

Note technique

ÉLÉMENTS DE CADRAGE SUR L'UTILISATION DE MÉTHODES D'ATTRIBUTION DE SOURCE POUR DÉTERMINER L'ORIGINE DES CONCENTRATIONS EN PARTICULES PAR MODÉLISATION

Bertrand BESSAGNET

SYNTHÈSE

L'interprétation des données produites par des méthodes de « source apportement » doit être réalisée avec prudence. Si le message sur les particules primaires est exploitable et communicable très directement, dès qu'une source d'émission produit des espèces secondaires, aucune méthode actuellement basée sur la modélisation ou l'observation ne peut donner quantitativement la composition des particules par secteur d'activité. A ce titre, les modèles CAMx, CMAQ et LOTOS-EUROS surventent les capacités de leur module de «source apportement» à donner cette information. La seule méthode valable par modélisation pour déterminer l'efficacité d'une mesure de réduction d'émission ne peut-être qu'une simulation de celle-ci avec un modèle de qualité de l'air (comme CHIMERE, CAMx, CMAQ et LOTOS-EUROS). En fait, ces modèles ou ce qui peut-être réalisé avec CHIMERE pour le traçage des primaires donnent une information qualitative sur le poids des secteurs pour les espèces primaires uniquement, l'information sur la partie inorganique secondaire est difficilement exploitable. Un guide est proposé dans cette note pour modifier le modèle CHIMERE afin de tracer des sources de particules primaires.

1. CONTEXTE

Dans le cadre de la directive « Qualité de l'air »¹, il est possible de soustraire certains dépassements de seuils réglementaires des PM₁₀ dus à certaines sources naturelles (poussières désertiques) ou bien à des activités de sablage/salage des routes². Par ailleurs, afin de prévenir ces dépassements et de mieux comprendre les épisodes de particules, l'utilisation de techniques permettant de tracer les origines de ces épisodes est recommandée.

Dans ce cadre réglementaire des techniques basées sur la mesure et des traitements statistiques des observations de la composition chimique des particules ont vu le jour depuis plusieurs années³. Ce type de technique est appelé « *Receptor Modelling* »(RM), un guide⁴ a été établi par la Commission européenne pour cadrer l'utilisation de ces techniques.

En parallèle de ces techniques basées sur l'observation, les modélisateurs se sont emparés également du sujet. Le modèle CAMx a développé un module appelé PSAT qui permettrait de suivre la source des polluants (Wagstrom et al., 2008⁵). Des modules similaires ont été développés dans les modèles LOTOS-EUROS et CMAQ. En France, le modèle CHIMERE permet sous réserve d'une légère modification de pouvoir suivre des espèces particulaires primaires, la section 3 décrit la modification à effectuer. Debry (2013)⁶ décrit les résultats d'une simulation permettant de suivre différentes sources de pollution lors de l'épisode de Janvier 2009.

¹ DIRECTIVE 2008/50/CE DU PARLEMENT EUROPÉEN ET DU CONSEIL du 21 mai 2008 concernant la qualité de l'air ambiant et un air pur pour l'Europe

² Commission Staff Working Paper establishing guidelines for demonstration and subtraction of exceedances attributable to natural sources under the Directive 2008/50/EC on ambient air quality and cleaner air for Europe, <http://ec.europa.eu/environment/air/quality/legislation/assessment.htm>

Commission Staff Working Paper establishing guidelines for determination of contributions from the re-suspension of particulates following winter sanding or salting of roads under the Directive 2008/50/EC on ambient air quality and cleaner air for Europe, <http://ec.europa.eu/environment/air/quality/legislation/assessment.htm>

³ Chiappini L., 2009, 2010, 2011 et 2012. Caractérisation chimique des particules : Veille sur les études de caractérisation des PM. Rapports LCSQA.

⁴European Guide on with Receptor Models

http://source-apportionment.jrc.ec.europa.eu/Docu/EU_guide_on_SA.pdf

⁵ Wagstrom, K.M., Pandis, S.N., Yarwood, G., Wilson, G.M., Morris, R.E., 2008. Development and application of a computationally efficient particulate matter apportionment algorithm in a three-dimensional chemical transport model. Atmos. Environ. 42, 5650e5659.

⁶ Debry (2013) Modélisation pour la recherche de sources expliquant l'épisode de pollution particulaire 2008/2009 en France avec le modèle de chimie-transport CHIMERE. Rapport LCSQA.

<http://www.lcsqa.org/rapport/2013/ineris/modelisation-recherche-sources-expliquant-episode-pollution-particulaire-20082009>

2. LES MODELES DE « SOURCE APPORTIONMENT »

2.1 Les modules de « source apportement » embarqués dans les modèles de chimie-transport

Nous parlons ici des modules de « source apportement » (attribution de sources) embarqués dans les modèles de chimie transport comme CAMx, LOTOS-EUROS et CMAQ. Le module intégré à CAMx appelé PSAT est actuellement un des plus couramment utilisés. **Par « source », on entend « secteur d'activité » ou « zone géographique », pour ce qui suit les éléments donnés valent pour ces deux significations.**

Ces modèles sont basés sur un traçage des sources par un calcul d'attribution réalisé à chaque pas de temps dans le modèle. Le diagramme Figure 1 montre pour le modèle CAMx l'évolution du calcul de flux pour le couple SO₂/Sulfate. Le module PSAT réalise l'attribution de source après le calcul d'advection/diffusion. L'attribution de l'espèce transportée est basée sur sa fraction dans la grille et les flux d'espèces chimiques entre les points de grilles.

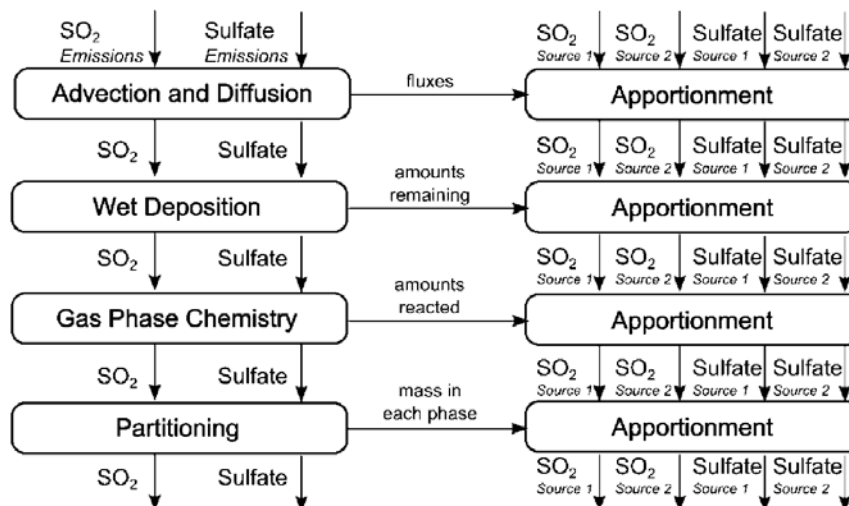


Figure 1 : Exemple d'attribution de source dans CAMx pour deux sources de dioxyde de soufre (d'après Wagstrom et al., 2008)

2.2 Modules de SA versus autres méthodes

Le calcul réalisé dans PSAT est relativement précis pour les espèces primaires ou qui ont une chimie linéaire comme la formation des aérosols organiques secondaires. Par contre, pour les composés inorganiques secondaires qui résultent d'une chimie fortement non linéaire avec des effets de seuils liés à des phénomènes d'hystérésis sur l'humidité relative par exemple, des hypothèses sont réalisées. A ce jour il n'a jamais été prouvé que ces hypothèses fussent acceptables car aucune mesure ne permet d'observer un nitrate, un sulfate ou un ammonium imputable à telle ou telle source.

De façon générale, il est techniquement impossible pour les modèles de chimie-transport d'affirmer que la totalité de la masse d'un composé inorganique secondaire puisse venir de telle ou telle source. Par exemple, le nitrate d'ammonium, composé clé lors des épisodes printaniers (50% en masse des PM₁₀ généralement), est formé par réaction de l'ammoniac et de l'acide nitrique. Si l'ammoniac est principalement émis par le secteur agricole (à plus de 90%), l'acide nitrique est déjà le résultat d'une oxydation des oxydes d'azote. Ces oxydes d'azote ont des origines multiples et par ailleurs l'atome d'oxygène qui s'ajoute au NO₂ pour former HNO₃ a également une origine très variée. A moins d'avoir un modèle qui duplique l'ensemble des réactions pour l'ensemble des sources (il est illusoire qu'il en existe un un jour), aucun modèle actuel ne pourra donner l'origine de chaque atome des molécules dont on souhaite connaître la source.

A ce jour, il est possible d'utiliser les modèles de « source apportement » pour tracer des sources primaires de particules. Néanmoins, tous les modèles de chimie transport peuvent être adaptés pour cet objectif ; le modèle CHIMERE a été utilisé dans ce sens par Debry (2013) comme précisé précédemment.

Une autre méthode classique permettant de déterminer le poids d'un secteur d'activité sur la composition en particules est de mettre à 0 l'ensemble des émissions de ce secteur. Cette méthode est aussi appelée méthode « **zero-out** ». Cette méthode a l'avantage de bien prendre en compte les non linéarités, ce qui justement ne la rend pas vraiment « quantitative ». En effet, la somme des contributions de chaque secteur ne sera pas exactement également au cas de référence simulant l'ensemble des secteurs.

2.3 Quelle méthode pour quel objectif ?

Nous venons de voir que les méthodes de « *source apportement* » ne sont pas forcément fiables pour déterminer les contributions de sources aux concentrations en particules, la non linéarité de la chimie rend peu crédible l'attribution de sources pour les espèces secondaires.

Voici deux questions auxquelles les pouvoirs publics souhaitent répondre :

- **Quelles sont les sources, les origines d'un épisode de pollution ?** A cette question les modules de « *source apportement* » actuellement embarqués dans les modèles comme CAMx ne peuvent répondre que partiellement à la question, c'est-à-dire sur les espèces primaires. L'utilisation d'un modèle comme CHIMERE aboutirait à la même réponse partielle sur les espèces primaires seulement. L'utilisation des modèles de qualité de l'air en supprimant partiellement ou totalement un secteur d'activité c'est-à-dire la méthode **zero-out** décrite précédemment permettra de mieux apprécier la contribution d'un secteur d'activité sur un épisode car l'ensemble des non linéarités seront prises en compte.
- **Quelles mesures de réduction d'émissions seraient efficaces ?** Comme la chimie atmosphérique est très non linéaire et que les polluants émis par les différents secteurs d'activité réagissent tous entre eux, aucun module ne peut le dire de façon quantitative. Pour cela, il faut obligatoirement jouer les scénarios de réduction d'émission pressentis ce qui permettra de connaître l'efficacité des mesures en prenant bien en compte l'ensemble des interactions et non linéarités.

Les modules de « source apportement » dans les modèles de Qualité de l’Air (comme CAM_x), et le traçage des primaires réalisé dans les modèles comme CHIMERE donnent une information équivalente à savoir une indication de la contribution des espèces primaires de certains secteurs sur la composition des particules.

Seule la simulation d’un scénario de réduction d’émissions donnera l’efficacité d’un ensemble de mesures, c’est ce qui peut être fait avec des modèles comme CHIMERE. Un exemple récent est donné dans Bessagnet et al. (2014)⁷ sur des scénarios de réduction d’ammoniac avec les modèles CHIMERE, EMEP et LOTOS-EUROS.

3. MODIFICATIONS A APPORTER A CHIMERE POUR TRACER LES ESPECES PRIMAIRES PARTICULAIRES

Il est possible d’utiliser le modèle CHIMERE en mode « **source apportement** » pour suivre des espèces primaires particulières qui proviennent de sources anthropiques ou de régions bien distinctes.

Pour cela, il suffit d’ajouter autant de composés primaires correspondant aux espèces à suivre dans le modèle. Cette note est un mode d’emploi pour pouvoir insérer dans le modèle CHIMERE une espèce primaire particulière non réactive.

Dans cette note nous appelons TRAC, la nouvelle espèce primaire que nous souhaitons ajouter. Nous travaillons à partir de la version disponible à cette date sur le site web de Laboratoire de Météorologie Dynamique :

<http://www.lmd.polytechnique.fr/chimere/download.php>

Version : chimere2013b

Néanmoins, les modifications apportées sont utilisables pour des versions antérieures. Le niveau de modification décrit est suffisant pour ajouter une espèce primaire qui n’a pas de conditions limites à la bordure de votre plus grand domaine.

Etape 1 :

Toute nouvelle espèce primaire doit avoir une émission préalablement calculée, ici nous supposons que cette espèce est émise potentiellement sur 2 modes, un mode fin TRAC_{fin} et un mode grossier TRAC_{coa} (comme c’est le cas pour les espèces primaires PPM actuellement). Les émissions étant à la fin en molécule/cm²/s dans les fichiers d’entrée au préprocesseur des émissions de CHIMERE, utilisez **100** comme masse molaire fictive pour ces espèces primaires.

⁷ Bessagnet, B., Beauchamp M. , Guerreiro, C., de Leeuw, F., Tsyro, S., Colette, A., Meleux, F., Rouil, L., Ruysenaars, P., Sauter, F., Velders, G. J. M., Foltescu, V. L., van Aardenne, J. Can further mitigation of ammonia emissions reduce exceedances of particulate matter air quality standards? Environmental Science & Policy, Volume 44, December 2014, Pages 149-163.

Etape 2 :

Dans le répertoire **chimere2013b/chemprep/data**, il convient de modifier ces fichiers :

- AEROSOL.aero.cpx
 - Ajouter en tête de fichier cette ligne :
TRAC 1 100. 1
- AEROSOL.aero.med
 - Ajouter en tête de fichier cette ligne :
TRAC 1 100. 1
- AEROSOL.aero.spl
 - Ajouter en tête de fichier cette ligne :
TRAC 1 100. 1
- ANTHROPIC.aero
 - Ajouter TRAC_fin et TRAC_coa dans la liste
- MAKEPRI.aero
 - Il s'agit ici de faire la correspondance entre les modes d'émission « fin » et « coa » avec le spectre de particule, ajoutez donc une ligne de ce type :
TRAC_coa TRAC 1 4.e-6 1.1
TRAC_fin TRAC 1 0.11e-6 1.6
 - Il y a une ligne par mode d'émission, le troisième paramètre est un entier correspondant à la façon de répartir l'émission du mode considéré sur la distribution granulométrique, « 1 » correspond à une loi lognormale, les 4eme et 5eme paramètres sont respectivement le diamètre médian et l'écart type de cette loi.
- REACTIONS.univ.aero:
 - Il convient d'ajouter une réaction fictive dans ce fichier pour prendre en compte la fraction aqueuse du traceur :
TRACAQ->X k=1e-18
- WETD_SPEC.univ
 - Enfin, on définit le traceur de particules en phase aqueuse dans ce fichier en ajoutant une ligne:
TRACAQ 2 0. 1. 0.

Dans votre script principal, vérifiez que l'option **carb est à 0**.

Ensuite, lancez le script principal pour créer le bon fichier répertoire **/inputdata** dans le répertoire **chimere2013b/chemprep**.

La nouvelle version incluant une nouvelle espèce primaire est prête. Un exemple de prise en compte de certaines espèces primaires avec CHIMERE est donné Figure 2.

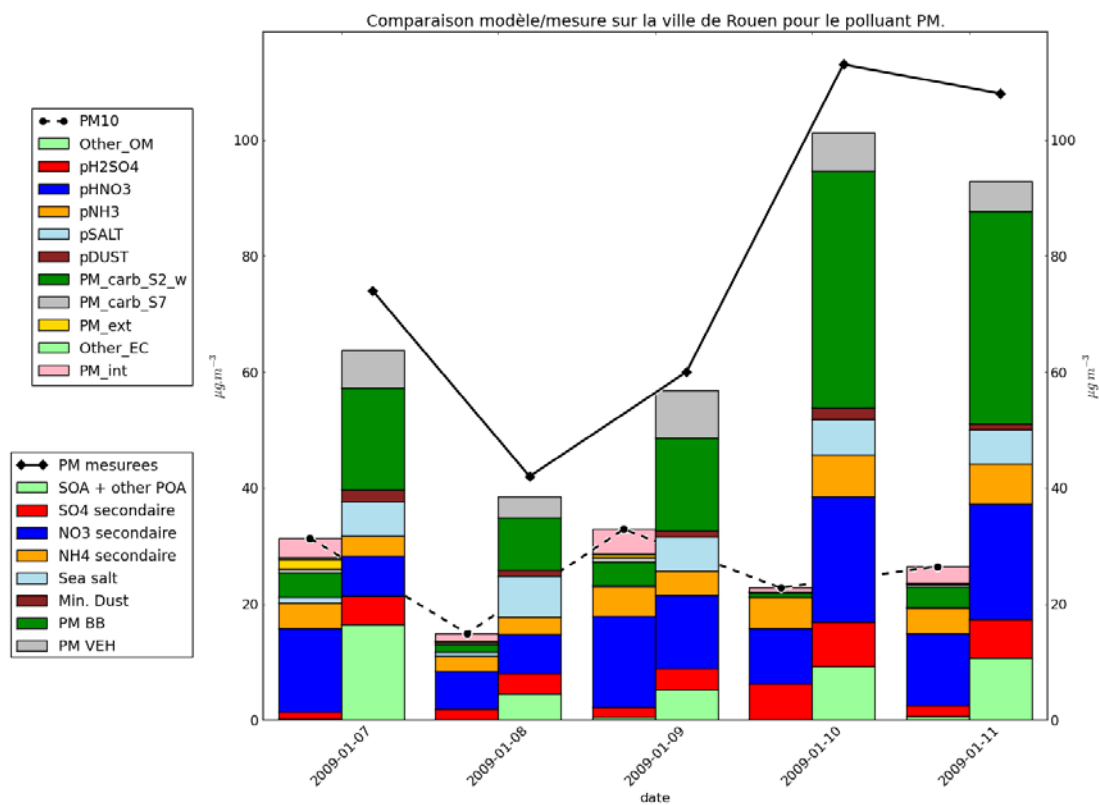


Figure 2 : Figure extraite de Debry et al. (2013) montrant un exemple de « source apportement » de primaire avec CHIMERE (PM_carb_S2_w : Particules carbonées issues du chauffage bois, PM_carb_S2_nw : Particules carbonées issues du chauffage autre que le bois, PM_carb_S7 : Particules carbonées issues du trafic)