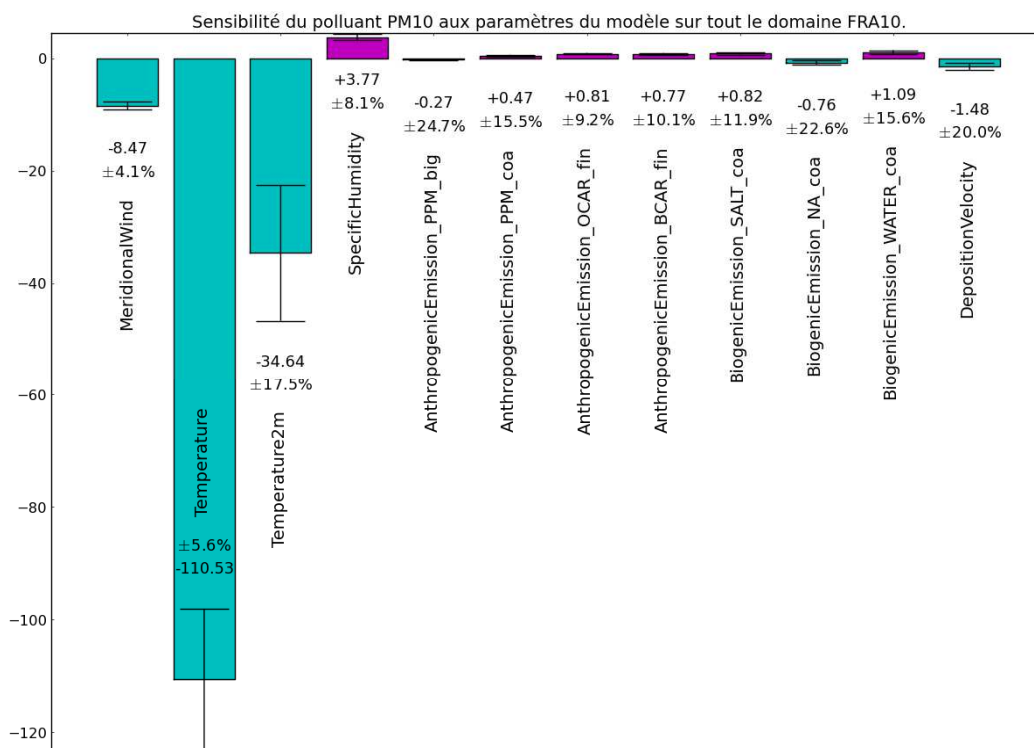


Figure 84 : Sensibilité des PM¹⁰ aux paramètres du modèle.

Les PM₁₀ apparaissent très sensibles à la température, puisqu'une variation de seulement +1% entraîne une diminution des concentrations en moyenne d'un peu plus de 1 µg.m⁻³. La vitesse du vent et l'humidité spécifique jouent également un rôle non négligeable. Par contre, la concentration moyenne en PM₁₀ est relativement insensible aux émissions. C'est probablement moins le cas localement.

8.3.2 COEFFICIENTS DE SENSIBILITE DE LA FRACTION INORGANIQUE DES PM₁₀

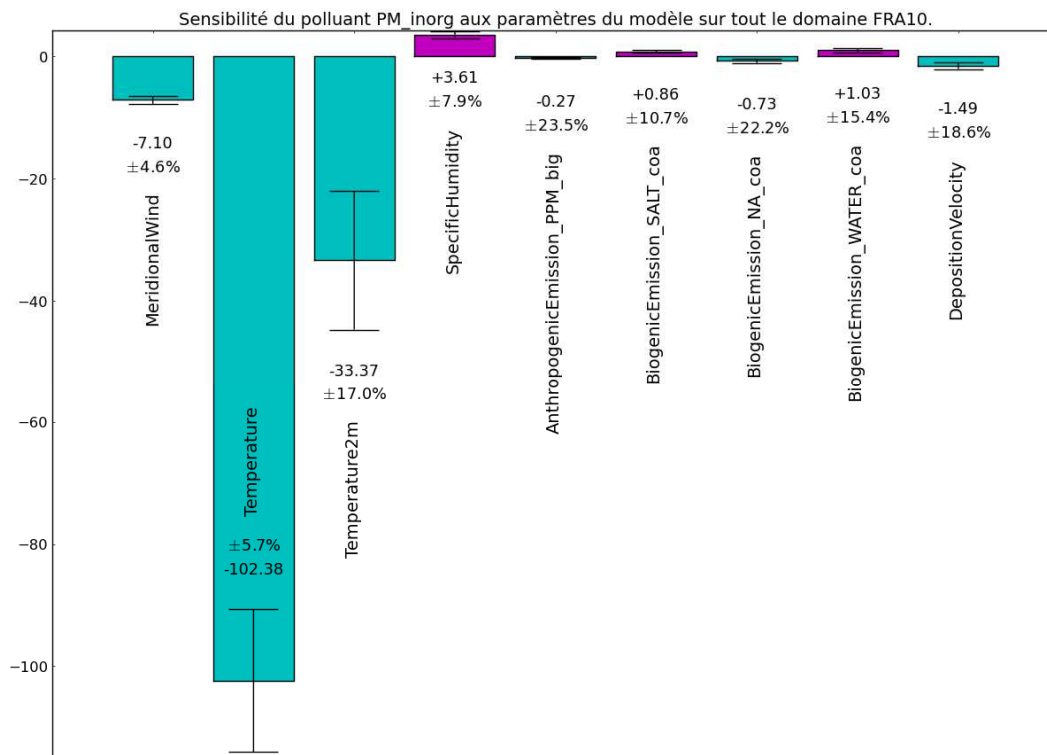


Figure 85 : Sensibilité des particules inorganiques aux paramètres du modèle.

Le profil de sensibilité de la matière inorganique est très ressemblant à celui des PM₁₀, ce qui n'est pas étonnant dans la mesure où près de 60% des PM₁₀ sont fait de matière inorganique (cf. partie 5.1).

8.3.3 COEFFICIENTS DE SENSIBILITE DE LA FRACTION ORGANIQUE DES PM₁₀

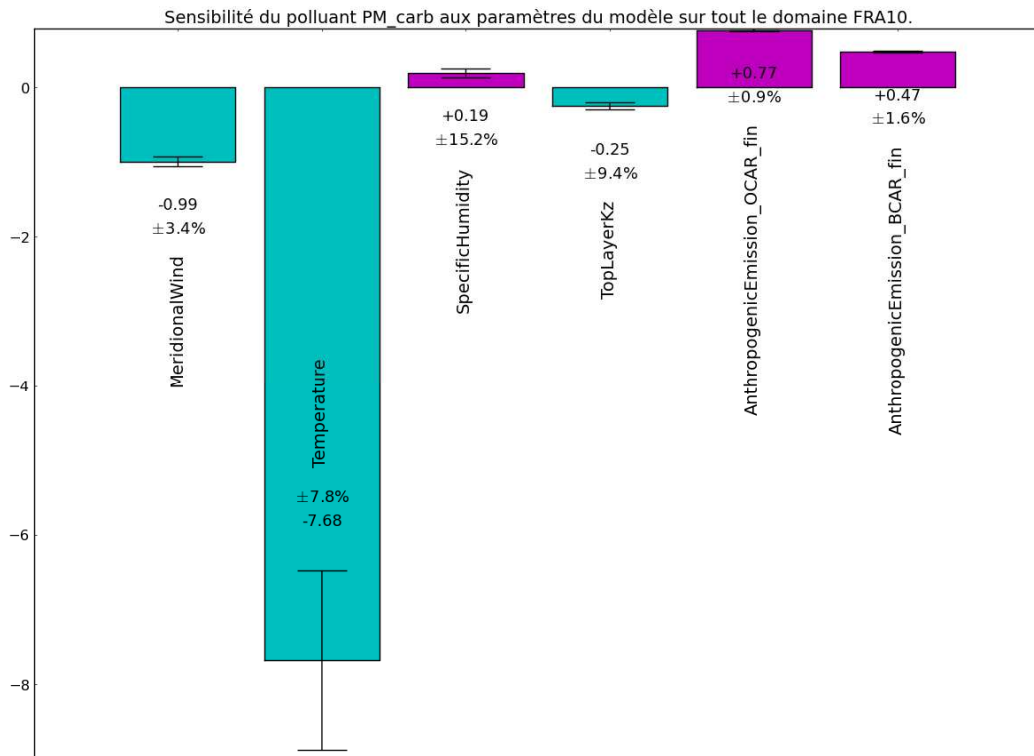


Figure 86 : Sensibilité des particules carbonées aux paramètres du modèle.

La matière carbonée est elle aussi sensible négativement à la température, ce qui peut s'expliquer par la présence de composés organiques secondaires dont les coefficients de partition sont fonction de la température (loi de Van't Hoff). Mais on retrouve une sensibilité positive aux émissions en carbone organique et élémentaire.

8.3.4 COEFFICIENTS DE SENSIBILITE DES PPM

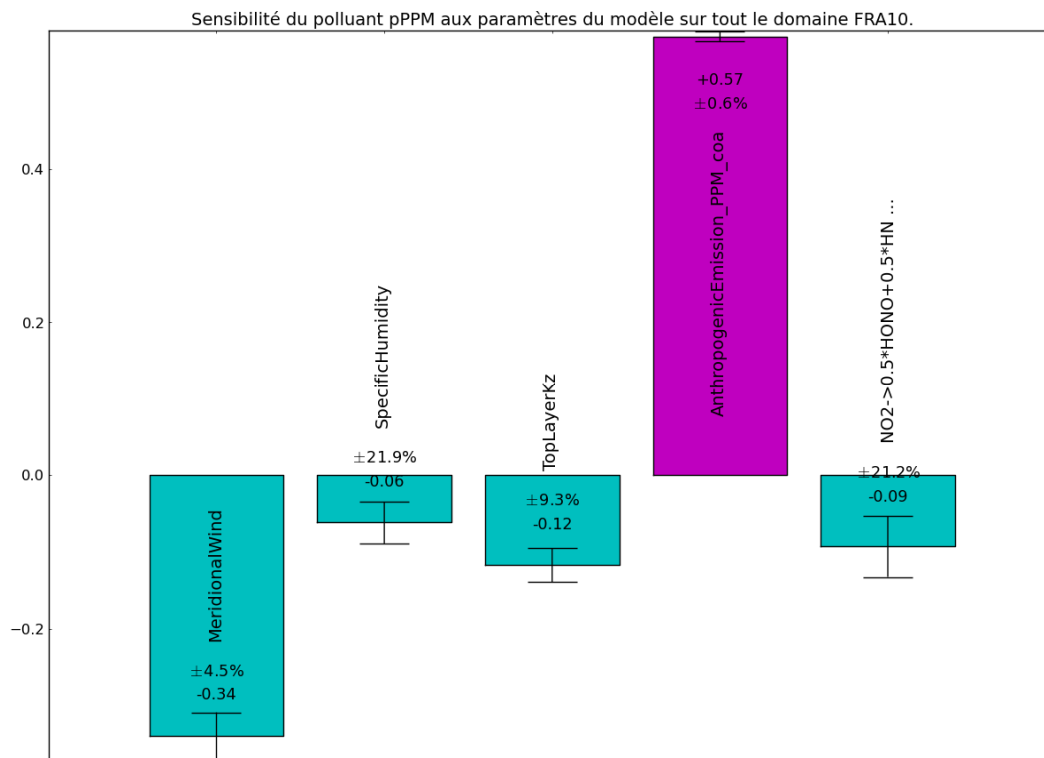


Figure 87: Sensibilité des PPM aux paramètres du modèle.

Les PPM sont avant tout sensibles aux émissions. On retrouve une sensibilité négative à la vitesse du vent, à l'humidité spécifique et au coefficient de diffusion vertical. A noter que la sensibilité à l'humidité spécifique devient négative contrairement à celle de la matière carbonée et inorganique. Il apparaît également une sensibilité négative à la constante cinétique de la réaction $\text{NO}_2 \rightarrow 0.5 \text{HONO} + 0.5 \text{HNO}_3$.

8.3.5 COEFFICIENTS DE SENSIBILITE DES POUSSIÈRES ET LES SELS MARINS DES PM₁₀

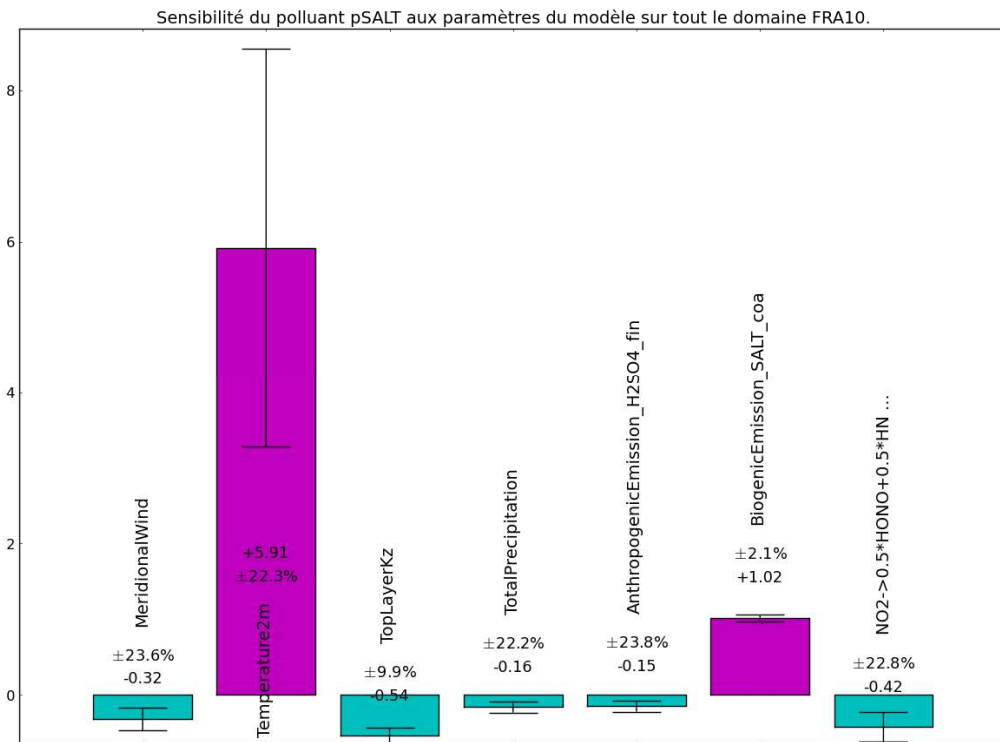


Figure 88 : Sensibilité des sels marins aux paramètres du modèle.

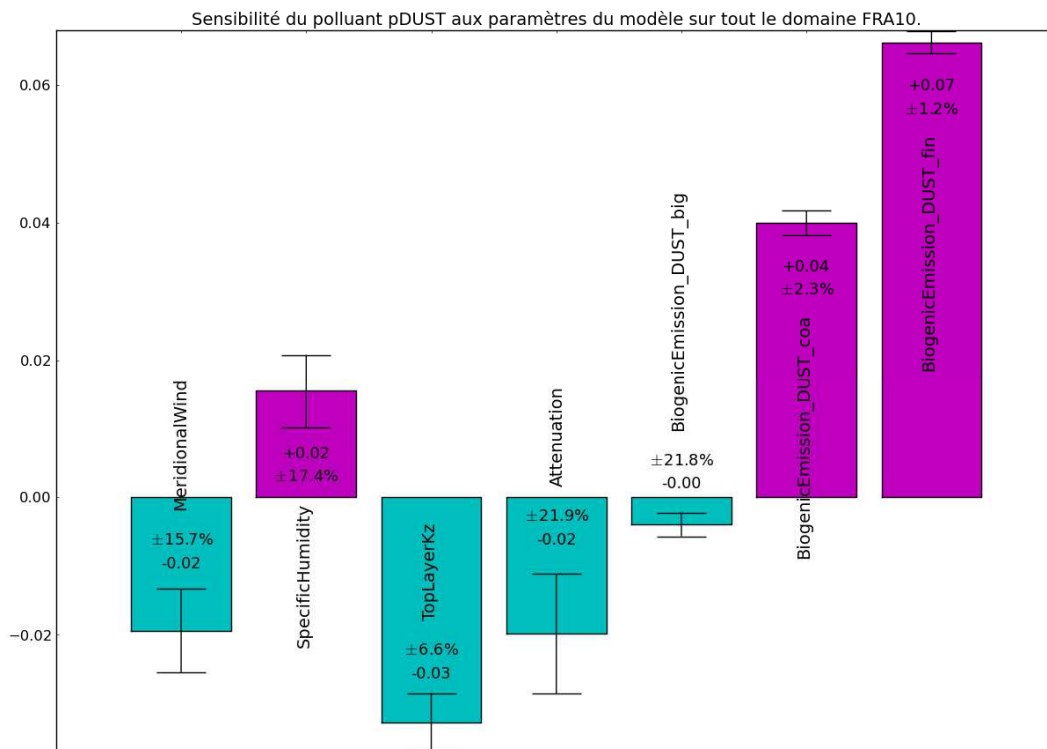


Figure 89 : Sensibilité des poussières aux paramètres du modèle.