



**Modélisation de l'aérosol avec le
modèle CHIMERE**

**Evaluation aux échelles continentale
et régionale**

Laboratoire Central de Surveillance de la Qualité de
l'Air

Bertrand BESSAGNET

*Modélisation et Analyse Economique pour la Gestion des Risques
Direction des Risques Chroniques*

CONVENTION 115/2003

NOVEMBRE 2003



Modélisation de l'aérosol avec le modèle CHIMERE

Evaluation aux échelles continentale et régionale

Laboratoire Central de Surveillance de la Qualité de
l'Air

NOVEMBRE 2003

PERSONNES AYANT PARTICIPE A L'ETUDE

Bertrand BESSAGNET

CONVENTION 115/2003

financée par la Direction des Préventions et des Risques (DPPR)

Ce document comporte 18 pages (hors couverture et annexes).

	Rédaction	Vérification	Approbation
NOM	Bertrand BESSAGNET	Laurence ROUIL	Martine RAMEL
Qualité	Ingénieur de la DRC	Ingénieur de la DRC	Ingénieur de la DRC
Visa			

TABLE DES MATIERES

1. INTRODUCTION	3
2. LE MODELE DE CHIMIE-TRANSPORT	4
2.1 Le modèle CHIMERE.....	4
2.2 Description succincte du module d'aérosol.....	4
2.3 Imbrication des modèles.....	5
3. PRÉSENTATION DES DEUX SITUATIONS ÉTUDIÉES.....	7
3.1 Situation du 21 Février 2003.....	7
3.2 Situation du 21 Mars 2003	7
4. MODÉLISATION DES ÉPISODES.....	8
4.1 Episode de Février 2003.....	8
4.2 Episode de Mars 2003	9
5. CONFRONTATION MESURES/MODÈLE	10
5.1 Les observations.....	10
5.2 Episode de Février 2003.....	10
5.3 Episode de Mars 2003	12
5.4 Différences entre Haute et Basse résolution.....	14
6. CONCLUSION	15
7. RÉFÉRENCES	16
8. LISTE DES ANNEXES.....	18

1. INTRODUCTION

Cette étude s'inscrit dans le cadre des activités de soutien aux AASQA qui souhaiteraient exploiter les résultats issus de la plate-forme nationale (PREV'AIR : <http://prevair.ineris.fr>) dans le cadre de leur activité de surveillance des polluants atmosphériques. De ce fait, elle s'inscrit dans le cadre de l'étude LCSQA intitulée "*Application de modèles grande échelle à la problématique régionale*".

Le but de cette étude prospective est axé sur l'utilisation d'un modèle de Chimie-Transport à l'échelle continentale et régionale sur deux épisodes de pollution particulaire. Il s'agit de démontrer la pertinence de tels outils pour la prévision et la compréhension de ces épisodes. La région Ile-de-France a été choisie, un large panel de mesure est disponible, deux sites de mesures ayant été instrumentés durant l'hiver 2002/2003 (*cf.* rapport d'étude LCSQA référencé **INERIS DRC-OBI-03-45581-883**). Plus précisément, l'un des résultats recherchés dans cette étude est l'évaluation objective du degré de pertinence d'un modèle appliqué à l'échelle continentale pour expliquer des épisodes de pollution particulaire apparemment locaux. Le modèle utilisé est le modèle CHIMERE dans sa version aérosol développée à l'INERIS.

Les deux sites instrumentés (Prunay et Gennevilliers) permettent de confronter les résultats du modèle à des mesures de PM10 (TEOM et Partisol), sulfates, nitrates et ammonium ainsi qu'une spéciation par taille grâce à l'analyse des filtres d'un impacteur en cascade installé à Gennevilliers. Les périodes étudiées s'étendent sur une 20 jours autour des deux journées particulièrement chargées en particules : les 21 Février et 21 Mars 2003. Durant ces deux périodes, un anticyclone centré sur l'Europe du Nord a engendré de fortes concentrations en polluants particuliers sur le Nord de la France, les Pays-Bas et la Belgique.

Après une description succincte du modèle CHIMERE aérosol, plus largement détaillé en annexe, ces deux épisodes sont analysés. Les mesures disponibles ont permis une première validation à l'échelle régionale sur les espèces constitutives des particules.

2. LE MODELE DE CHIMIE-TRANSPORT

2.1 LE MODELE CHIMERE

Le modèle de simulation de la qualité de l'air utilisé pour cette étude est le modèle CHIMERE développé depuis 1996 par L'Institut Pierre-Simon Laplace (IPSL) du CNRS. L'INERIS a récemment introduit dans le modèle initial un module de particule (détaillé en annexe 1). Ce modèle de chimie-transport régit l'évolution des polluants gazeux et particulaires sur un maillage tri-dimensionnel couvrant l'Europe de l'Ouest. Sa résolution horizontale est de 0.5° en longitude et latitude et s'étend sur 6 niveaux verticaux du sol jusqu'à environ 3000 m. Le modèle continental force aux limites le modèle régional (Ile-de-France) dont la résolution est d'environ 8 km.

L'évolution des paramètres météorologiques tels que la vitesse du vent, la température, l'eau liquide, etc. ... ne sont pas déterminés par le modèle. Ces paramètres sont des données d'entrées du système et sont utilisés pour calculer les flux de polluants liés aux mouvements de l'atmosphère, aux réactions chimiques, aux dépôts (sec et humide). Le modèle météorologique mésoéchelle utilisé est le modèle MM5 développé par le National Center for Environmental Prediction (<http://box.mmm.ucar.edu/mm5>). Il permet de simuler l'évolution des paramètres météorologiques sur le domaine d'application de CHIMERE. Sa mise en œuvre nécessite cependant de disposer des valeurs de ces paramètres aux frontières du domaine, elles proviennent des analyses météorologiques globales effectuées avec le modèle AVN (Global Aviation Model) par le Service National Météorologique Américain (National Weather Service, <http://www.nws.noaa.gov>).

Les données d'émission des polluants gazeux à l'échelle continentale sont fournies par le programme EMEP, programme coopératif pour la surveillance et l'évaluation du transport à longue distance des polluants atmosphériques en Europe (<http://www.emep.int>). L'inventaire fournit les émissions en tonnes/an de plusieurs polluants (CO, SO₂, NH₃, NMVOC, CH₄ et NO_x) sur une grille bien précise. Un préprocesseur permet d'adapter ces valeurs au modèle CHIMERE. Pour les particules, l'inventaire de l'Institut de recherche Néerlandais TNO est utilisé (<http://www.tno.nl>). A l'échelle régionale, les données d'émission de composés gazeux proviennent d'AIRPARIF, un inventaire de particules a été construit à partir des émissions des NO_x.

Les conditions aux limites du domaine sont données par le modèle de chimie-transport global MOZART pour une douzaine d'espèces gazeuses (ozone, dioxyde d'azote, COV, etc. ...).

2.2 DESCRIPTION SUCCINCTE DU MODULE D'AEROSOL

Le module d'aérosol, détaillé en annexe 1 utilise l'approche sectionnelle pour représenter la population de particules. La gamme de diamètres pris en compte s'étend de 10 nm à 40 µm sur 6 sections. Les espèces considérées sont : les particules primaires d'origines anthropiques, les espèces secondaires biogéniques et anthropiques, les sulfates, les nitrates, l'ammonium et l'eau. Dans cette étude les sels marins ont été pris en compte, ils ont peu d'incidence sur les résultats en région Parisienne.

Le Sulfate

En hiver, cette espèce se forme essentiellement en phase aqueuse. Sa chimie bien que clairement identifiée est très difficile à modéliser. En effet, le *pH* est un paramètre essentiel, les réactions entrant en jeu y sont très sensibles. La plupart des modèles prennent un *pH* constant voisin de 5. La réaction d'oxydation en phase aqueuse donnent des sulfates sous forme aqueuse, cette espèce peut alors apparaître sous forme de particules si le nuage disparaît sans précipiter.

Le Nitrate et l'Ammonium

L'acide nitrique a deux voies de formation privilégiées. D'une part, il apparaît en phase gazeuse, et d'autre part, en phase hétérogène sur les particules ou les gouttelettes d'eau nuageuse. Cette dernière est particulièrement importante l'hiver. L'ammoniaque est une base qui va neutraliser une partie de l'acide nitrique pour former du nitrate d'ammonium particulaire selon la température et l'humidité relative ambiantes.

L'eau

La présence d'eau dans les particules dépend de la température ambiante, de l'humidité relative et de la composition des particules. Certains sels comme le chlorure de sodium, le nitrate d'ammonium, les sulfates d'ammonium sont particulièrement hydrophiles et peuvent fixer une quantité d'eau importante.

Remarques importantes

Les conditions aux limites du modèle continental pour les particules sont nulles. Les particules remises en suspension par le vent, les poussières naturelles éoliennes ne sont pas prises en compte.

2.3 IMBRICATION DES MODELES

Deux résolutions du modèle CHIMERE sont utilisées pour cette étude (Figure 1). D'une part, le modèle continental basse résolution (50 km) forcé aux limites par les résultats du modèle global MOZART (Horowitz et al., 2003), d'autre part, le modèle régional Ile-de-France d'une résolution beaucoup plus importante (environ 8km) forcé aux limites par le modèle continental. L'utilisation de cette imbrication de modèles Régional/Continental est essentielle pour tenir compte des transports inter-régionaux des polluants. Par ailleurs, l'utilisation d'un inventaire d'émission a priori plus fin à l'échelle régionale doit permettre de mieux restituer l'évolution des concentrations des polluants sur les stations urbaines et périurbaines (influencée par les émissions locales). De plus, à cette échelle, les processus physiques chimiques sont mieux résolus.

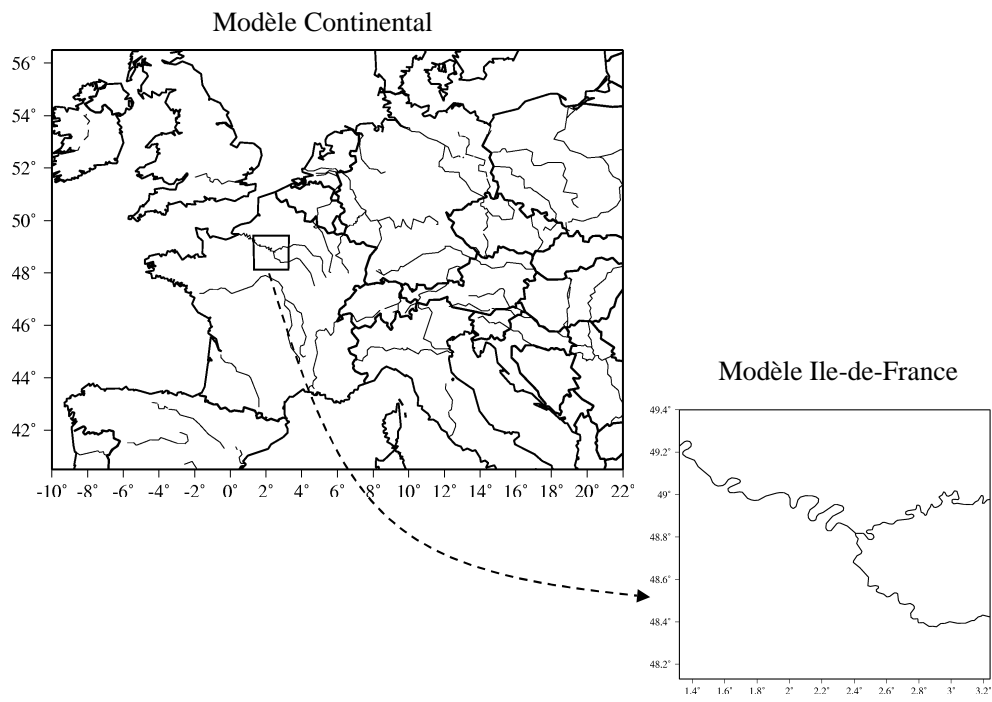


Figure 1 : Imbrication des modèles

3. PRESENTATION DES DEUX SITUATIONS ETUDIEES

Deux sites en Ile-de-France ont été instrumentés (site urbain et rural) pour obtenir des mesures de sulfates, nitrates, ammonium et PM10 pendant l'hiver 2002/2003. Deux situations favorables à l'apparition de polluants particulaires sont survenues pendant cette période. Les analyses synoptiques de ces deux situations sont présentées en annexe 2.

3.1 SITUATION DU 21 FEVRIER 2003

Du 13 au 18 Février

A partir du 13 Février 2003, un anticyclone stationne sur le Danemark et dirige sur la France un flux d'Est à Nord-Est très froid, les températures sont très basses et ne dépassent 0° dans l'après-midi que très localement près des côtes. La masse d'air est très sèche, le vent d'Est est faible mais non nul.

Du 19 au 20 Février

Le flux en surface s'oriente au Sud-Est avec un vent plus fort les 19 et 20 sur le Nord de la France. Une perturbation s'approche du Sud-Ouest de la France et sera rejetée vers le Nord-Ouest de la France avant de quitter la bordure Nord-Ouest du pays le soir du 20 Février. Cette légère dégradation aura eu pour conséquence un radoucissement des températures (de 3°C à 10°C à Paris du 19/02 au 20/02 à 12h GMT) et une augmentation de l'humidité dans le Nord-Ouest de la France.

Le 21 Février

Le matin du 21 Février, le Nord-Ouest de la France connaît quelques brouillards (aucun brouillard sur Paris). Les vents sont très faibles et l'humidité relative est importante sur le Nord-Ouest de la France. Le 22 Février, la situation se dégrade franchement par l'Ouest de la France.

3.2 SITUATION DU 21 MARS 2003

Du 13 au 20 Mars

Un anticyclone centré sur l'Ouest de l'Angleterre oriente un flux d'Est sur la France. A 12h GMT les températures sont comprises entre 10 et 15°C sur la France. Quelques gelées sont observées du Sud-Ouest au Nord-Est. Des brumes et brouillards persistants sont observées en Allemagne, au Pays-Bas et en Grande-Bretagne. En France l'atmosphère est sèche en début de période, des brouillards sont observés les 18,19 et 20 sur le Nord, mais ils se dissipent dans la journée. Sur la région Parisienne, le vent devient très faible et s'oriente au Nord-Ouest le soir du 20 Mars. Des entrées maritimes envahissent alors le Nord-Ouest du pays.

Le 21 Mars

Des brouillards ont envahi le Nord-Ouest du pays jusqu'à la région Parisienne. Le vent est quasi nul. Les brouillards persistent une grande partie de la journée. La température à Paris est de 10°C à 12h GMT. Le 22 Mars, une dégradation intervient par le Sud-Ouest de la France et met fin provisoirement à cet épisode.

4. MODELISATION DES EPISODES

4.1 EPISODE DE FEVRIER 2003

L'atmosphère très stable sur l'Europe engendre une stagnation des polluants émis ou formés dans l'atmosphère. Après un premier épisode se produisant autour du 15 Février, le modèle simule de fortes concentrations en nitrate d'ammonium (annexe 3) sur les Pays-Bas, la Belgique, l'ouest de l'Allemagne, et l'extrême nord de la France contribuant de façon significative à la charge en PM10 dans l'atmosphère. Le 21 Février (Figure 2), les concentrations deviennent particulièrement importantes en Belgique, comme le montrent les observations dans ce pays en annexe 9.

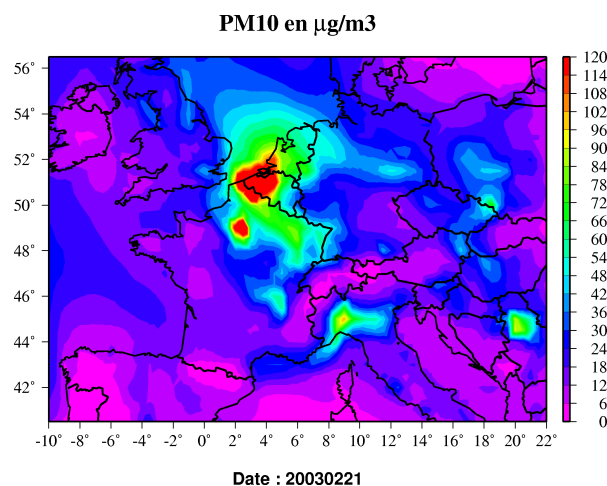


Figure 2 : Concentration moyenne en PM10 simulée sur l'Europe le 21 Février 2003

En Ile-de-France, d'après le modèle, les concentrations en PM10 augmentent sensiblement entre le 20 et le 21 Février (annexe 4). Cette augmentation est largement due à un élargissement du panache décrit précédemment. Les nitrates n'existent en grande quantité sous forme particulaire que par la présence d'ammonium. Exceptée une source forte source fixe au Sud-Est de Paris qui contribue à former une partie du nitrate d'ammonium sur Paris, les sources d'ammoniaque en Ile de France sont marginales. L'importance des concentrations en nitrates particuliers est donc provoquée par un import continental. La Belgique et les Pays-Bas sont des pays fortement émetteurs en ammoniaque. De plus, l'humidité apportée sur le Nord-Ouest de la France fait augmenter les concentrations en sulfate par oxydation du SO₂ dans les brouillards.

4.2 EPISODE DE MARS 2003

En début de période, des concentrations importantes de PM10 sont observées sur un axe Londres – Cologne (annexe 5), les particules sont à nouveau constituées d'une part importante de nitrate d'ammonium. Ce panache va progressivement basculer sur le Nord-Ouest de la France. Contrairement à l'épisode précédent, les brouillards sont plus denses et plus fréquents les 20 et 21 Mars, ce qui implique des concentrations en sulfates plus importantes notamment en Seine-Maritime et en Belgique (Figure 3). Dans ce pays, de fortes concentrations en PM10 sont à nouveau observées (annexe 9).

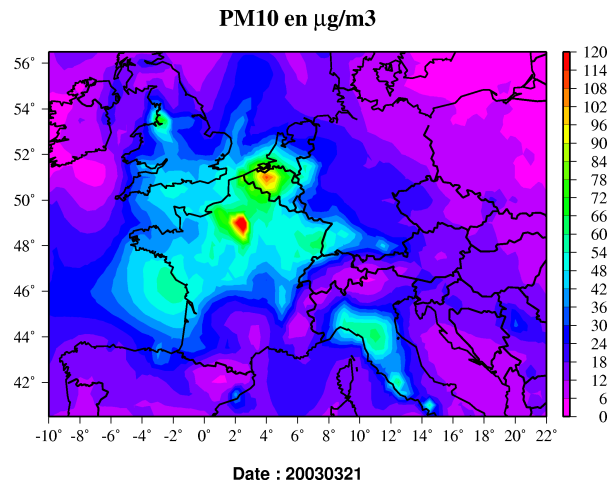


Figure 3 : Concentration moyenne en PM10 simulée sur l'Europe le 22 Mars 2003

En Ile-de-France, le panache de nitrate d'ammonium continental aborde le Nord-Ouest de la zone le 20 Mars, les concentrations sont particulièrement fortes le 21 Mars (annexe 6). Les très fortes concentrations en PM10 simulées le 21 Mars sur la ville de Paris sont essentiellement dues aux émissions primaires.

5. CONFRONTATION MESURES/MODELE

5.1 LES OBSERVATIONS

Durant les deux périodes étudiées Février et Mars 2003, deux sites ont été instrumentés :

Prunay : site rural à l'Ouest de Paris

Gennevilliers : site urbain de fond au Nord-Ouest de Paris.

Des mesures de PM10 ont été effectuées avec différents appareils, TEOM, TEOM FDMS et Partisol. Ces techniques ainsi que l'ensemble des mesures sont présentées dans le rapport référencé *INERIS DRC-OBI-03-45581-883*. La mesure Partisol permet des mesures intégrées dans le temps (prélèvement sur filtre et analyse granulométrique en laboratoire). Le prélèvement s'effectue à 20 °C et 50% d'humidité relative et la mesure TEOM à 50°C et 50% d'humidité relative, la fraction semi-volatile (nitrate d'ammonium ici) sera donc largement évaporée lors de la mesure TEOM.. Le module FDMS permet de prendre en compte les espèces volatiles et de compléter ainsi la mesure TEOM, il s'agit d'un système de mesure alternatif. La mesure Partisol est considérée pour ces deux épisodes hivernaux comme la plus proche de la réalité.

Des mesures de composition par taille ont en outre été effectuées sur le site de Gennevilliers en Février 2003 pour les sulfates, nitrates et ammonium. L'ensemble des comparaisons Mesures/Modèles sont présentées en annexe 7.

5.2 EPISODE DE FEVRIER 2003

Nitrates et Ammonium

Le comportement de ces deux espèces est très lié, puisqu'à de faibles températures l'espèce particulaire formée est le nitrate d'ammonium. A Prunay, les concentrations sont sous-estimées par rapport à la mesure Partisol, mais la corrélation temporelle est forte entre observation et simulation. A Gennevilliers, le modèle tend à sur-estimer les concentrations, la variabilité temporelle est encore bien reproduite. Prunay étant un site rural de fond (en dehors de l'influence éventuelle de sources locales), il semblerait donc que la composante continentale de l'épisode soit globalement sous-estimée. Cependant, le modèle reproduit bien l'intrusion de la masse d'air chargée en nitrate d'ammonium par le Nord du domaine.

Sulfates

Concernant les sulfates, le modèle ne simule pas correctement l'épisode et sous-estime globalement les concentrations. Les sulfates sont formés par oxydation en phase aqueuse (brouillards). Ces réactions sont particulièrement sensibles au *pH* et au contenu en eau liquide. La difficulté générale des modèles météorologiques à simuler le brouillards pourraient expliquer en partie ces résultats.

PM10

La variabilité temporelle est bien représentée par le modèle. Les amplitudes sont bien simulées à Gennevilliers (Figure 4), excepté le 21 Février où les concentrations en particules primaires semblent largement surestimées par le modèle. A Prunay, le premier épisode autour du 15 Février est bien simulé (Figure 5). Le 20 Février, le modèle sous estime très largement les concentrations de PM10. Ceci ne s'explique pas complètement par la sous-estimation des concentrations de nitrate d'ammonium. L'inventaire de particules utilisé relativement approximatif, est certainement l'origine de ces majeures différences.

Comparaisons Mesures/Modèle - PM10

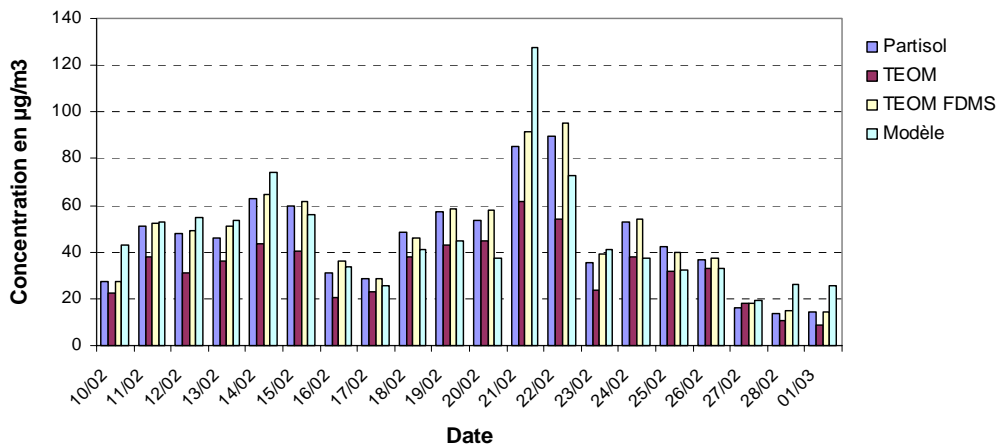


Figure 4 : Comparaison Mesures/Modèle à Gennevilliers (PM10)

Comparaisons Mesures/Modèle - PM10

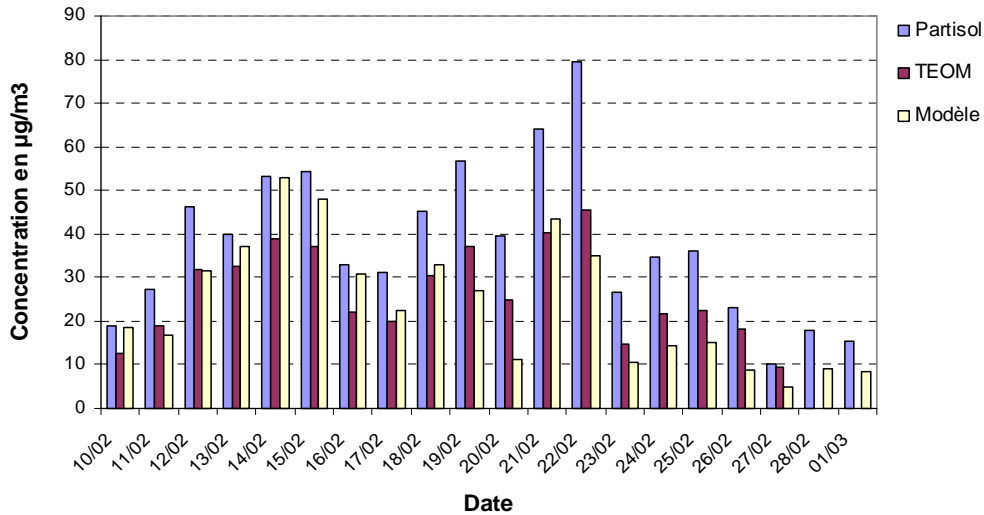


Figure 5 : Comparaison Mesures/Modèle à Prunay (PM10)

Composition par taille

Le granulomètre a permis d'obtenir un profil des concentrations de sulfate, nitrate et ammonium par tailles de particules pour deux périodes durant le mois de Février : les 19-21/02 et 26-28/02. Les graphes présentés en annexe 8 montrent que le diamètre médian de la distribution observée est bien représenté par le modèle, il se situe près de 1µm. De façon générale pour l'ensemble de espèces, le profil de distribution granulométrique simulé est beaucoup plus étalé (de 0.01 à 10 µm) que celui rapporté par les mesures (de 0.1 à 10 µm).

5.3 EPISODE DE MARS 2003

La variabilité temporelle du nitrate d'ammonium (annexe 7) est bien représentée par le modèle, néanmoins le pic du 21 Mars est largement sous-estimé. Les concentrations en sulfate sont mieux simulées à Prunay qu'à Gennevilliers avec une sous-estimation globale en début de période sur les deux sites. L'apparition des brouillards beaucoup plus importants que lors de l'épisode précédent explique en grande partie les difficultés du modèle à reproduire l'évolution des sulfates notamment pour les sites urbains très influencés par les sources.

Concernant les PM10, l'épisode du 21 Mars est sous-estimé par le modèle à Prunay (Figure 6) et mieux simulé à Gennevilliers (Figure 7).

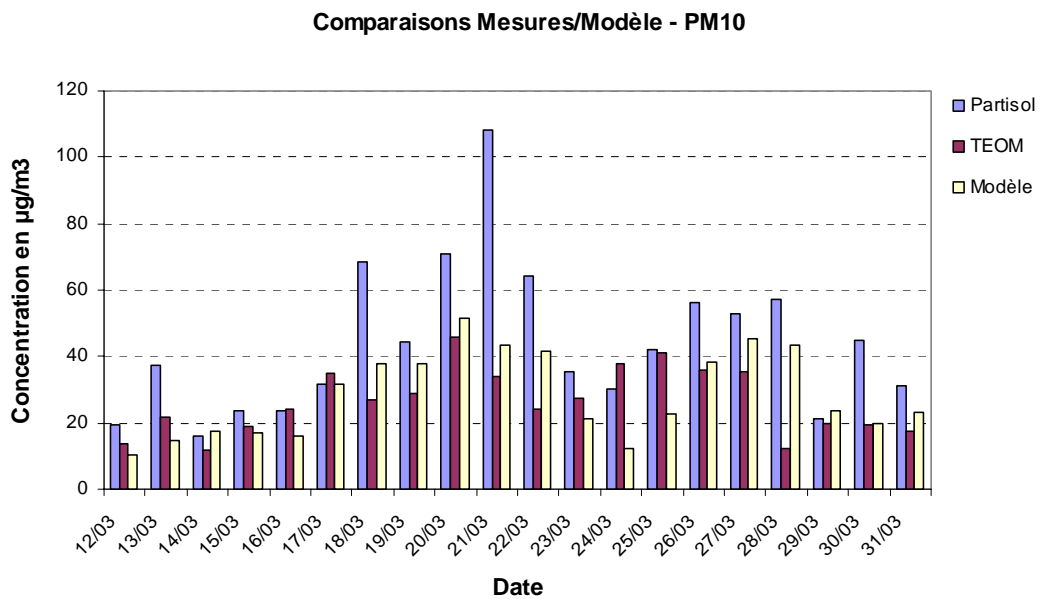


Figure 6 : Comparaison Mesures/Modèle à Prunay (PM10)

Comparaisons Mesures/Modèle - PM10

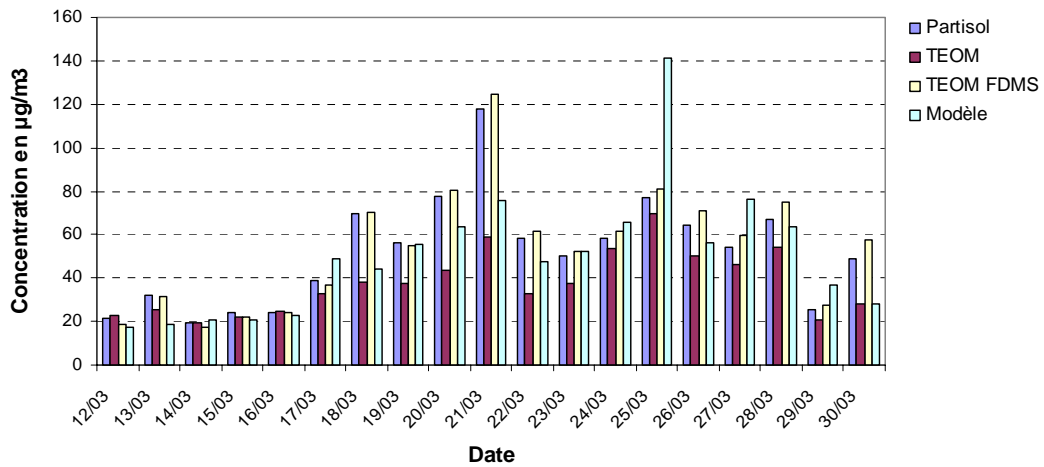


Figure 7 : Comparaison Mesures/Modèle à Gennevilliers (PM10)

Il est intéressant de noter sur la Figure 8 que le modèle confirme l'arrivée du panache par l'Ouest-Nord-Ouest lorsque l'on regarde l'évolution des concentrations simulées et observées à Rouen. Les concentrations sont plus fortes le 20 Mars, la veille de l'arrivée du panache en Ile-de-France. Rouen n'étant pas dans le domaine CHIMERE Ile-de-France, les concentrations indiquées proviennent d'une interpolation des résultats de la simulation continentale (basse résolution), les concentrations sont donc logiquement sous-estimées.

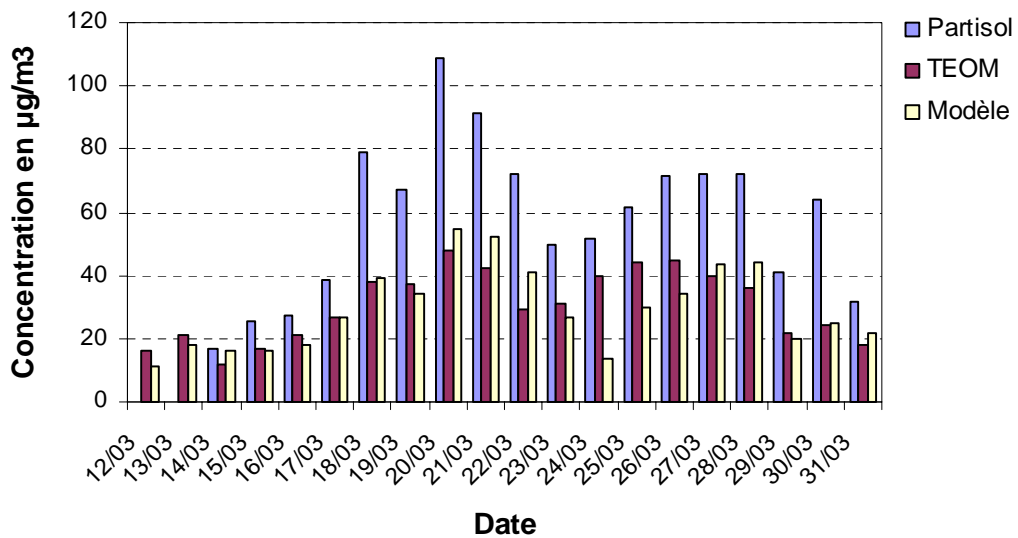


Figure 8 : Evolution journalière des concentrations en PM10 observées et simulées à Rouen (modèle continental)

Le modèle permet en outre d'obtenir une information sur la quantité d'eau dans les particules. L'eau peut être une source d'artefact pour les mesures. Celle-ci était particulièrement élevée durant cette période sur l'ouest de la région Parisienne. Notons que l'eau n'est pas intégrée aux sorties PM10 du modèle, puisqu'elle est a priori évaporée lors des mesures.

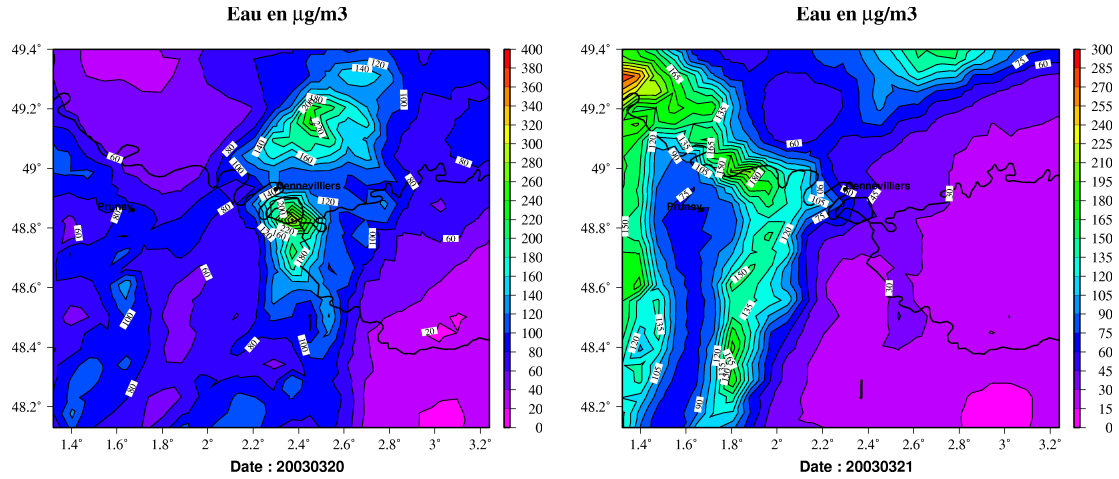


Figure 9 : Concentration d'eau dans les particules en Ile-de-France les 20 et 21 Mars

5.4 DIFFERENCES ENTRE HAUTE ET BASSE RESOLUTION

Il est intéressant d'observer les différences obtenues sur les deux stations en comparant les résultats du modèle haute résolution (régional) et basse résolution (continental) avec les mesures Partisol pour les deux épisodes (Figure 10). Notons qu'à Gennevilliers, site urbain de fond, l'augmentation de la résolution diminue globalement le biais (en valeur absolue) et améliore les résultats. Cependant, à Prunay, site rural, très peu d'effet sur les résultats est constaté, il semble même que les résultats soient dégradés avec l'augmentation de la résolution, très certainement à cause d'un inventaire d'émission déficient.

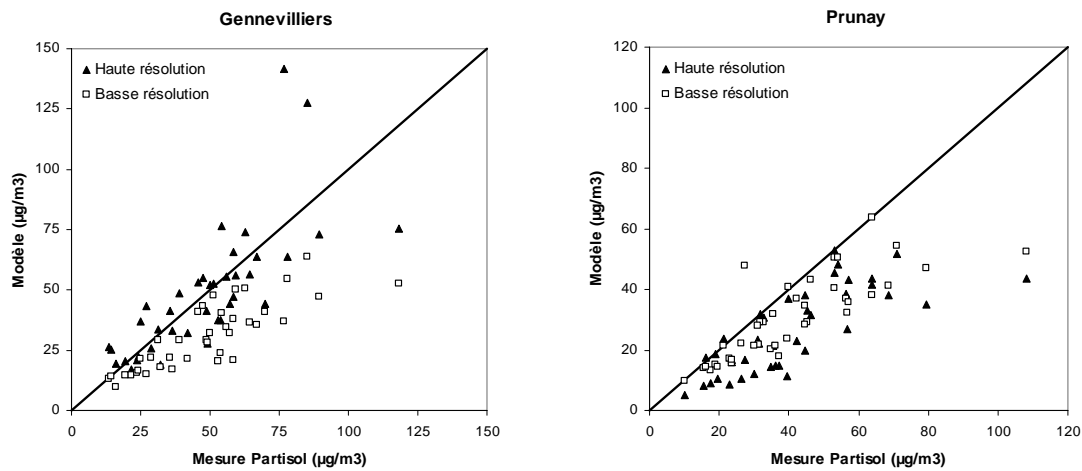


Figure 10 : Comparaison des deux modèles haute résolution (régional) et basse résolution (continental) sur Prunay et Gennevilliers

6. CONCLUSION

Cette étude prospective a pour but de proposer un exercice de modélisation de la pollution particulaire en s'appuyant sur des mesures (PM10, sulfate, nitrate, ammonium) sur deux sites instrumentés en Ile-de-France (Prunay et Gennevilliers). Pour les deux épisodes étudiés de Février et Mars 2003, les résultats du modèle permettent de constater qu'il s'agissait d'un épisode plus global qui concernait plus largement le Nord de la France, la Belgique, les Pays-Bas et l'Ouest de l'Allemagne. Le pic de concentration en Ile-de-France le 21 Février est dû en grande partie (dans sa composante nitrate d'ammonium) à une extension du panache centré sur l'Ouest de la Belgique. L'épisode du 21 Mars est légèrement différent, le panache de nitrate d'ammonium s'étalant de Londres à Cologne s'affaïsse sur le Nord-Ouest de la France puis affecte la région Parisienne le 21 Mars.

La modélisation à l'échelle continentale permet donc de prendre le recul nécessaire pour comprendre l'apparition de tels épisodes observés dans une région précise. L'apport de la modélisation à l'échelle régionale permet de mieux simuler l'évolution des concentrations sur les sites urbains et périurbains grâce à des inventaires plus précis et une meilleure résolution du modèle.

Il s'agit d'une approche qualitative permettant d'expliquer les fortes concentrations observées durant ces journées, néanmoins, il est à ce stade impossible de déterminer quantitativement les parts locales et régionales des polluants lors de ces épisodes. La variabilité temporelle des concentrations de PM10, nitrate, ammonium est assez bien représentée par le modèle, les concentrations lors de certaines journées sont parfois très largement sous-estimées. La chimie des sulfates parfois déficiente, pourrait s'expliquer par la difficulté du modèle météorologique à déterminer la formation des brouillards et par le schéma chimique en phase aqueuse utilisé. Les compositions par taille de particules modélisées offrent un bon accord avec les mesures proposées à Gennevilliers.

Il sera intéressant par la suite de compléter cette étude avec de nouvelles données concernant d'autres épisodes, notamment des épisodes de nature différente permettant de mettre en évidence d'autre type d'apport régionaux ou au contraire les contributions locales. Cela suppose de disposer de mesures en d'autres sites. Une version du modèle beaucoup plus fine (plus de sections) et un inventaire de particules sur l'Ile-de-France plus précis (en termes de spéciation et granulométrie notamment) seront nécessaires pour mener cette étude.

7. REFERENCES

- Gelbard F., Seinfeld J. H. (1980) Simulation of multicomponent aerosol dynamics. *Journal of colloid and Interface Science*, **78**, 485 - 501.
- Guelle W., Balkanski Y. J., Dibb J. E., Schulz M., Dulac F. (1998) Wet deposition in a global size-dependent aerosol transport model. 2. Influence of the scavenging scheme on 210Pb vertical profiles, surface concentrations, and deposition. *Journal of Geophysical Research*, **103**, No D22, 28875- 28891.
- Grosjean D., Seinfeld J. H. (1989) Parametrization of the formation potential of secondary organic aerosols. *Atmospheric Environment*, **23**, 1733-1747.
- Horowitz, L. W., et al., 2003 A global simulation of tropospheric ozone and related tracers: Description and evaluation of MOZART, version 2, *J. Geophys. Res.*, in press
- Jacob D. J. (2000) Heterogeneous chemistry and tropospheric ozone. *Atmospheric Environment*, **34**, 2131 - 2159.
- Kavouras I. G. , Mihalopoulos N., Stephanou E. G. (1998) Formation of atmospheric particles from organic acids produced by forests. *Nature*, **395**, 683-686.
- Kerminen, V. M. and Wexler, A. S. (1994) Post fog nucleation of H₂SO₄-H₂O particles in smog. *Atmospheric Environment*, **28**, 2399-2406.
- Kulmala M., Laaksonen A., Pirjola L. (1998) Parameterization for sulfuric acid / water nucleation rates. *Journal of Geophysical Research*, **103**, No D7, 8301- 8307.
- Mäkelä J. M., Aalto P., Jokinen V., Pohja T., Nissinen A., Palmroth S., Markkanen T., Seitsonen K., Lihavainen H., Kulmala M. (1997) Observations of ultrafine aerosol particle formation and growth in boreal forest. *Geophysical Research Letters*, **24**, 1219-1222.
- Moucheron M. C, Milford J. (1996) Development and testing of a process model for secondary organic aerosols. *Air & Waste Management Association*, Nashville.
- Nenes A., Pilinis C., Pandis S. N. (1998) ISORROPIA : A new thermodynamic model for inorganic multicomponent atmospheric aerosols. *Aquatic Geochem.*, **4**, 123 – 152.
- Odum J. R., Hoffmann T., Bowman F., Collins D., Flagan R. C., Seinfeld J. H. (1996) Gas/Particle partitioning and secondary aerosol yield. *Environ. Sci. Technol.*, **30**, 2580-2585.
- Odum J.R., Jungkamp T. P. W., Griffin R. J., Flagan R. C., Seinfeld J. H. (1997) The atmospheric aerosol-forming potential of whole gasoline vapor. *Science*, **276**, 96-99.
- Pandis S. N., Seinfeld J. H. (1998) Atmospheric Chemistry and Physics. *John Wiley & Sons, Inc.* New York.
- Pankow J. F., Seinfeld J. H., Asher W. E., Erdakos G. B. (2001) Modeling the formation of secondary organic aerosol. 1. Application of theoretical principles to measurements obtained in the α -pinene/, β -pinene/, sabinene, Δ^3 -carene/, and cyclohexene/ozone systems. *Environ. Sci. Technol.*, **35**, 1164 - 1172.
- Stokes R. H., Robinson R. A. (1966) Interactions in aqueous nonelectrolyte solutions. I. Solute-solvent equilibria, *J. Phys. Chem.*, **70**, 2126 - 2130.

- Tsyro S. (2002), First estimates of the effect of aerosol dynamics in the calculation of PM10 and PM2,5. EMEP report.
- Warren D. R. (1986) Nucleation and growth of aerosols. *Thesis*. California Institute of Technology. Pasadena.
- Zdanovskii, A. B. (1948) New methods for calculating solubilities of electrolytes in multicomponent systems. *Zhur. Fiz. Kim.*, **22**, 1475-1485.

8. LISTE DES ANNEXES

Repère	Désignation précise	Nb/N°pages
Annexe 1	Description du modèle d'aérosol	11
Annexe 2	Situations météorologiques des épisodes de Février et Mars 2003	6
Annexe 3	Résultats de simulation à l'échelle continentale (sulfate, nitrate, ammonium, PM10) - Période du 17-22 Février 2003	4
Annexe 4	Résultats de simulation sur l'Ile-de-France (sulfate, nitrate, ammonium, PM10) - Période du 17-22 Février 2003	4
Annexe 5	Résultats de simulation à l'échelle continentale (sulfate, nitrate, ammonium, PM10) - Période du 17-22 Mars 2003	4
Annexe 6	Résultats de simulation sur l'Ile-de-France (sulfate, nitrate, ammonium, PM10) - Période du 17-22 Mars 2003	4
Annexe 7	Comparaisons Mesures/Modèles sur Prunay et Gennevilliers (Février et Mars 2003)	4
Annexe 8	Distributions granulométriques moyennes (nitrate, sulfate, ammonium) pour les périodes 19-21/02/2003 et 26-28/02/2003	2
Annexe 9	Observations de PM10 en Belgique les 21 Février et 21 Mars 2003	1