

## THÈSE

Présentée à

**L'UNIVERSITE LILLE 1 SCIENCES ET TECHNOLOGIES**

En vue de l'obtention du grade de

**DOCTEUR DE L'UNIVERSITE LILLE 1 SCIENCES ET TECHNOLOGIES**

Discipline : Optique et Lasers – Physico-Chimie – Atmosphère

par

**Etienne TERRENOIRE**

**APPLICATION DES SYSTEMES MM5-CHIMERE ET  
MM5-FLEXPART A LA MODELISATION DE L'OZONE ET DES PM<sub>10</sub>  
SUR LA REGION NORD-PAS-DE-CALAIS**

*Soutenue publiquement devant la Commission d'examen le 26 juin 2009*

**Rapporteurs :**      **M. BEEKMANN**      Directeur de Recherche à l'Université de Paris VII  
                                 **J.P CHOLLET**      Professeur à l'Université de Grenoble I

**Examineurs :**      **P. CODDEVILLE**      Professeur à l'Ecole des Mines de Douai  
                                 **H. DELBARRE**      Professeur à l'Université du Littoral Côte d'Opale  
                                 **Y. MARTINET**      Docteur - Ingénieur au CITEPA  
                                 **J.L PONCHE**      Maître de Conférence (HDR) à Strasbourg 1  
                                 **E. THERSEN**      Professeur à l'Université Lille 1

**Directrice de thèse :** **V. FEVRE-NOLLET** Maître de conférence (HDR) à l'Université Lille 1

## REMERCIEMENTS

Mes premiers remerciements vont tout naturellement à ma Directrice de thèse, Valérie FEVRE-NOLLET et à Jean-François PAUWELS respectivement Maître de Conférences et Professeur des Universités, actuel Directeur du PC2A. Ils m'ont offert l'opportunité de travailler sur un sujet de recherche passionnant qu'est la modélisation atmosphérique et je leur en suis particulièrement reconnaissant. Je remercie sincèrement Valérie pour m'avoir fait confiance, encouragé et « supporté » durant mes quatre années passées au laboratoire. Je tiens à remercier chaleureusement Jean-François pour m'avoir permis d'achever mon doctorat dans de bonnes conditions tant morales que matérielles.

Je remercie chaleureusement Messieurs M. BEEKMANN, J.P CHOLLET, J.L PONCHE, H.DELBARRE, Y. MARTINET, P.CODDEVILLE et E.THERSSEN pour m'avoir fait l'honneur de composer mon jury de thèse. Je remercie tout particulièrement M.BEEKMANN et J.P CHOLLET pour avoir rapporté mon travail. Je suis également très reconnaissant à l'ensemble du jury pour leurs diverses remarques qui ont permis l'amélioration de mon manuscrit. Merci à Eric THERSSEN de m'avoir fait l'honneur de présider mon jury de thèse.

Je remercie l'ensemble du personnel du PC2A, techniciens, ingénieurs, chercheurs et enseignant-chercheur. J'adresse également mes remerciements à l'ensemble des doctorants et post-doctorant que j'ai pu croiser au cours de ma thèse pour leur convivialité : Benoîte, Katharzyna, Kamal, Gauthier, Jérôme D, Jérôme T, Carole, Sylvia, Elodie, Sara, Jérémy, Romain, Alex, Alessandro, Quang, Claudio, Maxime, Raluca, Yathis, Louise et Marion. Je remercie tout particulièrement Solène et Moïse mes colloc et compagnons de thèse qui sont à présent deux amis très proches. Je remercie également Valérie V, Béatrice, Sylvie, Patrick, Pascal et Marc Z pour leur gentillesse et leur aide dans les tâches administratives, pratiques et techniques. Je suis reconnaissant à Marc RIBAU COURT et Marie-Claire DHAMELINCOURT pour m'avoir offert l'opportunité d'enseigner. Merci à mes collègues enseignants, Nicolas, Guillaume, Céline, Corinne, Sébastien, Odile et Kazia pour leur convivialité, leurs

conseils et leurs aides pour mes premières expériences en enseignement. Re-merci à Sébastien pour ses précieux conseils sur linux et l'écriture des scripts.

Je remercie également plusieurs ami(e)s du Nord pour m'avoir fait découvrir et partager la très chaleureuse culture et gastronomie (friteries et autres bières à déguster avec modération) CHTI'MI !!! J'ai passé à Lille et ses environs des moments inoubliables. Merci à Jéré, Sam, Eva, Albane et Vanessa pour leur amour et amitié.

Enfin, je ne manquerai pas de remercier l'ensemble de ma famille et tout particulièrement mes parents pour leur soutien inconditionnel durant mes longues années d'études. Je leur en suis éternellement reconnaissant.

Vive la science.

Science, sans conscience, n'est que ruine de l'âme.

RABELAIS (vers 1494 - 1553)



# **SOMMAIRE**



<b>Introduction générale.....</b>	<b>1</b>
<b>Chapitre 1. Généralité sur la physicochimie de la troposphère.....</b>	<b>7</b>
<b>Introduction.....</b>	<b>9</b>
<b>1.1. Dynamique de la troposphère .....</b>	<b>10</b>
1.1.1. Structure verticale de la troposphère.....	10
1.1.2. Les différentes échelles spatio-temporelles de la dynamique troposphérique.....	12
1.1.3. La Couche Limite Atmosphérique.....	14
<b>1.2. Pollution photochimique à l’ozone .....</b>	<b>16</b>
1.2.1. Les Oxydes d’azotes (NOx) .....	17
1.2.2. Les Composés Organiques Volatiles (COV) .....	18
1.2.3. Les HOx .....	18
1.2.4. Photochimie.....	18
1.2.5. La production d’ozone troposphérique.....	21
1.2.6. Le rapport COV/NOx : paramètre clé de la production d’ozone dans un panache urbain.....	24
1.2.7. Historique de l’évolution des émissions en NOx et en COVNM en France.....	25
<b>1.3. Pollution troposphérique particulaire.....</b>	<b>27</b>
1.3.1. Mécanismes de formation des aérosols .....	27
1.3.2. Description des principales familles chimiques d’aérosols .....	31
1.3.3. Historique de l’évolution l’émission des PM <sub>10</sub> en France .....	33
<b>1.4. Impact de la pollution troposphérique.....</b>	<b>34</b>
1.4.1. Impact radiatif .....	34
1.4.2. Impact sanitaire.....	36
1.4.3. Impact sur l’agriculture .....	39
1.4.4. Impact sur les édifices publiques .....	39
<b>1.5. La législation de la pollution atmosphérique .....</b>	<b>40</b>
1.5.1. La législation européenne.....	40
1.5.2. La législation française .....	42
<b>1.6. La modélisation de la qualité de l’air .....</b>	<b>46</b>
1.6.1. Modèle déterministe Lagrangien .....	48
1.6.2. Modèle déterministe Eulérien.....	50
<b>1.7. Conclusion .....</b>	<b>55</b>



<b>Chapitre 2. Caractérisation de la zone d'étude : spécificité des émissions polluantes et de la dynamique .....</b>	<b>57</b>
<b>Introduction.....</b>	<b>59</b>
<b>2.1. Emissions polluantes en région NPDC.....</b>	<b>59</b>
2.1.1. Présentation de la région NPDC.....	59
2.1.2. Les inventaires d'émissions.....	60
2.1.3. Comparaison et analyse critique des différents inventaires pour le NPDC.....	72
2.1.4. Comparaison de la répartition spatiale de la concentration de polluants issus de l'inventaire EMEP et de l'inventaire régional NPDC.....	84
<b>2.2. Evolution de la concentration de trois polluants atmosphériques clés : de l'échelle nationale à l'échelle de la région NPDC .....</b>	<b>89</b>
2.2.1. Le NO <sub>2</sub> .....	89
2.2.2. L'ozone.....	92
2.2.3. Les PM <sub>10</sub> .....	97
2.2.4. Bilan régional.....	101
<b>2.3. Spécificités dynamiques de la région NPDC.....</b>	<b>102</b>
2.3.1. La brise de mer.....	102
2.3.2. La brise de terre.....	103
2.3.3. Régime climatique régional du NPDC.....	106
<b>2.4. Conclusion .....</b>	<b>108</b>

<b>Chapitre 3. Mise en œuvre de la plate-forme POQAIR.....</b>	<b>109</b>
<b>Introduction.....</b>	<b>111</b>
<b>3.1. Généralités sur le POrtail Qualité de l'AIR : POQAIR .....</b>	<b>111</b>
<b>3.2. Mise en œuvre du modèle méso-échelle MM5 .....</b>	<b>114</b>
3.2.1. Description générale .....	114
3.2.2. Architecture globale.....	114
3.2.3. Système de coordonnées .....	117
3.2.4. L'option non-hydrostatique .....	118
3.2.5. La technique d'imbrication des domaines .....	119
3.2.6. Conditions aux bords des grilles filles .....	120
3.2.7. L'assimilation de données .....	121
3.2.8. Détermination des domaines .....	122
3.2.9. Influence des coefficients de relaxation .....	124
3.2.10. Données météorologiques utilisées dans CHIMERE .....	127
<b>3.3. Description du modèle CHIMERE .....</b>	<b>128</b>
3.3.1. Généralités sur CHIMERE .....	128
3.3.2. Coordonnées horizontales et verticales .....	130
3.3.3. Transport horizontal.....	130
3.3.4. Transport vertical.....	130
3.3.5. Diffusion turbulente verticale.....	131
3.3.6. Production des fichiers d'émissions anthropiques .....	133
3.3.7. Production des fichiers des émissions biogènes.....	137
3.3.8. Mécanisme chimique .....	138
3.3.9. Représentation des aérosols dans CHIMERE.....	139
3.3.10. Photolyse et atténuation par les nuages .....	143
3.3.11. Conditions limites et initiales .....	143
3.3.12. Discrétisation et schéma numérique.....	144
3.3.13. Description des domaines CHIMERE.....	146
<b>3.4. Le modèle Lagrangien FLEXPART .....</b>	<b>149</b>
3.4.1. Généralité sur FLEXPART .....	149
3.4.2. Données météorologiques .....	150
3.4.3. Architecture.....	150
3.4.4. Principales paramétrisations du modèle FLEXPART .....	151
<b>3.5. Conclusion .....</b>	<b>154</b>

<b>Chapitre 4. Validation de POQAIR sur la région NPDC .....</b>	<b>155</b>
<b>Introduction.....</b>	<b>157</b>
<b>4.1. Etude A : La canicule de juin-juillet 2006 .....</b>	<b>157</b>
4.1.1. Analyse de l'évolution de la température.....	157
4.1.2. Analyse de la vitesse et de la direction du vent.....	158
4.1.3. Analyse statistique de la performance du modèle MM5 pour le mois de juillet 2006.....	162
4.1.4. Reproduction du profil thermique vertical.....	164
4.1.5. Reproduction de la brise de mer par le modèle MM5.....	166
4.1.6. Analyse des concentrations en ozone et en PM <sub>10</sub> calculées.....	168
4.1.6.1. Localisation géographique des stations de mesures Atmo-NPDC.....	168
4.1.6.2. Analyse de l'ozone.....	169
4.1.6.3. Analyse des PM <sub>10</sub> .....	169
4.1.6.4. Etudes des niveaux de concentration en O <sub>3</sub> et en PM <sub>10</sub> en fonction des conditions météorologiques.....	176
4.1.6.5. Diagramme de dispersion ( <i>Scatter Plots</i> ) pour l'ozone et les PM <sub>10</sub> .....	182
4.1.6.6. Analyse statistique des concentrations en O <sub>3</sub> et en PM <sub>10</sub> .....	184
4.1.6.7. Détermination de l'âge d'une masse d'air .....	187
4.1.6.8. Etude des profils horizontaux sur la région NPDC.....	188
4.1.6.9. Etude des profils verticaux sur la région NPDC.....	190
4.1.6.10. Evaluation du système au niveau de la côte sud de l'Angleterre.....	192
4.1.6.11. Discussion.....	197
4.1.7. Optimisation de la configuration des domaines.....	198
4.1.7.1. Influence de la résolution de la grille du domaine.....	198
4.1.7.2. Influence de la résolution des données météorologiques .....	201
4.1.7.3. Conclusion.....	206
<b>4.2. Etude B : Origine de la pollution en ozone et PM<sub>10</sub> sur la région NPDC en juillet 2006.....</b>	<b>206</b>
4.2.1. Origine de la masse d'air.....	206
4.2.2. Utilisation du <i>nesting</i> durant le mois de juillet 2006 pour le domaine NPDC1 .....	207
4.2.3. Analyse de la différence entre les concentrations en ozone modélisées avec et sans émissions.....	211
<b>4.3. Conclusion .....</b>	<b>216</b>

<b>Chapitre 5. Application de POQAIR à la zone industrielle de Dunkerque.....</b>	<b>219</b>
<b>Introduction.....</b>	<b>221</b>
<b>5.1. Identification de l'origine de deux épisodes de pollutions particulières.....</b>	<b>221</b>
5.1.1. Période A : Période du 16 mars au 10 avril 2007 .....	221
5.1.1.1. Analyse de la situation météorologique et de la performance de MM5.....	221
5.1.1.2. Evolution des concentration en PM <sub>10</sub> et PM <sub>2,5</sub> du 16 mars au 10 avril .....	224
5.1.1.3. Etude des concentrations en NO <sub>x</sub> .....	226
5.1.2. Application de MM5-FLEXPART à l'épisode du 16 mars au 10 Avril 2007.....	228
5.1.3. Etude de cas B: Période du 16 au 30 décembre 2007 .....	230
5.1.3.1. Analyse de la situation météorologique et de la performance de MM5.....	230
5.1.3.2. Analyse des PM <sub>10</sub> .....	233
5.1.3.3. Analyse en NO <sub>x</sub> .....	234
5.1.4. Application de MM5-FLEXPART à la période du 16 au 30 décembre 2007 .....	234
5.1.5. Conclusion : origine de deux épisodes de pollution particulaire sur Dunkerque.....	236
<b>5.2. Campagnes de mesures sur la région industrielle côtière de Dunkerque.....</b>	<b>237</b>
5.2.1. Analyse de la situation météorologique .....	238
5.2.1.1. Période du 3 au 7 avril 2006 .....	238
5.2.1.2. Période du 1 au 15 mai 2006.....	239
5.2.2. Influence de la paramétrisation de la CLA sur trois paramètres dynamiques durant la période du 3 au 7 avril 2006.....	241
5.2.3. Influence des paramétrisations de la CLA sur les concentrations calculées de quatre polluants troposphériques durant la période du 3 au 7 avril 2006 .....	246
5.2.4. Analyse des polluants atmosphériques sur la période du 1 au 15 mai 2006 .....	250
5.2.5. Conclusion : Etude spécifique de la zone côtière industrielle de Dunkerque.....	251
<b>5.3. Conclusion.....</b>	<b>252</b>
<b>Conclusion générale et perspectives.....</b>	<b>253</b>
<b>Bibliographie.....</b>	<b>261</b>

Annexe A-1: Temps de vie de quelques COV vis-à-vis des réactions avec OH, NO <sub>3</sub> , O <sub>3</sub> et de photolyse d'après Atkinson (2000). .....	278
Annexe A-2 : Seuils de recommandation de l'OMS pour divers polluants atmosphériques.....	279
Annexe A-3 : Seuils d'informations et d'alertes, appliqués sur le territoire Français, pour divers polluants atmosphériques.....	280
Annexe A-4: Organisation réglementaire de la qualité de l'air en France. ....	281
Annexe A-5: Tableaux de correspondance entre l'indice ATMO et les concentrations en SO <sub>2</sub> , NO <sub>2</sub> , O <sub>3</sub> et particules. ....	282
Annexe A-6 : Techniques métrologiques disponibles pour mesurer les concentrations de quatre polluants de l'atmosphère.....	283
Annexe B-1: Définition des différentes rubriques SNAP. ....	284
Annexe B-2 : Dénomination des différents secteurs SECTEN.....	285
Annexe B-3 : Tableau de correspondance entre les secteurs SECTEN et SNAP.....	286
Annexe B-4: Mesures des écarts de températures entre le centre de Lille et différents points de l'agglomération. .	295
Annexe C-1: Données de sol utilisées par le module TERRAIN d'après Grell (1994). ....	296
Annexe C-2: Script c-shell <i>mastermod</i> . ....	297
Annexe C-3: Script terrain.deck.....	302
Annexe C-4: Topographie et occupation des sols des différents domaines MM5. ....	306
Annexe C-5 : Variables disponibles en sortie du modèle MM5.....	308
Annexe C-6: Liste des espèces gazeuses du mécanisme MELCHIOR. ....	309
Annexe D-1 : Evolution temporelle de la température, de vitesse du vent, de l'humidité relative et des précipitations mesurées par Météo-France et calculées par MM5 au niveau de la station de Lille-Lesquin. ....	310
Annexe D-2 : Evolution temporelle de la température, de la vitesse du vent, de l'humidité relative et des précipitations mesurées par Météo-France et calculées par MM5 au niveau de la station de Dunkerque.....	312
Annexe D-3: Coordonnées géographiques de l'ensemble des stations du réseau de surveillance de la qualité de l'air Atmo-NPDC.....	314
Annexe D-4: Pourcentage d'ozone lié à l'ensemble des émissions locales (courbes noires) et aux émissions anthropiques uniquement (courbes bleues) pour différentes stations de la région NPDC. Les valeurs sont calculées pour les maxima journaliers du mois de juillet 2006 ( $n = 30$ ). ....	316
Annexe D-5: Bilan enseignements et publications.....	318

# **LISTE DES FIGURES**



Figure 1.1 : Schématisation du système global de la physico-chimie de l'atmosphère.....	9
Figure 1.2 : Profil des différentes couches de l'atmosphère terrestre (N=neutrosphère), d'après Aumont (2005).10	
Figure 1.3 : Temps moyens de mélange entre les différentes couches de l'homosphère et les deux hémisphères terrestres. ....	14
Figure 1.4 : Evolution temporelle de la couche limite atmosphérique (heure UTC en abscisse), [Stull, 1988].... 15	
Figure 1.5 : Représentation schématique des principaux mécanismes impliqués dans la formation d'ozone troposphérique [Aumont, 2005].....	17
Figure 1.6 : Profil type de la vitesse de production d'ozone en fonction de la quantité de NO <sub>x</sub> [Aumont, 2005].21	
Figure 1.7 : Profils horizontaux typiques du rapport [COV]/[NO <sub>x</sub> ], du profil d[O <sub>3</sub> ]/dt et [O <sub>3</sub> ] selon le type de zone, d'après Aumont (2005). ....	24
Figure 1.8: Emission (kt/an) en NO <sub>x</sub> par secteur d'activité en France métropolitaine entre 1960 et 2007 (d'après Citepa, 2008). ....	26
Figure 1.9: Emission (kt/an) en COVNM par secteur d'activité en France métropolitaine entre 1988 et 2007 (Citepa, 2008). ....	27
Figure 1.10 : Représentation schématique de la distribution granulométriquement et des processus de formation et de déposition des particules. Adapté de Whitby et Cantrell (1976) par Hodzic (2005). ....	30
Figure 1.11 : Exemple de mélange interne (à gauche) et de mélange externe (à droite) entre du sulfate d'ammonium (bleu) et des particules de black carbon (rouge). ....	32
Figure 1.12 : Spéciation chimique sectionnelle de la phase particulaire en fonction de la taille pour des aérosols prélevés sur un site urbain à Bologne [Putaud, 2003]. ....	33
Figure 1.13: Emission (kt/an) s en PM <sub>10</sub> par secteur d'activité en France métropolitaine entre 1990 et 2007 (Citepa, 2008). ....	34
Figure 1.14 : Exemple d'une pollution de type particulaire observée durant le mois d'août 2005 à Pékin. A droite durant un épisode de smog et à gauche après lessivage par la pluie. ....	35
Figure 1.15 : Estimations et incertitudes du forçage radiatif global moyen de différentes espèces gazeuses et particulaires. ....	35
Figure 1.16 : Zones du corps humain affectées en fonction de la nature du polluant (Atmo-NPDC). ....	36
Figure 1.17 : Pénétration des particules dans l'appareil respiratoire humain en fonction de leur diamètre. ....	37
Figure 1.18 : Valeurs journalières de l'excès de risque de mortalité lié à l'ozone et à la température, et valeurs des parts relatives des deux facteurs pour une population de tous âges [Cassadou et al., 2004]. ....	38
Figure 1.19 : Nécroses observées à la surface d'une feuille de tabac provoquées par une forte concentration en ozone.....	39
Figure 1.20 : Carte national des stations AASQA de surveillance de la qualité de l'air. ....	43
Figure 1.21 : Schématisation de la modélisation en mode Lagrangien d'une parcelle d'air (cube). ....	48
Figure 1.22 : Exemple des différents maillages Eulériens utilisés : 0D (t), 1D (t, x), 2D (t, x, z) et 3D (t, x y z). 50	
Figure 1.23 : Schématisation des différents processus physico-chimiques modélisés et interagissant au sein du système de modélisation Eulérienne déterministe. ....	52



Figure 2.1 : Topographie de la région NPDC (BDcarto/IGN).....	60
Figure 2.2 : Grille des émissions du cadastre EMEP (mailles 50 x 50 km <sup>2</sup> ).....	64
Figure 2.3 : Architecture de la base de données de l'inventaire d'émissions anthropiques régionales NPDC sous PostgreSQL.....	67
Figure 2.4 : Modification du module emiEMEP de la V200511B de CHIMERE permettant l'utilisation des données de l'inventaire régional pour la production des fichiers d'émissions anthropiques.....	69
Figure 2.5 : Schéma d'intégration des espèces anthropiques issues de l'inventaire régional NPDC.....	70
Figure 2.6 : Emissions totales annuelles en NOx pour la région NPDC (inventaire régional 2001 : résolution 2 x 2 km <sup>2</sup> ). .....	70
Figure 2.7 : Cartes des champs de concentrations en PM <sub>10</sub> calculées avec le système MM5-CHIMERE pour la journée du 03/09/2004 à 01h UTC avec les données issues de l'inventaire EMEP (à gauche) et régional (à droite). .....	71
Figure 2.8 : Emissions (%) de cinq polluants primaires clés pour la France issues de l'inventaire CITEPA (2000). .....	75
Figure 2.9 : Emissions (%) de cinq polluants primaires clés pour la région NPDC issues de l'inventaire CITEPA (2000). .....	75
Figure 2.10 : Part des émissions (%) en NOx par secteurs d'activités pour la France et la région NPDC issues de l'inventaire CITEPA, Atmo-NPDC et EMEP. ....	79
Figure 2.11 : Part des émissions (%) en COVNM par secteurs d'activités pour la France et la région NPDC issues de l'inventaire CITEPA, Atmo-NPDC et EMEP.....	80
Figure 2.12 : Part des émissions (%) en CO par secteurs d'activités pour la France et la région NPDC issues de l'inventaire CITEPA, Atmo-NPDC et EMEP. ....	81
Figure 2.13 : Part des émissions (%) en TSP par secteurs d'activités pour la France et la région NPDC issues de l'inventaire CITEPA, Atmo-NPDC et EMEP. ....	82
Figure 2.14 : Part des émissions (%) en CH <sub>4</sub> par secteurs d'activités pour la France et la région NPDC issues de l'inventaire CITEPA, Atmo-NPDC et EMEP. ....	83
Figure 2.15 : Cartes des émissions anthropiques régionales NPDC en C <sub>2</sub> H <sub>4</sub> avec l'inventaire EMEP (à gauche) et l'inventaire régional (à droite) à 12h UTC (jour ouvré).....	85
Figure 2.16 : Cartes des émissions anthropiques régionales NPDC en CO avec l'inventaire EMEP (à gauche) et l'inventaire régional (à droite) à 12h UTC (jour ouvré).....	85
Figure 2.17 : Cartes des émissions anthropiques régionales NPDC en C <sub>5</sub> H <sub>8</sub> avec l'inventaire EMEP (à gauche) et l'inventaire régional (à droite) à 12h UTC (jour ouvré).....	86
Figure 2.18 : Cartes des émissions anthropiques régionales NPDC en o-xylène avec l'inventaire EMEP (à gauche) et l'inventaire régional (à droite) à 12h UTC (jour ouvré). ....	86
Figure 2.19 : Cartes des émissions anthropiques régionales NPDC en NO <sub>2</sub> avec l'inventaire EMEP (à gauche) et l'inventaire régional (à droite) à 12h UTC (jour ouvré).....	87
Figure 2.20 : Cartes des émissions anthropiques régionales NPDC en NO avec l'inventaire EMEP (à gauche) et l'inventaire régional (à droite) à 12h UTC (jour ouvré).....	87
Figure 2.21 : Cartes des émissions anthropiques régionales NPDC en PM <sub>10</sub> avec l'inventaire EMEP (à gauche) et l'inventaire régional (à droite) à 12h UTC (jour ouvré).....	88

Figure 2.22 : Cartes des émissions anthropiques régionales NPDC en $PM_{2,5}$ avec l'inventaire EMEP (à gauche) et l'inventaire régional (à droite) à 12h UTC (jour ouvré). .....	88
Figure 2.23 : Evolution de la moyenne annuelle nationale en $NO_2$ de 1994 à 2006 pour quatre types de stations pour le $NO_2$ . .....	89
Figure 2.24: Profils des concentrations journalières (moyennes horaires) (A), hebdomadaires (moyennes journalières) (B) et mensuelles (moyennes journalières) (C) mesurés en $NO_2$ ( $\mu g/m^3$ ) pour différents types de stations de la région NPDC durant l'année 2006 (Atmo-NPDC). .....	91
Figure 2.25 : Concentrations moyennes annuelles en $NO_2$ observées pour diverses stations de la région NPDC durant l'année 2006 (données Atmo-NPDC <sup>1</sup> ). .....	91
Figure 2.26 : Evolution des moyennes annuelles en $NO_2$ pour les sites urbains de 2000 à 2006. ....	92
Figure 2.27 : Mesures moyennes annuelles d'ozone effectuées en Europe de 1870 à 1990 dans différents sites au sommet de montagnes (pollution de fond) [Marenco, 1994]. .....	93
Figure 2.28 : Evolution de la concentration moyenne annuelle en ozone en France de 1994 à 2006 pour l'ensemble des stations rurales régionales (rouge) et urbaines+périurbaines (bleu) .....	93
Figure 2.29 : Profils des concentrations journalières (moyennes horaires) et mensuelles (moyennes journalières) de l'ozone pour différentes stations de la région NPDC durant l'année 2006 (données Atmo-NPDC) .....	94
Figure 2.30 : Profils journaliers (moyennes horaires) simultanés de l'ozone et du dioxyde d'azote pour différentes stations durant l'année 2006 (données Atmo-NPDC <sup>1</sup> ). .....	95
Figure 2.31 : Nombre de jours de dépassement par région du seuil d'information ( $180 \mu g/m^3$ en moyenne horaire) d'ozone de 2003 à 2006. ....	96
Figure 2.32 : Concentrations moyennes annuelles en $O_3$ observées pour diverses stations de la région NPDC durant l'année 2006 (données Atmo-NPDC). .....	96
Figure 2.33 : Valeurs moyennes annuelles des concentrations massiques en $PM_{10}$ pour l'ensemble des stations rurales, urbaines, industrielles et des stations trafic de France (Ministère de l'écologie de l'énergie et du développement durable). .....	98
Figure 2.34 : Evolution annuelle (moyennes mensuelles) et journalière (moyennes horaires) de la concentration en $PM_{10}$ au niveau de la région NPDC durant la période 2004-2006 pour l'ensemble des stations de la région NPDC. ....	99
Figure 2.35 : Evolution de la moyenne annuelle en $PM_{10}$ en site urbain de 2000 à 2006. ....	100
Figure 2.36 : Concentrations moyennes annuelles en $PM_{10}$ observées pour diverses stations de la région NPDC durant l'année 2006 (données Atmo-NPDC). .....	101
Figure 2.37 : Tendances des concentrations moyennes annuelles en $SO_2$ , $PM_{10}$ , $O_3$ et $NO_2$ pour la région NPDC de 1993 à 2006. ....	102
Figure 2.38 : Coupe verticale (0-1000m) représentant un système de brise de mer diurne, d'après Delmas <i>et al.</i> (2005). .....	103
Figure 2.39 : Photographie montrant la convergence de deux brises de mer au niveau de la presqu'île du Cotentin. ....	103
Figure 2.40 : Schématisation de la cellule de brise de ville. ....	105
Figure 2.41 : Les différents régimes climatiques de la région NPDC .....	107
Figure 2.42 : Rose des vents établie pour la station Lille-Lesquin (moyenne tri-horaire 1993-1997). ....	107

Figure 3.1 : Schéma de l'architecture globale de POQAIR .....	112
Figure 3.2 : Architecture générale et imbrication des différents modules composant le modèle MM5. ....	116
Figure 3.3 : Représentation schématique du maillage verticale du modèle MM5 : Exemple pour 15 couches verticales. Les lignes pleines représentent les niveaux $\sigma$ , les lignes tirets représentent les niveaux $\sigma$ -demi et K le numéro des différentes couches.....	117
Figure 3.4: Représentation schématique d'une grille (fille et mère) de type Arakawa B (rapport de 3:1 entre la grille mère et la grille fille). ....	118
Figure 3.5: Exemple de carte synoptique (gauche) et de sa coupe verticale (droite) le 01/07/06 à 14h UTC.....	124
Figure 3.6: Exemple d'emmagramme et d'un hodographe pour Dunkerque (51,05°N ; 2,33°W), le 01/07/06 à 00h UTC. ....	124
Figure 3.7: Evolution temporelle de la température mesurée et calculée sans application du coefficient de relaxation. ....	125
Figure 3.8: Evolution de la température (gauche) et de la vitesse du vent (droite) à Dunkerque en fonction du coefficient de relaxation pour la période du 03/04/06 au 08/04/06.....	126
Figure 3.9 : Température (gauche) et vitesse du vent (droite) mesurées en fonction des calculs MM5 (FDDA5) pour la période du 03/04/06 au 08/04/06 à Dunkerque. ....	126
Figure 3.10 : Evolution de la température (gauche) et de la vitesse du vent (droite) à Lille en fonction du coefficient de relaxation pour la période du 03/04/06 au 08/04/06.....	127
Figure 3.11 : Diagramme de dispersion pour la température (gauche) et vitesse du vent (droite) mesurées en fonction des calculs MM5 (FDDA5) pour la période du 03/04/06 au 08/04/06 à Lille.....	127
Figure 3.12 : Coefficients mensuels appliqués aux valeurs d'émissions annuelles pour chaque SNAP utilisés par CHIMERE.....	134
Figure 3.13: Coefficients horaires appliqués aux valeurs d'émissions mensuelles (EMEP et cadastre régional) utilisées par CHIMERE pour le secteur des transport (SNAP 7).....	135
Figure 3.14 : Réactivité de COVNM réels ou réactivité moyenne d'une classe de COVNM avec OH pour les 221 COVNM proposés par Passant (2002) (température 298K et pression 1 atm). ....	137
Figure 3.15: Les différentes sections du module aérosol de CHIMERE. ....	140
Figure 3.16 : Schéma du principe de calcul utilisé au sein d'un CTM.....	144
Figure 3.17 : Architectures des domaines MM5 et CHIMERE utilisées pour la modélisation (en jaune : CHIMERE ; en bleu : MM5).....	147
Figure 3.18 : Zone de couverture des domaines CHIMERE NPDC3DK et NPDC3Lille. ....	147
Figure 3.19 : Schématisation de l'imbrication des différents modules composant le système MM5-CHIMERE. ....	148
Figure 3.20 : Schématisation de l'imbrication des différents modules du système MM5-FLEXPART. ....	151

Figure 4.1 : Evolution temporelle de la température et des précipitations durant les mois de juin-juillet 2006 pour la station de Lesquin (50,59°N/3,11°E). .....	160
Figure 4.2 : Evolution temporelle de la température et des précipitations durant les mois de juin-juillet 2006 pour la station de Dunkerque (51,03°N/2,33°E).....	160
Figure 4.3 : Evolution temporelle de la vitesse et de la direction du vent durant les mois de juin-juillet 2006 pour la station de Lesquin (50,59°N/3,11°E). .....	161
Figure 4.4 : Evolution temporelle de la vitesse et de la direction du vent durant les mois de juin-juillet 2006 pour la station de Dunkerque (51,03°N/2,33°E).....	161
Figure 4.5 : Emmagrammes issus de données mesurées pour la station de Herstmonceux et calculées par MM5 pour Dunkerque (51.03°N/2.37°E) le 01/07/06 à 00h UTC. ....	165
Figure 4.6 : Emmagrammes issus de données mesurées pour la station de Herstmonceux et calculées par MM5 pour Dunkerque (51.03°N/2.37°E) le 01/07/06 à 12h UTC. ....	166
Figure 4.7 : Analyse synoptique (fronts froids, fronts chauds, maxima et minima de la pression au niveau de la mer) du 03/07/06 à 00h UTC (MetOffice). ....	166
Figure 4.8 : Profils de la vitesse (courbe noire) et direction du vent (points bleus) (à gauche) et de la température sèche (à droite) mesurés pour la journée du 03/07/06. ....	167
Figure 4.9 : Coupes verticales et vecteurs vents calculés le 03/07/06 à 12h UTC (droite) et à 16h UTC (gauche) pour le DOM2. ....	168
Figure 4.10 : Localisation des différentes stations du réseau Atmo-NPDC.....	169
Figure 4.11 : Evolution de la concentration en ozone mesurée et calculée avec le cadastre EMEP (rouge) et régional (bleu) durant la période juin-juillet 2006 à la station de Lesquin (périurbaine) (3,11°E ; 50,59°N). ....	172
Figure 4.12: Evolution de la concentration en ozone mesurée et calculée avec le cadastre EMEP (rouge) et régional (bleu) durant la période juin-juillet 2006 à Gravelines près de Dunkerque (périurbaine) (2.14°E ; 50,98°N). ....	172
Figure 4.13 : Evolution de la concentration en PM <sub>10</sub> mesurée et calculée avec le cadastre EMEP (rouge) et régional (bleu) durant la période juin-juillet 2006 à la station de Salomé (périurbain) (2,84°E ; 50,53°N). ....	173
Figure 4.14 : Evolution de la concentration en PM <sub>10</sub> mesurée et calculée avec le cadastre EMEP (rouge) et régional (bleu) durant la période juin-juillet 2006 à Gravelines près de Dunkerque (périurbaine) (2.14°E ; 50,98°N). ....	173
Figure 4.15 : Différence entre les concentrations en ozone calculées avec le cadastre régional et celles calculées avec EMEP pour la station de Lesquin. ....	174
Figure 4.16 : Différence entre les concentrations en ozone calculées avec le cadastre régional et celles calculées avec EMEP pour la station de Gravelines. ....	174
Figure 4.17 : Différence entre les concentrations en PM <sub>10</sub> calculées avec le cadastre régional et celles calculées avec EMEP pour la station de Salomé. ....	175
Figure 4.18 : Différence entre les concentrations en PM <sub>10</sub> calculées avec le cadastre régional et celles calculées avec EMEP pour la station de Gravelines. ....	175
Figure 4.19 : Température (A), vitesse du vent (B), humidité relative (C) et direction du vent (D) mesurées en fonction de la concentration en ozone mesurée à Lille-Lesquin. ....	178

Figure 4.20 : Température (A), Vitesse du vent (B), humidité relative (C) et la direction du vent (D) mesurées en fonction de la concentration en PM <sub>10</sub> mesurée à Lille-Lesquin.....	179
Figure 4.21 : Température (A), Vitesse du vent (B), humidité relative (C) et la direction du vent (D) mesurées en fonction de la concentration en ozone mesurée à Dunkerque.....	180
Figure 4.22 : Température (A), Vitesse du vent (B), humidité relative (C) et la direction du vent (D) mesurées en fonction de la concentration en PM <sub>10</sub> mesurée à Dunkerque.....	181
Figure 4.23 : Concentrations calculées en fonction des concentrations mesurées en ozone pour une station périurbaine de Lille (Lesquin).....	182
Figure 4.24 : Concentrations calculées en fonction des concentrations mesurées en PM <sub>10</sub> pour une station périurbaine de Lille (Lesquin).....	182
Figure 4.25 : Concentrations calculées en fonction des concentrations mesurées en ozone pour une station périurbaine de Dunkerque (Gravelines).....	183
Figure 4.26 : Concentrations calculées en fonction des concentrations mesurées en PM <sub>10</sub> pour une station périurbaine de Dunkerque (Gravelines).....	183
Figure 4.27 : Diagramme de Taylor pour l'ozone pour l'ensemble des maxima horaires de la période juin-juillet 2006.....	186
Figure 4.28 : Diagramme de Taylor pour les PM <sub>10</sub> pour l'ensemble des maxima horaires de la période juin-juillet 2006.....	186
Figure 4.29 : Rapport 1-(NO <sub>x</sub> /NO <sub>y</sub> ) en fonction des concentrations horaires maximales en ozone à Lesquin pour la période 1-15 juillet 2006 (NPDC2Fin) ( <i>n</i> = 336).....	188
Figure 4.30 : Concentration en ozone (ppb) calculée (première couche verticale) pour le 18/07/06 à 16h UTC	189
Figure 4.31 : Emission en isoprène (C <sub>5</sub> H <sub>8</sub> ) en ppb (première couche verticale) pour un jour ouvré à 12 h UTC durant le mois de juillet 2006.....	189
Figure 4.32 : Concentration en isoprène (C <sub>5</sub> H <sub>8</sub> ) calculée en ppb (première couche verticale) pour le 18/07/06 à 16h UTC.....	190
Figure 4.33 : Coupes verticales de la concentration (ppb) en ozone selon l'axe Lille-Valenciennes pour NPDC2Fin le 18/07/06 à 17h, 20h, 22h et le 19/07/06 à 00h UTC.....	191
Figure 4.34 : Coupes verticales de la concentration (µg/m <sup>3</sup> ) en PM <sub>10</sub> selon l'axe Lille-Valenciennes pour NPDC2Fin le 01/07/06 à 12h, 15h, 18h UTC et le 02/07/06 à 00h UTC.....	192
Figure 4.35 : Evolution temporelle de la concentration en ozone pour le mois de juillet 2006 à Eastbourne (50,80°N ; 0,28°E).....	193
Figure 4.36 : Evolution temporelle de la concentration en ozone pour le mois de juillet 2006 à Rye (50,90°N ; 0,70°E).....	193
Figure 4.37 : Concentration en ozone (µg/m <sup>3</sup> ) pour la première couche verticale du domaine NPDC4 le 19/07/06 à 16h UTC.....	194
Figure 4.38 : Cartes Prev-Air à J+1 des champs de concentrations calculées et des concentrations maximales journalières mesurées pour diverses stations Françaises (en noir) le 19/07/2006.....	195
Figure 4.39 : Profils verticaux des champs de concentration en ozone pour la journées du 19/07 à 10, 12, 16 et 18h UTC selon l'axe Le Havre-Amiens.....	196

Figure 4.40 : Profils verticaux de la vitesse du vent zonale (m/s) selon l'axe Le Havre-Amiens à 12h (gauche) et 17h UTC (droite). Valeurs positives = flux d'ouest. Valeurs négatives = flux d'est. ....	197
Figure 4.41 : Evolution de la concentration en ozone en fonction de quatre résolutions de grille pour le mois de juillet à la station de Lesquin (50,59°N ; 3,11°E).....	199
Figure 4.42 : Evolution de la concentration en PM <sub>10</sub> en fonction de quatre résolutions de grille pour le mois de juillet à la station de Marcq (50,58°N ; 3,08°E). ....	200
Figure 4.43 : Concentration en ozone (ppb) au niveau de la première couche verticale pour les domaines NPDC2 (A), NPDC2Fin (B), NPDC2Tfin (C) et NPDC3Lille (D), le 18/07/06 à 16h UTC. ....	201
Figure 4.44 : Evolution de la concentration en ozone en fonction de trois résolutions des données météorologiques pour la période du 1 <sup>er</sup> au 15 juillet 2006 à la station Outreau (50,69°N ; 1,59°E). DOM2 (9 km), DOM3 (3 km), DOM4 (1 km).....	202
Figure 4.45 : Evolution de la concentration en PM <sub>10</sub> en fonction de trois résolutions des données météorologiques pour la période du 1 <sup>er</sup> au 15 juillet 2006 à la station de Gravelines (50,98°N ; 2,14°E). 203	203
Figure 4.46 : Evolution de la température en fonction de trois résolutions des données météorologiques pour la période du 1 <sup>er</sup> au 15 juillet 2006 à la station de Dunkerque (51,03°N ; 2,33°E).....	203
Figure 4.47 : Evolution de la vitesse du vent en fonction de trois résolutions des données météorologiques pour la période du 1 au 15 juillet 2006 à la station de Dunkerque (51,03°N ; 2,33°E). ....	204
Figure 4.48 : Evolution de l'humidité relative en fonction de trois résolutions des données météorologiques pour la période du 1 <sup>er</sup> au 15 juillet 2006 à la station de Dunkerque (51,03°N ; 2,33°E). ....	205
Figure 4.49 : Evolution de la hauteur de la CLA en fonction de trois résolutions des données météorologiques pour la période du 1 <sup>er</sup> au 15 juillet 2006 à la station de Dunkerque (51,03°N ; 2,33°E). ....	206
Figure 4.50 : Trajectoire en mode direct (à gauche) du 23/07/06 à 00h UTC au 24/07/06 à 00h UTC et en mode indirect (à droite) commençant le 20/07/06 à 00h UTC et finissant le 17/07/06 à 00h UTC pour les villes de Dunkerque et Lille. A = Herstmonceux, B = Dunkerque et C = Lille. ....	207
Figure 4.51 : Evolution des concentrations en ozone mesurées et calculées pour NPDC2Fin avec et sans <i>nesting</i> durant le mois de juillet 2006 à la station de Lesquin. ....	210
Figure 4.52 : Evolution des concentrations en PM <sub>10</sub> mesurées et calculées pour NPDC2Fin avec et sans <i>nesting</i> durant le mois de juillet 2006 à la station de Lille-Salomé. ....	210
Figure 4.53 : Evolution temporelle des concentrations en ozone mesurées et issues du domaine NPDC2 nésté et sans émission durant le mois de juillet 2006 pour la station périurbaine de Lesquin.....	212
Figure 4.54 : Evolution temporelle des concentrations en PM <sub>10</sub> mesurées et issues du domaine NPDC2 nésté et sans émission durant le mois de juillet 2006 pour la station urbaine de Salomé. ....	212
Figure 4.55 : Différence de concentrations en ozone issues du domaine NPDC2 avec et sans utilisation des émissions durant le mois de juillet 2006 pour la station périurbaine de Lesquin.....	213
Figure 4.56 : Différence de concentrations en PM <sub>10</sub> issues du domaine NPDC2 avec et sans utilisation des émissions durant le mois de juillet 2006 moyennées la station périurbaine de Salomé. ....	213
Figure 4.57: Champs de concentration en ozone (µg/m <sup>3</sup> ) du domaine NPDC2 avec émissions (A), sans émissions anthropiques (B) et sans émissions anthropiques et biogènes (C) pour la journée du 26/07/06 à 12h UTC. ....	214
Figure 4.58: Champs de concentration en PM <sub>10</sub> (µg/m <sup>3</sup> ) du domaine NPDC2 avec émissions (A), sans émissions anthropiques (B) pour la journée du 26/07/06 à 12h UTC. ....	215

Figure 5.1 : Evolution temporelle des températures et des précipitations mesurées pour la période du 14 mars au 12 avril 2007 à la station de Dunkerque (51,03°N ; 2,33°E).....	222
Figure 5.2 : Evolution temporelle des vitesses et des directions de vent mesurées pour la période du 14 mars au 12 avril 2007 à la station de Dunkerque (51,03°N ; 2,33°E).....	222
Figure 5.3 : Evolution temporelle des températures mesurées et calculées pour la période du 16 mars au 10 avril 2007 à la station de Dunkerque (51,03°N ; 2,33°E).....	223
Figure 5.4 : Evolution temporelle de la vitesse du vent mesurée et calculée pour la période du 16 mars au 10 avril 2007 à la station de Dunkerque (51,03°N ; 2,33°E).....	223
Figure 5.5 : Evolution temporelle de l'humidité relative mesurée et calculée pour la période du 16 mars au 10 avril 2007 à la station de Dunkerque (51,03°N ; 2,33°E).....	223
Figure 5.6 : Evolution temporelle des concentrations moyennes horaires en PM <sub>10</sub> mesurées pour la période du 16 mars au 10 avril 2007 pour l'ensemble de stations côtières du NPDC. ....	225
Figure 5.7 : Proportion de PM <sub>2,5</sub> (en %) au sein des PM <sub>10</sub> mesurées pour la période du 16 mars au 10 avril 2007 à la station de Dunkerque centre (51,03°N ; 2,37°E).....	225
Figure 5.8 : Localisation géographique de stations de mesures en PM <sub>10</sub> anglaises sélectionnées. ....	226
Figure 5.9 : Evolution temporelle de la concentration en PM <sub>10</sub> pour la période du 15 mars au 6 avril 2007 pour plusieurs localités du sud de l'Angleterre. ....	226
Figure 5.10 : Evolution temporelle de la concentration en PM <sub>10</sub> pour la période du 15 mars au 6 avril 2007 pour plusieurs stations urbaines de la ville de Londres.....	226
Figure 5.11 : Evolution temporelle de la concentration en NO pour la période 15 mars au 11 avril 2007 pour plusieurs stations de la zone de Dunkerque.....	227
Figure 5.12 : Evolution temporelle de la concentration en NO <sub>2</sub> pour la période 15 mars au 11 avril 2007 pour plusieurs stations de la zone de Dunkerque.....	227
Figure 5.13 : Rétro-panache issu du système MM5-FLEXPART commençant le 25/03/07 à 00h UTC et se terminant le 23/03/07 à 10h UTC. ....	230
Figure 5.14 : Rétro trajectoire issue du modèle HYSPLIT commençant à Dunkerque le 26/03/07 à 00h UTC et se terminant le 23/03/07 à 00h UTC. ....	230
Figure 5.15 : Evolution temporelle des températures et des précipitations mesurées pour la période du 16 au 31 décembre 2007 à la station de Dunkerque (51,03°N ; 2,33°E).....	231
Figure 5.16 : Evolution temporelle des températures et des précipitations mesurées pour la période du 16 au 31 décembre 2007 à la station de Dunkerque (51,03°N ; 2,33°E).....	231
Figure 5.17 : Evolution temporelle des températures mesurées et calculées pour la période du 16 au 30 décembre 2007 à la station de Dunkerque (51,03°N ; 2,33°E).....	232
Figure 5.18 : Evolution temporelle de la vitesse du vent mesurée et calculée pour la période du 16 au 30 décembre 2007 à la station de Dunkerque (51,03°N ; 2,33°E).....	232
Figure 5.19 : Evolution temporelle de l'humidité relative mesurée et calculée pour la période du 16 au 30 décembre 2007 à la station de Dunkerque (51,03°N ; 2,33°E).....	232
Figure 5.20 : Evolution temporelle des concentrations en PM <sub>10</sub> pour différentes stations de la zone de Dunkerque du 16 au 30 décembre 2007.....	233

Figure 5.21 : Proportion de PM <sub>2,5</sub> (en %) au sein des PM <sub>10</sub> mesurées pour la période du 15 au 30 décembre 2007 à la station de Dunkerque centre (51,03°N ; 2,37°E).....	233
Figure 5.22 : Evolution temporelle des concentrations en NO et NO <sub>2</sub> pour différentes stations de la zone de Dunkerque du 16 au 30 décembre 2007.....	234
Figure 5.23 : Rétro-panache issu du système MM5-FLEXPART commençant le 20/12/07 à 00h UTC et se terminant le 17/12/07 à 00h UTC (les points jaunes sont à ignorer).....	235
Figure 5.24 : Rétro-trajectoire issue du modèle HYSPLIT commençant à Dunkerque le 15/12/07 à 00h UTC et se terminant le 20/12/07 à 00h UTC.....	236
Figure 5.25: Localisation géographique des principales sources d'émissions ponctuelles (losanges jaunes) et des stations du réseau Atmo-NPDC (points mauves) de la zone industrielle de Dunkerque. Le point bleu localise la station Météo-France.....	238
Figure 5.26 : Analyse synoptique pour le 06/04/06 (gauche) et le 07/04/06 (droite) à 00h UTC.....	239
Figure 5.27 : Evolution temporelle de la température et de la vitesse du vent (gauche), de l'humidité relative et de la pression atmosphérique (droite) mesurées à Dunkerque (51,03 °N; 2,33°E) du 3 au 7 avril 2006 par la station météorologique de la MREID.....	239
Figure 5.28 : Série temporelle de la température mesurée du 1 au 14 mai 2006 à Dunkerque (MREID).....	240
Figure 5.29 : Série temporelle de la vitesse et de la direction du vent mesurées ainsi que de la vitesse du vent calculée du 1 au 14 mai 2006 à Dunkerque.....	240
Figure 5.30 : Analyses synoptiques du 1, 2, 5, 9 et 13/05/06 à 00h UTC (source : Met office).....	241
Figure 5.31 : Evolution temporelle de la température mesurée et de la hauteur de la CLA calculée selon deux types de paramétrisations ( <i>BK</i> et <i>MRF</i> du modèle MM5) du 3 au 7 avril 2006 à Dunkerque.....	242
Figure 5.32 : Emmagramme issu de données mesurées pour la station de Hertmonceaux (50,53°N ; 0,20°E) le 06/04/2006 à 12h UTC.....	243
Figure 5.33 : Evolution temporelle de la température mesurée et de la hauteur de la CLA calculée selon deux types de paramétrisations ( <i>BK</i> et <i>MRF</i> du modèle MM5) du 3 au 7 avril 2006 à Lille.....	243
Figure 5.34 : Evolution temporelle de la hauteur de la CLA calculée selon deux types de paramétrisations ( <i>BK</i> et <i>MRF</i> du modèle MM5) du 03 au 07 avril 2006 en zone rurale.....	244
Figure 5.35 : Evolution temporelle du flux de chaleur sensible mesuré et calculé selon deux types de paramétrisations du 3 au 7 avril à Dunkerque.....	245
Figure 5.36 : Evolution temporelle du flux de chaleur sensible mesuré et calculé selon deux types de paramétrisations du 3 au 7 avril 2006 en zone rurale.....	245
Figure 5.37 : Evolution temporelle de la vitesse de frottement mesurée et calculée selon deux types de paramétrisations du 3 au 7 avril 2006 à Dunkerque.....	246
Figure 5.38 : Evolution temporelle de la vitesse de frottement calculée selon deux types de paramétrisations du 3 au 7 avril 2006 en zone rurale.....	246
Figure 5.39 : Evolution temporelle de la concentration en ozone mesurée et calculée selon deux types de paramétrisations du 3 au 7 avril 2006 pour la station DK7.....	247
Figure 5.40 : Profil vertical des concentrations en ozone (µg/m <sup>3</sup> ) modélisées pour la journée du 03/04/06 à 14h UTC.....	248



Figure 5.41 : Evolution temporelle de la concentration de SO <sub>2</sub> mesurée et calculée selon deux types de paramétrisations du 03 au 07 avril 2006 pour la station DKF. ....	249
Figure 5.42 : Evolution temporelle de la concentration de PM <sub>10</sub> mesurée et calculée selon deux types de paramétrisations du 3 au 7 avril 2006 pour la station DK2. ....	249
Figure 5.43 : Evolution temporelle de la concentration en O <sub>3</sub> mesurée et calculée par CHIMERE du 1 au 14 mai 2006 à la station DK7 (CC = 0.14) et <i>n</i> = 336. ....	251
Figure 5.44 : Evolution temporelle de la concentration en PM <sub>10</sub> mesurée et calculée par CHIMERE du 1 au 14 mai 2006 à la station DK2 (CC = 0.14) et <i>n</i> = 336. ....	251
Figure 5.45 : Evolution temporelle de la concentration de SO <sub>2</sub> et PM <sub>10</sub> du 01 au 14 mai 2006 à la station DK2. ....	251

# **LISTE DES TABLEAUX**



Tableau 1.1 : Classements des différentes échelles spacio-temporelles selon Stull (1988), Pielke (1984) et Orlandi (1975). .....	12
Tableau 1.2 : Flux global d'émissions de particules d'aérosol en Mt.an <sup>-1</sup> [Delmas et al., 2005]. .....	29
Tableau 1.3 : Objectifs d'émissions retenus pour la France dans le cadre de la directive NEC (Citepa, 2007)....	41
Tableau 1.4 : Description des modèles Eulériens meso-échelle les plus fréquemment utilisés en modélisation de la qualité de l'air.....	54

Tableau 2.1 : Liste des espèces répertoriées dans l'inventaire régional NPDC en 2001.....	65
Tableau 2.2 : Les trois communes les plus émettrices en NO <sub>x</sub> , COVNM et particules en suspension issues de l'inventaire régional.....	68
Tableau 2.3 : Emissions (t/an) en NO <sub>x</sub> par secteur SECTEN pour la France et la région NPDC selon différents inventaires d'émissions.....	73
Tableau 2.4: Emissions (t/an) en COVNM par secteur SECTEN pour la France et la région NPDC selon différents inventaires d'émissions. ....	73
Tableau 2.5 : Emissions (t/an) en CO par secteur SECTEN pour la France et la région NPDC selon différents inventaires d'émissions.....	73
Tableau 2.6 : Emissions (t/an) en CH <sub>4</sub> par secteur SECTEN pour la France et la région NPDC selon différents inventaires d'émissions.....	74
Tableau 2.7 : Emissions (t/an) en TSP par secteur SECTEN pour la France et la région NPDC selon différents inventaires d'émissions.....	74

Tableau 3.1 : Récapitulatif des fichiers d'entrée et de sortie des différents modules du modèle MM5. ....	116
Tableau 3.2: Récapitulatif des caractéristiques des différents domaines.....	123
Tableau 3.3: Les différents coefficients de relaxation associés à leurs variables.....	125
Tableau 3.4 : Niveau (hPa) et altitude (m) des huit couches verticales utilisées dans CHIMERE.....	130
Tableau 3.5 : Liste des espèces chimiques en entrée de MELCHIOR.....	133
Tableau 3.6: Liste des espèces biogènes en entrée du mécanisme MELCHIOR.....	137
Tableau 3.7: Liste des espèces particulières représentées dans MELCHIOR.....	140
Tableau 3.8 : Variables météorologiques obligatoires et <i>optionnelles</i> utilisées par CHIMERE.....	128
Tableau 3.9 : Caractéristiques des différents domaines utilisés pour la modélisation CHIMERE.....	146
Tableau 3.10: Caractéristiques techniques du système MM5-CHIMERE.....	148
Tableau 3.11 : Variables météorologiques utilisées par FLEXPART.....	150
Tableau 3.11 : Caractéristiques techniques du système MM5-FLEXPART utilisées dans le cadre de la thèse.	153

Tableau 4.1 : Versions et configurations des modèles utilisés pour l'étude de cas A et B. ....	157
Tableau 4.2 : Températures moyennes horaires (maxima sur la période) enregistrées à Lesquin (50,59°N/3,11°E) au cours des sept périodes identifiées en juin-juillet 2006. ....	158
Tableau 4.3 : Températures moyennes horaires (maxima sur la période) enregistrées à Dunkerque (51,03°N/3,37°E) au cours des sept périodes identifiées en juin-juillet 2006. ....	158
Tableau 4.4 : Vitesses moyennes horaires (maxima de la période entre parenthèses) du vent et directions moyennes associées pour Lesquin moyennées sur chaque période pour juin-juillet 2006. ....	159
Tableau 4.5 : Vitesses moyennes horaires (maxima de la période entre parenthèses) du vent et directions moyennes associées pour Dunkerque moyennées sur chaque période pour juin-juillet 2006.....	159
Tableau 4.6 : Indices statistiques calculés pour la température, la vitesse du vent, l'humidité relative et les précipitations avec le domaine NPDC2Fin à la station de Lille-Lesquin pour le mois de juillet 2006 .....	164
Tableau 4.7 : Indices statistiques calculés pour la température, la vitesse du vent, l'humidité relative et les précipitations à la station de Dunkerque pour le mois de juillet 2006 ( $n = 720$ ). ....	164
Tableau 4.8 : Indices statistiques calculés pour O <sub>3</sub> pour différentes stations de la métropole Lilloise et de la zone industrielle de Dunkerque (en gras) pour le mois de juillet 2006 (cadastre EMEP) ( $n = 720$ ). ....	184
Tableau 4.9 : Indices statistiques calculés pour les PM <sub>10</sub> pour différentes stations de la métropole Lilloise et de la zone industrielle de Dunkerque (en gras) pour le mois de juillet 2006 (EMEP) ( $n = 720$ ). ....	184
Tableau 4.10 : Indices statistiques calculés pour l'ozone avec les valeurs maximales horaires pour deux stations de la côte située au sud de l'Angleterre (juillet 2006) ( $n = 720$ ).....	193
Tableau 4.11 : Indices statistiques calculés pour l'ozone avec les valeurs maximales horaires pour le mois de juillet à la station de Lesquin (50,59°N ; 3,11°E) ( $n = 720$ ). ....	199
Tableau 4.12 : Indices statistiques calculés pour les PM <sub>10</sub> avec les valeurs maximales horaires pour le mois de juillet à la station de Marcq (50,58°N ; 3,08°E) ( $n = 720$ ). ....	200
Tableau 4.13 : Indices statistiques calculés pour les concentrations en ozone avec les valeurs maximales horaires pour la période du 1 au 15 juillet 2006 à la station Outreau (50,69°N ; 1,59°E) ( $n = 360$ ). ....	202
Tableau 4.14 : Indices statistiques calculés pour les concentrations en PM <sub>10</sub> avec les valeurs maximales horaires pour la période du 1 <sup>er</sup> au 15 juillet 2006 à la station de Gravelines (50,98°N ; 2,14°E) ( $n = 360$ ).....	203
Tableau 4.15 : Indices statistiques calculés avec les valeurs maximales horaires de la température pour la période du 1 <sup>er</sup> au 15 juillet 2006 à la station de Dunkerque (51,03°N ; 2,33°E) ( $n = 360$ ). ....	204
Tableau 4.16 : Indices statistiques calculés avec les valeurs maximales horaires de la vitesse du vent pour la période du 1 au 15 juillet 2006 à la station de Dunkerque (51,03°N ; 2,33°E) ( $n = 360$ ).....	204
Tableau 4.17 : Indices statistiques calculé avec les valeurs maximales horaires l'humidité relative pour la période du 1 <sup>er</sup> au 15 juillet 2006 à la station de Dunkerque (51,03°N ; 2,33°E) ( $n = 360$ ). ....	205
Tableau 4.18 Caractéristiques des deux domaines CHIMERE utilisés. ....	208
Tableau 4.19 : Indices statistiques calculés pour O <sub>3</sub> pour différentes stations de la région NPDC durant le mois de juillet 2006 ( $n = 720$ ) : domaine NPDC1 - <i>nesting</i> – EMEP. ....	209
Tableau 4.20 : Indices statistiques calculés pour PM <sub>10</sub> pour différentes stations de la région NPDC durant le mois de juillet 2006 ( $n = 720$ ) : domaine NPDC1 - <i>nesting</i> – EMEP. ....	209
Tableau 4.21 : Indices statistiques calculés pour PM <sub>2,5</sub> pour différentes stations de la région NPDC durant le mois de juillet 2006 ( $n = 720$ ) : domaine NPDC1 - <i>nesting</i> - EMEP. ....	209

Tableau 5.1 : Indices statistiques calculés avec les valeurs maximales horaires de la température et de la vitesse du vent pour la période du 16 mars au 11 avril 2007 à la station de Dunkerque (51,03°N ; 2,33°E).....	224
Tableau 5.2 : Caractéristiques techniques des domaines FLEXPART utilisées afin de déterminer l'origine de deux épisodes de pollution particulaire durant l'année 2007.....	228
Tableau 5.3 : Indices statistiques calculés avec les valeurs maximales horaires de la température et de la vitesse du vent pour la période du 16 au 30 décembre 2007 à la station de Dunkerque (51,03°N ; 2,33°E).....	232
Tableau 5.4 : Spécificités techniques des modèles utilisés pour les campagnes 1 et 2 .....	238
Tableau 5.5 : Coefficients de corrélation entre les concentrations pour O <sub>3</sub> , SO <sub>2</sub> et PM <sub>10</sub> mesurées et calculées durant la période du 3 au 7 avril 2006 pour différentes stations de la zone industrielle de Dunkerque en fonction de deux types de paramétrisations de la CLA.....	250





# **LISTE DES ACCRONYMES**



AASQA	Associations Agréées pour la Surveillance de la Qualité de l’Air
APPA	Association de Prévention de la Pollution Atmosphérique
ADEME	Agence de l’environnement et de la Maîtrise de l’Energie
BC	Black Carbon
CETA NP	Centre d’Etudes Techniques de l’Equipe ment Nord Picardie
CEPMMT	Centre Européen de Prévision Météorologique à Moyen Terme
CITEPA	Centre Interprofessionnel Technique d’Etude de la Pollution Atmosphérique
CLA	Couche Limite Atmosphérique
COVNM	Composés Organiques Volatiles Nom Méthanique
CR	Couche Résiduelle
CTM	Chemistry Transport Model
GFS	Global Forecast System
GIEC	Groupe d’expert Intergouvernemental sur l’Evolution du Climat
GIS	Groupement d’Intérêt Scientifique
GLCF	Global Land Cover Facility
EMEP	European Monitoring and Evaluation Programme
ESCOMPTE	Expérience sur le Site pour COntreindre les Modèles de Pollution atmosphérique et de Transport d’Emissions
FDDA	Four-Dimensional Data Assimilation
IQAs	Indice de la Qualité de l’Air simplifié
INVS	Institut National de Veille Sanitaire
IPCC	Integrated Pollution Prevention and Control
IRENI	Institut de Recherche en ENvironnement Industriel
LAURE	loi sur l’Air et l’Utilisation Rationnelle de l’Energie
LIFL	Laboratoire d’Informatique de Lille
LCSQA	Laboratoire Central de Surveillance de la Qualité de l’Air
LPCA	Laboratoire de Physico-Chimie de l’Atmosphère
LPG	Licence Publique générale

MEEDAT	Ministère de l'Écologie, de l'Énergie, du Développement Durable et de l'Aménagement du Territoire
MM5	Mesoscale Model 5 <sup>th</sup> Generation
NEC	National Emission Ceilings
NO <sub>x</sub>	NO + NO <sub>2</sub>
OC	Organic Carbon
OMM	Organisation Mondiale Météorologique
PC2A	Physico-Chimie des Processus de Combustion et de l'Atmosphère
PDU	Plan de déplacement Urbain
PM	Particulate Mater
PM <sub>10</sub>	Particule dont le diamètre aérodynamique est inférieur à 10 µm
PM <sub>2,5</sub>	Particule dont le diamètre aérodynamique est inférieur à 2,5 µm
POQAIR	POrtail de la Qualité de l' Air
PPA	Plan de Protection de l' Atmosphère
PRQA	Plan Régional pour la Qualité de l' Air
PSAS	Programme de Surveillance Air et Santé
SEI	Stockholm Environment Institute
SNAP	Selected Nomenclature for Air Pollution
SODAR	SOund Detection And Ranging
TEOM	Tapered Element Oscillating Microbalance
TVES	Laboratoire Territoires, Villes, Environnement et Société
ULCO	Université du Littoral Côte d'Opale
USGS	US Geological Survey
UV	Ultra Violet
WHO	World Health Organisation
WRF	Weather Research and Forecasting

**INTRODUCTION GENERALE**



La pollution chimique atmosphérique est un sujet de préoccupation majeur au XXI<sup>ème</sup> siècle. Elle correspond à la modification de la concentration moyenne naturelle d'une espèce chimique gazeuse ou particulaire dans l'atmosphère pouvant engendrer un dérèglement des écosystèmes, du climat et/ou un danger pour la santé. En 2002, l'agence Européenne de l'Environnement évalue à 40 millions le nombre de personnes, vivant dans 115 grandes villes, exposées à des concentrations de polluants dépassant les seuils de recommandation de l'Organisation Mondiale de la Santé (OMS).

La pollution atmosphérique peut être d'origine biogène ou anthropique.

Les principales sources naturelles sont : l'érosion éolienne à la surface de la Terre et des océans, les feux, les émissions de gaz biogéniques des écosystèmes et les éruptions volcaniques (El Chichon en 1982 et Pinatubo en 1992).

Les émissions anthropiques sont d'origines plus diverses. Elles sont essentiellement engendrées par les combustions des ressources naturelles fossiles (charbon, gaz, pétrole) ou de la biomasse et à l'évaporation de solvant et autres produits volatils.

L'historique de la pollution troposphérique peut se résumer en deux grandes étapes. Une première phase préindustrielle et une seconde période débutant à la fin du XIX<sup>ème</sup> siècle associée à l'émergence de l'utilisation massive de combustibles fossiles tels que le charbon dans un premier temps puis du pétrole par la suite.

Durant la période préindustrielle, la pollution atmosphérique était principalement d'origine naturelle. Par exemple, le récit de Pline le Jeune évoquant la mort de Pline l'Ancien en 79, asphyxié par les vapeurs du Vésuve dans la catastrophe qui détruisit Pompéi est un témoignage d'une pollution d'origine naturelle.

La seconde période a vu une dégradation de la qualité de l'air due aux activités anthropiques. Deux types de pollutions majeures dangereuses pour la santé de l'homme sont alors rencontrés durant cette période.

Tout d'abord une pollution acido-particulaire aussi appelée smog sulfureux. Elle est à l'origine d'évènements observés : en vallée de la Meuse en Belgique durant le mois de décembre 1930 et à Londres durant les hivers 1952, 1956, 1957, 1962. Le cas du *smog* de Londres en décembre 1952 fut particulièrement dramatique puisque 12 000 décès prématurés ont été attribués à cet évènement.

Cependant, de nos jours, la pollution particulaire aussi appelée *Particle Matter* en anglais (PM) reste élevée dans les pays industrialisés et attire l'attention de nombreux groupes de recherches du fait de la complexité de ses mécanismes de formation. Le *Brown-cloud* et le *Black-cloud* sont des exemples actuels de pollutions particulières rencontrées respectivement en Chine et dans la région du Caire en Egypte. Ils résultent d'un mélange de particules minérales désertiques et de particules



carbonées appelées aussi carbone suie ou *Black Carbon* (BC) lié aux processus de combustion (transport, industrie, chauffage, feux de biomasse). En effet, la position géographique de ces pays favorise ce type de mélange.

Par suite, au cours des années 70, une pollution photochimique ou *smog* de Los Angeles, du nom de la ville où il a été initialement observé, s'est développée avec l'expansion des zones urbaines et l'apparition de mégalo-poles. Elle est causée principalement par l'émission de deux familles d'espèces chimiques primaires les NO<sub>x</sub> (NO+NO<sub>2</sub>) et les Composés Organiques Volatiles (COV) qui associées au rayonnement solaire, produisent des espèces chimiques secondaires telles que l'ozone (O<sub>3</sub>) ou le PeroxyAcétyl-Nitrate (PAN).

Les deux types de pollution décrits ci-dessus dépendent de trois facteurs principaux : la quantité d'espèces chimiques primaires émises, leurs temps de résidence et les conditions météorologiques (ensoleillement, température, diffusion et transport). La multiplicité et la complexité des mécanismes physico-chimiques rendent difficile la résolution des équations gouvernant le développement d'épisode de pollution de manière analytique. L'utilisation de la modélisation numérique tridimensionnelle apparaît alors comme un outil de recherche incontournable pour l'étude de la formation et du transport des épisodes de pollutions photochimiques et particulaires. Un modèle est un programme informatique résolvant à l'aide d'un schéma numérique explicite ou implicite les équations différentielles dynamiques et chimiques paramétrant la physico-chimie complexe de l'atmosphère. Sa complémentarité avec des techniques métrologiques de terrain et de télédétection en fait un produit puissant pour l'étude et la compréhension d'évènements de pollution. Il est devenu un outil précieux pour les décideurs en terme de politique environnementale.

Les travaux de thèse présentés dans ce document ont été réalisés au sein de l'équipe « Physicochimie de l'atmosphère : métrologie et modélisation » du laboratoire de Physicochimie des Processus de Combustion et de l'Atmosphère (PC2A-UMR 8522 CNRS-USTL) de l'Université Lille 1 Sciences et Technologies. Cette équipe s'intéresse à la mise au point de techniques de mesures des polluants dans l'atmosphère et à la modélisation du transport et de la réactivité des polluants atmosphériques gazeux et particulaires (O<sub>3</sub>, PM<sub>10</sub>, PM<sub>2,5</sub>).

Ce travail de thèse s'inscrit dans le projet 2B (Axe 1, Action 1) du Groupement d'Intérêt Scientifique - Institut de Recherche en ENvironnement Industriel (GIS - IRENI<sup>1</sup>). L'objectif du projet 2B est de développer une stratégie scientifique de diagnostics environnementaux et de remédiation de la qualité de l'air sur la région NPDC à l'aide de modèles atmosphériques. Les polluants étudiés sont les PM<sub>10</sub> et l'ozone affectant la région NPDC et plus particulièrement la zone industrielle côtière de

---

<sup>1</sup> <http://www.ireni.fr>

Dunkerque. Le travail est également directement lié au projet de mise en place d'une plate-forme de modélisation régionale soutenue par la région NPDC et en collaboration avec l'APPA Nord-Pas-de-Calais, Atmo Nord-Pas-de-Calais, le CETE Nord-Picardie, l'Ecole des Mines de Douai et l'Université du Littoral Côte d'Opale. Ce travail a été financé par une allocation de recherche du Ministère de l'Enseignement Supérieur et de la Recherche.

### *Objectif de la thèse*

L'objectif de la thèse est dans un premier temps de caractériser la région NPDC, au regard des données nationales, en termes d'émissions et de concentrations de polluants. Dans un second temps, elle vise à évaluer la capacité de la plate-forme modélisation POQAIR du PC2A à reproduire la pollution photochimique et particulaire ainsi que les conditions météorologiques à l'échelle de la région Nord - Pas de Calais et au niveau local sur la zone industrielle de Dunkerque. Les travaux de recherche visent également à caractériser les relations entre les conditions météorologiques et les niveaux de concentration des polluants ( $O_3$  et  $PM_{10}$ ) rencontrés en région NPDC ainsi qu'à déterminer les sources de pollutions au niveau de la région NPDC pour des événements de typologies différentes.

### *Plan de la thèse*

Le manuscrit s'articule autour de cinq chapitres.

Dans le premier chapitre, nous rappelons, tout d'abord, les notions fondamentales à la compréhension de la dynamique de la couche limite atmosphérique rencontrée en région NPDC. La seconde partie de ce chapitre est consacrée à la description des mécanismes de formation de la pollution photochimique et particulaire. Enfin, un bilan des principales caractéristiques des différents types de modèles actuellement utilisés pour l'étude de la pollution atmosphérique est réalisé.

Le deuxième chapitre s'attache à caractériser la région NPDC en terme d'émissions polluantes en comparant les différents cadastres disponibles pour cette zone. La seconde partie du chapitre permet de positionner la région NPDC en terme de concentrations de polluants ( $NO_2$ ,  $O_3$  et  $PM_{10}$ ) par rapport à la moyenne nationale Française.

Le troisième chapitre détaille la mise en œuvre de la plateforme POQAIR. Les paramétrisations, l'adaptation et les modifications apportées aux systèmes de modélisation MM5-CHIMERE et MM5-FLEXPART sont notamment décrites.

Dans le quatrième chapitre, la relation entre deux polluants ( $O_3$  et  $PM_{10}$ ) et les conditions météorologiques est analysée dans un premier temps. Puis, la performance du système MM5-CHIMERE est évaluée sur l'ensemble de la région NPDC durant la période juin-juillet 2006 et une étude de l'origine de la pollution observée en région NPDC est effectuée pour le mois de juillet 2006.

Dans le cinquième chapitre, le système MM5-FLEXPART est utilisé afin de déterminer l'origine de deux événements de pollution particulaire intenses observés à Dunkerque durant l'année 2007. La seconde partie s'attache à évaluer à l'échelle locale, les performances dynamiques et chimiques des modèles au niveau de la zone industrielle de Dunkerque pour deux périodes d'avril et mai 2006.

En conclusion, nous rappelons les différents résultats obtenus lors des travaux de recherche et nous proposons quelques recommandations pour les futurs utilisateurs de l'outil modélisation appliqué à l'étude de la pollution de l'air en région NPDC. Nous terminons par les perspectives engendrées par les travaux de recherches liés à cette thèse.

# **CHAPITRE 1**

## **GENERALITES SUR LA PHYSICOCHIMIE DE LA TROPOSPHERE**



INTRODUCTION

Les émissions anthropiques (secteurs transport, tertiaire et industriel) et biogènes (végétation) émises dans la couche limite atmosphérique combinées au flux solaire produisent un « cocktail » permettant l’initiation de la chimie troposphérique se traduisant par l’oxydation des composés organiques présents dans la troposphère (Figure 1.1). Le cycle photochimique de l’ozone est gouverné par le rayonnement et la valeur du rapport COV/NO<sub>x</sub>. Deux types de chimie peuvent être distingués dans la troposphère. Une chimie en phase gazeuse dit homogène (en bleu) et une chimie hétérogène (en jaune) dans laquelle gaz et particules interagissent. L’activité chimique de la troposphère ainsi que le transport et le dépôt des masses d’air pollué est directement liées aux conditions météorologiques (température, pression, humidité, couverture nuageuse). Ainsi, les conditions météorologiques, la chimie homogène et hétérogène sont en forte interaction ce qui engendre un comportement non linéaire du système global, le rendant d’autant plus délicat à étudier et à prévoir.

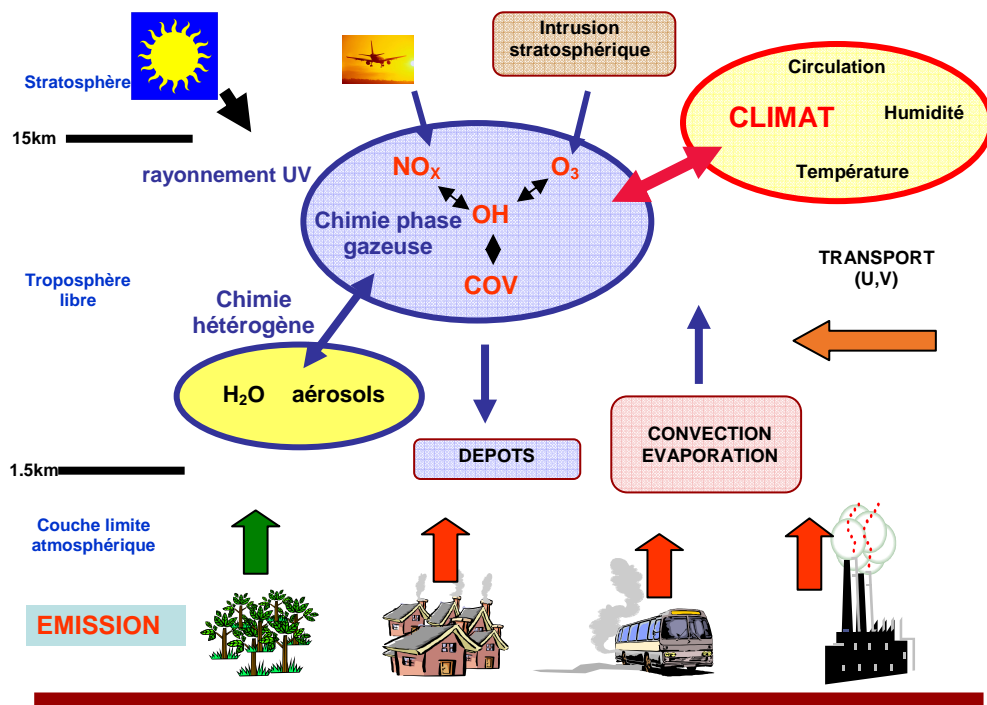


Figure 1.1 : Schématisation du système global de la physico-chimie de l’atmosphère.

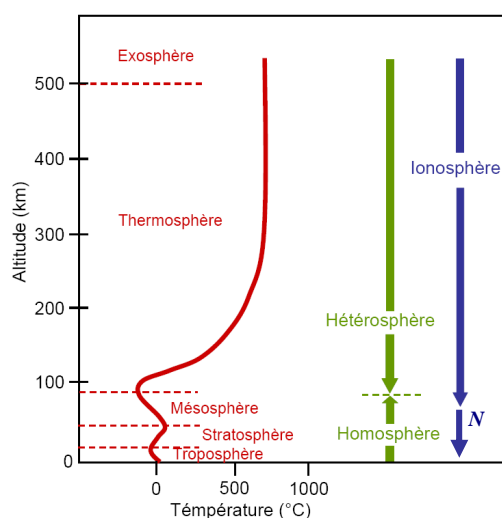
Le premier chapitre de ce mémoire s’attache à donner des notions clés permettant de comprendre la formation et le transport liés de la pollution photochimique et particulaire. Tout d’abord, quelques généralités concernant la dynamique de la troposphère sont présentées. Ensuite, deux sous chapitres décrivent les mécanismes de formation de la pollution photochimique et

particulaires sont expliqués. La quatrième partie s'attache à décrire les différents impacts de la pollution atmosphérique. Un résumé de la législation Européenne puis Française en matière de la qualité de l'air est exposé dans la cinquième partie et pour terminer une brève introduction générale des outils utilisés pour la modélisation de la qualité de l'air est réalisée dans la dernière partie du chapitre.

## 1.1. Dynamique de la troposphère

### 1.1.1. Structure verticale de la troposphère

L'atmosphère terrestre est l'enveloppe gazeuse entourant la Terre. Différentes couches peuvent être distinguées selon trois propriétés (Figure 1.2):



**Figure 1.2 : Profils des différentes couches de l'atmosphère terrestre (N=neutrosphère), d'après Aumont (2005).**

- Les propriétés dynamiques (en vert) : L'homosphère (0-80 km) désigne la couche où la diffusion turbulente domine et permet une répartition homogène des espèces chimiques. L'hétérosphère (80-500 km) est une couche très stable dynamiquement. La diffusion moléculaire et la gravité régissent la répartition volumique horizontale des constituants atmosphériques dans cette couche. Les composés sont discriminés verticalement en fonction de leur densité. Les gaz les plus légers, tels que l'hélium, l'hydrogène et l'azote prédominent dans l'hétérosphère.

- Les propriétés électromagnétiques (en bleu) : L'ionosphère est une couche de gaz ionisé contenant une quantité importante d'électrons libres. Elle s'étend de 80 km à 500 km environ. La densité électronique passe par plusieurs maxima situés vers 100 km, 180 km et 350 km d'altitude. Par opposition, La neutrosphère (N) s'étendant de la surface jusqu'à la limite inférieure de l'ionosphère.

• Les propriétés thermiques (en rouge) : Le profil vertical de température permet de diviser l'atmosphère en 5 couches : la troposphère, la stratosphère, la mésosphère, la thermosphère et l'exosphère.

La troposphère est une couche de fluide hétérogène, dynamiquement très active où se déroule l'essentiel des phénomènes météorologiques. Son épaisseur varie entre environ 7 à 8 km aux pôles terrestres et 16 à 18 km à l'équateur. Elle se caractérise par son gradient de température négatif ( $\partial T/\partial Z = -6,5^\circ/\text{km}$  en moyenne)<sup>1</sup> et par de forts mouvements horizontaux et verticaux correspondant respectivement à l'advection et à la convection thermique des parcelles d'air. L'Organisation Mondiale de la Météorologie (OMM) définit son sommet, la tropopause, comme étant la région de l'atmosphère où la température décroît de moins de  $2^\circ\text{C}/\text{km}$  sur une épaisseur d'au moins 2 km.

Ensuite la stratosphère s'étant de la tropopause à la stratopause (45 à 55 km). Le gradient thermique  $\partial T/\partial Z$  est nul au niveau de la tropopause puis devient positif avec l'altitude jusqu'à ce que la température atteigne  $0^\circ\text{C}$ . La stratosphère contient 90 % de l'ozone atmosphérique. On peut signaler que son gradient thermique positif est lié à l'absorption par l'ozone moléculaire du rayonnement de longueur d'onde inférieure à 270 nm. Cette couche d'ozone nous protège du rayonnement UV dangereux pour la santé et la végétation.

Puis la mésosphère, s'étant de la stratopause à la mésopause. La température y décroît avec l'altitude pour atteindre en moyenne  $-80^\circ\text{C}$  à 80 km environ.

Dans la thermosphère, la température croît à nouveau avec l'altitude jusqu'à son sommet la thermopause dont l'altitude varie entre 350 et 900 km. Il faut noter qu'entre 100 et 150 km d'altitude, l'oxygène moléculaire absorbe le rayonnement ultraviolet de longueur d'onde située entre 100 et 200 nm. On observe ainsi une augmentation de la température avec l'altitude qui oscille entre  $300^\circ\text{C}$  et  $1600^\circ\text{C}$  au sein de la couche. La variation de l'altitude de la thermopause et de la température entre 100 et 150 km est fonction de l'activité solaire.

L'exosphère est la dernière couche de l'atmosphère terrestre. L'altitude de la base de l'exosphère ou exobase varie entre 350 et 800 km d'altitude en fonction de la température de la thermopause. L'hélium et l'hydrogène y sont les éléments prépondérants. Elle s'étend jusqu'à la limite extrême de l'atmosphère, soit 50 000 km (de 30 000 km aux pôles à 60 000 km à l'équateur). C'est dans cette couche, que la plupart des satellites artificiels sont placés en orbite (par exemple météorologiques ou de télécommunications).

---

<sup>1</sup> Gradient adiabatique sec =  $-9,76^\circ\text{C}/\text{km}$



Le travail décrit dans ce manuscrit s'intéresse à la physico-chimie des environnements pollués dans les basses couches de la troposphère. Les phénomènes dynamiques se déroulant dans cette couche peuvent être divisés en plusieurs types d'échelles qu'il est important de définir afin de situer la dimension spatio-temporelle de nos études.

### 1.1.2. Les différentes échelles spatio-temporelles de la dynamique troposphérique

Cette subdivision est à la fois temporelle et spatiale. Elle est variable selon les auteurs mais trois échelles dynamiques sont cependant récurrentes (Tableau 1.1).

L'échelle synoptique ou macro-échelle (1000 km en moyenne) correspond à la dimension horizontale moyenne des systèmes dépressionnaires se développant aux moyennes latitudes. La méso-échelle (10-100 km) correspond à celles des cyclones, des fronts ou des orages. Enfin la micro-échelle (1-1000 m) regroupe des événements tel que la circulation dynamique urbaine, la formation des nuages ou encore le transport des panaches industriels.

**Tableau 1.1 : Classements des différentes échelles spacio-temporelles selon Stull (1988), Pielke (1984) et Orlanski (1975).**

$L_H$	Echelle de temps	[Stull, 1988]	[Pielke, 1984]	[Orlanski, 1975]	Phénomènes atmosphériques
		macro	synoptique	macro- $\alpha$	Circulation générale
2000 km	1 mois	macro	synoptique	macro- $\beta$	Cyclones
200 km	1 sem.	meso	meso	meso- $\alpha$	Fronts
20 km	1 jour	meso	micro	meso- $\beta$	Brises thermiques
2 km	1 h	meso/micro	micro	meso- $\gamma$	Circulation urbaine
200m	30 min	micro	micro	micro- $\alpha$	Cumulus
20 m	1 min	micro	micro	micro- $\beta$	Panaches

$L_H$  = échelle horizontale moyenne

Pour les modèles météorologiques de macro et méso-échelle deux approximations sont largement utilisées.

La première approximation s'applique pour des échelles horizontales  $L_H$  égales à quelques centaines de kilomètres lorsque les termes de gradients de pressions et de Coriolis dominent. Il s'agit

des équations du vent dit géostrophique (Eq. 1.1 et 1.2). L'approximation géostrophique exprime le fait que les composantes  $U_g$  et  $V_g$  du vent géostrophique résultent de l'équilibre entre la force de Coriolis et la force du gradient de pression atmosphérique agissant sur une parcelle d'air. L'approximation géostrophique ne s'applique pas pour des latitudes proches de l'équateur (0-10°) car la force de Coriolis ( $f$ ) y est négligeable.  $f$  est nulle à l'équateur [Holton, 2004].

$$U_g = -\frac{g}{f} \frac{\partial p}{\partial y} \quad \text{Eq. (1.1)}$$

$$V_g = -\frac{g}{f} \frac{\partial p}{\partial x} \quad \text{Eq. (1.2)}$$

où  $g$  est l'accélération gravitationnelle (9,81 m.s<sup>-2</sup>),  $f$  le paramètre de Coriolis (varie en fonction la latitude) et  $p$  la pression atmosphérique (hPa).

La deuxième concerne l'approximation hydrostatique. Elle s'applique lorsque  $10 < L_H < 100$  km. L'approximation hydrostatique permet de disposer d'une relation relativement simple entre la pression et  $\rho.g$  afin de d'estimer l'évolution de la pression en fonction de l'altitude. Elle stipule le fait que la composante verticale de la force de pression est en équilibre exact avec la force gravitationnelle. On peut ainsi écrire l'équation dite de continuité (Eq.1.3) :

$$\frac{\partial p}{\partial x} = -\rho g \quad \text{Eq. (1.3)}$$

où  $g$  est l'accélération gravitationnelle (9,81 m.s<sup>-2</sup>),  $p$  la pression atmosphérique (hPa) et  $\rho$  est la masse volumique de l'air (kg/m<sup>3</sup>).

Les résultats présentés dans ce mémoire sont issus des travaux de modélisation réalisés à l'échelle régionale. Les processus physico-chimiques gouvernant la formation et le transport des polluants étudiés ont lieu principalement dans les basses couches de la troposphère et plus spécifiquement au niveau de la Couche Limite Atmosphérique (CLA). Cette couche est le siège d'une grande activité à la fois dynamique et chimique. Sa structure est décrite dans le paragraphe suivant.

### 1.1.3. La Couche Limite Atmosphérique

Cette couche correspond à l'interface entre le sol et le reste de la troposphère. Elle correspond à la partie inférieure de l'atmosphère étant sous l'influence directe des processus terrestres. Le reste de la troposphère est appelé la troposphère libre.

La Figure 1.3 nous renseigne sur le temps moyen de l'homogénéisation verticale d'une parcelle d'air au sein de la CLA et de la troposphère. Les brassages assurés par les processus mécaniques dynamiques et thermiques au sein de la CLA sont rapides comparés à ceux opérés au sein de la troposphère supérieure. Ainsi, une parcelle d'air est en moyenne mélangée efficacement sur la verticale en une heure au sein de la CLA et en un mois dans la troposphère libre.

Les temps caractéristiques de mélanges entre les différentes couches de l'homosphère sont beaucoup plus lents. Ils sont d'environ deux années de la troposphère vers la stratosphère et d'un demi-siècle de la stratosphère vers la troposphère. Horizontalement, il est d'environ une année entre les deux hémisphères.

Ainsi, les processus de transport thermiques et dynamiques assurant le brassage des espèces chimiques au sein de la CLA régissent le temps de vie et le dépôt des polluants.

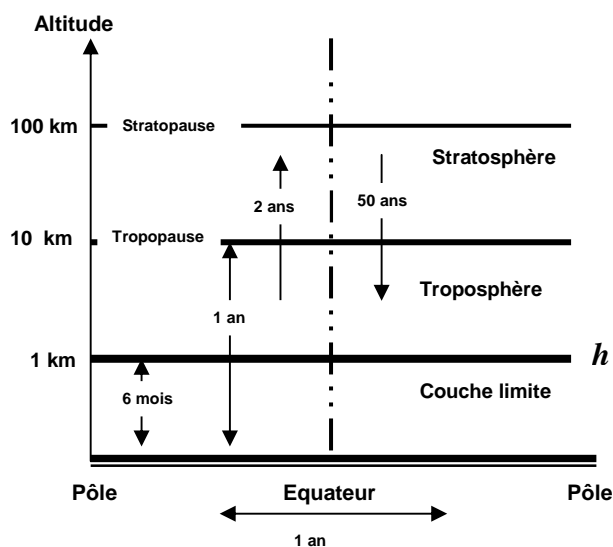


Figure 1.3 : Temps moyens de mélange entre les différentes couches de l'homosphère et les deux hémisphères terrestres.

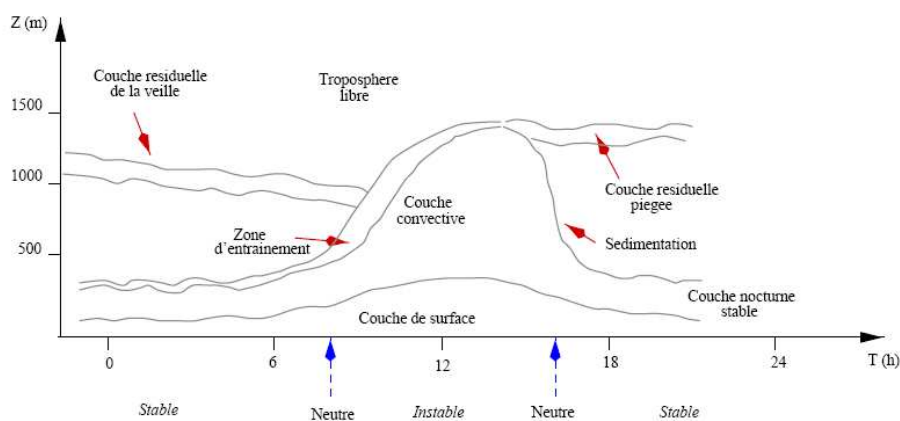
La hauteur de la CLA ( $h$ ) est un facteur déterminant dans l'étude de la pollution troposphérique. En micrométéorologie,  $h$  est défini comme un bilan statistique des échanges de quantité de mouvement et de chaleur ayant lieu entre le sol et l'atmosphère. Ces processus sont des flux turbulents. Les turbulences correspondent à la vorticité d'une parcelle d'air.  $h$  évolue avec une périodicité diurne. Son amplitude dépend des caractéristiques dynamiques et thermiques du lieu où elle est observée.

La turbulence dynamique est produite par des tourbillons générés par le cisaillement vertical ou horizontal du vent et par d'éventuels obstacles présents à la surface (rugosité).

La turbulence thermique résulte de la convection thermique naturelle correspondant à l'élévation d'une parcelle d'air sous l'effet du rayonnement provoqué par le réchauffement du sol. Son amplitude dépend du contraste thermique entre la température du sol et celle de l'air l'environnement. La température du sol est gouvernée par sa nature. Par exemple un sol bitumeux se réchauffera beaucoup plus rapidement qu'un couvert herbeux. La CLA est composée de sous-couches qui évoluent au cours de la journée (Figure 1.4) :

- La **couche de surface** est présente tout au long du cycle diurne. Son épaisseur correspond à environ 10 % de  $h$ .
- La **couche convective** se développe en fonction de la stabilité verticale sous l'action du rayonnement. Elle est le siège d'intenses activités turbulentes dynamiques et thermiques,
- La **zone d'entraînement** est relativement fine (10-100 m) correspond à l'interface entre la CLA et la troposphère libre.
- La **couche résiduelle** s'observe en fin de journée. Elle peut être stable ou rester turbulente (milieu urbain).
- La **couche nocturne stable** peut être neutre voir instable en milieu urbain du fait du rayonnement anthropique nocturne.

Afin de décrire le devenir des polluants dans l'atmosphère, les modèles de Chimie-Transport s'attachent à décrire avec précision les processus dynamiques mis en jeu dans la CLA.



**Figure 1.4 : Evolution temporelle de la couche limite atmosphérique (heure utc en abscisse), [Stull, 1988].**

L'évolution structurelle de la CLA se reproduit de manière similaire d'une journée à une autre. Toutefois, différentes perturbations d'ordre dynamique ou thermique peuvent avoir une influence sur le développement de la CLA [Menut *et al.*, 1999] :

- une advection d'air froid au dessus de la CLA convective renforce l'instabilité de la masse d'air et peut accélérer le développement de la CLA alors qu'une advection d'air chaud la ralentira,
- lors d'un fort ensoleillement, la convection provoquée par le réchauffement du sol renforcera les processus de mélanges au sein de la CLA,
- de forts gradients de pression en surface (système dépressionnaire) induisent de forts vents qui peuvent limiter voir inhiber le développement de la CLA,
- des vents faibles au niveau de la zone d'entraînement réduiront les transferts de mouvements verticaux entre la CLA et la troposphère libre.

En résumé, des données météorologiques de qualité sont essentielles à la performance des travaux de modélisation. Les conditions météorologiques déterminent l'intensité de la réactivité et du transport dans la troposphère et par conséquent le développement des pics de pollution. Les variables liées à turbulence de la CLA ne sont pas directement mesurables. Des paramétrisations sont donc nécessaires afin de décrire les phénomènes dynamiques ayant lieu dans la CLA. La qualité des paramétrisations simulant ces mécanismes au sein de la CLA est une condition préalable pour reproduire correctement les épisodes de pollution. Ceux-ci seront étudiés dans ce travail.

La deuxième partie de ce chapitre explique les principaux mécanismes de formation de l'ozone troposphérique en établissant les liens entre l'ozone et ses précurseurs.

## 1.2. Pollution photochimique à l'ozone

Depuis les trente dernières années, la nature de la pollution atmosphérique observée en région NPDC a sensiblement évolué. La période d'après-guerre se caractérisait par un *smog* sulfureux issu de la combustion du charbon riche en soufre. En Europe, les épisodes de *smog* sulfureux les plus dramatiques ont été observés en Angleterre dans les années 50. Ils sont aussi liés aux événements de pluies acides observés majoritairement dans les bassins miniers français et anglais, au nord et centre de l'Allemagne ainsi que dans les pays scandinaves. Les Etats-Unis étaient eux aussi victimes de ce fléau et la Chine continue de nos jours à subir ces retombées acides. Grâce aux différentes législations initiées par les gouvernements anglais puis américains des années 60, les pollutions photochimiques et particulaires ont remplacé le *smog* sulfureux. La pollution photochimique se caractérise par de fortes concentrations en ozone au niveau de la couche limite atmosphérique alors que la pollution particulaire fait référence aux fortes concentrations d'aérosols observées près du sol.

L'ozone troposphérique est un polluant secondaire gazeux. Sa production est déterminée par la combinaison de réactions chimiques et photochimiques principalement dans le domaine spectral ultraviolet. L'ozone est une espèce très oxydante. Son temps de vie chimique est d'environ une

semaine ce qui explique, en partie, le caractère non local des pics de pollution à l’ozone souvent observés en périphérie des grandes zones urbaines. Les processus physico-chimiques et dynamiques liés à la formation de l’ozone sont étudiés de deux manières. D’une part, ils peuvent être reproduit en laboratoire, avec l’utilisation des chambres de simulation et des modèles de chimie-transport. D’autre part, ils peuvent être étudiés sur le terrain lors de campagnes de mesures tels que ESQUIF<sup>1</sup> sur l’Ile de France en 1999 (Etude et Simulation de la QUALité de l’Air en Ile de France) ou ESCOMPTE<sup>2</sup> (Expérience sur le Site pour COntreindre les Modèles de Pollution atmosphérique et de Transport d’Emissions) sur la région Provence Alpes Côte d’Azur en 2001. Le cycle de formation et de destruction de l’ozone troposphérique est régi par l’évolution du système NO<sub>x</sub>/COV/HO<sub>x</sub> représenté schématiquement par la Figure 1.5.

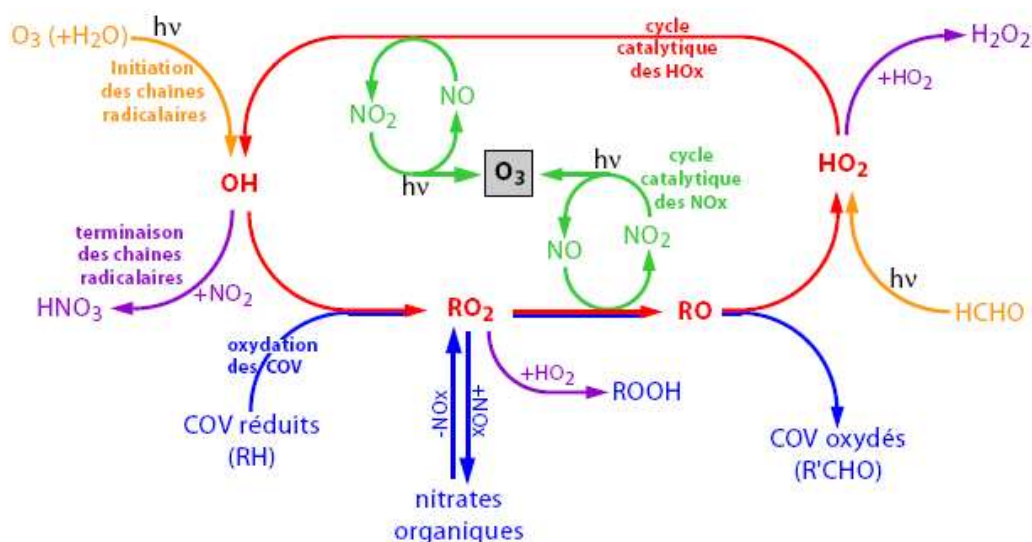


Figure 1.5 : Représentation schématique des principaux mécanismes impliqués dans la formation d’ozone troposphérique [Aumont, 2005].

### 1.2.1. Les Oxydes d’azotes (NO<sub>x</sub>)

Les oxydes d’azotes anthropiques (NO<sub>x</sub> = NO + NO<sub>2</sub>) sont essentiellement le produit des réactions de combustion à hautes températures entre les hydrocarbures fossiles, la biomasse et l’azote présents à la fois dans l’air et le combustible. Ils sont émis principalement sous forme de monoxyde d’azote (fraction molaire de 80 à 95 %).

Leur origine naturelle est principalement liée aux éclairs et aux émissions par le sol. Le cycle microbiologique de l’azote dans les sols est particulièrement intense dans les sols engraisés et augmente en fonction de la température et de l’humidité.

Les NO<sub>x</sub> sont éliminés de la troposphère en acide nitrique (HNO<sub>3</sub>), par oxydation avec le radical hydroxyle, en suivant généralement la réaction  $\text{NO}_2 + \text{HO}\cdot \rightarrow \text{HNO}_3$ . L’acide nitrique est

<sup>1</sup> <http://www.aerov.jussieu.fr/~fgoutail/ProjetESQUIF.html>

<sup>2</sup> <http://escompote.mediasfrance.org/>

majoritairement éliminé de l'atmosphère par dépôt sec et humide.  $\text{NO}_2$  peut aussi être éliminé par réaction hétérogène avec des particules solides tel que les sels marins. Le temps de vie des  $\text{NO}_x$  est de l'ordre d'une journée. Les concentrations de  $\text{NO}_x$  ont une forte variabilité temporelle et géographique. En Europe, dans la troposphère, leur concentration varie de quelques dizaines de ppt<sup>1</sup> en milieu rural à des concentrations de l'ordre d'une centaine de ppb<sup>2</sup> en milieu urbain.

### 1.2.2. Les Composés Organiques Volatiles (COV)

Cette famille regroupe une très grande diversité de composés classés en sous-groupes. Ce sont principalement des hydrocarbures d'origine primaire liés aux activités biogènes et anthropiques. Les COV sont à l'origine de la production de radicaux peroxy ( $\text{RO}_2$ ) formés lors de leur oxydation (Figure 1.5). En fonction de leur réactivité avec  $\text{HO}\cdot$  leur temps de vie peut aller de quelques heures pour les espèces les plus réactives (isoprène, limonène) à plusieurs années (méthane) pour les moins réactives (Annexe A-1). Les familles majoritairement présentes dans la CLA sont les alcanes (butane ou pentane), les aromatiques légers (benzène, toluène, xylène) et les alcènes. Leurs concentrations varient typiquement de l'ordre de quelques dizaines de ppbC (rapport de mélange en équivalent carbone) en milieu rural à plusieurs centaines de ppbC<sup>3</sup> en zone urbaine.

### 1.2.3. Les HOx

Le terme HOx regroupe le radical hydroxyle ( $\text{HO}\cdot$ ), hydroperoxy ( $\text{HO}_2$ ) et l'ensemble des radicaux peroxy organique ( $\text{RO}_2$ ). Le radical OH est l'oxydant de l'atmosphère par excellence. Il contrôle ainsi les concentrations des  $\text{NO}_x$  et COV et est considéré comme le carburant du cycle de l'ozone. La Figure 1.5 montre que les radicaux HOx participent à la transformation de NO en  $\text{NO}_2$  et sont donc liés à la production d'ozone. Ce sont des espèces très réactives en état d'équilibre dynamique. Les concentrations d'équilibre sont régies par le rapport entre l'efficacité des réactions d'initiation au regard des réactions de terminaison. La production des HOx est essentiellement photochimique via le formaldéhyde (HCHO). De part, le caractère photochimique de la majorité des réactions d'initiation du cycle de l'ozone, la production d'ozone est diurne.

### 1.2.4. Photochimie

La photochimie est l'étude des réactions induites par la lumière. L'absorption d'un photon par une molécule amène celle-ci dans un état électronique excité plus propice à une transformation chimique que l'état fondamental de celle-ci. Dans une réaction photochimique, le photon fournit l'énergie requise pour surmonter la barrière de potentiel (énergie d'activation) associée à la

---

<sup>1</sup> partie part trillion

<sup>2</sup> Partie par billion

<sup>3</sup> ppb en carbone équivalent

transformation. Les réactions photochimiques induites par le rayonnement solaire jouent un rôle central en chimie atmosphérique. Elles représentent la source principale de radicaux dans la troposphère (RO, RO<sub>2</sub>, OH, HO<sub>2</sub>) permettant ainsi d'initier les transformations en phase gazeuse. En générale, elle conduit à la rupture d'une liaison chimique selon :



où A• et B sont des fragments radicalaires (A•) ou des atomes (B). Par exemple, les réactions de photolyse de l'acide nitreux (HONO) et de l'ozone conduisent aux dissociations :



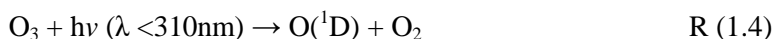
La photolyse d'une molécule n'est possible que si l'énergie du photon absorbé est supérieure ou égale à l'énergie de la liaison rompue. L'énergie (E) associée à une mole de photon est :

$$E = N_A h \frac{c}{\lambda} \quad Eq. (1.4)$$

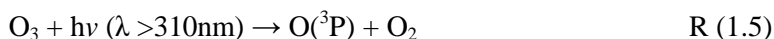
où h est la constante de Planck (6,63.10<sup>-34</sup>J.s), c la vitesse de la lumière (10<sup>8</sup> m.s<sup>-1</sup>), λ la longueur d'onde du rayonnement (nm) et N<sub>A</sub> est le nombre d'Avogadro (6,02.10<sup>23</sup> molécules.mol<sup>-1</sup>).

L'énergie du rayonnement est inversement proportionnelle à longueur d'onde du rayonnement. Seuls les rayonnements de longueurs d'ondes inférieures à 400 nm sont d'un intérêt pour la photochimie. Par exemple, l'énergie de la liaison entre l'atome d'oxygène et d'azote de la molécule NO<sub>2</sub> est E<sub>O-NO</sub> = 300kJ.mol<sup>-1</sup>. La photodissociation NO<sub>2</sub> + hν = NO + O n'est donc possible que pour λ < 400nm. Toutefois, l'irradiation d'une molécule par des photons d'énergie supérieure aux énergies de liaison ne conduit pas nécessairement à la photolyse de celle-ci. En effet, il n'y a pas de loi physique stipulant que la molécule peut absorber obligatoirement les photons à la longueur d'onde considérée.

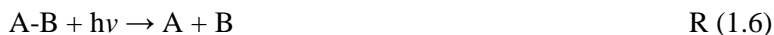
Les produits de la réaction de photolyse peuvent eux même être produits dans un état électronique excité. Par exemple, la photolyse de l'ozone peut conduire à des atomes d'oxygène excités (O(<sup>1</sup>D)) si λ < 310nm. Aux longueurs d'onde plus élevées, la photodissociation ne conduit qu'à la production d'atomes d'oxygène au niveau fondamental (O(<sup>3</sup>P)) :







Une réaction de photolyse peut être représentée comme un processus unimoléculaire :



La vitesse de réaction ( $V$ ) de la réaction 1.6 est décrite par l' Eq. 1.5.

$$V = \frac{dC_A}{dt} = -\frac{dC_{AB}}{dt} = J_p C_{AB} \quad \text{Eq. (1.5)}$$

où  $J$  est la constante de photolyse.  $C$ 'est une réaction du premier ordre.  $J$  ( $\text{s}^{-1}$ ) et est fréquemment qualifiée de « fréquence de photolyse ».

La constante de photolyse  $J$  intègre plusieurs paramètres, notamment l'intensité du rayonnement solaire, l'efficacité d'absorption du rayonnement par la molécule  $AB$  et le rendement quantique primaire de dissociation.

$J$  est défini par l'expression

$$J = \int_{\lambda_1}^{\lambda_2} F(\lambda)\sigma(\lambda)\theta(\lambda)d\lambda \quad \text{Eq. (1.6)}$$

où  $\sigma$  ( $\lambda$ ) et  $\theta$  ( $\lambda$ ) sont respectivement la section efficace et le rendement quantique de photodissociation.  $\lambda_1$  et  $\lambda_2$  sont respectivement les limites inférieures et supérieures des longueurs d'onde entraînant la photodissociation.

Plus précisément  $\sigma(\lambda)$  et  $\theta(\lambda)$  sont des propriétés intrinsèques aux molécules absorbantes. Ces propriétés sont mesurées expérimentalement en laboratoire.  $\sigma(\lambda)$  et  $\theta(\lambda)$  sont fonctions de la température. La pression joue également un rôle essentiel sur  $\theta$  lorsque les processus de collisions (*quenching*) ne sont pas des processus de désactivation négligeables.

De plus, le flux du rayonnement solaire  $F(\lambda)$  varie fortement avec l'altitude, l'angle zénithal et la couverture nuageuse. Il est généralement estimé grâce aux modèles de transfert radiatif (par

exemple : TUV<sup>1</sup>). Il peut être également mesuré sur le terrain à l'aide d'un radiomètre ou pour une longueur d'onde avec un spectroradiomètre. Au niveau de la troposphère  $F(\lambda)$  correspond à des longueurs d'ondes supérieures à 290nm. En effet pour  $\lambda < 290\text{nm}$  le rayonnement est presque totalement absorbé par l'ozone stratosphérique.

### 1.2.5. La production d'ozone troposphérique

La production d'ozone dans la troposphère est conditionnée par le rapport de concentrations entre NO<sub>x</sub> et COV [Atkinson, 2000; Jenkin et Clemitshaw, 2000] et l'intensité du rayonnement solaire. La Figure 1.6 présente le profil type de la vitesse de production d'ozone en fonction de la quantité de NO<sub>x</sub> présente dans la parcelle d'air.

Deux régimes chimiques sont distingués. La zone de transition entre les deux régimes correspond à une concentration de NO<sub>x</sub> de l'ordre de quelques ppb. Pour des valeurs de NO<sub>x</sub> inférieures à cette valeur critique (1 à 5 ppb), la vitesse de production d'ozone croit fortement avec l'augmentation des NO<sub>x</sub> jusqu'à la valeur critique. Ce type de régime est qualifié de limité en NO<sub>x</sub>. En revanche, lorsque les valeurs de concentration en NO<sub>x</sub> sont supérieures à la valeur critique, la vitesse de production d'ozone diminue lorsque la concentration en NO<sub>x</sub> augmente. Ce type de régime est qualifié de saturé en NO<sub>x</sub>.

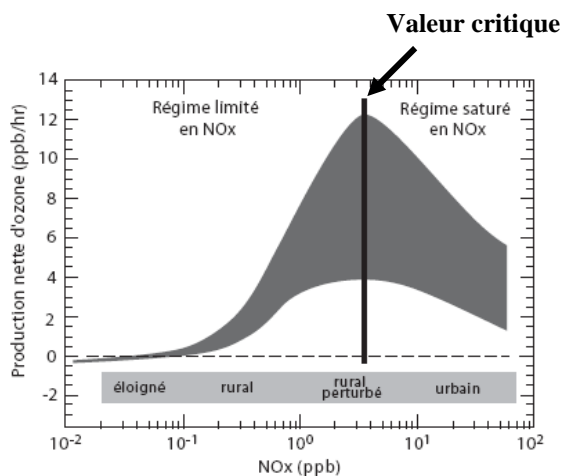
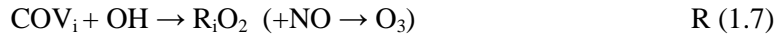


Figure 1.6 : Profil type de la vitesse de production d'ozone en fonction de la quantité de NO<sub>x</sub> [Aumont, 2005].

#### *Le régime saturé en NO<sub>x</sub>*

Pour des concentrations en NO<sub>x</sub> supérieures à quelques ppb, l'évolution des radicaux peroxy (RO<sub>2</sub>, HO<sub>2</sub>) est gouvernée par la réaction avec NO et en conséquence la régénération des radicaux HO• consommés par réactions avec les COV est totale (Figure 1.5). L'évolution du système chimique devient alors extrêmement sensible au rapport des vitesses des réactions suivantes :

<sup>1</sup> <http://cprm.acd.ucar.edu/Models/TUV>



L'équation (1.8) indique que plus les COV sont réactifs avec OH plus la production d'ozone est rapide.

$$r = \frac{\sum k_7 C_{\text{COV}_i}}{k_8 C_{\text{NO}_2}} \quad \text{Eq (1.7)}$$

où  $k_7$  représente la constante cinétique de la réaction 1.7,  $k_8$  celle de la réaction 1.8,  $C_x$  la concentration de l'espèce COV ou  $\text{NO}_2$ ,  $\text{COV}_i$  une espèce du groupe COV et  $\text{R}_i\text{O}_2$  le radical peroxyte lui étant associé après son oxydation par OH et  $r$  le rapport des vitesses de réaction. Ces deux réactions sont en concurrence. Si on applique l'hypothèse de quasi-stationnarité aux espèces HOx, on montre alors que la production d'ozone est déterminée par l'équation 1.8.

$$P_{\text{O}_3} \approx \frac{2P_{\text{HO}_x} \sum k_{1,i} C_{\text{COV}_i}}{k_2 C_{\text{NO}_2}} = 2rP_{\text{HO}_x} \quad \text{Eq. (1.8)}$$

où  $P_{\text{HO}_x}$  est le terme de production « primaire » de HOx associé pour l'essentiel, aux réactions de photolyse.

L'Eq.1.8 montre que la production d'ozone est dépendante des concentrations des espèces HOx,  $\text{NO}_2$  et des COV. Ces trois dernières sont elles-mêmes dépendantes des conditions météorologiques tel que le taux d'ensoleillement ou la vitesse du vent. L'augmentation de la concentration des NOx en régime saturé conduit à un ralentissement de la production d'ozone.

Pour résumer, dans le cas du régime saturé en NOx, la production d'ozone augmente lorsque le rapport COV/NOx augmente. Les zones urbaines et périurbaines sont propices à ce type de situation. Nous attacherons donc une importance particulière à l'étude de ces zones au niveau de la région NPDC.

### ***Le régime limité en NOx***

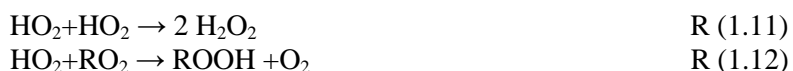
Deux types de sous-régimes sont distingués dans le cadre du régime limité en NOx. Tout d'abord, en milieu modérément riche en NOx où les concentrations en NOx varient entre quelques dizaines de ppt et quelques ppb ainsi qu'en milieu pauvre en NOx.

#### ***Milieux modérément riches en NOx***

La réaction 1.8 devient négligeable devant 1.7. De plus, contrairement au régime saturé en NOx les concentrations en NOx sont insuffisantes pour gouverner totalement l'évolution des peroxydes :



Les réactions 1.9 et 1.10 sont en concurrence avec les réactions 1.11 et 1.12 de recombinaison entre radicaux peroxydes :



L'évolution chimique du système est fonction de l'évolution des peroxydes et en particulier de la concentration en HO<sub>2</sub>.

En supposant que le recyclage des HOx est efficace et que le puit de HO<sub>2</sub> est majoritairement assuré par la réaction 1.13. La production d'ozone  $P_{O_3}$  est définie par l'Eq. 1.9 :

$$P_{O_3} \approx 2k_{12} \left( \frac{P_{HOx}}{k_{13}} \right)^{0.5} C_{NO} \quad \text{Eq. (1.9)}$$

où  $k_{12}$  et  $k_{13}$  sont les vitesses respectives des réactions 1.12 et 1.13.  $P_{HOx}$  correspond à la production de HOx.

Ainsi, dans le cas de milieux modérément riches en NOx, la production d'ozone ( $P_{O_3}$ ) augmente si la concentration en NO et à fortiori de NOx augmente.

### ***Milieux pauvres en NOx***

Pour des concentrations inférieures à quelques dizaines de ppt, l'évolution des radicaux peroxydes est dominée par les réactions 1.11 et 1.12. L'ozone consommé par photolyse n'est pas totalement renouvelé par le mécanisme chimique. Le recyclage des HOx est assuré par l'ozone selon la réaction 1.13 :



Par conséquent, l'oxydation atmosphérique induit une consommation d'ozone. Ce cas correspond à la chimie en zones éloignées de sources primaires, principalement en zone rurale (plusieurs dizaines de kilomètres à l'écart des villes).

### 1.2.6. Le rapport COV/NOx : paramètre clé de la production d'ozone dans un panache urbain

La pollution à l'ozone rencontrée en périphérie des grandes agglomérations illustre les conséquences de l'accumulation d'ozone selon les voies réactionnelles du cycle chimique décrit précédemment. Une zone urbaine est caractérisée par des niveaux de concentrations élevés en NOx (plusieurs ppb). Les concentrations en COV sont inférieures à celles des NOx et par conséquent le rapport COV/NOx est généralement faible (0,2 à 0,5).

La Figure 1.7 présente l'évolution de la vitesse de production d'ozone ainsi que, les précurseurs (NOx et COV) en fonction du régime chimique observé.

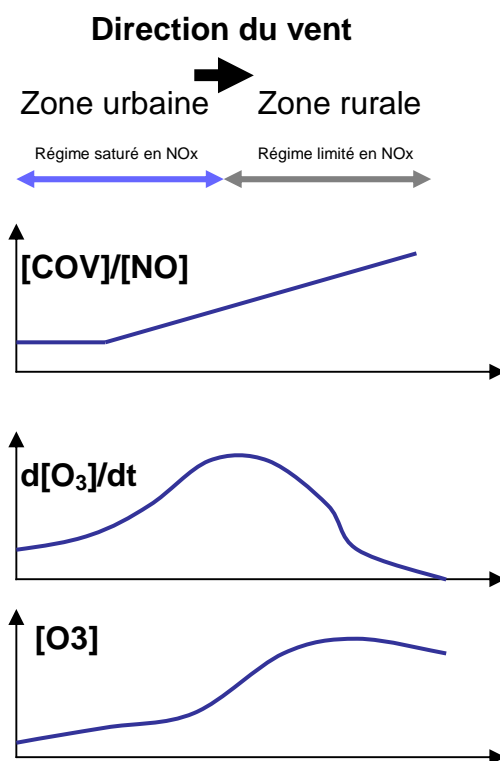


Figure 1.7 : Profils horizontaux typiques du rapport  $[COV]/[NOx]$ , du profil  $d[O_3]/dt$  et de  $[O_3]$  selon le type de zone, d'après Aumont (2005).

Considérons une parcelle d'air au dessus d'une ville. Elle est en régime saturé en NOx et la production d'ozone est, en général relativement faible. Lorsque la parcelle est transportée à la périphérie des villes, le rapport COV/NOx augmente car les concentrations en COV rurales sont en général supérieures à celles urbaines. Les concentrations de NOx y sont plus faibles qu'en ville et on observe une augmentation de la concentration en COV due principalement à l'émission de COV

biogènes. Les pics d’ozone les plus marqués sont en général observés à la périphérie des grandes villes sous le vent dominant. Des zones de fortes concentrations en O<sub>3</sub> peuvent parfois se former ou être transportées à plusieurs dizaines de kilomètres des grandes agglomérations. Cependant l’occurrence des pics d’ozone est aussi dépendante des conditions météorologiques. C’est l’augmentation du rapport COV/NOx conjuguée aux conditions météorologiques qui déterminera la sévérité d’un épisode de pollution photochimique.

*Quelles sont les conditions favorables à la production d’ozone photochimique sur le territoire Français?*

Les conditions météorologiques favorables à la production d’ozone sont un fort rayonnement, une température élevée, une CLA peu développée et un vent faible. Cette situation est rencontrée lors de la présence d’un anticyclone en période estivale.

En France, le blocage anticyclonique rencontré pendant la première quinzaine d’Août 2003 sur l’Europe de l’Est est un très bon exemple d’une situation météorologique extrêmement favorable au développement d’un épisode de pollution à l’ozone. Durant cette période, la stagnation fut un facteur déterminant favorisant l’accumulation d’ozone au niveau des zones urbaines. Vautard *et al.*, (2005) montrent qu’une grande partie de la moitié nord et du sud-est de la France a été touchée par des concentrations d’ozone exceptionnellement élevées pendant cette période dite de « canicule ». Dans le cadre de la thèse, nous nous attachons ainsi à modéliser des périodes anticycloniques chauds propices à la formation d’une pollution à l’ozone sur la région Nord-Pas De Calais (NPDC).

### **1.2.7. Historique de l’évolution des émissions en NOx et en COVNM en France**

#### *• Evolution des émissions en NOx*

En 2006, les émissions de NOx représentent 1351 kt. La Figure 1.8 indique que les émissions de NOx ont atteint leur niveau maximal au cours du demi-siècle en 1980 (1995 kt). Au cours des années 60 et 70 les émissions du secteur des transformations d’énergie sont en forte augmentation avec un niveau maximal observé en 1980 (358 kt). La principale contribution est le secteur de la production d’électricité suite au développement du matériel électroménager et l’augmentation du confort. La baisse observée dans les années 80 fait suite à l’augmentation de l’utilisation de l’énergie nucléaire pour la production d’électricité en France et aux premières dispositions réglementaires visant dans un premier temps l’industrie puis le transport routier. Depuis le début des années 90, une baisse durable est observée (baisse de 562 kt soit 29 % entre 1991 et 2006). Cette baisse est observée dans les secteurs de l’industrie manufacturière, la transformation de l’énergie puis les transports. La réduction des émissions s’explique par les efforts réalisés par les industriels depuis 1980, en partie du fait d’une meilleure performance des installations et des seuils d’émissions réglementaires imposées. En ce qui

concerne le secteur routier, la baisse des émissions en NOx est liée à l'équipement progressif des véhicules en pots catalytiques ainsi qu'à l'entrée en vigueur plus récemment de la norme Euro 3 pour les poids lourds en 2002 et Euro 4 en 2005 pour les véhicules particuliers, accompagnés d'une stabilisation du parc roulant. Les objectifs en matière de réduction des émissions sont une diminution pour 2010 de 40 % par rapport au niveau 2006.

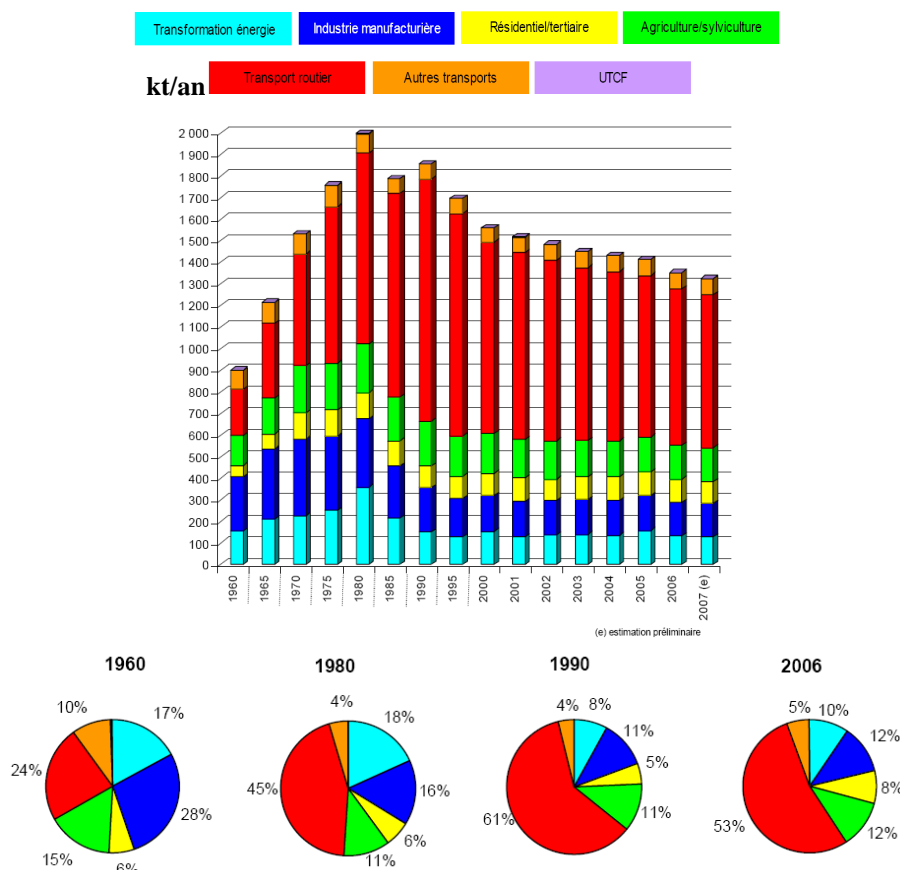


Figure 1.8: Emission (kt/an) en NOx par secteur d'activité en France métropolitaine entre 1960 et 2007 (CITEPA<sup>1</sup>, 2008).

• Evolution des émissions en COVNM

En 2006, les émissions de COVNM en France s'élevaient à 1 336 kt (Figure 1.9). Ces émissions ont baissé de 51 % (1 385 kt) depuis 1988.

La répartition des émissions par secteur d'activité a fortement évolué entre 1988 et 2006. En 1990, le secteur des transports prédominait avec 38 % des émissions totales alors qu'en 2006 le résidentiel/tertiaire est majoritaire (32 % contre 16 % pour le transport routier). La biomasse consommée dans les petites installations de combustion domestiques est une source importante de COVNM, tout comme le phénomène d'évaporation au cours de la fabrication et la mise en œuvre de produits contenant des solvants. Les sources biotiques provenant des forêts et des prairies naturelles contribuent significativement aux émissions (de 120 à 150 kt/an sur la période).

<sup>1</sup> [http://www.citepa.org/emissions/nationale/Aep/aep\\_nox.htm](http://www.citepa.org/emissions/nationale/Aep/aep_nox.htm)

Dans le secteur routier la baisse (-882 kt/an soit -80 %) fait suite tout comme pour les NOx à l'utilisation du pot catalytique depuis 1993 ainsi qu'aux véhicules Diesel moins émetteurs de COVNM. Dans le secteur de la transformation d'énergie, la diminution (-156 kt soit -75%) est obtenue grâce aux progrès en matière de stockage et de distribution des hydrocarbures. Pour les secteurs de l'industrie manufacturière (-200 kt soit -33 %) et du résidentiel/tertiaire (-170 kt soit -32 %) la baisse est liée à la substitution des produits contenant des solvants par des produits à plus faibles teneurs en solvants, aux progrès techniques permettant la réduction des émissions sur certains appareils de combustion (type chaudière) et à l'accroissement de l'utilisation du gaz naturel, au dépend du fioul, comme combustible au niveau de secteur tertiaire. Les objectifs en matière de réduction des émissions sont une diminution de 21 % par rapport au niveau 2006.

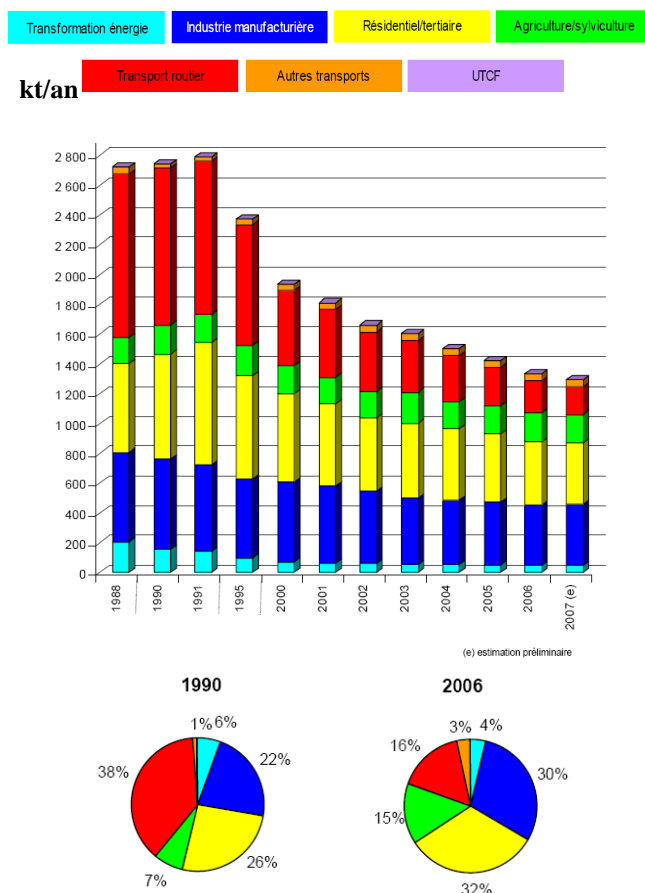


Figure 1.9: Emission (kt/an) en COVNM par secteur d'activité en France métropolitaine entre 1988 et 2007 (CITEPA<sup>1</sup>, 2008).

### 1.3. Pollution troposphérique particulaire

#### 1.3.1. Mécanismes de formation des aérosols

<sup>1</sup> [http://www.citepa.org/emissions/nationale/Aep/aep\\_nox.htm](http://www.citepa.org/emissions/nationale/Aep/aep_nox.htm)



La pollution particulaire (PM : Particulate Matter) se réfère à toutes les particules solides ou liquides en suspension dans l'air que nous respirons. Les particules peuvent être discrétisées selon leur taille en trois classes principales :

- les **PM<sub>10</sub>** : particules en suspension dans l'air, d'un diamètre aérodynamique (ou diamètre aéraulique) inférieur à 10  $\mu\text{m}$ ,
- les **PM<sub>2,5</sub>** : dont le diamètre est inférieur à 2,5  $\mu\text{m}$ , appelées particules fines,
- les **PM<sub>1</sub>** : dont le diamètre est inférieur à 1  $\mu\text{m}$  appelées particules ultrafines.

Leur dangerosité pour la santé humaine est fonction de leur quantité, leur taille, leur géométrie et leur composition chimique. Les particules peuvent être distinguées en fonction de leur nombre, de leur masse, de leur volume ou de leur surface spécifique. Les aérosols peuvent être classés en deux catégories.

Les aérosols primaires sont émis directement dans l'atmosphère à partir de sources naturelles (érosion, resuspension) ou anthropiques (transport, industries, chantiers de construction).

Par opposition, les aérosols secondaires résultent de la conversion de gaz atmosphériques en particules. On peut citer le cas des aérosols organiques secondaires résultant de l'oxydation des COV en phase gazeuse puis de leur condensation et de la transformation des particules primaires par réactions chimiques hétérogènes.

Tableau 1.2 fournit une estimation des flux de particules biogènes et anthropiques au niveau global. On remarque tout d'abord la disparité entre l'intensité des émissions naturelles, qui représentent la majorité des émissions particulaires (90 %) par rapport aux émissions anthropiques (10 %). La majeure partie des émissions particulaires provient des aérosols terrigènes et des sels de mer. Les aérosols fins sont composés majoritairement de carbone particulaire, de sulfates et de métaux lourds.

On constate de grandes incertitudes concernant les valeurs d'émissions minima et maxima. La fraction d'aérosols naturels émise est par nature très variable. Elle est fonction de la nature des sources (volcanique, désert, océans et mers) et varie selon les conditions météorologiques (fort vent favorisant l'émission de poussières terrigènes).

Pour les aérosols anthropiques, la variabilité est liée à la méthode de calcul employée afin d'estimer les flux d'émissions. Ces derniers sont calculés à partir d'un facteur d'émissions propre à la source considérée (énergie consommée ou unité d'activité de la source). Les facteurs d'émissions sont relativement bien connus pour les gaz alors qu'ils le sont moins pour les émissions de particules. En effet, l'émission de particules peut être très variable au sein même d'une activité. Prenons l'exemple de la combustion du gazole. Le facteur d'émission de ce carburant automobile varie du simple au triple en fonction du type de véhicule et de la conduite adoptée par le conducteur.

De même, les émissions de particules provenant de la combustion de la biomasse dépendent fortement de la qualité de la combustion. L'émission des particules en France est d'environ 1,6 Mt/an. Elles sont majoritairement anthropiques et émises par trois secteurs principaux : le secteur résidentiel et tertiaire, l'agriculture et les transports. Cependant à proximité des côtes, la part des sels marins est importante et les émissions naturelles peuvent être majoritaires.

**Tableau 1.2 : Flux global d'émissions de particules d'aérosol en Mt.an<sup>-1</sup> [Delmas *et al.*, 2005].**

Origine de la source	Sources	Flux Min Max (Mt.an <sup>-1</sup> )
<b>NATURELLE (90 %)</b>		
	<b>PRIMAIRES</b>	
	Poussières minérales	1 000 - 3 000
	Sels de mer	1 000 - 10 000
	Cendres volcaniques	4 - 10 000
	Carbone organique (diamètre>1µm)	26 - 90
	<b>SECONDAIRES</b>	
	Sulfates biogènes	80 - 150
	Sulfates volcaniques	9 - 50
	Carbone organique (oxydation COV biogènes)	8 - 40
	Nitrates	2 - 8
	<b>TOTAL</b>	<b>2 130 - 23 340</b>
<b>ANTHROPIQUES (10 %)</b>		
	<b>PRIMAIRES</b>	
	<i>Carbone organique (0-2µm)</i>	
	Feux de végétation	45 - 80
	Combustion des hydrocarbures fossiles	10 - 30
	<i>Carbone élémentaire (0-2µm)</i>	
	Feux de végétation	5 - 9
	Combustion des fuels fossiles	6 - 8
	Poussières industrielles	40 - 30
	<b>SECONDAIRE</b>	
	Sulfates	70 - 220
	Nitrates	10 - 20
	Carbone organique (oxydation COV anthropiques)	0,5 - 2
	<b>TOTAL</b>	<b>250 - 660</b>

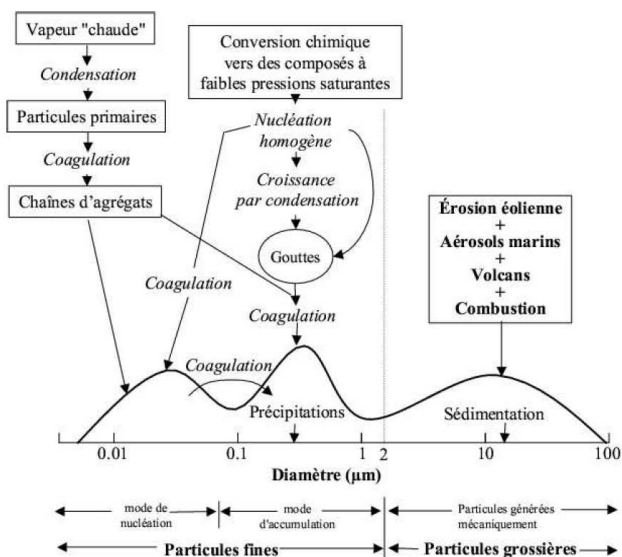
Grâce à l'étude des spectres de distributions granulométriques, trois modes principaux de répartition en taille des aérosols atmosphériques peuvent être identifiés (Figure 1.10) :

- le **mode nucléation** correspond aux particules issues de la nucléation homogène et hétérogène. La nucléation homogène est un processus physique qui permet, en l'absence de corps étrangers

comme support de nucléation, la conversion d'une espèce de faible pression partielle de vapeur en une particule. La nucléation hétérogène est la nucléation sur un corps ou une surface étrangère tels qu'un ion, une particule solide (poussières, pollen) ou des parois. Ces particules jeunes sont les plus nombreuses dans l'atmosphère mais leur contribution à la masse totale de particules dans l'atmosphère reste faible. Les nucléations homogène et hétérogène impliquent des processus complexes et variés rendant leur modélisation délicate. Les nanoparticules formées par nucléation, aussi appelées noyaux d'Aitken (diamètre < 0,1 nm) sont ensuite amenées à grossir par coagulation entre elles ou avec des particules plus grosses appartenant au mode accumulation.

- le **mode accumulation** regroupe les particules de diamètre compris entre 0,1 et 2  $\mu\text{m}$  résultant de la coagulation de particules produites par nucléation ou par condensation de vapeur sur des particules existantes. Ce type de particules a une durée de vie relativement longue dans l'atmosphère et contribue significativement à la masse totale d'aérosol dans l'atmosphère. Les processus de dépôts sec et humide sont les principaux puits de ce mode.

- le **mode grossier** contient les aérosols >2  $\mu\text{m}$ . Il s'agit des aérosols primaires mis en suspension dans l'air principalement par l'action du vent. Ils ont une durée de vie de quelques jours et sont efficacement éliminés par sédimentation. Ils sont peu nombreux mais correspondent à la plus à la fraction massique la plus importante.



**Figure 1.10 : Représentation schématique de la distribution granulométrique et des processus de formation et de dépôt des particules. Adapté de Whitby et Cantrell (1976) par Hodzic (2005).**

L'aérosol peut être classé en fonction de sa morphologie et de sa composition chimique. Plusieurs familles chimiques d'aérosols peuvent être distinguées. Le paragraphe suivant présente ces particularités.

### 1.3.2. Description des principales familles chimiques d'aérosols

Quatre familles principales d'aérosols sont présentes au sein de la basse troposphère.

- **les aérosols carbonés** : ils sont composés de deux types de carbone. Une fraction très compacte et peu réactive de « carbone suie » (Black carbon = BC) proche de la structure graphite. BC absorbe le rayonnement et est réfractaire thermiquement (température de fusion supérieure à 800°C).

Une seconde fraction peu dense et très réactive chimiquement correspond au Carbone Organique (Organic Carbon = OC). Sa particularité est de piéger des COV cancérigènes (Hydrocarbures Aromatiques Polycycliques par exemple) à leur surface. Le carbone organique est décomposé sous l'effet de la chaleur à partir de 400°C et a tendance à diffuser le rayonnement. On distingue le Carbone Organique Primaire (POA) émis à proximité des sources de combustion et le Carbone Organique Secondaire (SOA) issu de la transformation physicochimique de POA.

En réalité, la distinction entre BC et OC ne se fait pas de manière tranchée. Les propriétés physico-chimiques de l'aérosol carboné évoluent progressivement en fonction du rapport BC/OC. Les aérosols carbonés résultent principalement des processus anthropiques de combustions incomplètes des hydrocarbures fossiles (transport, industrie, chauffage) et des feux de biomasse. Les proportions du rapport BC/OC sont donc très variables en fonction des lieux de prélèvements. Höller *et al.*, (2002) comparent les rapports pour différents sites de prélèvements situés au Japon et aux Etats-Unis : ils varient entre 0,80 et 3,9 pour l'aérosols urbain, 1,1 et 1,6 pour l'aérosol marin et vaut, 4,7 en milieu rural (valeur pour une station). Enfin, l'auteur montre que la fraction carbonée contribue à 25 % de la masse totale des PM<sub>10</sub> pour le site urbain de Uji (préfecture de Kyoto) au Japon. La contribution est plus marquée pour les particules les plus fines (PM<sub>1</sub>). Des travaux [Harrison *et al.*, 2001; Harrison et Yin, 2008] montrent que la fraction en BC augmente à proximité des zones urbaines.

- **les aérosols inorganiques** : ils regroupent les nitrates et les sulfates, deux familles d'espèces secondaires produites principalement par des réactions chimiques à partir de leurs précurseurs (azote et soufre). En général, ce sont les radicaux OH qui en journée oxydent SO<sub>2</sub> et NO<sub>2</sub>, respectivement en acide sulfurique (H<sub>2</sub>SO<sub>4</sub>) et en acide nitrique (HNO<sub>3</sub>). La nuit les nitrates sont produits par l'oxydation de NO<sub>2</sub> par O<sub>3</sub> conduisant à la formation de NO<sub>3</sub>. Ces derniers réagissent avec NO<sub>2</sub> pour former du N<sub>2</sub>O<sub>5</sub> qui peut s'hydrolyser en nitrate. L'oxydation du SO<sub>2</sub> en sulfate est beaucoup plus rapide en phase aqueuse (brouillard, nuage) qu'en phase gazeuse.

• **les poussières minérales** : ce sont des particules primaires qui sont issues directement de l'érosion éolienne ou du processus de saltation. La saltation est un processus dynamique assurant le transport des particules par saut. Les vitesses du seuil d'érosion et de saltation varient en fonction de la nature du sol et des conditions météorologiques. Elles peuvent être déterminées en laboratoire [Lasserre *et al.*, 2005]. Les principales zones d'émissions de l'aérosol terrigène sont les déserts Sahariens et Chinois. Les émissions de poussières minérales représentent une contribution majeure de la masse globale en aérosols de l'atmosphère (Tableau 1.2).

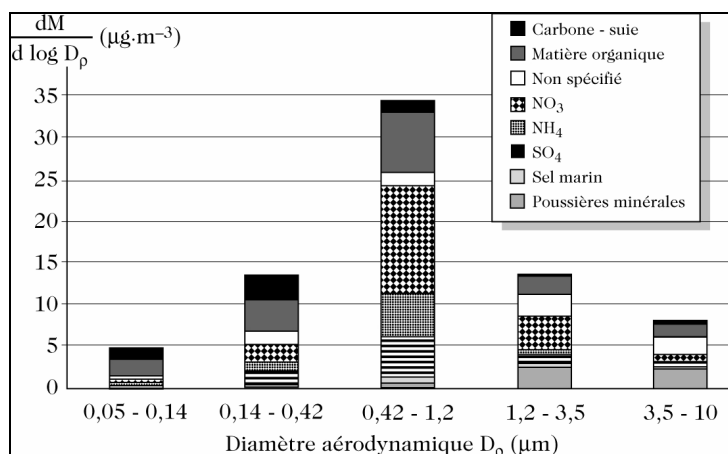
• **les sels marins** : ils sont classés en trois types d'aérosols [Blanchard, 1985]. Les embruns provoqué par l'écrêtement des vagues et gouttes de film et les gouttes de jet. Les gouttes films sont provoquées par le déferlement des vagues qui engendre la remontée des bulles d'air à la surface, qui éclatent au contact de l'air pour ainsi libérer les sels marins. L'émission est fonction de la vitesse du vent et de la température. Il s'agit d'aérosols en mode grossier. Leur taille varie entre 0,5  $\mu\text{m}$  et 5  $\mu\text{m}$ . Pour des vitesses de vent supérieures à 15 m/s, l'écrêtement et le déferlement des vagues peuvent produire des particules de l'ordre de quelques dizaines de micromètres jusqu'au millimètre. Ces particules sont d'un intérêt atmosphérique particulier car elles constituent des noyaux de condensation pour les gouttelettes nuageuses. Elles peuvent également réagir avec certains gaz entrant dans le cycle de l'ozone tel que  $\text{NO}_2$  [Aghnatiou, 2008] notamment au niveau des zones industrielles côtières.

Dans l'atmosphère, la pollution particulaire est toujours un mélange de différentes familles d'aérosols. Ces mélanges peuvent être de type interne ou externe (Figure 1.11). Le cas du mélange externe suppose que les différentes familles de particules sont proches les unes des autres sans interagir. Cette caractéristique est vérifiée uniquement à proximité des sources d'émissions avant que les particules ne réagissent chimiquement entre elle. En revanche, au cours de leur transport, des aérosols de différentes familles se mélangent de manières partielles ou totales. Les particules sont en interaction physicochimique, on parle alors de mélange interne. Certaines campagnes de mesures s'appliquent à décrire une famille d'aérosol avec détail. Favez *et al.*, (2008) montrent ainsi la tendance saisonnière de la composition de la phase carboné et inorganique de l'aérosol dans la région du Caire.



Figure 1.11 : Exemple de mélange interne (à gauche) et de mélange externe (à droite) entre du sulfate d'ammonium (bleu) et des particules de *black carbon* (rouge).

La Figure 1.12 représente la répartition sectionnelle en masse des différents types d'aérosols en fonction de leur distribution en classe de taille pour un site urbain assez éloigné des sources à Bologne en conditions estivales [Putaud, 2003]. L'analyse du spectre montre que le maximum de la masse est concentré entre 0,14 et 1,2  $\mu\text{m}$ , cela correspond au mode accumulation. Les particules de tailles supérieures à 1,2  $\mu\text{m}$  représentent environ un quart de la masse totale et les particules de tailles inférieures à 0,14  $\mu\text{m}$  sont minoritaires.



**Figure 1.12 : Spéciation chimique sectionnelle de la phase particulaire en fonction de la taille pour des aérosols prélevés sur un site urbain à Bologne [Putaud, 2003].**

Si nous considérons une distribution en nombre, la contribution des classes de petits diamètres (0,05-0,42  $\mu\text{m}$ ) est majoritaire. Il s'agit principalement de *Black Carbon* (BC), de matière organique émise par la combustion ou formée à partir de précurseurs gazeux par condensation ou par nucléation.

Pour les particules entre 0,4 et 1,2  $\mu\text{m}$ , la fraction du nitrate devient prépondérante. Il s'agit de particules « âgées » dont le diamètre a augmenté par condensation de sulfates, de nitrates et d'ammonium sur des particules préexistantes.

Pour les grosses particules (diamètre > 3,5  $\mu\text{m}$ ), elles sont essentiellement d'origine minérale. On comprend alors que la modélisation des aérosols ne pourra être représentative des conditions atmosphériques que si les particules sont réparties dans différentes classes selon leurs caractéristiques physico-chimiques.

### 1.3.3. Historique de l'évolution l'émission des PM<sub>10</sub> en France

En 2006, les émissions de PM<sub>10</sub> s'élèvent à 488 kt (Figure 1.13). Une diminution de 29 % des émissions nationale en PM<sub>10</sub> est observée en France au cours des quinze dernières années passant de 744 kt/an en 1991 à 488 kt/an en 2006. Cependant, une stagnation des émissions de PM<sub>10</sub> autour de 500 kt/an est observée au niveau national depuis les 2 dernières années. Trois types d'activités se répartissent équitablement la quasi-totalité de la production d'aérosols. Tout d'abord, l'agriculture (30 %) à travers l'utilisation des engrais et la mise en suspension de particules dans l'air lors des

labours. Puis, l'industrie manufacturière de type sidérurgique (28 %) est source de particules métalliques et de suies. Enfin, le secteur résidentiel (27 %) produit des particules principalement à travers les processus de combustions liés au chauffage. La baisse depuis les années 90 est liée aux progrès réalisés par les techniques de dépoussiérages en sidérurgie ainsi qu'à l'amélioration des technologies pour la combustion de la biomasse et l'introduction de la norme Euro 4 concernant les émissions particulières du parc automobile roulant. Cependant, il faut signaler que le calcul des émissions de particules est parfois entaché d'incertitudes importantes selon les secteurs (agriculture par exemple) en comparaison du calcul pour les autres polluants (COVNM ou NOx).

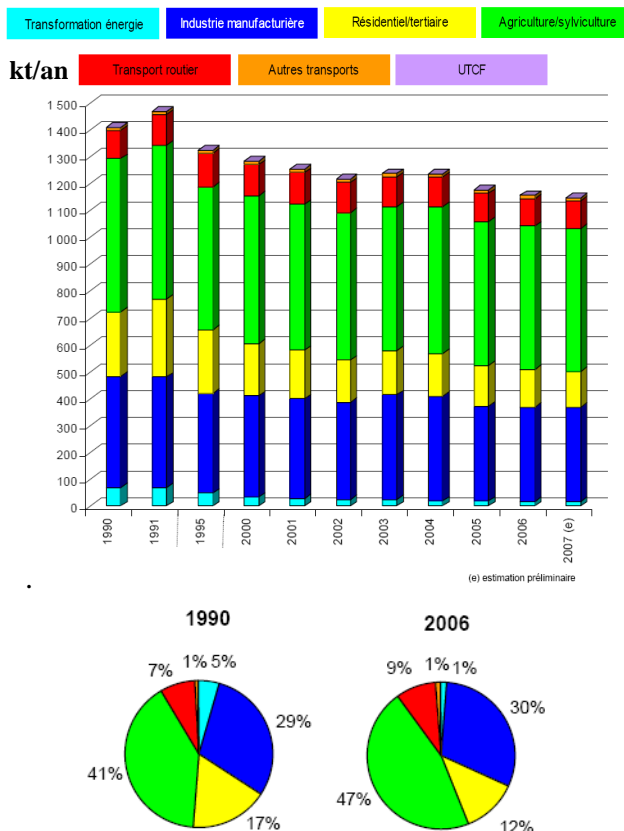


Figure 1.13: Emission (kt/an) en PM<sub>10</sub> par secteur d'activité en France métropolitaine entre 1990 et 2007 (Citepa, 2008<sup>1</sup>).

## 1.4. Impact de la pollution troposphérique

Les motivations premières de l'étude et de la modélisation des polluants troposphériques résultent dans le fait qu'ils sont nocifs pour la santé et notre environnement en général. Les paragraphes suivants présentent les différents impacts associés à la pollution à l'ozone et aux particules fines.

### 1.4.1. Impact radiatif

<sup>1</sup> [http://www.citepa.org/emissions/nationale/Aep/aep\\_nox.htm](http://www.citepa.org/emissions/nationale/Aep/aep_nox.htm)

L'impact radiatif de l'ozone et des aérosols (effet direct et indirect) est souvent estimé à partir de modèles de transfert radiatif [Berntsen, 1997; Berntsen, 2000; Myhre *et al.*, 2001]. Le dernier rapport du Groupe d'experts Intergouvernemental sur l'Evolution du Climat (GIEC<sup>1</sup>) paru en 2007 indique un forçage radiatif moyen global positif au niveau du sol pour l'ozone troposphérique de +0,35 (0,25 à 0,65) W/m<sup>2</sup> pour un niveau de connaissance moyen (Figure 1.14).

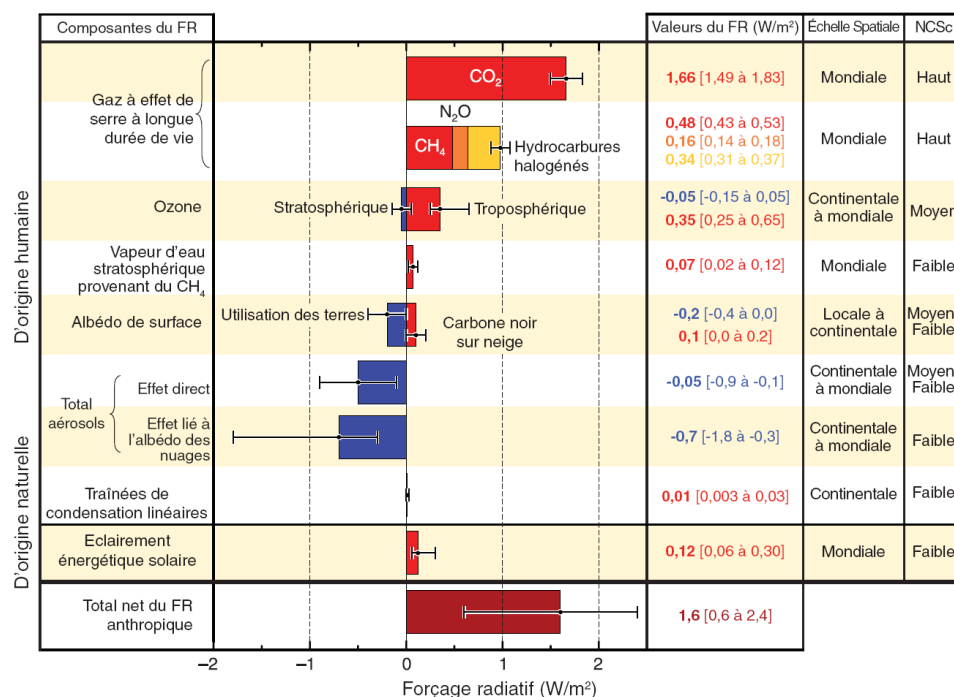


Figure 1.14 : Estimations et incertitudes du forçage radiatif global moyen de différentes espèces gazeuses et particulaires.

Pour les aérosols, l'impact radiatif direct est distingué de celui indirect. Pour le premier, l'impact est négatif et estimé à -0,5 (-0,9 à -0,1) W/m<sup>2</sup> pour le second les connaissances sont faibles et l'impact radiatif est aussi négatif -0,7 (-1,8 à -0,3) W/m<sup>2</sup>. Sokolik et Toon (1999) détaillent l'impact radiatif positif ou négatif de l'aérosol désertique en fonction de sa morphologie et de sa composition chimique. Pour l'aérosol carboné, Liousse *et al.*, (1998) concluent que le carbone organique aurait tendance à refroidir l'atmosphère alors que le BC aurait un effet opposé. La Figure 1.15 permet d'apprécier la réduction de la visibilité engendrée par un intense épisode de pollution particulaire et après lessivage par des précipitations en août 2005 à Pékin.

<sup>1</sup> [http://www.ipcc.ch/pdf/assessment-report/ar4/syr/ar4\\_syr.pdf](http://www.ipcc.ch/pdf/assessment-report/ar4/syr/ar4_syr.pdf)





Figure 1.15 : Exemple d'une pollution de type particulaire observée durant le mois d'août 2005 à Pékin. A droite durant un épisode de smog et à gauche après lessivage par la pluie<sup>1</sup>.

### 1.4.2. Impact sanitaire

Les pollutions gazeuses et particulaires affectent les zones vitales du corps humain (Figure 1.16). L'union Européenne<sup>2</sup> estime, à 370 000 par an, le nombre de décès prématurés lié à la pollution atmosphérique pour un coût total se situant entre 427 à 790 milliards d'euros.

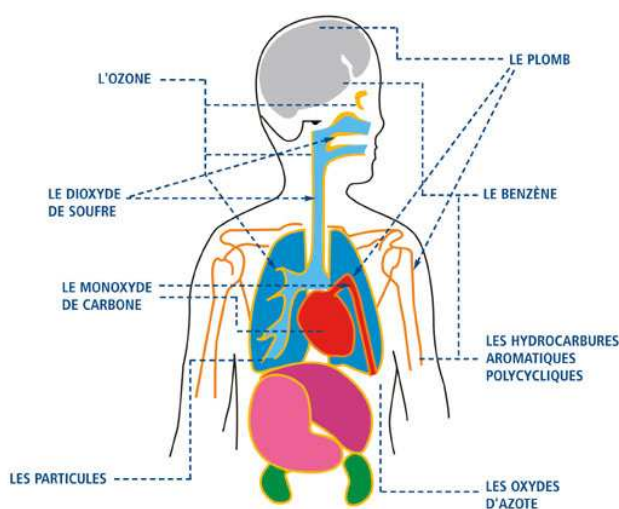


Figure 1.16 : Zones du corps humain affectées en fonction de la nature du polluant (Atmo-NPDC<sup>3</sup>).

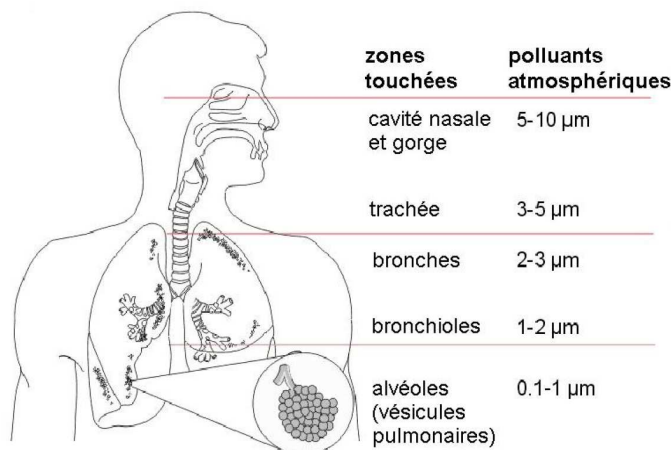
En ce qui concerne les particules, elles pénètrent d'autant plus profondément dans le système respiratoire que leur diamètre est petit (Figure 1.17). De par leur nombre important, leur surface spécifique est très grande et permet l'absorption d'espèces aromatiques cancérigènes telles que les Hydrocarbures Aromatiques Polycycliques (HAP) et de métaux lourds. En se déposant dans les alvéoles pulmonaires, les particules fines (PM<sub>10</sub> et PM<sub>2,5</sub>) provoquent une réaction inflammatoire et un

<sup>1</sup> [http://fr.wikipedia.org/wiki/Fichier:Beijing\\_smog\\_comparison\\_August\\_2005.png](http://fr.wikipedia.org/wiki/Fichier:Beijing_smog_comparison_August_2005.png)

<sup>2</sup> [http://ec.europa.eu/environment/news/efe/water\\_air\\_soil/080619\\_airquality\\_fr.htm](http://ec.europa.eu/environment/news/efe/water_air_soil/080619_airquality_fr.htm)

<sup>3</sup> <http://www.atmo-npdc.fr/home.htm>

stress oxydant aux niveaux des cellules [Greenwell *et al.*, 2002; Blanchard *et al.*, 2008]. Elles peuvent aussi provoquer des dommages au niveau du cœur [Mill *et al.*, 2007] et du patrimoine génétique [Shao *et al.*, 2006]. Quant à l’ozone, il est reconnu comme étant un gaz particulièrement irritant affectant toutes les muqueuses du corps humain.



**Figure 1.17 : Pénétration des particules dans l’appareil respiratoire humain en fonction de leur diamètre.**

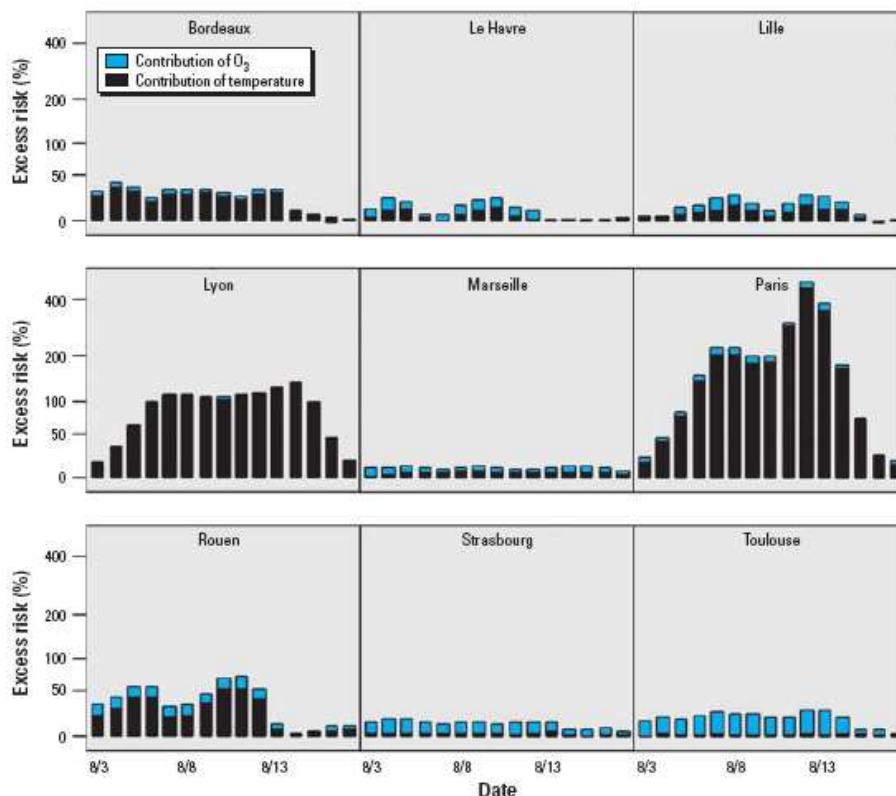
Quels que soient les effets considérés, des populations sensibles ont été identifiées [Blanchard *et al.*, 2008] :

- les enfants, qui présentent une sensibilité accrue liée à l’immaturité des voies respiratoires et des défenses immunitaires,
- les personnes âgées, qui sont plus sensibles en raison du vieillissement des tissus respiratoires , d’une diminution des défenses immunitaires et de pathologies plus fréquemment associées à l’inhalation des particules,
- les sujets asthmatiques, avec une exacerbation des crises d’asthmes, et plus généralement l’ensemble des sujets présentant des pathologies chroniques, essentiellement cardiovasculaires ou respiratoires.

L’existence de liens à court terme entre pollution atmosphérique particulaire urbaine et la mortalité est à présent bien documentée pour des villes d’Autriche [Neuberger *et al.*, 2004; Neuberger *et al.*, 2007], d’Espagne [Moreno *et al.*, 2006; Viana *et al.*, 2007] et à l’échelle de l’Europe [van Zelm *et al.*, 2008] .

En France, le Programme de Surveillance Air et Santé (PSAS) de l’INstitut Veille Sanitaire (INVS) étudie les liens entre pollution atmosphérique et l’augmentation de la mortalité. La Figure 1.18 présente pour neuf villes françaises, les résultats du PSAS pour la période caniculaire du 3 au 17 août 2003. Cette étude vise à quantifier les relations entre la température, les concentrations d’ozone et le risque de décès pour différentes causes [Cassadou *et al.*, 2004]. Les villes où les excès de mortalité liés

à l’ozone et à la température sont les plus marqués sont Paris et Lyon. Lorsque l’on compare la contribution relative de l’ozone à l’excès de mortalité, la contribution varie de 2,5 % à Bordeaux à 85 % à Toulouse. Les excès majoritairement liés à une augmentation de la concentration en ozone sont observés à Toulouse et Strasbourg (Figure 1.19).



**Figure 1.19 : Valeurs journalières des parts relatives de l’excès de risque de mortalité lié à l’ozone et à la température pour une population de tous âges [Cassadou *et al.*, 2004].**

Le nombre cumulé de décès en excès en 2003 par rapport aux moyennes des décès observées au cours des mois de juillet, août et septembre des années 2000, 2001 et 2002 a été d’environ 400 le 4 août, 3 900 le 8 août, 10 600 le 12 août et 14 800 le 20 août, soit une augmentation de 60 % par rapport à la mortalité attendue.

D’autres études montrent la dangerosité des épisodes de pollution. Le cas de la canicule de 2003 et des forts pics de pollution qui lui étaient associés a été repris par plusieurs auteurs afin de confirmer un lien indéniable entre l’augmentation de la mortalité et l’épisode de pollution. Stedman (2004) évalue une surmortalité de 423 à 769 cas (+21 à 38 %) au Royaume-Uni due aux concentrations élevées de PM<sub>10</sub> et O<sub>3</sub> durant les deux premières semaines d’août 2003. Durant cette même période Fischer *et al.*, (2004) dénombrent, aux Pays-Bas, une surmortalité de 1000-1400 décès dont 400 à 600 directement imputés aux fortes concentrations en O<sub>3</sub> et PM<sub>10</sub>.

L’Organisation Mondiale de la Santé [WHO, 2002] estime que plus d’un million de morts prématurés par an peuvent être attribués à la pollution dans les pays industrialisés. Il est reconnu que

la dangerosité des particules est d'autant plus grande que leur diamètre est fin. De plus, selon la nature physico-chimique des particules, leur effet sur la santé sera plus ou moins sévère. Les recherches récentes s'attachent à décrire le potentiel toxique des particules en fonction de leur nature physico-chimique [Senlin *et al.*, 2008]. Ce genre d'études est particulièrement intéressant pour les épidémiologistes qui peuvent mettre en relation risque sanitaire, concentration et nature physico-chimique des particules.

### 1.4.3. Impact sur l'agriculture

L'impact sur les rendements agricoles a été mis en évidence par différents auteurs depuis plusieurs dizaines d'années, par exemple, sur les tomates [Iriti *et al.*, 2006], sur le blé [Hertstein *et al.*, 1995], sur le soja [Tong *et al.*, 2007; Bou Jaoudé *et al.*, 2008] et le riz [Chen *et al.*, 2008]. Certaines cultures, comme le tabac dont les feuilles se dégradent sous l'effet de l'ozone, sont utilisées comme bioindicateurs de la pollution à l'ozone (Figure 1.20), [Klumpp *et al.*, 2006; APPA, 2008]. Boucher (2008) rappelle qu'une réduction de la photosynthèse d'un végétal due à une pollution à l'ozone peut doubler l'impact radiatif initial de ce gaz.

La législation européenne (1999/30/CE) a mis en place le calcul d'un indice limite d'exposition nommé AOT40<sup>1</sup> et égale à 18 000  $\mu\text{g}/\text{m}^3$  (moyenne calculée sur 5 années). Il est calculé en additionnant la différence entre les niveaux de concentrations moyennes horaires d'ozone supérieurs à 80  $\mu\text{g}/\text{m}^3$  (mesurés entre 8h et 20h légales) et la valeur de 80  $\mu\text{g}/\text{m}^3$  pour la période du 1er mai au 31 juillet pour une année donnée l'année. On ne peut donc calculer qu'un AOT40 par an.

Ashmore *et al.*, (2004) propose quant à lui que l'estimation du flux d'ozone absorbé par les stomates des plantes est une valeur plus représentative afin de quantifier l'impact de l'ozone sur la végétation que l'indice AOT40.



Figure 1.20 : Nécroses observées à la surface d'une feuille de tabac provoquées par une forte concentration en ozone.

### 1.4.4. Impact sur les édifices publics

---

<sup>1</sup> Accumulated Ozone Exposure over 40  $\mu\text{g}/\text{m}^3$

Durant les trois dernières décennies, les expériences de simulation en atmosphère contrôlée de l'action des polluants atmosphériques sur les matériaux pierreux ont permis d'éclaircir un certain nombre de mécanismes réactionnels [Ausset, 2007].

La sulfatation est le mécanisme prépondérant de l'altération des matériaux pierreux conduisant à la formation de gypse ( $\text{CaSO}_4 \cdot 2 \text{H}_2\text{O}$ ). La sulfatation progresse de la surface vers la profondeur de la pierre par formation de croûtes noires gypseuses. L'oxydation de  $\text{SO}_2$  en sulfates en phase aqueuse est l'étape déterminante contribuant à la formation du gypse dans les pierres. Dans l'atmosphère, cette réaction peut être catalysée par les  $\text{NO}_x$  et plus particulièrement  $\text{NO}_2$ . Ils augmentent la vitesse de dépôt de  $\text{SO}_2$  sous une forte humidité (90 %), catalysent l'oxydation des sulfites en sulfates et conduisent à la formation des nitrates ( $\text{NO}_3^-$ ) lorsque la surface de la pierre est humide.

La présence d'ozone augmente la production du sulfate de calcium, amplifie l'adsorption de  $\text{SO}_2$  notamment lorsque l'humidité relative est élevée et augmente la formation de  $\text{SO}_4^{2-}$  en présence de  $\text{SO}_2$  et  $\text{NO}_2$ . L'ozone seul n'a pas d'effet sur l'altération des pierres.

L'impact des particules d'origines anthropiques (BC, OC) est controversé. L'impact des particules de type BC aux vues des connaissances actuelles se limite au phénomène du *soiling* ou noircissement des pierres exposées.

Les différents impacts de la pollution à l'ozone et des particules ont été exposés. Le paragraphe suivant s'attache à décrire succinctement les différentes législations européennes et françaises visant à maintenir les niveaux de pollution à des concentrations raisonnables pour la qualité de notre santé et de l'environnement.

## **1.5. La législation de la pollution atmosphérique**

### **1.5.1. La législation européenne**

En Europe, la directive 96/62/CE du 27 septembre 1996 de la Communauté Européenne, concernant l'évaluation et la gestion de la qualité de l'air ambiant, fournit le cadre à la législation communautaire sur la qualité de l'air.

La législation européenne comporte deux orientations principales : les directives relevant du contrôle des émissions et les directives relevant de la surveillance de la qualité de l'air.

#### ***Les directives du contrôle des émissions***

La directive *Integrated Pollution Prevention and Control* (IPPC) (96/61/CE) du 24 septembre 1996 et la directive *National Emission Ceilings* (NEC) (2001/81/CE) du 23 octobre 2001 constituent deux instruments clés de la politique de l'Union Européenne (UE) en matière de réduction des émissions polluantes.

La directive IPPC vise à prévenir et à réduire de façon intégrée la pollution provenant des installations relevant de certaines activités industrielles (industries d'activités énergétiques, production et transformation des métaux, industries chimiques, gestion des déchets). Au total, environ 45 000 grandes installations sont visées. La directive définit les obligations auxquelles toute installation industrielle concernée, nouvelle ou existante, doit répondre en matière de réduction des émissions dans l'air induites par ses activités. La directive met en place une procédure de demande d'octroi et de modification des autorisations d'exploitation des installations industrielles et prévoit le recours aux meilleures techniques disponibles afin de limiter les émissions polluantes.

La directive NEC, quant à elle, fixe des plafonds nationaux d'émissions pour chaque Etat membre pour quatre polluants : SO<sub>2</sub>, NO<sub>x</sub>, NH<sub>3</sub> et COV tous secteurs confondus. Les Etats membres doivent établir, depuis le 1<sup>er</sup> octobre 2002, des programmes nationaux de réductions progressives des émissions de ces quatre polluants afin de respecter au plus tard en 2010 les plafonds fixés (Tableau 1.3). Nous pouvons citer les directives « filles » établissant les moyens techniques à instaurer afin de limiter les émissions des grandes sources de combustions (01/80/CE), des incinérateurs des déchets (2000/76/CE), de COV (99/13/CE) ainsi que les normes EURO (2007/715/EC) légiférant sur les émissions de particules provenant du secteur des transports. En 2007, les objectifs sont quasiment attend pour le NH<sub>3</sub>, le SO<sub>2</sub> et les COV. Les efforts doivent à présent se focaliser sur la réduction des émissions en NO<sub>x</sub>.

**Tableau 1.3 : Objectifs d'émissions retenus pour la France dans le cadre de la directive NEC (Citepa<sup>1</sup>, 2007).**

	SO <sub>2</sub>	NO <sub>x</sub>	COV	NH <sub>3</sub>
<i>Emissions 2006 (kt)</i>	1332	1854	2746	791
<i>Emissions 2007 (kt)</i>	435	1345	1199	737
<i>Objectifs 2010 (kt)</i>	<b>375</b>	<b>810</b>	<b>1050</b>	<b>780</b>

<sup>1</sup> [http://www.citepa.org/publications/UNECE\\_FRANCE\\_dec2007.pdf](http://www.citepa.org/publications/UNECE_FRANCE_dec2007.pdf)

### *Les directives de la surveillance de la qualité de l'air*

Les directives qualité de l'air, définissent les seuils d'informations et d'alertes pour la population. En 1992, la première directive européenne sur l'ozone voit le jour (92/72/EEC). Elle introduit les seuils d'alertes au public, de protection de la santé et de la végétation selon les recommandations de l'OMS (Annexe A-2). Puis en 1996, la loi cadre 96/62/EC définit les lignes directives communes pour la surveillance de la qualité de l'air. Des seuils propres appliqués à plusieurs polluants (SO<sub>2</sub>, NO<sub>2</sub>, O<sub>3</sub>, PM<sub>10</sub>) sont définis dans des directives filles (Annexe A-3).

Les quatre principaux objectifs de cette directive cadre sont les suivants :

- définir et fixer les objectifs concernant la pollution de l'air ambiant dans la Communauté, afin d'éviter, de prévenir et de réduire les effets nocifs pour la santé humaine ou pour l'environnement dans son ensemble,
- évaluer sur la base de méthodes et de critères communs, la qualité de l'air ambiant dans les Etats membres,
- disposer d'informations adéquates sur la qualité de l'air ambiant et faire en sorte que le public puisse en être informé en particulier lors des dépassements des seuils d'alerte,
- maintenir la qualité de l'air ambiant lorsqu'elle est bonne et l'améliorer dans les autres cas.

L'année 2008 voit la publication de la directive 2008/50/CE du 21 mai 2008 relative à la qualité de l'air ambiant et un air pur pour l'Europe. Elle regroupe quatre directives européennes : la directive cadre 96/62/CE ainsi que les directives filles 2002/3/CE, 2000/69/CE et 1999/30/CE. Cependant, trois nouveautés fondamentales apparaissent dans le texte de loi:

- La surveillance des tendances à long terme des mesures nationales et communautaires.
- L'amélioration des coopérations entre les Etats membres.
- Les particules fines PM<sub>2,5</sub> sont dorénavant ajouté à la liste des principaux polluants (ozone, dioxyde de soufre, oxydes d'azote, benzène, monoxyde de carbone, particules et le plomb) faisant l'objet de seuils de réglementations (seuil à 17 µg/m<sup>3</sup> en moyenne annuelle).

#### **1.5.2. La législation française**

Suite aux directives cadres européennes de 1992 et 1996, le parlement Français adopte la Loi sur l'Air et l'Utilisation Rationnelle de l'Energie (loi LAURE) en 1996. Cette loi s'appuie sur le « droit reconnu à chacun de respirer un air qui ne nuise pas à sa santé ». Concrètement, les

agglomérations de plus de 100 000 habitants doivent être dotées depuis 1998 d'un dispositif de surveillance de la qualité de l'air et l'ensemble du territoire depuis janvier 2000. La loi LAURE a été intégrée au Code de l'Environnement en Livre II, Titre III. La surveillance de la qualité de l'air en France est organisée selon quatre niveaux de directives représentés par les différentes couleurs de l'Annexe A-4. Les deux premiers niveaux correspondent aux directives européennes et à la législation française (loi LAURE). Ensuite, nous observons que se sont les décrets qui fixent les modalités d'application de la loi LAURE tel que les seuils d'alertes, les objectifs de qualité ou les différents plans régionaux de protection de l'atmosphère. Le dernier niveau correspond aux arrêtés qui correspondent aux décisions des autorités administratives en vue de l'exécution de la loi LAURE. L'avantage de ce type d'organisation est de pouvoir appliquer la loi nationale à chaque grande ville de France avec des décrets adaptés aux différentes agglomérations françaises. Une des faiblesses concerne les éventuelles disparités entre les régions en matière de lutte contre la pollution atmosphérique.

Le Ministère de l'Ecologie, de l'Énergie, du Développement Durable et de l'Aménagement du Territoire (MEEDAT) est responsable de la mise en œuvre de la politique nationale de surveillance, de prévention et de l'information sur l'air.

Il s'appuie pour cela sur :

- l'ADEME (Agence de l'environnement et de la Maîtrise de l'Energie) assure la coordination technique de la surveillance de la qualité de l'air au niveau national et gère la Base de Données Nationale de Qualité de l'air (BDQA). Ses délégations régionales participent aux Conseils d'Administration des Associations Agréées pour la Surveillance de la Qualité de l'Air,
- le LCSQA (Laboratoire Central de Surveillance de la Qualité de l'Air) intervient comme appui scientifique et technique des associations agréées et est composé de l'Ecole des Mines de Douai (EMD) de l'Institut National de l'Environnement Industriel et des Risques (INERIS) et du Laboratoire National d'Essais (LNE). Il contribue à l'amélioration de la qualité des mesures et assure la liaison entre la recherche et l'application sur le terrain,
- la fédération ATMO et l'ensemble des associations qu'il a agréés selon des critères techniques (qualité des mesures) et d'organisation (transparence de l'information donnée au public) représentent l'ensemble des 37 Associations Agréées pour la Surveillance de la Qualité de l'Air (AASQA) (Figure 1.21). Conformément à la loi LAURE, les AASQA regroupent quatre collègues, qui sont équitablement représentés au sein des Conseils d'Administration par :
  - les Préfets et Services de l'Etat,



- les Collectivités locales et territoriales,
- les Emetteurs (transporteurs, industriels),
- les Associations de protection de l'environnement et de consommateurs ainsi que les personnalités qualifiées.



Figure 1.21 : Carte nationale des stations AASQA de surveillance de la qualité de l'air.

Les AASQA ont pour missions principales :

- la mise en œuvre de la surveillance et de l'information sur la qualité de l'air,
- la diffusion des résultats et des prévisions,
- la transmission immédiate aux préfets des informations relatives aux dépassements ou prévisions de dépassements des seuils d'alerte et de recommandations.

La surveillance s'effectue par les dispositifs fixes, les campagnes de mesures, le développement de cadastres d'émissions et la modélisation de la pollution de l'air sur la région surveillée. La mise en œuvre de ces différents moyens permet de fournir des représentations cartographiques de la pollution.

Les associations diffusent un indicateur global de la qualité de l'air : l'indice ATMO pour les agglomérations de plus de 100 000 hab. Pour les villes de moins de 100 000 hab., on parle de l'Indice de la Qualité de l'Air simplifié (IQAs). Ce sont des indicateurs journaliers de la qualité de l'air. Ils sont calculés à partir des résultats des stations "urbaines" et "périurbaines" représentatives des conditions globales de pollution à proximité des agglomérations (Annexe A-5).

## *Surveillance de la qualité de l'air en région NPDC*

En réponse à la loi LAURE, deux outils voient le jour au niveau régional :

Atmo-NPDC<sup>1</sup> est l'association en charge de la surveillance de la qualité de l'air pour l'ensemble de la région NPDC. La majorité des données de polluants mesurées et présentées dans ce manuscrit proviennent de cette AASQA. Le reste des données mesurées provient d'une campagne de mesure du Laboratoire de Physico-Chimie de l'Atmosphère (LCPA) de Dunkerque et du réseau national Anglais de mesure des polluants atmosphérique (UK National Air Quality Archive<sup>2</sup>) pour les données concernant la côte sud de l'Angleterre.

Les stations de mesures AASQA peuvent être classées en 5 catégories différentes et selon la typologie suivante :

- **station trafic** : elles mesurent les concentrations dans des zones représentatives du niveau maximal d'exposition auquel la population est susceptible d'être exposée. Elles sont situées à proximité immédiate des axes routiers.
- **station industrielle** : elles mesurent les concentrations du niveau de pollution induit par des phénomènes de panache ou d'accumulation issues d'une source industrielle. Elles sont situées à proximité immédiate ou sur les sites des complexes industriels.
- **station urbaine** : elles mesurent les concentrations de la pollution atmosphérique dans les centres urbains. Elles sont situées à l'écart des grands axes de circulation au sein des villes.
- **station périurbaine** : elles mesurent les concentrations de la pollution atmosphérique. Elles sont situées entre 10 et 25 km à la périphérie des grandes agglomérations.
- **station rurale** : elles mesurent les concentrations de la pollution atmosphérique dits « de fond ». On distingue les stations dites régionales qui mesurent la pollution de fond issue du transport régional et les stations dites nationales qui mesurent la pollution de fond issue des transports de masse d'air à longue distance, notamment transfrontalière. Elles sont situées en zone rurale et ne sont pas sous l'influence directe des villes.

La technique métrologique utilisée pour la mesure de l'ozone est l'absorption UV, de fluorescence UV pour le SO<sub>2</sub> et, la mesure par TEOM<sup>3</sup> pour les PM<sub>10</sub>. Les différentes techniques métrologiques disponibles pour mesurer le SO<sub>2</sub>, l'ozone et les PM<sub>10</sub> sont résumées dans l'Annexe A-6.

Le dernier paragraphe de ce chapitre est consacré à un rappel des différents types de modèles de Chimie-Transport utilisés dans l'étude et la prévision de la pollution atmosphérique.

---

<sup>1</sup> <http://www.atmo-npdc.fr/home.htm>

<sup>2</sup> <http://www.airquality.co.uk/archive/index.php>

<sup>3</sup> Tapered Element Oscillating Microbalance

## 1.6. La modélisation de la qualité de l'air

Les efforts engagés depuis le début des années 90 en Europe et aux Etats-Unis ont permis de réduire significativement certains polluants primaires tel que les NO<sub>x</sub> et les COV ou encore les aérosols anthropogéniques. Cependant les concentrations de fond en PM<sub>10</sub> et PM<sub>2.5</sub> ainsi que de l'ozone ont tendance à stagner depuis ces 5 dernières années en Europe. Au niveau mondial, on peut citer les mégapoles de Dhaka, Pékin, Le Caire et Karachi qui sont parmi les plus polluées et ont un besoin urgent de plans de réduction des polluants primaires afin d'y améliorer la qualité de l'air [Gurjar *et al.*, 2008].

La modélisation de la pollution troposphérique est complémentaire des mesures de terrain mais aussi des techniques plus récentes telles que la télédétection active (LIDAR<sup>1</sup> ou SODAR<sup>2</sup>) et passive (satellite). Au cours des 15 dernières années, l'utilisation de la modélisation a fortement augmenté au sein de la communauté des physico-chimistes. Cet outil fonctionne selon deux modes : diagnostique et pronostique :

- En mode diagnostique, il permet avant tout d'interpréter et de comprendre des phénomènes physico-chimiques complexes. Par exemple : quel est l'impact d'une éruption volcanique sur la qualité de l'air globale ou comment sont transportées les émissions industrielles de la région Dunkerquoise ? On peut également produire des données inaccessibles par la mesure. En effet, la modélisation permet la constitution des champs de données complétant ainsi les mesures ponctuelles d'un réseau de surveillance de la qualité de l'air ou d'une campagne de mesure. Pour finir, la modélisation permet la reconstitution d'évènements très lointains au cours desquels la mesure n'existait pas encore : quels étaient les niveaux de pollution antérieurs au commencement des mesures en routine de la qualité de l'air.

- En mode pronostique, la modélisation est utilisée d'une part pour effectuer des prévisions de la qualité de l'air (J+1, J+2, J+3) et d'autre part afin d'évaluer des scénarios de l'évolution du système : réduction des émissions des composés primaires ou l'implantation d'un complexe industriel.

Le principe de la modélisation est de simuler au cours du temps, la réactivité des espèces chimiques (phase gazeuse, aqueuse et particulaire), le transport (advection et convection), la diffusion turbulente, les émissions provenant du sol et les dépôts secs et humides. Un modèle se compose habituellement de trois modules :

---

<sup>1</sup> Light Detection And Ranging

<sup>2</sup> Sound Detection And Ranging

- Module météorologique (MM5, WRF)
- Module d'émissions d'espèces chimiques gazeuses et particulaires (EMEP, GENEMIS)
- Module de chimie-advection-diffusion (CHIMERE, POLAIR 3-D)

L'ordre d'exécution des différents modules doit être respecté. Les données dynamiques sont calculées en priorité, suivies des données d'émissions qui sont pour certaines dépendantes des conditions météorologiques. Enfin, le module de chimie-advection-diffusion fait la synthèse des sources et des puits pour chaque maille du domaine. Les deux premiers modules fournissent les données nécessaires à l'exécution du troisième. Les différents modules sont en général indépendants les uns des autres.

Lorsque les données météorologiques proviennent d'un modèle différent, le système est qualifié d'*off-line*. En mode *off-line*, on fait l'hypothèse que seule la météorologie a une influence sur la chimie. En effet, la température est un des principaux paramètres influençant la pollution photochimique. Cependant, il est à présent clair que les aérosols et l'ozone ont une influence sur le climat régional. Par opposition, le mode *on-line* fait l'hypothèse que les équations thermodynamique et la chimie sont résolues à chaque pas de temps. Logiquement la version *on-line* est la plus proche de la réalité physico-chimique. L'utilisation de modèle *off-line* est cependant plus répandue car ce mode permet une grande souplesse d'utilisation. En effet, il n'est, par exemple, pas toujours nécessaire de recalculer les paramètres dynamiques lors de l'application d'un modèle de Chimie-Transport à une période d'étude spécifique.

Les sources d'erreurs affectant la performance des modèles à reproduire les concentrations de polluants sont d'origines diverses :

- l'exactitude et la résolution des données météorologiques,
- la méthodologie d'estimation et de résolution temporelle et géographique des données d'émissions biogènes et anthropiques,
- le choix du schéma de résolution numérique,
- la méthode de réduction du mécanisme chimique,
- l'estimation des concentrations aux limites du domaine.

Il est important d'être conscient des différentes sources d'erreurs afin d'exploiter et d'interpréter correctement les résultats.

Les modèles peuvent être distingués en deux familles selon leur construction théorique :

► les modèles statistiques

Les modèles statistiques sont fondés sur l'analyse statistique d'une base de données d'observations. Des relations empiriques sont établies entre des paramètres environnementaux mesurés tel que les paramètres météorologiques et les niveaux de pollutions atteints. Cependant, les résultats obtenus ne sont pas extrapolables. Ils seront toujours inclus dans le spectre des valeurs observées. Par exemple, des événements extrêmes tels que les forts épisodes d'ozone engendrés par la canicule de 2003 n'auraient pas pu être prédit avec ce genre de modèle. L'avantage de ces modèles résulte dans le fait qu'ils ne nécessitent aucune formulation physico-chimique et sont moins onéreux en termes de calculs que les modèles déterministes.

► les modèles déterministes

L'utilisation de ce type de modèle est basée sur l'hypothèse suivante : les lois physico-chimiques sont connues et l'évolution des variables au cours du temps sont suivies. A l'inverse du modèle statistique, les bases de données nécessaires au fonctionnement du modèle ne sont pas statiques, dans le sens où elles sont recalculées à chaque simulation. Leur qualité déterminera la performance du système de modélisation.

Deux principales approches sont actuellement utilisées lors de l'utilisation de modèles déterministes tridimensionnels :

- Modélisation Lagrangienne
- Modélisation Eulérienne

### **1.6.1. Modèle déterministe Lagrangien**

Dans le cas Lagrangien, le principe consiste à simuler l'évolution spatiale et temporelle d'une parcelle d'air lorsque celle-ci est advectée dans l'atmosphère. La parcelle d'air est déplacée par le vent et il n'y a pas d'échange de matière entre la parcelle considérée et son environnement. Les seuls échanges de matière se font à la surface (émissions et dépôts). Le référentiel suit la parcelle d'air et le modèle simule les concentrations en fonction du temps pour différentes localisations (Figure 1.22). La modélisation de trajectoire en mode direct ou indirect (rétro-trajectoire) est une application purement dynamique de l'approche Lagrangienne. Il faut noter cependant que ce type de modèle n'est pas un modèle purement Lagrangien dans le sens où les champs de vent utilisés sont calculés préalablement par un modèle Eulérien météorologique. Il s'agit donc d'une modélisation Lagrangienne *off-line*.

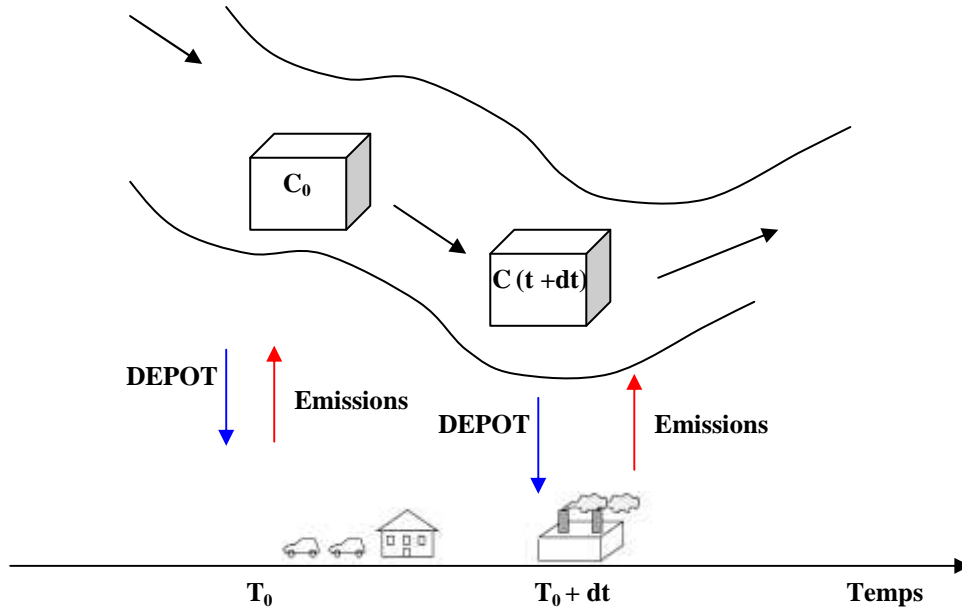


Figure 1.22 : Schématisation de la modélisation en mode Lagrangien d'une parcelle d'air (cube).

Les modèles numériques de type Gaussien, aussi appelés modèles de dispersion passive ou modèle de panache, sont les premiers modèles numériques de pollution à avoir été développés [Seinfeld et Pandis, 1997] afin de prévoir la dispersion d'un panache de fumée industriel. Ils sont un cas particulier des modèles Lagrangien. Dans ce type de représentation, la dispersion du polluant est déterminée par l'Eq. 1.9. Les champs de concentrations du polluant modélisés suivent une loi Gaussienne dont les écarts types  $\sigma$ , dépendent de la distance à la source d'émissions et de la vitesse de transport du polluant.

$$C(x, y, z, t) = \frac{Q}{2\pi^{3/2} \sigma_x \sigma_y \sigma_z} \cdot \exp\left[-\frac{1}{2} \left( \frac{x^2}{\sigma_x^2} + \frac{y^2}{\sigma_y^2} + \frac{z^2}{\sigma_z^2} \right)\right] \quad \text{Eq. (1.9)}$$

Où  $C$  est la concentration du polluant étudié au point  $P$  de coordonnées  $(x, y, z)$ ,  $Q$  ( $\text{kg}\cdot\text{s}^{-1}$ ) le taux d'émission,  $\sigma_x = 2\sqrt{K_x t}$ ,  $\sigma_y = 2\sqrt{K_y t}$ ,  $\sigma_z = 2\sqrt{K_z t}$  et les coefficients  $K$ , les coefficients d'échanges turbulents.

On suppose que le polluant suit l'écoulement de l'air et que sa température, sa densité, sa viscosité et sa concentration ne modifient pas les propriétés de l'air qui l'entoure. Ce type de modèle s'applique :

- lorsque la turbulence et le cisaillement de vent sont faibles,

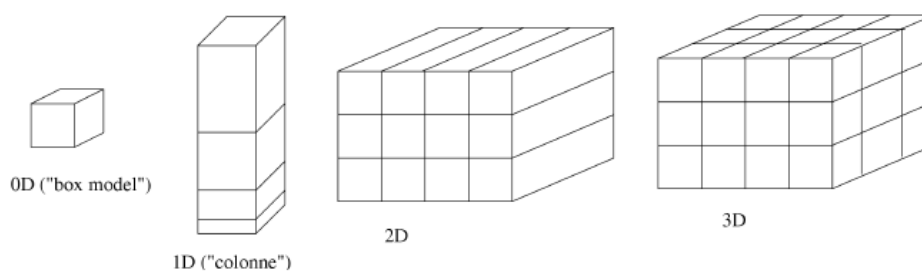
- avec des vents de vitesse constante et non nulle,
- loin de la source d'émission (>100 m),
- sur des terrains plats.

Ce type de modèle est couramment utilisé pour des applications opérationnelles de rejets continus liés à la problématique du risque industriel car il est peu coûteux en temps de calcul. Les résultats sont donc rapidement exploitables après le début de la simulation. Cependant, il reste une représentation très simplifiée de la réalité.

### 1.6.2. Modèle déterministe Eulérien

En situation Eulérienne, le domaine modélisé est fixe dans l'espace. Ce domaine est discrétisé en cellules tridimensionnelles : c'est le maillage. Les équations chimiques et dynamiques sont appliquées afin de simuler les variations de concentrations de différents polluants dans chaque cellule. La configuration du maillage varie en fonction de l'échelle spatiale désirée. La modélisation peut s'effectuer du 0D au 3D. Le 0D prend uniquement en compte la variable  $t$  alors que le 3D comporte l'ensemble des dimensions  $t, x, y, z$  (Figure 1.23).

Le modèle 0D est utilisé pour juger de la pertinence d'une paramétrisation physique ou chimique. De part sa simplicité, le temps étant l'unique variable, il est utilisé largement lors de la manipulation de mécanisme chimique complexe. Le modèle 1D est quand à lui utilisé pour évaluer l'impact d'une paramétrisation sur l'écoulement principal. Il est peu coûteux en calculs mais doit être utilisé lorsque le vent est faible car l'advection n'est pas prise en compte. Le modèle 2D est le moins utilisé des quatre types décrit ci-dessus. La simulation s'effectue sur la verticale et selon l'axe  $x$  ou  $y$  dont le choix est dépendant du vent dominant. Ce type de configuration prend en compte le changement de vitesse du vent et du relief d'une maille à l'autre mais fait l'hypothèse que la direction reste inchangée. Il est adapté à la modélisation de domaine dans lesquels l'écoulement est très contraint (vent de vallée, brise de mer). Enfin, le modèle 3D est la version la plus utilisée mais la plus coûteuse. Il permet de prendre en compte une multitude de paramètres comme par exemple les changements de direction du vent ou le type de sol.



**Figure 1.23 : Exemple des différents maillages Eulériens utilisés : 0D ( $t$ ), 1D ( $t, x$ ), 2D ( $t, x, z$ ) et 3D ( $t, x, y, z$ ).**

Dans les modèles tridimensionnels, les échanges de matière par advection et diffusion se font via les parois des mailles et s'ajoutent à ceux des émissions, des dépôts secs et humides. L'équation appliquée à chaque maille est basée sur la conservation de la masse [Seinfeld et Pandis, 1997] :

$$\frac{\partial C_i}{\partial t} + \nabla u \cdot C_i = \nabla(K(z) \cdot \nabla C_i) + R_i(c_1, c_2, \dots, C_n) + E_i(x, y, z, t) - L_i(x, y, z, t) \quad \text{Eq. (1.10)}$$

où  $C_i$  représente la concentration des espèces  $i$  du mécanisme chimique,  $u$  est le vecteur vent tridimensionnel,  $K(z)$  représente la diffusion verticale,  $R$  la réactivité chimique pour chaque espèce du mécanisme chimique,  $E$  les émissions anthropiques et biogènes et  $L$  la perte d'espèces liée aux dépôts sec et humide.

Hanna et Benjey (2006) considèrent quatre applications principales propres au système de modélisation déterministe Eulérien :

- évaluation opérationnelle avec comparaison des données calculées et des données mesurées sur le terrain (par exemple : ESCOMPTE),
- évaluation de la sensibilité d'une paramétrisation (par exemple : convection profonde),
- intercomparaison de modèles ayant des similarités dans leur formulation théorique mais utilisant des paramétrisations ou une discrétisation spatiale et temporelle différentes,
- évaluation de la sensibilité des données d'entrée sur la qualité des données en sortie de modèle.

Ces diverses applications font de la modélisation Eulérienne un outil largement répandu dans la recherche en physico-chimie de l'atmosphère.

Dans ce travail de thèse, des travaux issus de modèles déterministes tridimensionnels Eulérien et Lagrangien sont présentés. La Figure 1.24 schématise les différents processus représentés dans un système de modélisation Eulérien déterministe classique. Les trois principaux modules (en gris) impliqués dans le système sont les sources de polluants primaires, les mécanismes de transformations physico-chimiques et le transport des espèces chimiques. Ces trois modules sont dépendants de différents processus physico-chimiques représentés en bleu, eux même interagissant entre eux. La multitude des interactions présentes dans la physico-chimie troposphérique montre la complexité du développement des modèles déterministes et les différentes sources d'erreurs potentiellement associées.



De nombreux modèles Eulériens déterministes ont été développés au cours des 15 dernières années. Le Tableau 1.4 décrit les principales caractéristiques des modèles Eulériens les plus utilisés en 2008. Les modèles en italiques comportent un module traitant de la formation et de la réactivité des aérosols. Dans la majorité des modèles la météorologie est traitée *off-line* excepté pour *Meso-NH* [Lafore, 1998] et BOLCHEM [Mircea, 2008] pour lesquels la météorologie est traitée *on-line*.

Il faut noter que de nombreux modèles destinés à la recherche en physico-chimie troposphérique sont développés sous Licence Publique Générale (LPG). Ils sont ainsi accessibles via les sites internet à des groupes de recherche assurant la mise à jour régulière des systèmes. Le libre accès au code du modèle est un point fort car il permet aux différents utilisateurs de faire évoluer le système en permanence tout en partageant les améliorations apportées à celui-ci en contrepartie.

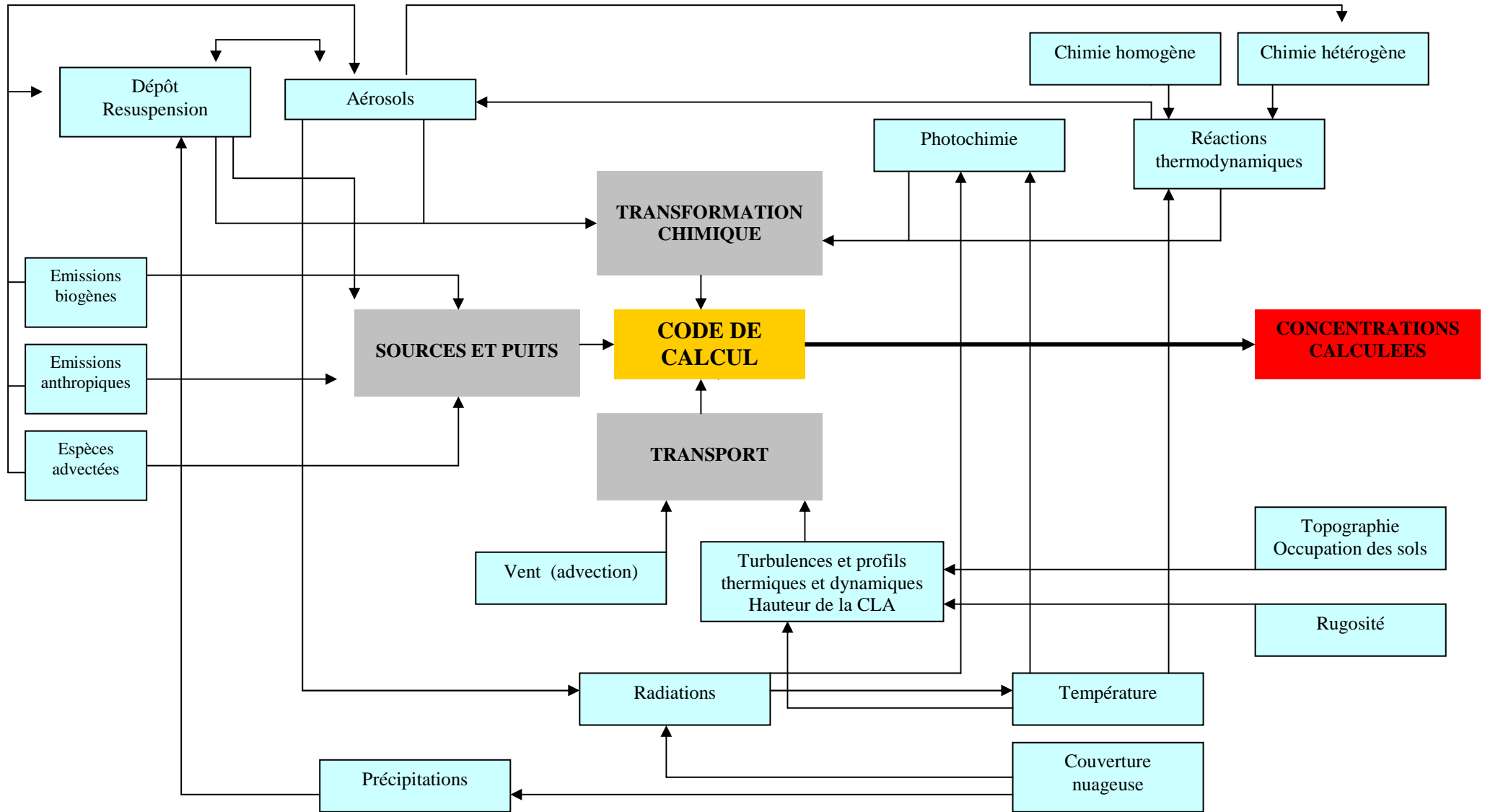


Figure 1.24 : Schématisation des différents processus physico-chimiques modélisés et interagissant au sein du système de modélisation Eulerienne déterministe.

**Tableau 1.4 : Description des modèles Eulériens méso-échelle les plus fréquemment utilisés en modélisation de la qualité de l'air.**

NOM	PLAFOND (km)	SPECIFICATION	REFERENCE
<i>CHIMERE</i>	5 (4-8 couches)	off-line, LPG	[Schmidt <i>et al.</i> , 2001]
<i>POLAIR-3D</i>	5 (4-8 couches)	off-line, LPG	[Boutahar, 2004]
EMEP-MS-C-W	15 (20 couches)	off-line, LPG	(www.emep.int)
REM-CALGRID 3	3 (4-6 couches)	off-line	[Stern, 2006]
MATCH	5 (4-6 couches)	off-line	[Andersson <i>et al.</i> , 2006]
<i>LOTOS-EUROS</i>	3,5 (4 couches)	off-line	[Schaap, 2008]
DEHM	15 (20 couches)	off-line	[Christensen, 1997]
CAMx	8 (8-10 couches)	off-line, LPG	[ENVIRON, 2003]
<i>Model 3-CMAQ</i>	5 (15 couches)	off-line	[Byun, 1999]
REMSAD	5-6 (4-6 couches)	off-line	[Gego <i>et al.</i> , 2006]
RACM	5 (4-6 couches)	off-line	[Stockwell, 1997]
RAQM	5 (4-6 couches)	off-line	[Huang <i>et al.</i> , 1995]
HANK	5-6 (4-6 couches)	off-line	[Hess, 2000]
<i>EURAD</i>	16 (23 couches)	off-line	[Memmesheime, 2004]
<i>LM-MUSCAT</i>	4 (17 couches)	on-line	[Wolke, 2004]
BOLCHEM	5 (8 couches)	on-line	[Mircea <i>et al.</i> , 2008]
MESO-NH	15 (20 couches)	on-line	[Lafore <i>et al.</i> , 1998]

## 1.7. Conclusion

La description des processus conduisant à la formation d'une pollution photochimique et particulaire a montré la complexité des mécanismes chimiques mis en jeu. On observe un grand nombre d'espèces chimiques impliquées dans le développement d'évènements de pollution qui cohabitent dans les basses couches de la troposphère et dont les temps de vie et les concentrations sont très variables. La modélisation de la physico-chimie atmosphérique est un enjeu scientifique majeur dans la compréhension des phénomènes de pollution atmosphérique notamment de part sa flexibilité dans la reproduction de la physico-chimie de l'atmosphère. Une bonne connaissance des émissions anthropiques et biogènes, des paramètres dynamiques de la région NPDC est indispensable en vue de la modélisation de la pollution atmosphérique au niveau de la région NPDC. Des informations à ce sujet seront données dans le deuxième chapitre qui s'attache à caractériser la région NPDC en termes d'émissions polluantes en comparant les différents cadastres disponibles pour cette zone.



## **CHAPITRE 2**

# **CARACTERISATION DE LA ZONE D'ETUDE : SPECIFICITES DES EMISSIONS POLLUANTES ET DE LA DYNAMIQUE**



## INTRODUCTION

Le deuxième chapitre est consacré à caractériser les émissions et le type de pollution rencontrés en région NPDC. Après une brève présentation de la région, il décrit qualitativement et quantitativement, les émissions de cinq polluants clés rencontrés en région NPDC et intervenant dans les mécanismes de formation de la pollution photochimique et particulaire : les NO<sub>x</sub>, les COVNM, le CO, le CH<sub>4</sub> et les TSP<sup>1</sup>. Les données sont issues des inventaires CITEPA, EMEP et régional NPDC dont la gestion est assurée par Atmo-NPDC. Dans le paragraphe 3.2, divers profils temporels régionaux (annuels, hebdomadaires et journaliers) de concentrations en NO<sub>x</sub>, ozone et PM<sub>10</sub> sont comparés aux valeurs moyennes nationales afin de positionner l'intensité de la pollution de l'air rencontrée en région NPDC. Enfin, une troisième partie (paragraphe 3.3) décrit la topographie et les particularités dynamiques rencontrées en région NPDC.

### 2.1. Emissions polluantes en région NPDC

#### 2.1.1. Présentation de la région NPDC

Avec une population de 4 millions d'habitants et plus de 320 hab./km<sup>2</sup>, la région NPDC fait partie des cinq régions Françaises ayant la plus forte densité de population. Cette zone est donc propice aux émissions de polluants primaires liés à une forte activité anthropique. Elle comporte trois zones géographiques distinctes (Figure 2.1) : une région très industrialisée sur la côte au niveau de Dunkerque, une conurbation appelée Lille Métropole regroupant 1,2 millions d'habitants (soit environ 30 % de la population totale) et le reste de la région qui est essentiellement rurale.

La présence d'une façade maritime et des zones fortement urbanisées engendrent deux types de circulations particulières atmosphériques méso-échelles à forçage thermique : l'îlot de chaleur urbain et la brise de mer.

---

<sup>1</sup> Total Suspended Particle



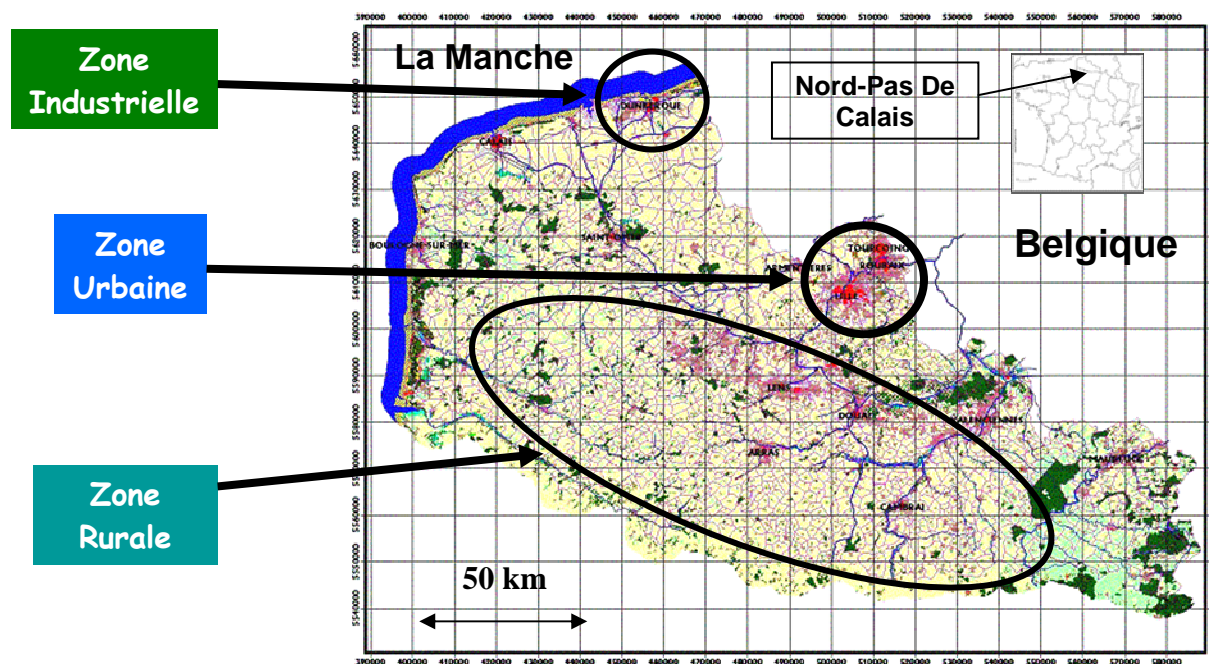


Figure 2.1 : Topographie de la région NPDC (BDcarto/IGN<sup>1</sup>).

### 2.1.2. Les inventaires d'émissions

Connaître les quantités de matière de certaines substances polluantes rejetées dans l'atmosphère et leur localisation est une étape nécessaire et fondamentale à la modélisation de la qualité de l'air et plus généralement à toute politique de protection de l'environnement.

#### *Les bases de l'élaboration d'un inventaire d'émissions*

La quantification des différentes espèces est dénommée usuellement « inventaire d'émissions ». Un inventaire est une base de données, conséquente, des émissions de différentes espèces polluantes pour un territoire identifié. Un inventaire d'émissions doit présenter les qualités suivantes :

- exhaustivité : toutes les sources doivent être renseignées,
- cohérence : la série obtenue sur la période étudiée doit être homogène, impliquant des méthodes identiques et des données homogènes au sein de l'inventaire,
- exactitude : les estimations doivent être aussi exactes que possible compte tenu des connaissances du moment,
- comparabilité : l'inventaire doit être réalisé au moyen d'une méthodologie reconnue et documentée afin d'assurer la comparabilité des résultats,

<sup>1</sup> <http://www.intercarto.com>

- transparence : les méthodes et les données doivent être clairement explicitées pour pouvoir être évaluées lors d'un audit.

Ces qualités facilitent les opérations de validation et de vérification qui consistent à respectivement vérifier que l'inventaire a été réalisé conformément à la méthodologie annoncée et s'assurer que les émissions obtenues sont proches de la réalité.

### *Nomenclatures des sources émettrices*

Les activités anthropiques ou naturelles à l'origine des rejets de diverses substances dans l'atmosphère sont identifiées grâce une nomenclature de référence appelée SNAP (Selected Nomenclature for Air Pollution), normalisée à l'échelle de l'Europe. Le premier niveau de classification de cette nomenclature comporte 11 secteurs. Ces rubriques sont utilisées afin de spécifier l'activité émettrice relative au polluant émis. Par exemple, le SNAP 07 désigne le secteur d'activité des transports. Les rubriques sont présentées dans l'Annexe B-1 du manuscrit.

### *Méthodologie de construction d'un inventaire d'émission*

Tout comme les données météorologiques et les conditions aux limites du domaine, la qualité de l'inventaire des émissions de polluants est primordiale pour la performance du système de modélisation. Les incertitudes concernant les émissions sont fonction de la nature du polluant, de la source, du profil horaire d'émission et sont délicates à estimer.

D'une manière générale, les émissions sont déterminées par application d'un facteur d'émission lié à une production, une demande énergétique ou à un effectif (individus ou animaux). Cependant, les méthodologies varient en fonction des polluants.

Trois principales catégories de sources de rejets atmosphériques sont considérées par la méthodologie d'inventaire.

- Sources linéaires

Elles sont essentiellement constituées par les principaux axes de communications (routiers, fluviales, maritimes et ferroviaires). Elles correspondent aux sources mobiles (complexe à évaluer) et plus rarement aux sources fixes (gazoduc, oléoduc). On note que certaines sources linéaires (SNAP 05) sont parfois assimilées à des sources surfaciques notamment au sein des grandes agglomérations afin de simplifier la méthode d'estimation des émissions. La méthodologie de calcul des émissions

liées aux différents modes de transports utilisé pour le développement d'inventaire d'émission polluantes en France est issue de projet ARTEMIS<sup>1</sup>.

- Grandes Sources Ponctuelles (GSP)

Il s'agit des sources fixes aux émissions canalisées et/ou diffuses dont les rejets potentiels ou effectifs dans l'atmosphère excèdent les seuils d'émissions annuelles réglementés par les autorités publiques nationales (ICPE<sup>2</sup>). Au cours de l'élaboration de l'inventaire régional, plusieurs centaines de grandes sources ponctuelles (exemple : cimenterie, verrerie, production de chaux, raffinerie, centrales électriques) sont étudiées sur la base de données spécifiques. L'objectif final est de répertorier de manière rigoureuse l'ensemble des émissions polluantes présentes sur la zone géographique considérée. Lorsque les émissions sont issues d'une GSP non répertoriée comme ICPE, celles-ci doivent être recalculées en utilisant la méthode des facteurs d'émissions.

- Sources surfaciques

Cette catégorie regroupe les sources fixes non incluses dans la catégorie des Grandes Sources Ponctuelles et, d'autre part, les sources mobiles en particulier liées à la circulation urbaine. Les émissions sont obtenues en comparant un bilan d'énergie locale avec les activités traitées en tant que GSP et sources linéaires. Cette classification vise à assurer la cohérence entre bilan d'énergie et les émissions répertoriées. Elle permet de prendre en compte par paquets des sources homogènes qu'il n'est pas possible de caractériser individuellement (GSP), faute de statistiques disponibles ou de traitements trop lourds à mettre en place.

### *Principes méthodologiques*

Les émissions sont estimées pour chacune des activités émettrices élémentaires retenues pour l'inventaire en considérant séparément s'il y a lieu les différentes catégories de sources (surfaciques, grandes sources ponctuelles et grandes sources linéaires). Les émissions d'une activité donnée sont exprimées par la formule générale et schématique suivante :

---

<sup>1</sup> <http://www.trl.co.uk/artemis>

<sup>2</sup> Installations Classées pour la Protection de l'Environnement

$$\sum E_{s,a,t} = A_{a,t} \times F_{s,a} \quad \text{Eq 2.1}$$

avec

E : émission relative à la substance « s » et à l'activité « a » pendant le temps « t ».

A : quantité d'activité relative à l'activité « a » pendant le temps « t ».

F : facteur d'émission relatif à la substance « s » et à l'activité « a ».

Pour l'ensemble des activités, les émissions totales sont exprimées par la formule suivante :

$$E_{s,t} = \sum_{a=1}^{a=n} E_{s,a,t} \quad \text{Eq 2.2}$$

avec n : nombre d'activités émettrices prises en compte.

On note que n diffère d'un inventaire à un autre. Il faut être conscient de cette possibilité lors de la comparaison des émissions totales de différents inventaires.

#### ► L'inventaire EMEP

L'inventaire EMEP (*European Monitoring and Emission Program*) regroupe les émissions anthropiques et biogènes pour l'ensemble de l'Europe [Vestreng, 2003]. L'inventaire EMEP correspond à une grille de 111 x 132 mailles. Sa résolution spatiale horizontale est de 50 km x 50 km depuis 1997 (Figure 2.2). Les espèces disponibles sont : NO<sub>x</sub>, COV, CO, PM<sub>10</sub> et PM<sub>2,5</sub>. Cette résolution spatiale n'est pas suffisamment fine afin de reproduire sensiblement les épisodes de pollution à l'échelle régionale et locale. Aussi le développement d'inventaires régionaux est d'une très grande utilité pour certaines études spécifiques telles que le projet ESCOMPTE [François *et al.*, 2005] ou lors d'étude à l'échelle régionale.

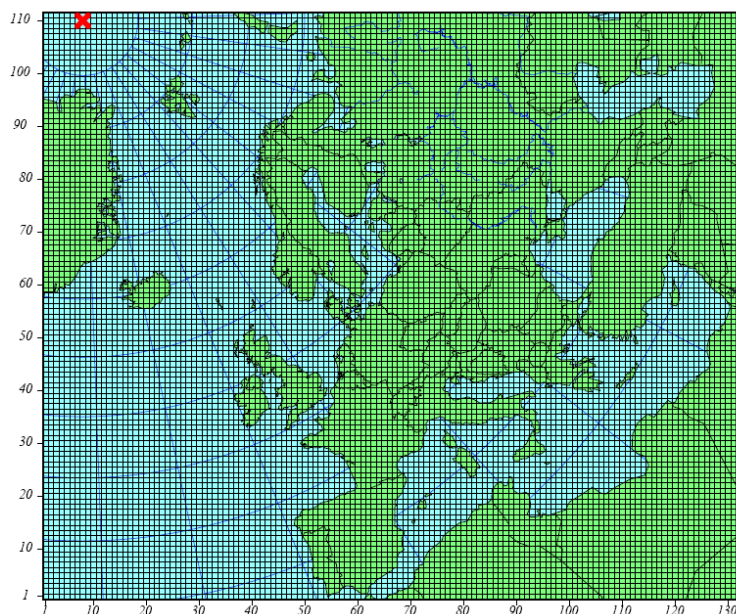


Figure 2.2 : Grille des émissions du cadastre EMEP (mailles 50 x 50 km<sup>2</sup>).

### ► *L'inventaire régional NPDC*

A l'instar de l'inventaire régional de la région Ile-de-France d'Airparif, trois institutions de la région NPDC développent depuis plusieurs années un inventaire de haute résolution spatio-temporelle pour la région NPDC [Martinet, 2004]. Il s'agit de l'école des Mines de Douai, l'AASQA Atmo-Nord-Pas de Calais et de l'équipe de modélisation atmosphérique du laboratoire CNRS - Université Lille 1 PC2A<sup>1</sup>. La zone d'étude comprend l'intégralité de la région NPDC soit une surface de la région est de 12 414 km<sup>2</sup>.

#### *Résolution spatiale et temporelle*

Le choix du degré de résolution est conditionné par plusieurs facteurs : le contexte de l'utilisation de l'inventaire, la disponibilité, le coût ainsi que les incertitudes sur les données et la précision avec laquelle elles sont localisées. Dans le cadre de nos applications, nous avons recherché un maillage des émissions permettant à la fois de ne pas être en présence d'un nombre trop important de petites mailles contenant les mêmes informations et de grosses mailles écrasant une quantité importantes de données. Cette optimisation a été estimée dans le cas de l'inventaire NPDC à 2x2km<sup>2</sup>. L'inventaire est établi pour l'année 2001. Actuellement, le site de Atmo-NPDC<sup>2</sup> propose la version mise à jour pour l'année 2005 de ce même inventaire.

<sup>1</sup> Physico-Chimie des Processus de Combustion et de l'Atmosphère

<sup>2</sup><http://mail.atmo-npdc.fr/atmo/>

### *Polluants disponibles*

Les polluants ont été sélectionnés selon trois objectifs prioritaires : la gestion de la qualité de l'air, son impact sur la santé et la modélisation méso-échelle. Ainsi, un certain nombre de gaz considérés comme précurseurs de la pollution photochimique mais impactant également sur l'effet de serre (CH<sub>4</sub>) sont recensés. Les particules en suspension (TSP) les Polluants Organiques Persistants (POP) et les métaux lourds sont également intégrés à la liste des polluants recensés dans l'inventaire régional NPDC et présentée dans le Tableau 2.1.

**Tableau 2.1 : Liste des espèces répertoriées dans l'inventaire régional NPDC en 2001.**

Type d'espèces	Nom
Gaz	CH <sub>4</sub> , SO <sub>x</sub> , NO <sub>x</sub> , COV, CO, NH <sub>3</sub> et HCl
Particules	Total Suspended Particles (TSP)
Métaux-lourd	mercure, zinc, cadmium, plomb
POP	(PCDD <sup>1</sup> /PCDF <sup>2</sup> )

### *Les principales sources de données*

En France le répertoire SIRENE, tenu à jour par l'Institut National de la Statistique et des Etudes Economiques (INSEE). Elle recense par entreprise toutes les activités économiques existant sur le territoire français. La base de données de l'INSEE est utilisée en vue d'une approche surfacique de la caractérisation de certaines sources d'émission. En ce qui concerne le format de restitution des données, le format SECTEN est utilisé. Le format SECTEN proposé par le CITEPA est présenté dans l'Annexe B-2. L'Annexe B-3 quant à elle détaille la correspondance entre les secteurs SNAP et SECTEN.

#### ● **Energie et industrie**

Ce secteur regroupe la combustion dans les industries de production de l'énergie et de la transformation de l'énergie, la combustion dans l'industrie manufacturière, les procédés de production, l'extraction et la distribution de combustibles fossiles et d'énergie géothermique, le traitement et l'élimination des déchets ainsi que l'utilisation de solvants et autres produits.

Les données utilisées pour ce secteur proviennent de deux sources principales. D'une part, un fichier des installations soumises à la Taxe parafiscale sur les Activités polluantes (TGAP) disponible auprès de la Direction Régionale de l'Industrie, de la Recherche et de l'Environnement (DRIRE). D'autre part, un fichier concernant les Enquêtes Annuelles sur les Consommations d'Energie dans

<sup>1</sup> polychlorodibenzodioxines

<sup>2</sup> polychlorodibenzofuranes

l'Industrie (EACEI) disponible auprès du ministère de l'Economie, de l'Industrie et de l'emploi et du Ministère de l'Agriculture et de la Pêche. Ces deux sources d'informations s'articulent autour du fichier SIRENE.

#### • **Résidentiel et Tertiaire**

Les émissions de ce secteur concernent uniquement les combustions hors industrie. Elles sont engendrées par le chauffage et la production d'eau chaude sanitaire des logements, la cuisson, l'utilisation d'équipements électriques ainsi que par différentes branches du secteur tertiaire. Dans la version de l'inventaire utilisée pour les travaux de thèse, les usages concernant la cuisson et les équipements électriques n'ont pas été pris en compte. Deux bases de données sont nécessaires à l'établissement de ces émissions : le fichier « Détail logements » édité par l'INSEE, issu du recensement de la population française et une base de ratios de consommation d'énergie synthétisée par l'Agence de l'Environnement et de la Maîtrise de l'Energie (ADEME). Pour le secteur tertiaire, associé à SIRENE, des fichiers supplémentaires sont nécessaires à la caractérisation des émissions de certaines branches que sont l'éducation, la santé et les habitats communautaires. Le traitement des données des sources résidentielles comme tertiaires s'effectue en général de manière surfacique à l'exception faite des émissions liées aux réseaux de chaleur qui sont comptabilisées à la source, au niveau des grosses centrales de production. Celles-ci sont décomptées des bilans de l'énergie afin d'éviter tout double comptage dans l'inventaire.

#### • **Transports**

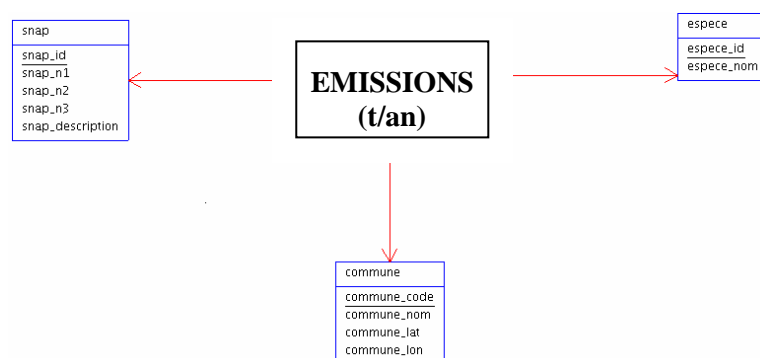
Les réseaux de transport recensés dans les inventaires sont les réseaux routiers, fluviaux, maritimes, ferroviaires et aériens. Plusieurs bases de données sont nécessaires à l'établissement des données issues du secteur transport. Les données spatiales recensant les axes de transports contenus dans Géoroute (base de données IGN), des données de trafic issues des Directions Départementales de l'Équipement (DDE) et du Comité des Constructeurs Français d'Automobiles (CCFA) ainsi qu'une évaluation précise du parc automobile. Les méthodologies utilisées pour les calculs proviennent des projets COPERT III et MEET.

#### • **Biogènes et autres**

Les bases de données de ce secteur sont très diverses. Les émissions dues aux activités agricoles, aux traitements des déchets ainsi que les sources et les puits liés à un couvert végétal naturel sont répertoriées. Deux fichiers sont utilisés de manière récurrente. Le recensement agricole Agreste (Service Statistique du Ministère de l'Agriculture) pour la branche agriculture et l'occupation du sol Corine Landcover géré pour la France par l'Institut Français de l'Environnement (IFEN). L'inventaire régional 2001 n'intègre pas les émissions biogènes.

### Architecture de la base de données

La base de données de l'inventaire régional installée au PC2A est gérée par langage *SQL*. Son architecture est composée de 4 clés primaires (Figure 2.3) : les émissions, le code SNAP, les espèces polluantes et la localisation géographique des communes. Chaque émission est spécifiée en fonction d'un polluant, d'un code SNAP et d'une commune permettant la géolocalisation de celle-ci. Ainsi, pratiquement, nous disposons pour chaque polluant de la base de données, d'une valeur d'émissions (t/an) répertoriés en fonction du niveau SNAP et de l'une des communes de la région NPDC. Nous précisons que lors de la phase de maillage, chaque donnée d'émission est attribuée à la maille lui correspondant géographiquement.



**Figure 2.3 : Architecture de la base de données de l'inventaire d'émissions anthropiques régionales NPDC sous PostgreSQL.**

A titre d'exemple, le Tableau 2.2 regroupe les trois communes de la région NPDC les plus émettrices de NO<sub>x</sub>, NMVOC, de particules en suspension totales pour l'année 2001. Les NO<sub>x</sub> sont principalement émis par le complexe industriel côtier situé à Dunkerque et sur les communes limitrophes (7695 t/an). Pour les COVNM, les émissions sont partagées entre la zone industrielle de Dunkerque (3585 t/an) et l'agglomération de Lille (3555 t/an). Enfin, les émissions de particules (masse totale) sont principalement d'origine industrielle (Grande-Synthe avec 1839 t/an et Boulogne avec 1331 t/an). Dans tout les cas le secteur industriel est majoritaire pour ces trois polluants.



**Tableau 2.2 : Les trois communes les plus émettrices en NO<sub>x</sub>, COVNM et particules en suspension issues de l'inventaire régional.**

<b>Emission totale NO<sub>x</sub> (t/an)</b>		
Communes	Emissions	Localisation (lat-long)
Grande Synthe	7695	51.01°N 2.28°E
Calais	4317	50.95°N 1.83°E
Dunkerque	3703	51.04°N 2.37°E

<b>Emission totale NMCOV (t/an)</b>		
Communes	Emissions	Localisation (lat-long)
Dunkerque	3585	51.04°N 2.37°E
Lille	3555	50.63°N 3.06°E
Douai	1994	50.37°N 3.07°E

<b>Emission totale particules (t/an)</b>		
Communes	Emissions	Localisation (lat-long)
Grande Synthe	1839	51.01°N 2.28°E
Boulogne sur mer	1331	50.72°N 1.62°E
Lille	818	50.63°N 3.07°E

### ***Intégration de l'inventaire régional au sein de CHIMERE***

L'intégration de l'inventaire régional NPDC consiste à remplacer chaque maille de l'inventaire EMEP couvrant la région NPDC par les données de plus fine résolutions spatiale de l'inventaire régional. Techniquement, elle se traduit par l'implémentation du module *cadastre.py*, encadré en rouge sur la Figure 2.4, au sein du module traitant des émissions (*emiEMEP*) au sein de CHIMERE.

La Figure 2.4 présente le module *cadastre.py* développé durant les travaux de recherche et permettant l'intégration de l'inventaire régional de la région NPDC au sein de CHIMERE. Le module *cadastre.py* utilise en entrée des fichiers d'émissions produits par *emiEMEP* à partir des données brutes de l'inventaire EMEP. Il substitue alors les valeurs des mailles EMEP couvrant la région NPDC par les valeurs des mailles fines de l'inventaire régional. Les données concernant les TSP provenant de l'inventaire régional sont spécifiées en PM<sub>10</sub> et PM<sub>2,5</sub> lorsqu'elles sont intégrées au sein des fichiers EMISSIONS utilisés par CHIMERE. Les coefficients appliqués sont de 0,8 pour les PM<sub>10</sub> et de 0,56 pour les PM<sub>2,5</sub> (Seinfeld et Pandis, 1997). Ses valeurs sont celles recommandées à partir de l'analyse des spectres de répartitions par masse.

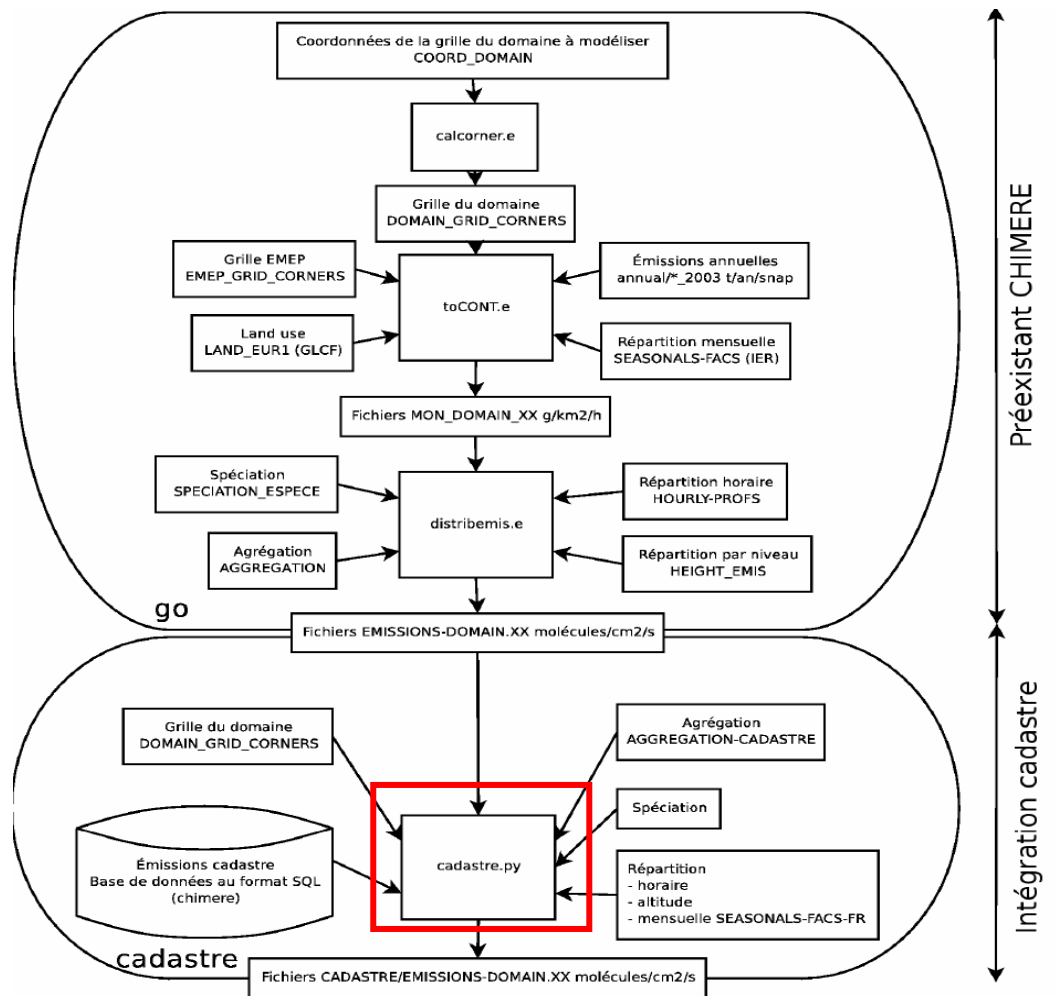


Figure 2.4 : Modification du module emiEMEP de la V200511B de CHIMERE permettant l'utilisation des données de l'inventaire régional pour la production des fichiers d'émissions anthropiques.

La Figure 2.5 résume les différentes étapes permettant d'obtenir une valeur d'émission pour chaque maille d'un domaine CHIMERE à partir d'une valeur brute issue de l'inventaire EMEP. L'étape initiale consiste à intégrer les données recueillies via les institutions publiques ou directement auprès des industries émettrices de polluants sous une base de données utilisant le langage SQL. La deuxième étape correspond à l'application des coefficients (SNAP, mensuel, horaire, hauteur d'émission) pour chaque valeur d'émission brute de chaque espèce. Enfin, la dernière étape correspond à la spéciation et à l'agrégation des espèces réelles en espèce modèles. Son but est d'obtenir une valeur d'émission anthropique pour chaque espèce du mécanisme chimique du modèle en chaque point de la grille. Les coefficients de spéciation et d'agrégation utilisés pour traiter les données brutes de l'inventaire EMEP et régionales sont détaillés dans le troisième chapitre.

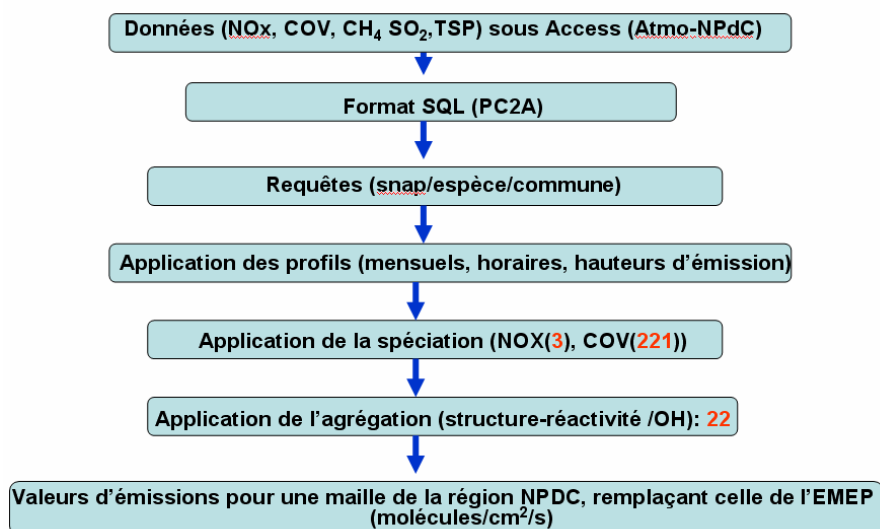


Figure 2.5 : Schéma d'intégration des espèces anthropiques issues de l'inventaire régional NPDC.

### Visualisation graphique des données

L'utilisation d'un Système d'Information Géographique (SIG) permet de visualiser spatialement les émissions géoréférencées dans l'inventaire régional. Le principe de l'application est de projeter les sources d'émissions décrites dans l'inventaire régional. De plus, il est possible de mailler la carte afin d'obtenir différentes résolutions. Dans ce cas, chaque émission est interpolée spatialement dans les mailles de la grille qui aura été choisie. La Figure 2.6 présente les émissions anthropiques en NO<sub>x</sub> issues de l'inventaire régional NPDC avec un maillage de 1 x 1 km. Nous observons que les émissions en NO<sub>x</sub> sont localisées le long des grands axes routiers (autoroutes) et au niveau des grandes agglomérations tel que Lille, Valenciennes, Dunkerque, Maubeuge mais également Lens, Arras et Douai.

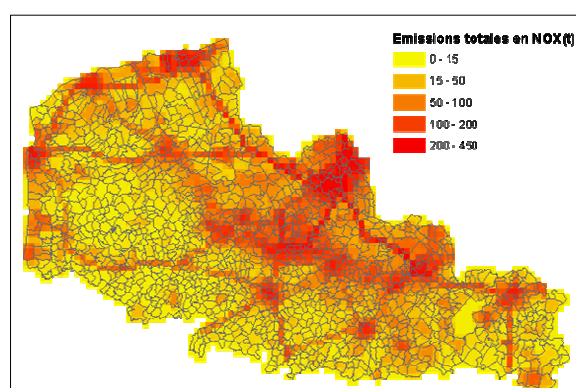


Figure 2.6 : Émissions totales annuelles en NO<sub>x</sub> pour la région NPDC (inventaire régional 2001 : résolution 2 x 2 km<sup>2</sup>).

Le couplage des inventaires NPDC d'une part et EMEP d'autre part génère des cartes des champs de concentrations sensiblement différents. Les cartes de la Figure 2.7 représentent les résultats

d'une modélisation des PM<sub>10</sub> en mode diagnostique pour la journée du 03/09/2004 à 01h UTC avec les données issues de l'inventaire EMEP ou régional. On observe une meilleure résolution de la localisation des concentrations en PM<sub>10</sub> liée notamment au fait que les industries de la région NPDC sont mieux géolocalisées dans l'inventaire régional.

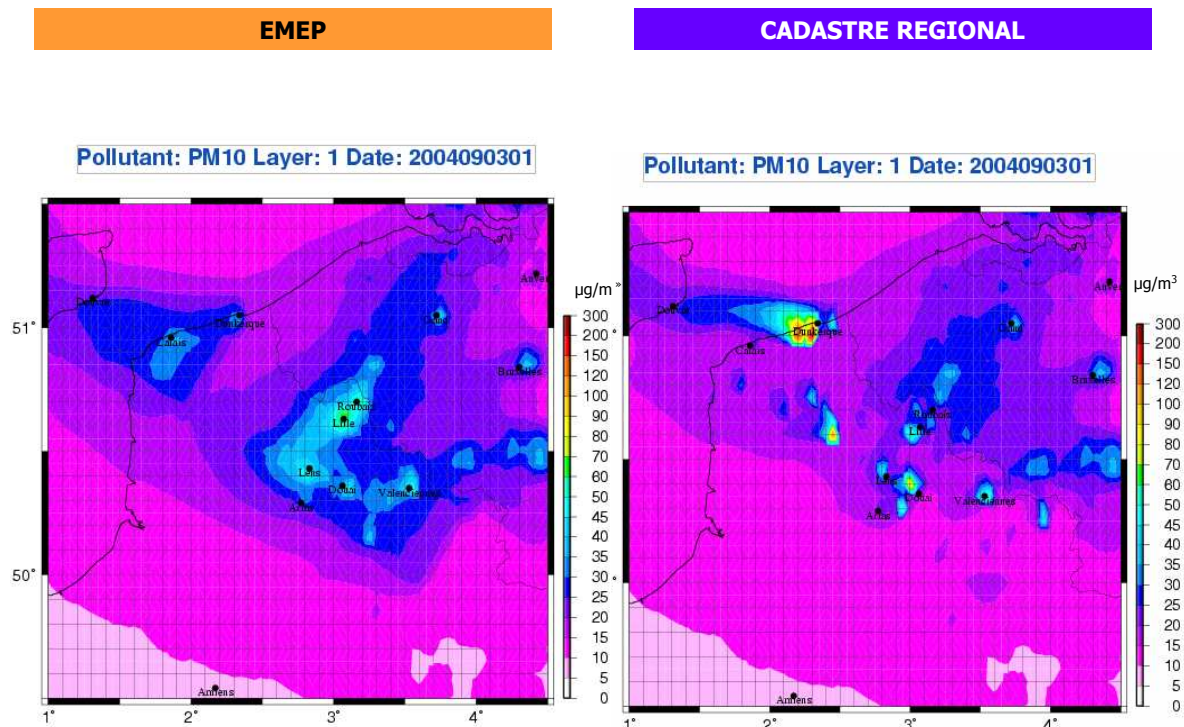


Figure 2.7 : Cartes des champs de concentrations en PM<sub>10</sub> calculées avec le système MM5-CHIMERE pour la journée du 03/09/2004 à 01h UTC avec les données issues de l'inventaire EMEP (à gauche) et régional (à droite).

Les premiers tests concernant l'intégration des données de l'inventaire régional au sein de CHIMERE ont été réalisés au cours de la thèse. Les résultats obtenus sont présentés dans le quatrième chapitre de ce mémoire. Cependant, certaines espèces de l'inventaire régional utilisé dans le cadre de la thèse sont partiellement renseignées. Les principales lacunes de l'inventaire concernent le manque de données pour les SNAP 1, 7 et 11 et le renseignement incomplet des émissions de particules de type PM<sub>10</sub> et PM<sub>2,5</sub>. Les résultats de concentrations de polluants issues de l'utilisation de l'inventaire régional sont donc à interpréter avec précaution. Une version 2007 de l'inventaire régional (données 2005) est disponible auprès de Atmo-NPDC qui assure à présent la mise à jour de l'inventaire régional. Avec l'intégration de la version 2005 l'inventaire régional au sein de CHIMERE, nous nous attendons à une amélioration de l'accord entre les valeurs des champs de concentrations calculées et ceux mesurées, notamment, grâce par exemple au renseignement actualisé des émissions liées à la SNAP 7 au sein de l'inventaire.

### *Perspectives d'optimisation au PC2A*

Le laboratoire PC2A travaille actuellement sur l'optimisation de l'inventaire régional NPDC en vue de son utilisation pour la modélisation atmosphérique. Deux thématiques sont privilégiées :

- Le développement d'une méthode basée sur des logiciels LPG (PostgreSQL<sup>1</sup>) permettant l'actualisation quasi-automatisée des données de l'inventaire de la région Nord-Pas de Calais.
- L'optimisation du module *cadastre.py* en langage *python*<sup>2</sup>. Il a été initialement développé au PC2A. Il permet de formater les données issues de l'inventaire régional afin de substituer, dans les fichiers d'émissions, les données EMEP de la région NPDC par les données régionales.

### **2.1.3. Comparaison et analyse critique de différents inventaires pour le NPDC**

Afin d'effectuer une analyse critique des émissions de la région NPDC nous avons répertorié et comparé les données issues de quatre inventaires pour cinq espèces polluantes : NO<sub>x</sub>, COVNM, CO, CH<sub>4</sub> et TSP. Le format de restitution sélectionné est le format SECTEN.

Les inventaires utilisent les principes de construction décrits précédemment. Les données globales françaises sont issues de l'inventaire national CITEPA. Pour les inventaires de la région NPDC les données sont issues : du CITEPA, de Atmo-NPDC et de EMEP.

Les données EMEP ont été constituées en additionnant l'ensemble des valeurs des mailles situées sur la région NPDC. Elles sont valables pour l'année 2004. Pour les mailles situées à la fois sur la région NPDC et les autres régions ou pays nous utilisons uniquement les mailles dont plus de 50 % de la surface appartient à la région NPDC. La valeur de la totalité de la maille divisée par deux est incluses dans le total des émissions du NPDC. Les émissions EMEP sont classées par rubrique SNAP. Nous avons ainsi adapté cette classification grâce à la table des correspondances (Annexe B-3) entre rubriques SNAP et secteurs SECTEN. Les données EMEP 2004 sont celles que nous utilisons pour la modélisation.

Les données CITEPA sont valables pour l'année 2000. Cette année a été choisie car l'inventaire national du CITEPA régionalisé pour le NPDC est uniquement disponible pour cette année.

Les données Atmo-NPDC ont été mises à jour en 2005. Les résultats sont répertoriés dans les tableaux 2.3 à 2.7.

D'une manière générale nous observons des valeurs d'émissions issues de l'inventaire EMEP inférieures à celles de l'inventaire régional NPDC du CITEPA et de Atmo-NPDC.

---

<sup>1</sup> <http://www.postgresql.org/>

<sup>2</sup> <http://www.python.org/>

**Tableau 2.3 : Emissions (t/an) en NOx par secteur SECTEN pour la France et la région NPDC selon différents inventaires d'émissions.**

NOx (t/an)	CITEPA	CITEPA	Atmo-NPDC	EMEP-NPDC
	France (2000)	NPDC (2000)	NPDC (2005)	NPDC (2004)
Transport routier	732 302	37 099	30 240	27 003
Résidentiel/Tertiaire	95 826	6 296	6265	4 560
Transformation d'énergie	151 769	9 887	9 746	12 537
Industrie manufacturière	157 207	22 902	28 955	14 057
Autres transport	66 091	2 650	5 512	8 104
Agriculture et sylviculture	186 751	5 801	4 358	1 952
Sources biotiques	1 769	8	10	0
<b>TOTAL</b>	<b>1 391 715</b>	<b>84 643</b>	<b>85 089</b>	<b>68 213</b>

**Tableau 2.4: Emissions (t/an) en COVNM par secteur SECTEN pour la France et la région NPDC selon différents inventaires d'émissions.**

COVNM (t/an)	CITEPA	CITEPA	Atmo-NPDC	EMEP-NPDC
	France (2000)	NPDC (2000)	NPDC (2005)	NPDC (2004)
Transport routier	492 746	27 820	18 499	14 952
Résidentiel/Tertiaire	357 390	19 453	20 519	6 967
Transformation d'énergie	93 440	6 416	1 521	671
Industrie manufacturière	507 414	34 289	34 282	1321
Autres transport	41 410	1 887	436	4 065
Agriculture et sylviculture	169 468	4 396	4 467	3 257
Sources biotiques	1 284 274	5 945	5 487	0
<b>TOTAL</b>	<b>2 946 142</b>	<b>100 203</b>	<b>85 213</b>	<b>31 233</b>

**Tableau 2.5 : Emissions (t/an) en CO par secteur SECTEN pour la France et la région NPDC selon différents inventaires d'émissions.**

CO (t/an)	CITEPA	CITEPA	Atmo-NPDC	EMEP-NPDC
	France (2000)	NPDC (2000)	NPDC (2005)	NPDC (2004)
Transport routier	2 779 746	160 530	47 066	113 624
Résidentiel/Tertiaire	1 718 765	71 113	149 273	61 742
Transformation d'énergie	45 524	1 802	103	7 638
Industrie manufacturière	1 588 999	577 823	91 571	217 272
Autres transport	129 661	5 889	2 409	15 183
Agriculture et sylviculture	431 542	14 567	95 111	0
Sources biotiques	30 890	0	0	0
<b>TOTAL</b>	<b>6 725 127</b>	<b>831 724</b>	<b>385 536</b>	<b>415 459</b>

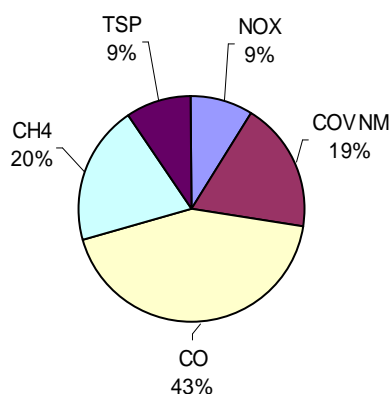
**Tableau 2.6 : Emissions (t/an) en CH<sub>4</sub> par secteur SECTEN pour la France et la région NPDC selon différents inventaires d'émissions.**

CH <sub>4</sub> (t/an)	CITEPA	CITEPA	Atmo-NPDC	EMEP-NPDC
	France (2000)	NPDC (2000)	NPDC (2005)	NPDC (2004)
Transport routier	28 853	1 701	11 869	0
Résidentiel/Tertiaire	157 624	6 735	2 309	0
Transformation d'énergie	215 092	8 549	759	0
Industrie manufacturière	586 279	44 512	15 237	0
Autres transport	232	8	9	0
Agriculture et sylviculture	2 016 867	73 737	71084	0
Sources biotiques	160 108	2 661	202	0
Puit	32 521	191	0	0
<b>TOTAL</b>	<b>3 197 576</b>	<b>138 094</b>	<b>101 473</b>	<b>0</b>

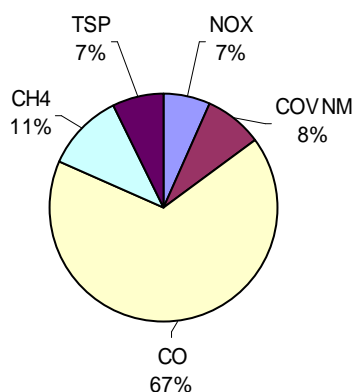
**Tableau 2.7 : Emissions (t/an) en TSP par secteur SECTEN pour la France et la région NPDC selon différents inventaires d'émissions.**

TSP (t/an)	CITEPA	CITEPA	Atmo-NPDC	EMEP-NPDC
	France (2000)	NPDC (2000)	NPDC (2005)	NPDC (2004)
Transport routier	115 919	5 820	2 051	717
Résidentiel/Tertiaire	157 624	6 735	8366	89
Transformation d'énergie	215 092	8 549	2667	817
Industrie manufacturière	586 279	44 512	6471	1000
Autres transport	11 005	477	246	425
Agriculture et sylviculture	553 242	23 332	7946	3689
Sources biotiques	30 313	0	0	0
<b>TOTAL</b>	<b>1 482 584</b>	<b>91 532</b>	<b>27 747</b>	<b>6 737</b>

La Figure 2.8 et la Figure 2.9 permettent de visualiser la part des émissions de cinq polluants clés (NO<sub>x</sub>, COVNM, CH<sub>4</sub>, CO et TSP) respectivement au niveau de la France et de la région NPDC. Dans les deux cas, l'émission de CO provenant de la combustion des énergies fossiles est majoritaire mais largement plus intense pour la région NPDC (67 %) qu'au niveau national. (43 %). Les fortes émissions en CO témoignent de la présence d'un intense tissu industriel au niveau de la région NPDC. Les trois autres polluants sont répartis assez équitablement pour la région NPDC (CH<sub>4</sub>: 11%, COVNM : 8%, NO<sub>x</sub> : 9%, TSP : 9%).



**Figure 2.8 : Émissions (%) de cinq polluants primaires clés pour la France issues de l'inventaire CITEPA (2000).**



**Figure 2.9 : Émissions (%) de cinq polluants primaires clés pour la région NPDC issues de l'inventaire CITEPA (2000).**

Afin de connaître la nature des sources de polluants spécifiques à la région NPDC, nous comparons individuellement les secteurs sources régionaux à ceux nationaux pour chaque polluant répertorié. Nous avons représenté graphiquement les émissions de différents polluants par secteur SECTEN pour la France et la région NPDC.



- *NOx*

La Figure 2.10 fait apparaître le caractère industriel des émissions de la région NPDC par rapport au reste de la France. Selon le rapport d'inventaire national du CITEPA, la part des émissions de NOx provenant du secteur industriel est deux fois plus élevées au niveau de la région NPDC (28%) en comparaison de la moyenne nationale (12%). Toujours d'après le CITEPA, en 2000, le secteur des transports, quant à lui, est sans conteste le premier émetteur de NOx en France et en région NPDC avec respectivement 51 et 44 % de part d'émission total des NOx. La répartition des émissions de NOx par secteur d'activité de l'inventaire EMEP est comparable aux autres inventaires régionaux. Nous constatons également que selon les données de l'inventaire Atmo-NPDC la part d'émission provenant du secteur industriel est plus importante (34 % contre 27 % pour la valeur du CITEPA). Le total d'émissions reste quasi inchangées (84 643 t/an pour CITEPA-NPDC et 85 089 t/an pour Atmo-NPDC). La valeur totale de l'inventaire EMEP est inférieure avec 68 213 t/an.

- *COVNM*

La Figure 2.11 confirme l'importance du tissu industriel de la région NPDC au niveau des émissions de COVNM. Alors que l'inventaire national CITEPA indique que les émissions en COVNM sont principalement biogènes (44 %), les inventaires régionaux CITEPA et Atmo-NPDC évaluent le secteur industriel comme majoritaire pour les émissions de COVNM (35 % et 40 % respectivement). L'inventaire EMEP quant à lui estime que le secteur des transports est majoritaire (49 %) alors que le secteur industriel occupe une part infime des émissions (4%). Cette donnée est plutôt surprenante et apparaît comme un point de désaccord entre l'inventaire EMEP et les deux autres inventaires régionaux.

- *CO*

La Figure 2.12 montre encore une fois l'importance du secteur industriel pour les émissions polluantes. Il est le secteur majoritaire pour les émissions en CO selon le CITEPA (69 %) et EMEP (52%). En revanche, l'inventaire Atmo-NPDC considère trois sources principales pour le CO : industrie (24 %), résidentiel/tertiaire (38 %) et agriculture/sylviculture (25 %). Ceci constitue une deuxième différence notable entre l'inventaire Atmo-NPDC et les deux autres inventaires.

- *TSP*

La Figure 2.13 montre que selon le CITEPA, les émissions en TSP de la région NPDC proviennent majoritairement du secteur industriel (59%). En revanche, les inventaires régionaux Atmo-NPDC et EMEP montrent que trois secteurs sont majoritaires pour les émissions de TSP : le secteur agriculture et sylviculture (29 et 31 % respectivement), le secteur résidentiel/tertiaire (30 et 26 % respectivement) et le secteur industriel (23 et 16 % respectivement). Pour les TSP, nous constatons une forte disparité des différents secteurs sources en fonction de l'inventaire régional considéré. Une

telle divergence est engendrée par le fait que dans le cas de l'inventaire CITEPA, le terme TSP regroupe uniquement les émissions primaires alors que d'autres types de sources tel que les resuspensions agricoles ou les émissions issus des travaux publics dans le bâtiment sont prises en compte dans les autres inventaires. On note enfin les incertitudes liées aux facteurs d'émissions des TSP et autres familles de particules comporte de forte incertitudes (quelques dizaine de % à près de 100 % selon les sources) à l'heure actuelle.

- $CH_4$

La Figure 2.14 présente uniquement trois graphiques car l'inventaire EMEP ne répertorie pas les émissions de  $CH_4$ . Selon les inventaires régionaux, la majorité des émissions en  $CH_4$  proviennent du secteur agriculture et sylviculture (54 % pour le CITEPA et 70 % pour Atmo-NPDC contre 63 % au niveau national). La part des émissions industrielles est plus importante en région NPDC qu'au niveau national (32 % pour le CITEPA) et (15% pour Atmo-NPDC) ce qui rend compte de son caractère industriel.

En résumé, l'analyse des sources de polluants de la région NPDC désigne le secteur industriel pour les  $NO_x$  et le secteur routier pour les COV comme majoritaires en terme d'émissions polluantes. Pour ces deux polluants la part des émissions provenant du secteur industriel est deux à trois fois supérieure aux données nationales.

L'inventaire EMEP considère le secteur des transports, de la région NPDC, comme majoritaire pour les émissions en COVNM. La part des émissions provenant de ce secteur est deux fois supérieure aux valeurs nationales. Ceci rend compte de l'importance du trafic routier traversant la région. En effet, en plus d'un réseau routier local très dense, la région NPDC se situe au centre du triangle de trafic international Londres – Paris – Bruxelles.

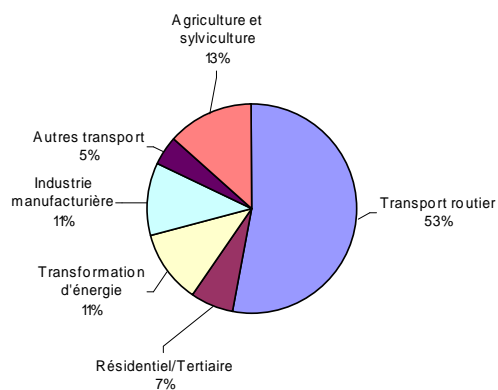
Pour le CO, les TSP et le  $CH_4$  les valeurs varient fortement d'un inventaire à l'autre.

Pour le CO, l'inventaire Atmo-NPDC voit une contribution du secteur résidentiel/tertiaire plus importante (38 %) que les inventaires EMEP (15 %) et du CITEPA (9 %) pour lesquels le secteur industriel est largement majoritaire.

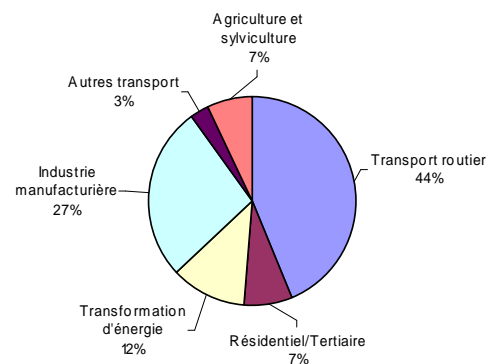
Pour les TSP, l'inventaire CITEPA régional désigne le secteur industriel comme largement majoritaire (59%) alors que les inventaires Atmo-NPDC et EMEP désignent une répartition équitable des émissions selon trois secteurs : agriculture et sylviculture, résidentiel/tertiaire et industriel.

Enfin pour le  $CH_4$ , dans les deux cas (Atmo-NPDC et CITEPA) le secteur agriculture/sylviculture est largement majoritaire démontrant ainsi une assez forte activité agricole au niveau de la région. L'inventaire Atmo-NPDC montre une augmentation de 7 % de la contribution du secteur agriculture/sylviculture par rapport aux données nationales alors que pour l'inventaire CITEPA régional une augmentation de 13 % est attribuée au secteur industriel.

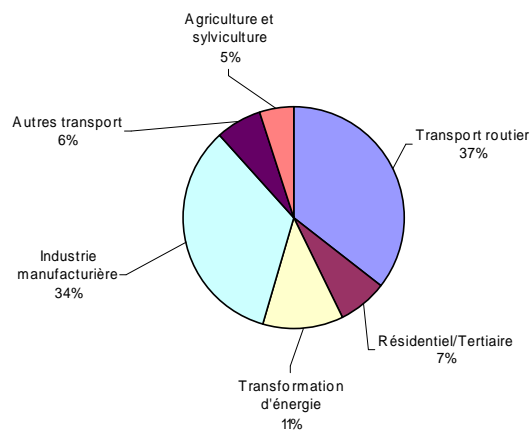
Une des explications à ces différences est liée au fait, que les années de mise à jour des inventaires sont différentes. De plus, les différentes approches méthodologiques entre les inventaires CITEPA et EMEP expliquent aussi la différence entre les données. Enfin, les données sont plus ou moins précises en fonction des sources considérées (sources liées au transport).



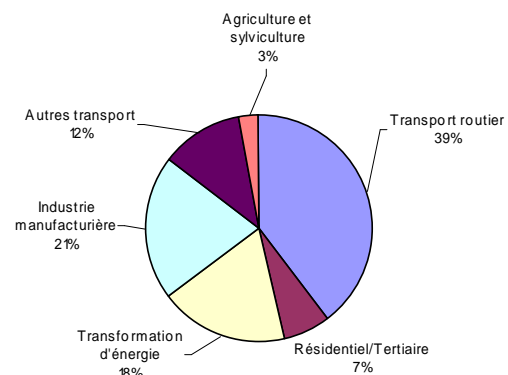
**CITEPA (France - 2000)**



**CITEPA (NPDC - 2000)**

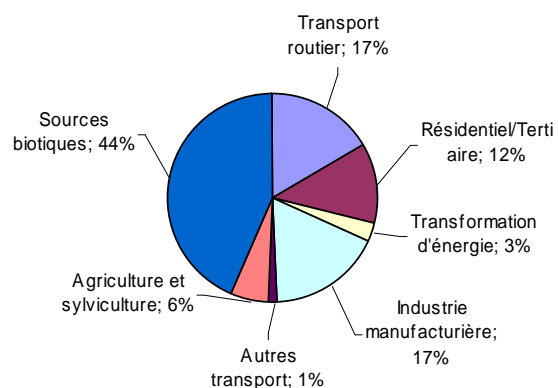


**Atmo-NPDC (NPDC - 2005)**

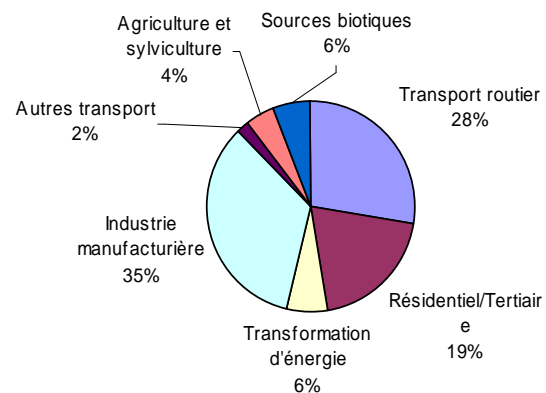


**EMEP-NPDC (NPDC - 2004)**

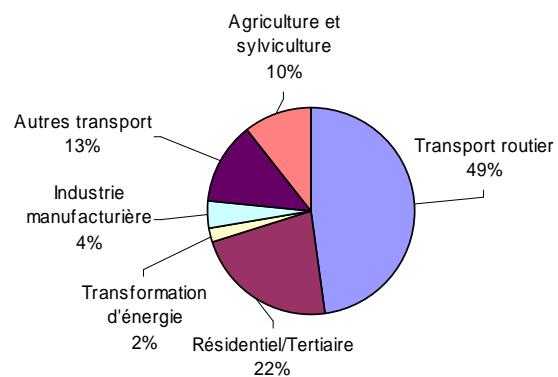
**Figure 2.10 : Part des émissions (%) en NOx par secteurs d'activités pour la France et la région NPDC issues de l'inventaire CITEPA, Atmo-NPDC et EMEP.**



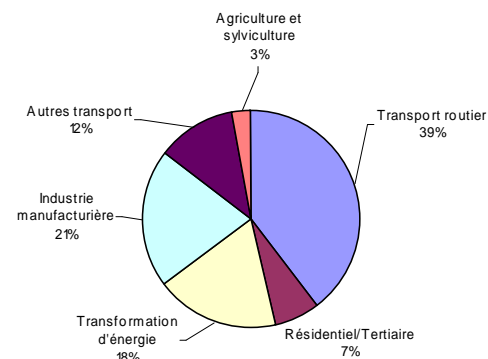
**CITEPA (France - 2000)**



**CITEPA (NPDC - 2000)**

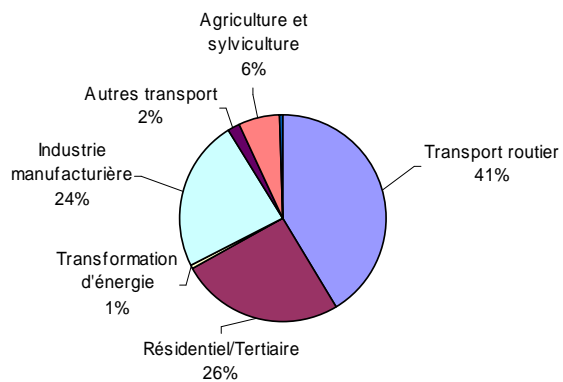


**Atmo-NPDC (NPDC - 2005)**

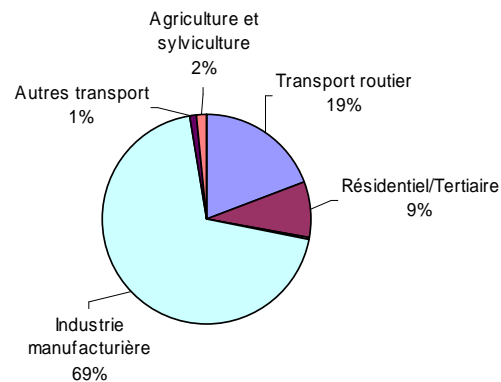


**EMEP-NPDC (NPDC - 2004)**

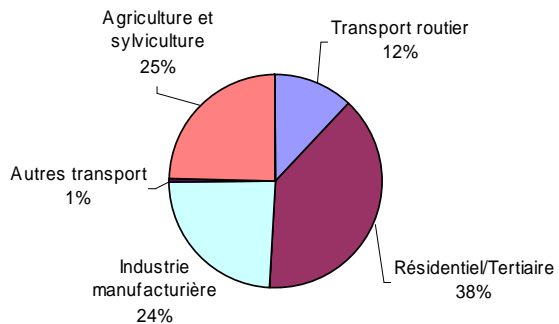
**Figure 2.11 : Part des émissions (%) en COVNM par secteurs d'activités pour la France et la région NPDC issues de l'inventaire CITEPA, Atmo-NPDC et EMEP.**



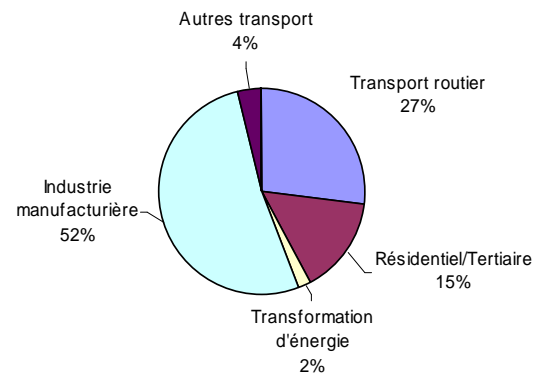
**CITEPA (France - 2000)**



**CITEPA (NPDC - 2000)**

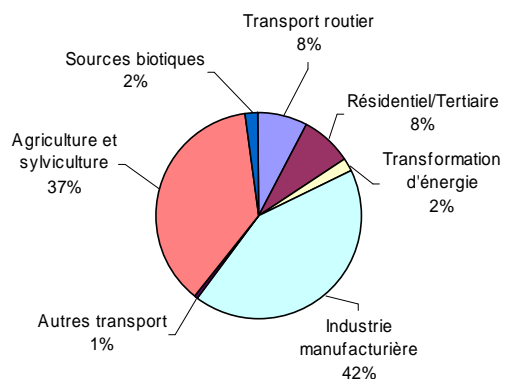


**Atmo-NPDC (NPDC - 2005)**

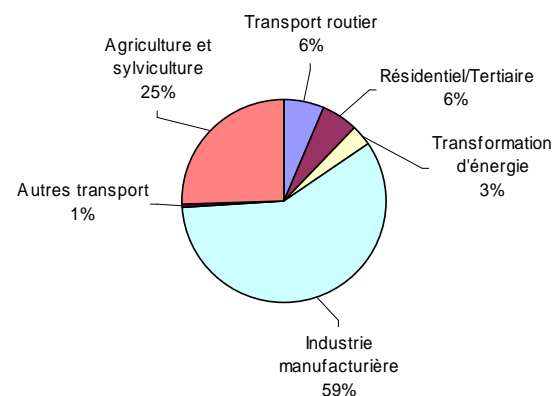


**EMEP-NPDC (NPDC - 2004)**

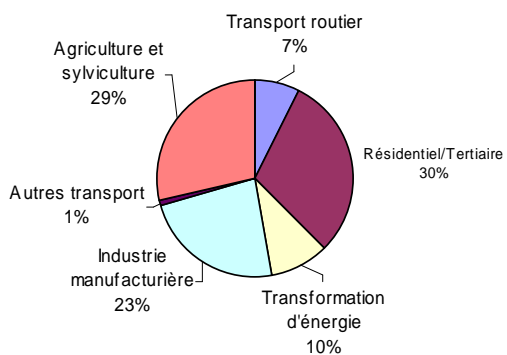
**Figure 2.12 : Part des émissions (%) en CO par secteurs d'activités pour la France et la région NPDC issues de l'inventaire CITEPA, Atmo-NPDC et EMEP.**



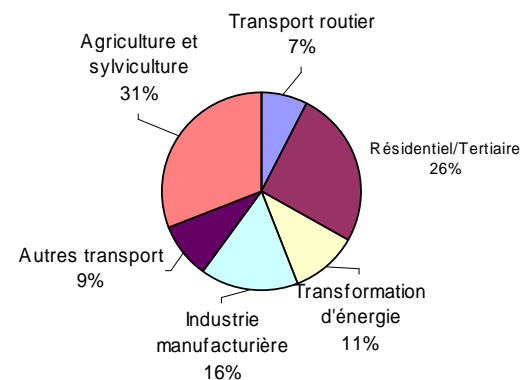
**CITEPA (France - 2000)**



**CITEPA (NPDC - 2000)**

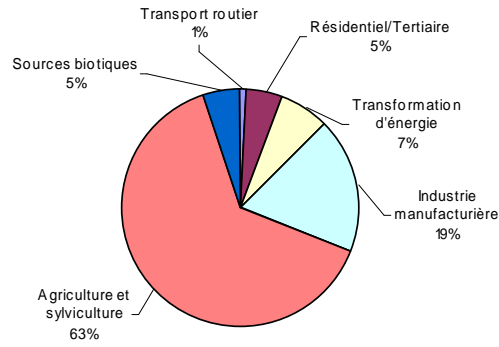


**Atmo-NPDC (NPDC - 2005)**

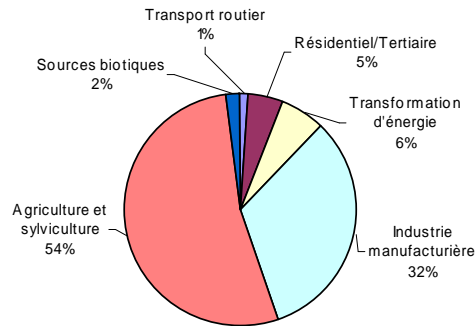


**EMEP-NPDC (NPDC - 2004)**

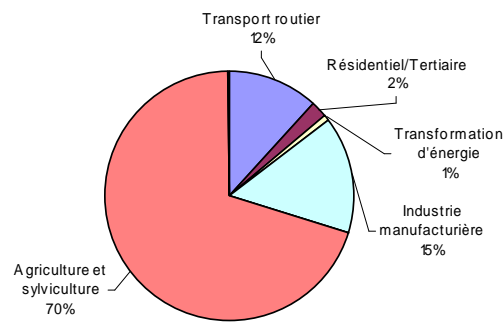
**Figure 2.13 : Part des émissions (%) en TSP par secteurs d'activités pour la France et la région NPDC issues de l'inventaire CITEPA, Atmo-NPDC et EMEP.**



**CITEPA (France - 2000)**



**CITEPA (NPDC - 2000)**



**Atmo-NPDC (NPDC - 2005)**

Figure 2.14 : Part des émissions (%) en CH<sub>4</sub> par secteurs d'activités pour la France et la région NPDC issues de l'inventaire CITEPA, Atmo-NPDC et EMEP.



#### 2.1.4. Comparaison de la répartition spatiale de la concentration de polluants issus de l'inventaire EMEP et de l'inventaire régional NPDC

Les Figures 2.15 à 2.22 illustrent les émissions anthropiques pour différents polluants ou familles de polluants ( $C_2H_4$ , CO,  $C_5H_8$ ,  $NO_2$ , NO, o-xylène,  $PM_{10}$  et  $PM_{2,5}$ ) sélectionnés pour leur rôle dans la formation des épisodes de pollution photochimique et particulaire au niveau de la région NPDC. Les cartes situées sur la gauche ont été produites en utilisant les données EMEP (2004) et les cartes de droite sont celles issues de l'inventaire NPDC (données Atmo-NPDC-2001).

Globalement, on observe que lors de l'utilisation de l'inventaire européen, la résolution est grossière et seules les sources d'émissions des grandes zones urbaines et des complexes industriels importants sont représentées. Ceci résulte de la technique du *downscaling* utilisée par le module de génération d'émission *emiEMEP* de CHIMERE (voir aussi paragraphe 3.3 du Chapitre 3). Elle consiste à interpoler les émissions d'une espèce correspondant à une maille EMEP ( $50 \times 50 \text{ km}^2$ ) sur les mailles de la grille CHIMERE la composant. La répartition est proportionnelle à la surface et est fonction de la nature du sol (cadastre d'occupation des sols généré par CHIMERE) de chaque maille de la grille CHIMERE. Bien qu'avec cette technique certaines émissions soient renforcées au niveau des zones urbaines (NOx par exemple), une part de l'information de l'inventaire EMEP est dégradée. En général, les émissions en zones urbaines sont sous-estimées et l'inverse est observé en zones rurales. De plus, lors de l'utilisation de l'inventaire EMEP, les sources d'émissions très localisées (industries) situées en zone rurale ne sont pas représentées du fait de la résolution grossière initiale ( $50 \times 50 \text{ km}^2$ ). Les données de l'inventaire régional quant à elles permettent de localiser l'ensemble des émissions y compris des industries isolées. Au niveau de la zone de Dunkerque, on note que les émissions en NOx et en  $PM_{10}$  issues de l'inventaire EMEP sont inférieures à celles de l'inventaire régional. Pour les autres polluants la tendance inverse est observée pour l'isoprène par exemple. Ceci est causé par le fait que certains SNAP (biogènes notamment) ne sont pas répertoriés dans la version 2001 de l'inventaire régional Atmo-NPDC.

Après avoir décrit et comparé les données des différents inventaires utilisées pour la modélisation, nous présentons les concentrations de trois polluants clés ( $NO_2$ ,  $O_3$  et  $PM_{10}$ ) rencontrées en région NPDC en référence à la moyenne nationale.

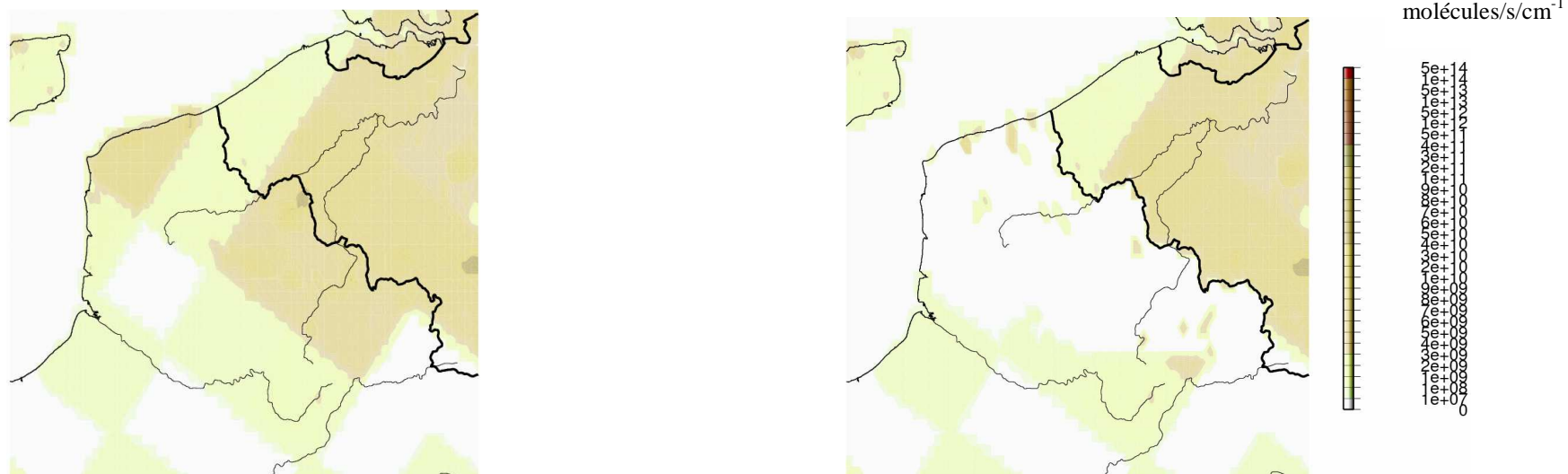


Figure 2.15 : Cartes des émissions anthropiques régionales NPDC en C<sub>2</sub>H<sub>4</sub> avec l'inventaire EMEP (à gauche) et l'inventaire régional (à droite) à 12h UTC (jour ouvré).



Figure 2.16 : Cartes des émissions anthropiques régionales NPDC en CO avec l'inventaire EMEP (à gauche) et l'inventaire régional (à droite) à 12h UTC (jour ouvré).

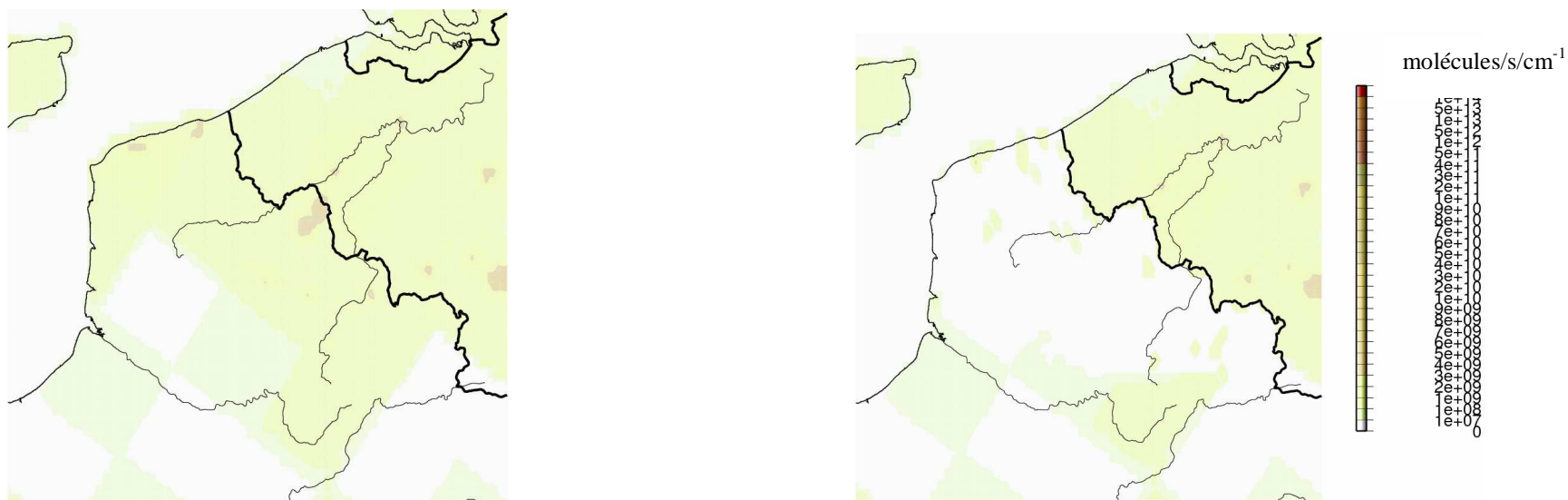


Figure 2.17 : Cartes des émissions anthropiques régionales NPDC en  $C_5H_8$  avec l'inventaire EMEP (à gauche) et l'inventaire régional (à droite) à 12h UTC (jour ouvré).

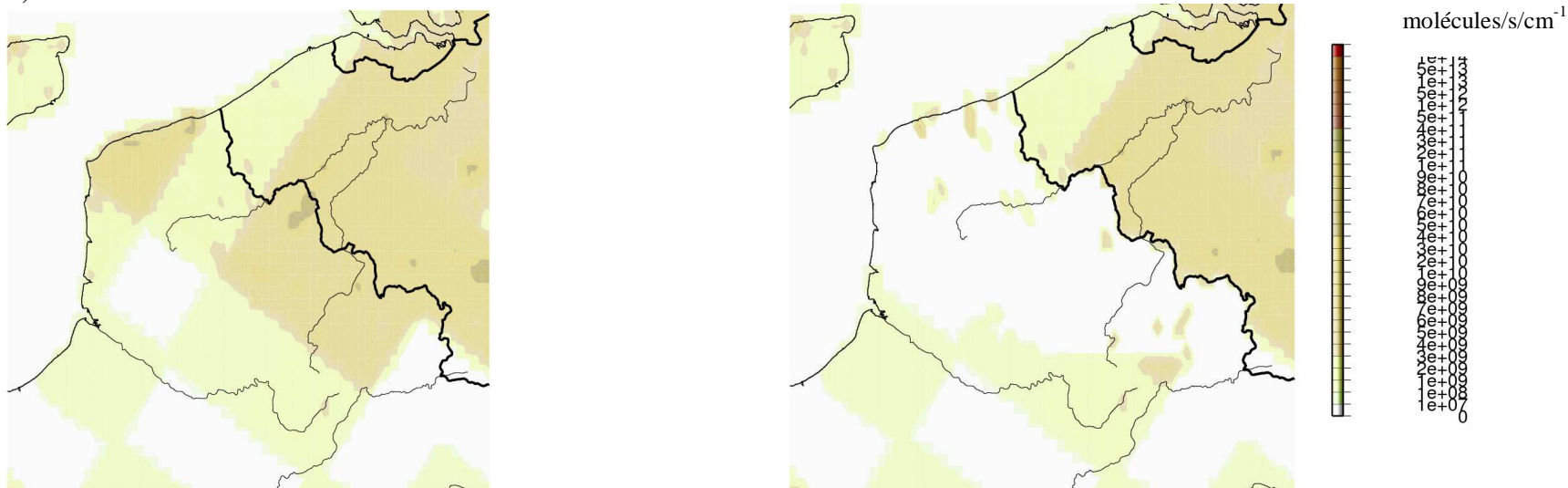


Figure 2.18 : Cartes des émissions anthropiques régionales NPDC en o-xylène avec l'inventaire EMEP (à gauche) et l'inventaire régional (à droite) à 12h UTC (jour ouvré).



Figure 2.19 : Cartes des émissions anthropiques régionales NPDC en  $\text{NO}_2$  avec l'inventaire EMEP (à gauche) et l'inventaire régional (à droite) à 12h UTC (jour ouvré).

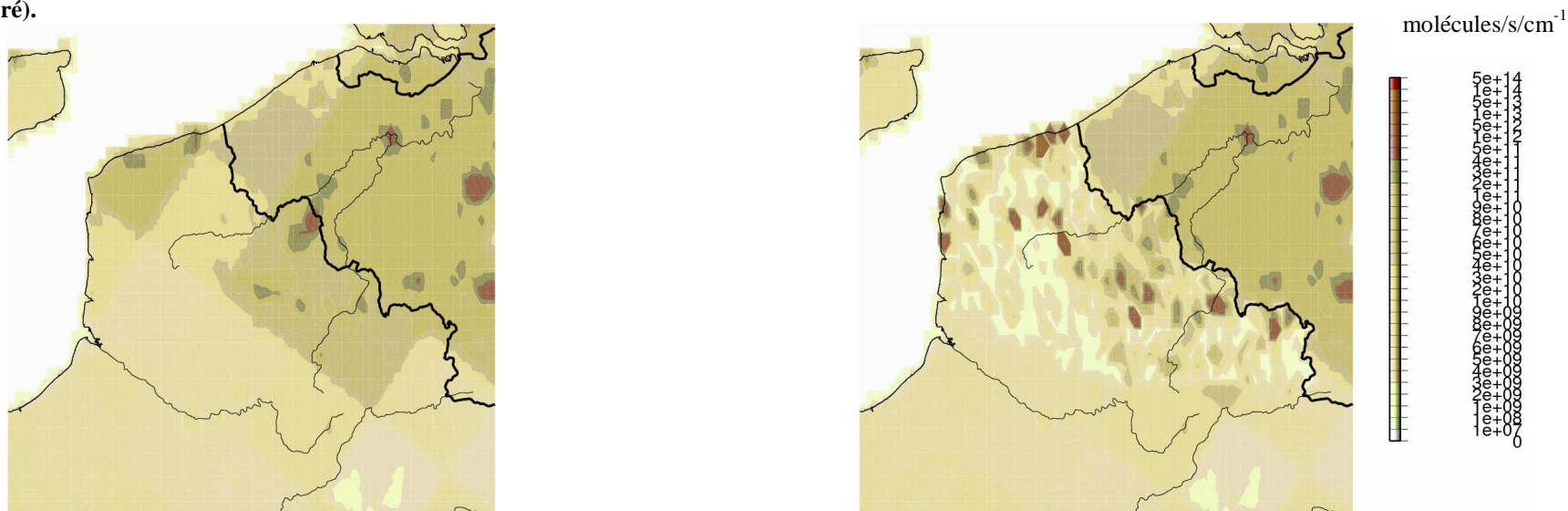
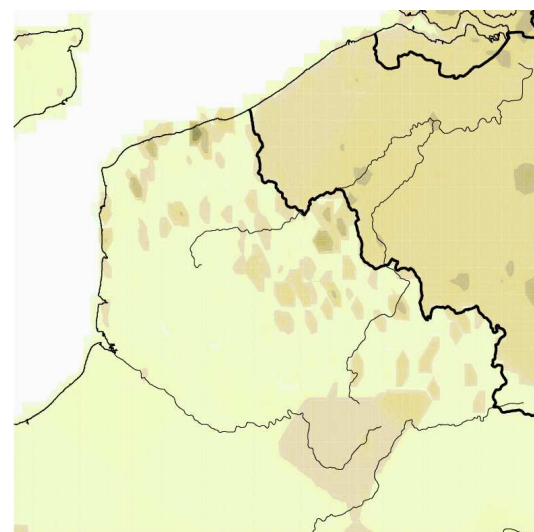
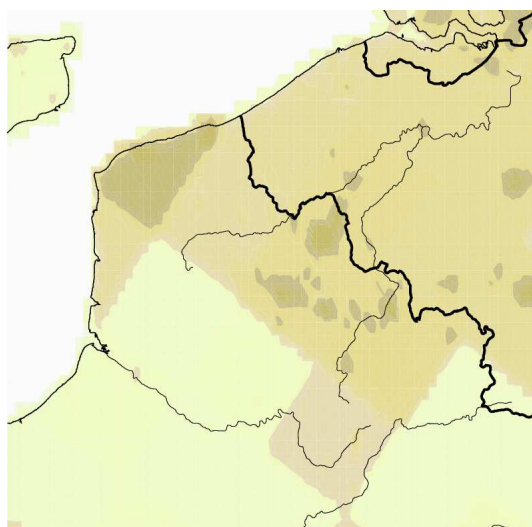


Figure 2.20 : Cartes des émissions anthropiques régionales NPDC en  $\text{NO}$  avec l'inventaire EMEP (à gauche) et l'inventaire régional (à droite) à 12h UTC (jour ouvré).



molécules/s/cm<sup>-1</sup>

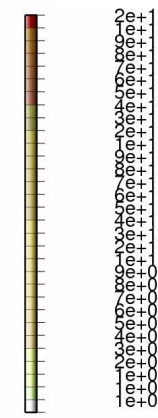
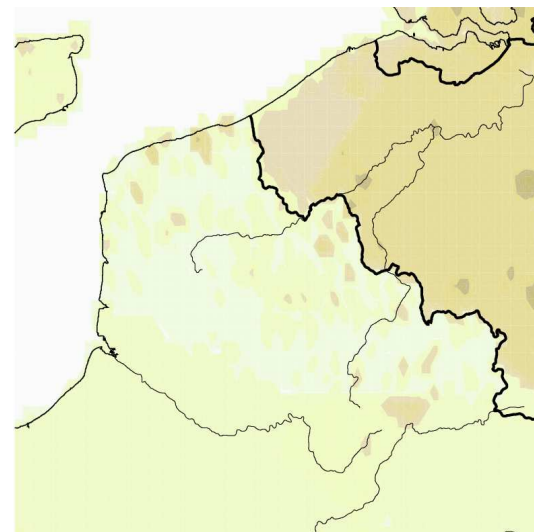
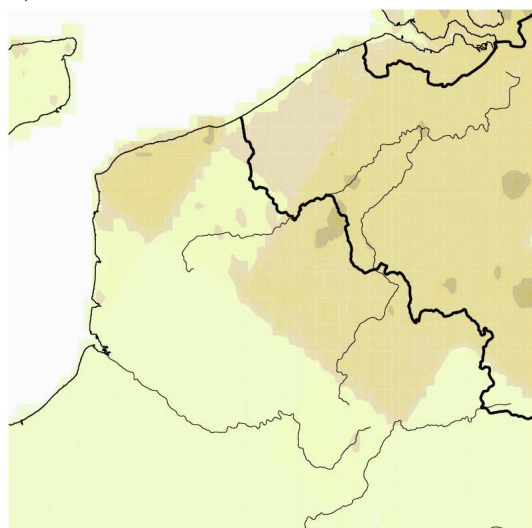


Figure 2.21 : Cartes des émissions anthropiques régionales NPDC en PM<sub>10</sub> avec l'inventaire EMEP (à gauche) et l'inventaire régional (à droite) à 12h UTC (jour ouvré).



molécules/s/cm<sup>-1</sup>

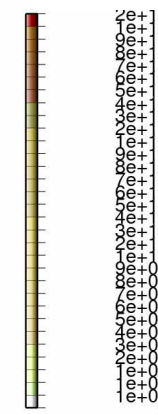


Figure 2.22 : Cartes des émissions anthropiques régionales NPDC en PM<sub>2,5</sub> avec l'inventaire EMEP (à gauche) et l'inventaire régional (à droite) à 12h UTC (jour ouvré).

## 2.2. Evolution de la concentration de trois polluants atmosphériques clés : de l'échelle nationale à l'échelle de la région NPDC

### 2.2.1. Le NO<sub>2</sub>

#### *Echelle nationale*

La Figure 2.23 renseigne sur l'évolution temporelle de la moyenne annuelle des concentrations en NO<sub>2</sub> pour la France de 1994 à 2006. Ce type de moyenne est représentatif des concentrations dites de fond. On note que les niveaux de fond en NO<sub>2</sub> baissent depuis 1994 (hors 2003) pour se stabiliser ces dernières années (2005 - 2006). Une diminution de 10 à 12 µg/m<sup>3</sup> est observée pour les quatre types de station sur la période 1994-2006 : stations trafics, urbaines, périurbaines et rurales. Cette baisse est liée en grande partie au renforcement des réglementations relatives aux émissions des véhicules routiers (normes Euro 3 et 4).

Pour 2006, on note pour l'ensemble des sites de fonds ruraux et urbains-périurbains, une stabilisation de la moyenne annuelle à 24 µg/m<sup>3</sup>, ce qui est quasi identique à celle de 2005. La valeur limite (40 µg/m<sup>3</sup>) est donc respectée pour ces stations ce qui n'est pas le cas pour les stations trafics. La plupart des grandes agglomérations sont concernées par cette tendance.

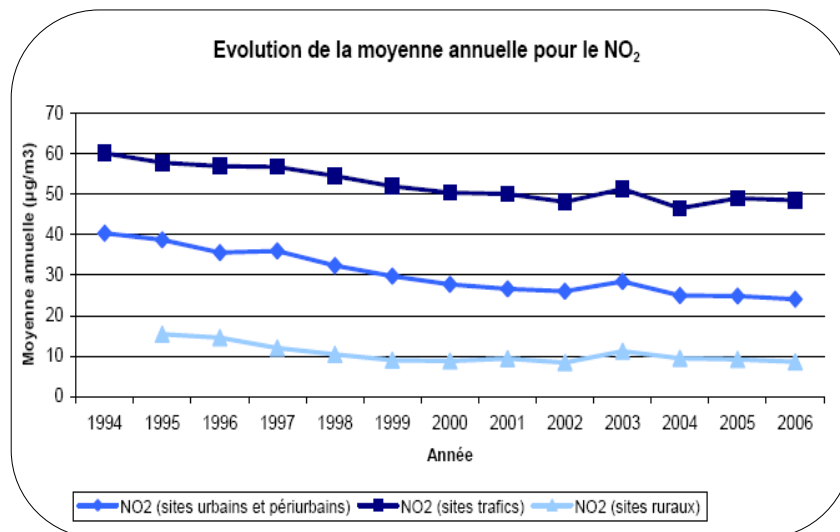


Figure 2.23 : Evolution de la moyenne annuelle nationale en NO<sub>2</sub> de 1994 à 2006 pour quatre types de stations pour le NO<sub>2</sub>.

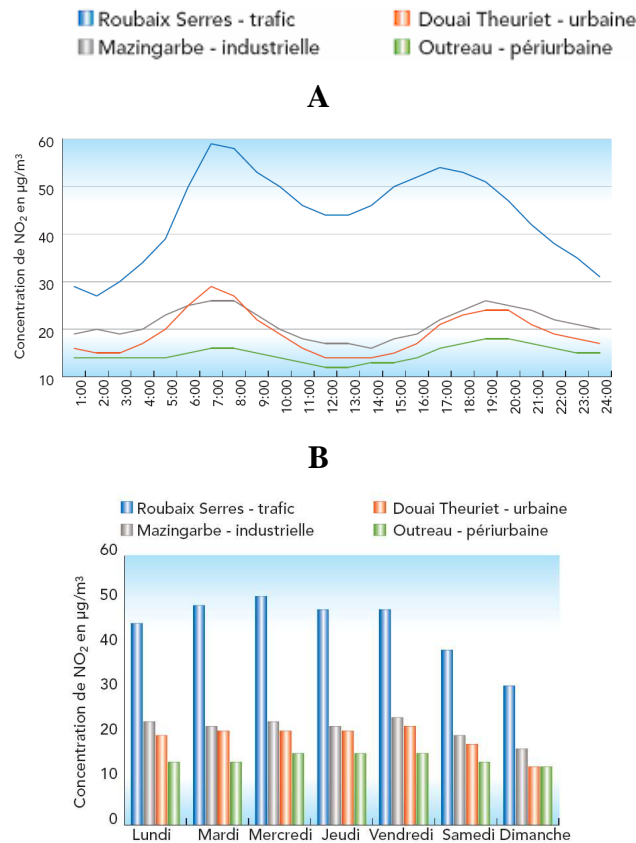
#### *Echelle régionale*

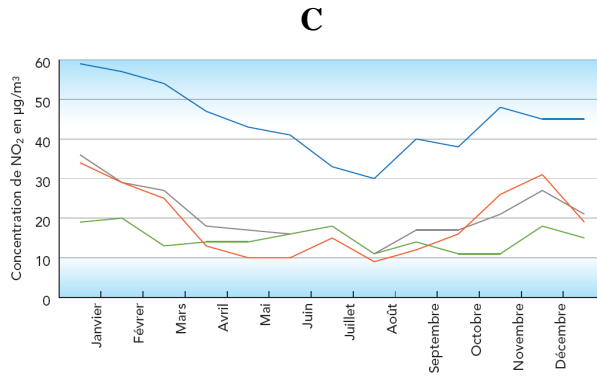
En région Nord-Pas de Calais, la pollution primaire en NO<sub>2</sub> est localisée essentiellement au voisinage des émissions : les grandes agglomérations et les pôles industriels, respectivement Lille et Dunkerque. C'est un traceur des émissions liées au trafic et à la combustion d'énergies fossiles en milieu industriel. Dans les zones habitées, la distribution temporelle journalière des polluants primaires est directement liée aux activités humaines.

Les graphiques A et B de la Figure 2.24 illustrent la distribution horaire des concentrations en NO<sub>2</sub> typique d'un jour ouvré. On observe un pic le matin (vers 09h) et en fin d'après midi (17h) correspondant aux pics du trafic routier. Les samedis et dimanches, le pic matinal (non représenté sur la Figure 2.24) est quasi inexistant. Les concentrations observées aux stations « trafic » sont en moyenne deux fois plus élevées que celles mesurées aux autres types de stations (industriel, urbaine et périurbaine). L'augmentation de la hauteur de la CLA plus marquée dans l'après-midi permet un brassage des polluants dans un plus grand volume. On note ainsi une diminution de la concentration des polluants primaires au cours de l'après-midi.

Les processus de combustions domestiques et industriels (chaudières) sont les autres principaux émetteurs de polluants primaires de type NO<sub>x</sub> et dans une moindre mesure SO<sub>x</sub>. Par opposition aux émissions du trafic, leurs émissions sont homogènes au cours de la journée. En revanche, elles ont une variation intersaisonnière (graphique C). Durant l'hiver aux latitudes tempérées, la CLA se développe bien moins qu'en été. Combinés à l'augmentation des émissions dues au chauffage, les pics les plus intenses de pollutions primaires (NO<sub>x</sub>) sont observés en hiver.

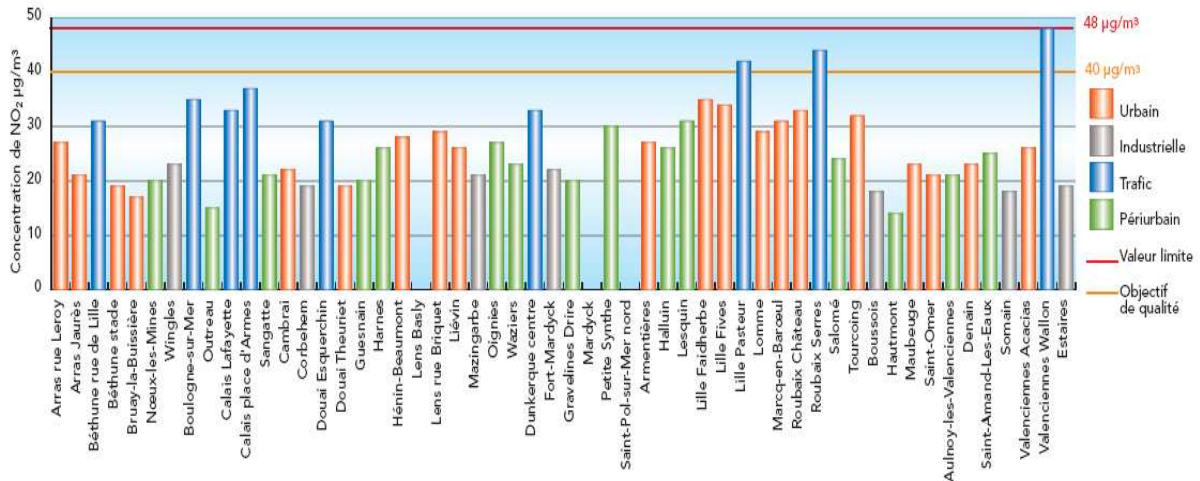
Les valeurs de concentrations moyennes annuelles pour 2006 en NO<sub>2</sub> observée en région NPDC sont légèrement inférieures aux valeurs moyennes nationales pour les stations de trafics (45 et 48 µg/m<sup>3</sup> respectivement) et identiques pour les stations urbaine et périurbaine (24 µg/m<sup>3</sup>).





**Figure 2.24: Profils des concentrations journalières (moyennes horaires) (A), hebdomadaires (moyennes journalières) (B) et mensuelles (moyennes journalières) (C) mesurés en NO<sub>2</sub> (µg/m<sup>3</sup>) pour différents types de stations de la région NPDC durant l'année 2006 (Atmo-NPDC<sup>1</sup>).**

La Figure 2.25 permet de montrer les concentrations moyennes annuelles de NO<sub>2</sub> pour différentes stations de la région NPDC pour l'année 2006. Elle rend compte de la répartition spatiale en NO<sub>2</sub> sur la région. La répartition entre les différents types de stations est similaire d'une année à l'autre. Les stations trafics enregistrent les concentrations les plus importantes suivies des stations urbaines, industrielles et périurbaines. Les concentrations en NO<sub>2</sub> les plus élevées sont rencontrées dans les agglomérations de Lille-Roubaix et Valenciennes à proximité des axes routiers. On remarque que pour les sites urbains les concentrations annuelles en NO<sub>2</sub> sont réparties spatialement de manière homogène sur l'ensemble de la région à l'exception de l'agglomération Lilloise qui enregistre des concentrations environ 10 µg/m<sup>3</sup> plus élevées que le reste de la région.



**Figure 2.25 : Concentrations moyennes annuelles en NO<sub>2</sub> observées pour diverses stations de la région NPDC durant l'année 2006 (données Atmo-NPDC<sup>1</sup>).**

La Figure 2.26 indique les concentrations moyennes annuelles (urbaines uniquement) en NO<sub>2</sub> entre 2000 et 2006 pour l'ensemble des régions de France. En France, la majorité des grandes agglomérations ont des moyennes annuelles pour les stations urbaines inférieures à 40 µg/m<sup>3</sup>.

<sup>1</sup> <http://www.atmo-npdc.fr/home.htm>



Cependant, un certain nombre de villes a vu entre 2000 et 2006 leur moyenne annuelle urbaine dépasser le seuil limite de  $40 \mu\text{g}/\text{m}^3$ . La région NPDC fait partie de l'une de ces sept villes de France les plus touchées par la pollution en  $\text{NO}_2$  avec Paris, Poitiers, Strasbourg, Lyon, Nice et Marseille (une dizaine de jours de dépassement/an).

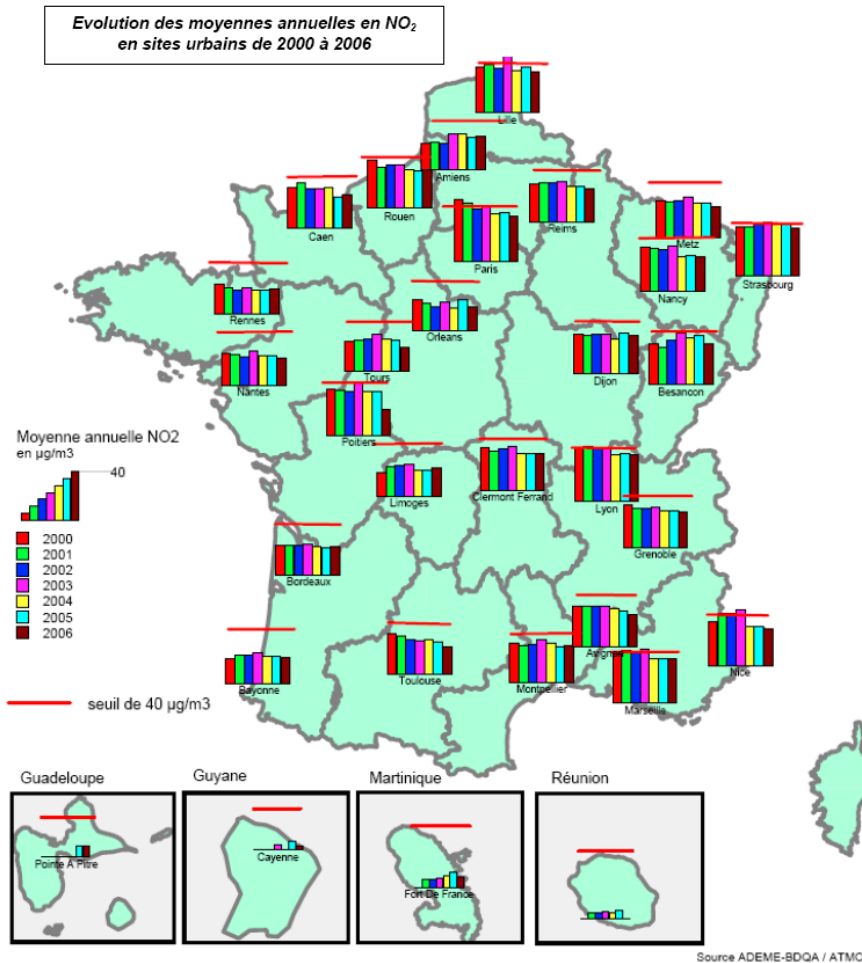


Figure 2.26 : Evolution des moyennes annuelles en  $\text{NO}_2$  pour les sites urbains de 2000 à 2006.

### 2.2.2. L'Ozone

#### *Echelle nationale*

Au niveau européen, il est important de noter que les concentrations de fond (en milieu rural ou non pollué) de l'ozone troposphérique ont fortement augmentées au cours du  $\text{XX}^{\text{ème}}$  siècle (Figure 2.27). Cette tendance fait suite à l'augmentation des émissions des  $\text{NO}_x$  et des COV au cours de la révolution industrielle (1840-1850).

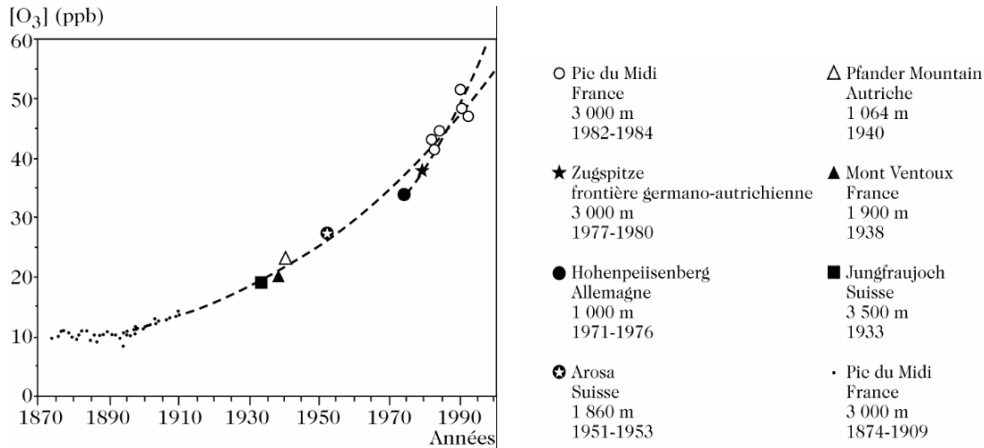


Figure 2.27 : Mesures moyennes annuelles d'ozone effectuées en Europe de 1870 à 1990 dans différents sites au sommet de montagnes (pollution de fond) [Marenco, 1994].

Au cours des dix dernières années, la réglementation toujours plus sévère des pays européens et des Etats-Unis au regard des émissions moyennes primaires a conduit à une baisse des maxima journaliers d'ozone.

De nos jours, l'ozone est un polluant particulièrement étudié car ses concentrations restent élevées et présentent un danger lorsqu'il entre en synergie avec les autres polluants (NO<sub>x</sub>, COVNM, métaux lourds), en particulier, pour la santé humaine et les écosystèmes (paragraphe 1.4 du chapitre 1). De récentes recherches montrent que les valeurs maximales journalières en France [Pont et Fontan, 2001], en Grèce [Gerasopoulos *et al.*, 2006], à travers l'Europe [Klumpp *et al.*, part I, 2006], à Mexico [Raga et Raga, 2000] ou encore en Chine [Shan *et al.*, 2008] dépassent régulièrement en périodes estivales les recommandations de l'Organisation Mondiale de la Santé [WHO, 2003].

En revanche, en France, la moyenne annuelle des concentrations observées en ozone depuis 1994 est en augmentation. Les concentrations annuelles ont augmentées de 10 à 15 µg/m<sup>3</sup> (30 à 50 %) tant en zone rurale que dans les agglomérations et ce malgré la baisse des émissions des polluants précurseurs de l'ozone (NO<sub>2</sub>, COVNM).

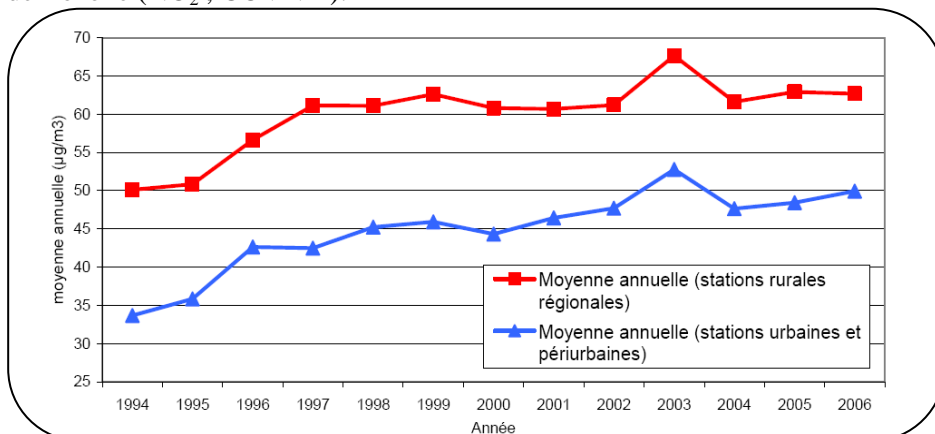


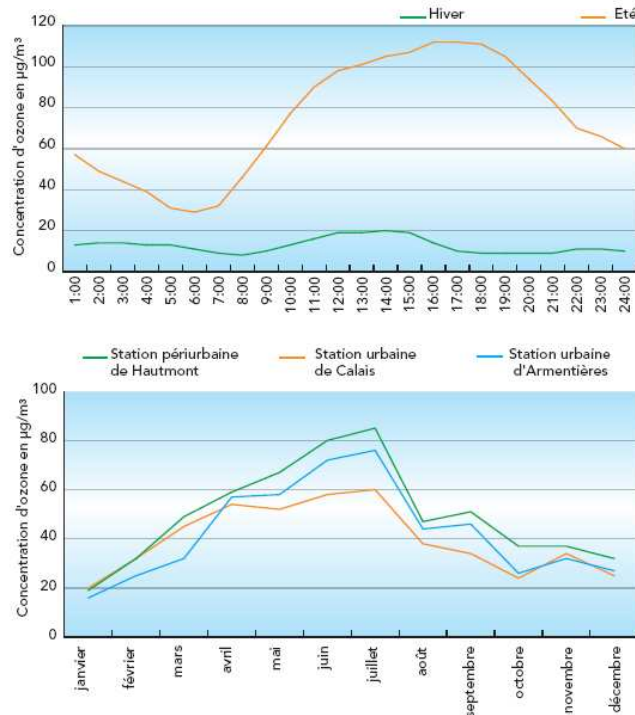
Figure 2.28 : Evolution de la concentration moyenne annuelle en ozone en France de 1994 à 2006 pour l'ensemble des stations rurales régionales (rouge) et urbaines+périurbaines (bleu), (Ministère de l'écologie de l'énergie et du développement durable<sup>1</sup>).

<sup>1</sup> <http://www.developpement-durable.gouv.fr/>

Cette tendance fait l'objet de recherches en particulier à l'aide de l'outil modélisation. Selon Meleux *et al.* (2007), une augmentation des températures moyennes favorisant les émissions de certains COV biogènes comme l'isoprène et une réduction de la couverture nuageuse moyenne expliquent en partie cette augmentation sur l'Europe de l'ouest. Derwent (2008) et Derwent *et al.* (2008) montrent que le transport d'ozone transfrontalier à l'échelle globale contribue de manière significative à l'origine des pics d'ozone estivaux observés dans certains pays d'Europe de l'ouest comme l'Angleterre.

### Echelle régionale

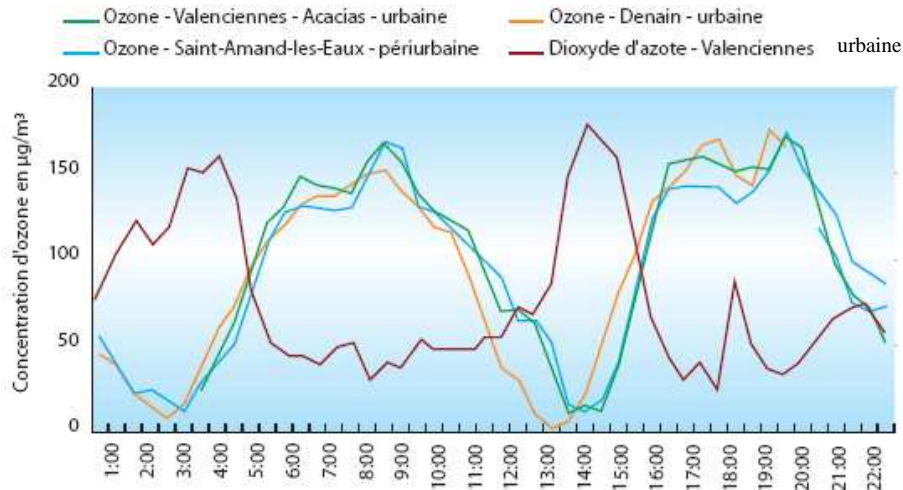
Le graphique supérieur de la Figure 2.29 représente des profils d'ozone journaliers typiques d'une station périurbaine Lilloise pour une journée hivernale et estivale de la région NPDC durant l'année 2006. Le graphique inférieur quant à lui détaille le profil annuel (moyenne mensuelle) pour une station périurbaine et deux stations urbaines de la région NPDC pour l'année 2006. Les concentrations les plus élevées sont mesurées en fin d'après-midi (16-17h) alors que les minima sont relevés en fin de nuit (5-6h). Une forte saisonnalité est observée. Les maxima les plus intenses sont observés en été au niveau des stations périurbaines lorsque les conditions d'ensoleillement et de température sont les plus favorables. En période hivernale, la production d'ozone est très faible et les concentrations sont de 10 à 20 ppb au maximum.



**Figure 2.29 : Profils des concentrations journalières (moyennes horaires) et mensuelles (moyennes journalières) de l'ozone pour différentes stations de la région NPDC durant l'année 2006 (données Atmo-NPDC<sup>1</sup>)**

<sup>1</sup> <http://www.atmo-npdc.fr/home.htm>

La Figure 2.30 montre l'anticorrélation entre les concentrations en NO<sub>2</sub> et en ozone. Lorsque les concentrations en O<sub>3</sub> augmentent, celles en NO<sub>2</sub> diminuent et vice versa. Les profils sont ceux des stations urbaines et périurbaines des quelques agglomérations de la région NPDC. Ceci est représentatif du cycle de l'ozone observé à Lille et Dunkerque décrit précédemment dans ce mémoire.



**Figure 2.30 : Profils journaliers (moyennes horaires) simultanés de l'ozone et du dioxyde d'azote pour différentes stations durant l'année 2006 (données Atmo-NPDC<sup>1</sup>).**

La Figure 2.31 indique le nombre de jours de dépassement du seuil d'information entre 2003 et 2006 pour l'ensemble des régions de France. Le maximum de jours dépassé est observé dans le sud-est de la France où les conditions de formation de l'ozone sont particulièrement favorables (fort ensoleillement et émission industrielle de gaz précurseurs). La région NPDC est une des régions de la moitié nord de la France les plus touchées par la pollution à l'ozone avec l'Ile de France et l'Alsace (une dizaine de jours de dépassement/an).

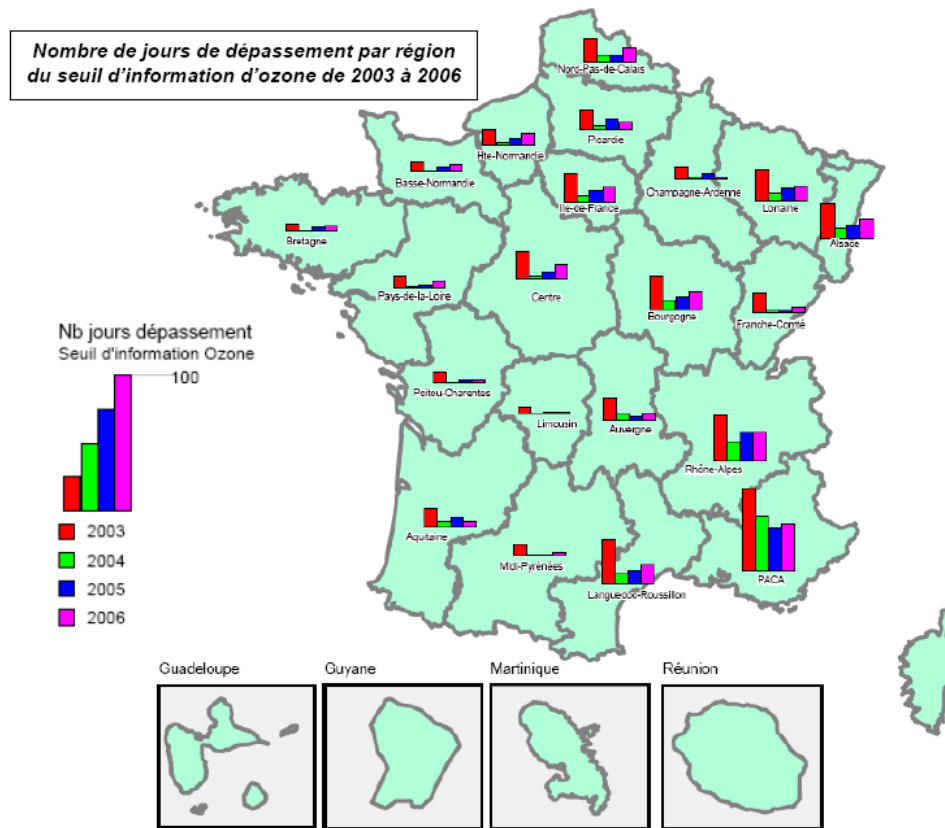


Figure 2.31 : Nombre de jours de dépassement par région du seuil d'information ( $180 \mu\text{g}/\text{m}^3$  en moyenne horaire) d'ozone de 2003 à 2006.

La Figure 2.32 indique que les concentrations annuelles en ozone pour 2006 sur la région NPDC sont réparties de manière homogène. On note cependant que trois zones périurbaines sont plus touchées que le reste de la région. Elles se situent au niveau de la façade maritime (Outreau avec  $55 \mu\text{g}/\text{m}^3$  en moyenne ou Sangatte avec  $51 \mu\text{g}/\text{m}^3$  en moyenne) et dans les terres (Haumont avec  $50 \mu\text{g}/\text{m}^3$  en moyenne).

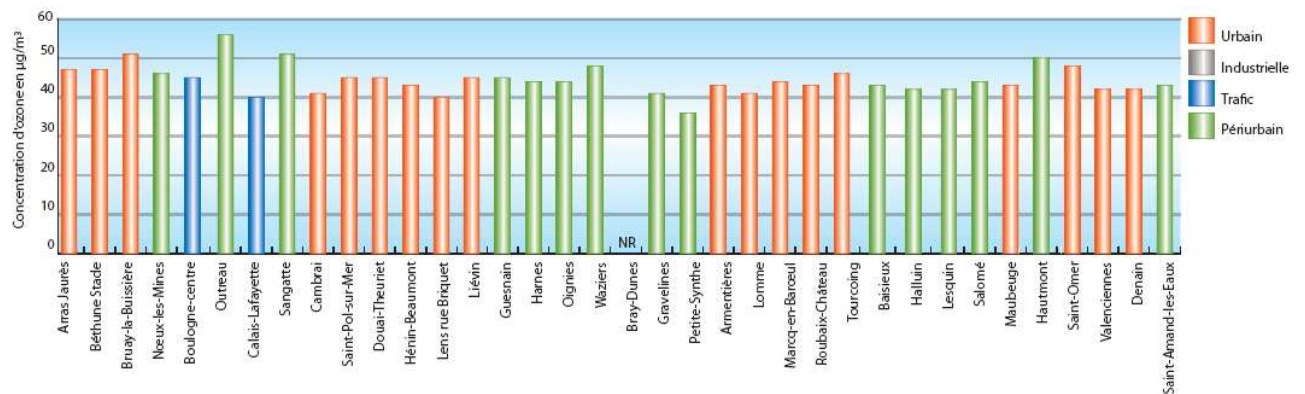


Figure 2.32 : Concentrations moyennes annuelles en  $\text{O}_3$  observées pour diverses stations de la région NPDC durant l'année 2006 (données Atmo-NPDC<sup>1</sup>).

<sup>1</sup> <http://www.atmo-npdc.fr/home.htm>

### 2.2.3. Les PM<sub>10</sub>

#### *Echelle nationale*

Ce travail de thèse s'intéresse fortement à la modélisation de la pollution particulaire (PM<sub>10</sub> et PM<sub>2,5</sub>). Plusieurs études décrivent la pollution particulaire mesurée en Europe [Harrison *et al.*, 2001; Puxbaum *et al.*, 2004; Puustinen *et al.*, 2007; Vecchi *et al.*, 2007; Mira-Salama *et al.*, 2008] mais aussi en Chine [Bi *et al.*, 2007]. L'ensemble des études montre une stagnation des concentrations en PM<sub>10</sub> depuis quelques années malgré les efforts engagés dans la lutte contre ce type de pollution.

Putaud (2003) montre que la quasi-totalité des sites en Europe montrent des moyennes annuelles en conformité avec la valeur cible de la législation européenne mise en place en 2005 (40 µg/m<sup>3</sup> en moyenne annuelle). En revanche, la majeure partie des sites urbains ou périurbains dépasse d'un facteur deux environ, la valeur limite de 20 µg/m<sup>3</sup> qui entrera en vigueur en 2010 (Directive 2008/50/CE)<sup>1</sup>. A ce jour, seuls les pays Scandinaves respectent la valeur limite européenne fixée à 20 µg/m<sup>3</sup>.

Les concentrations moyennes en particules dans l'air en France respectent la valeur limite en moyenne annuelle (40 µg/m<sup>3</sup>) à l'exception du site trafic du boulevard périphérique à Paris (41 µg/m<sup>3</sup>). Depuis l'année 2000, les concentrations annuelles moyennes sur l'ensemble des sites stagnent (Figure 2.33). Cette tendance se confirme à l'échelle européenne. Harrison *et al.* (2008) expliquent que notre connaissance partielle des mécanismes de formation et d'interactions des particules avec leur environnement, ne nous permet pas d'élaborer une méthode globale permettant de réduire efficacement la concentration des particules présentes dans l'air. Selon lui, les efforts doivent se concentrer, d'une part, sur l'approfondissement des connaissances sur la formation des aérosols secondaires et d'autre part, sur l'évaluation de l'impact effectif d'une mesure de réduction des émissions primaires sur les concentrations moyennes de particules. Récemment, Bian *et al.* (2007) montrent qu'une augmentation locale de la concentration en particules conduit à une baisse du rayonnement solaire incident au niveau du sol et donc de l'activité photochimique se traduisant par une baisse de plusieurs dizaine de ppb des niveaux d'ozone. Ce phénomène était ignoré il y a encore quelques années.

---

<sup>1</sup> [http://ec.europa.eu/environment/air/quality/legislation/existing\\_leg.htm](http://ec.europa.eu/environment/air/quality/legislation/existing_leg.htm)

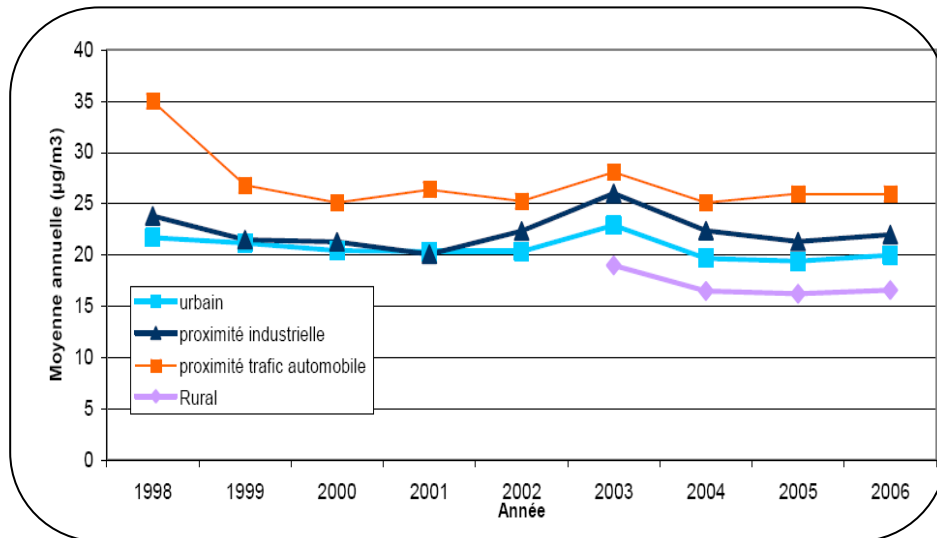


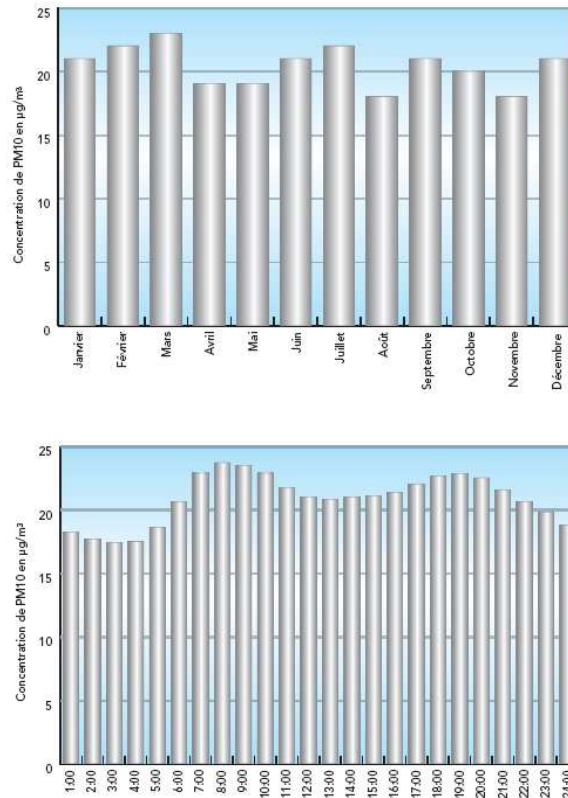
Figure 2.33 : Valeurs moyennes annuelles des concentrations massiques en PM<sub>10</sub> pour l'ensemble des stations rurales, urbaines, industrielles et des stations trafic de France (Ministère de l'écologie de l'énergie et du développement durable<sup>1</sup>).

### *Echelle régionale*

La Figure 2.34 présente les tendances annuelles (moyennes mensuelles pour 2004, 2005 et 2006) et journalières des PM<sub>10</sub> pour l'ensemble des stations du NPDC. La variation annuelle de la concentration en particules est moins marquée que pour des polluants comme le dioxyde d'azote et l'ozone. Ceci est la conséquence de la multiplicité des secteurs émetteurs de pollution particulaire. Globalement, les plus fortes concentrations de particules sont enregistrées en période hivernale lors de condition de stagnation anticyclonique.

Le profil journalier met en évidence une influence moins marquée du trafic automobile sur les concentrations journalière de PM<sub>10</sub> comparé aux NO<sub>x</sub>. On observe néanmoins un pic matinal (8 h) et en soirée (19 h) et les concentrations les plus faibles la nuit.

<sup>1</sup> <http://www.developpement-durable.gouv.fr/>



**Figure 2.34 : Evolution annuelle (moyennes mensuelles) et journalière (moyennes horaires) de la concentration en  $PM_{10}$  au niveau de la région NPDC durant la période 2004-2006 pour l'ensemble des stations de la région NPDC.**

La Figure 2.35 présente les niveaux moyens annuels en  $PM_{10}$  observés dans les principales agglomérations françaises sur la période 2000-2006. Au niveau de la région NPDC, la tendance est similaire à celle des autres régions françaises puisque les concentrations des trois dernières années de la période 2000 à 2006 semblent se stabiliser. Sur cette même période, le NPDC est une des régions ayant le plus fort taux de concentration en  $PM_{10}$  au niveau de ses sites urbains en France avec des villes comme Nancy, Strasbourg, Avignon et Marseille.



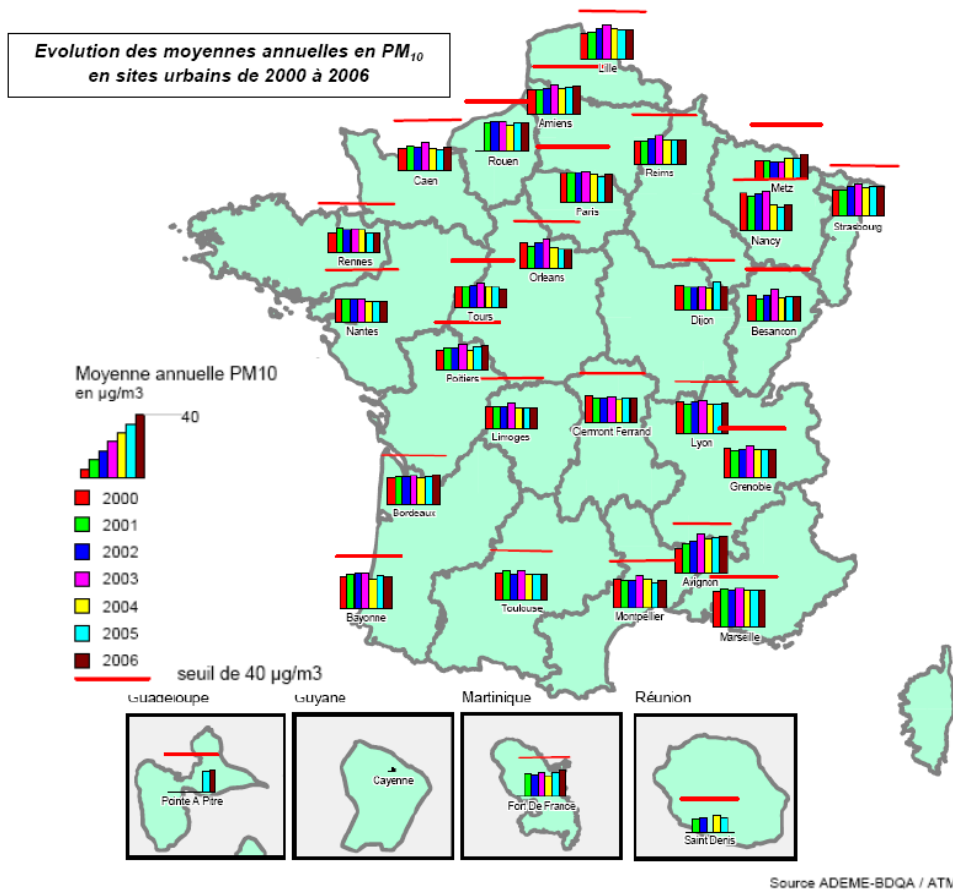
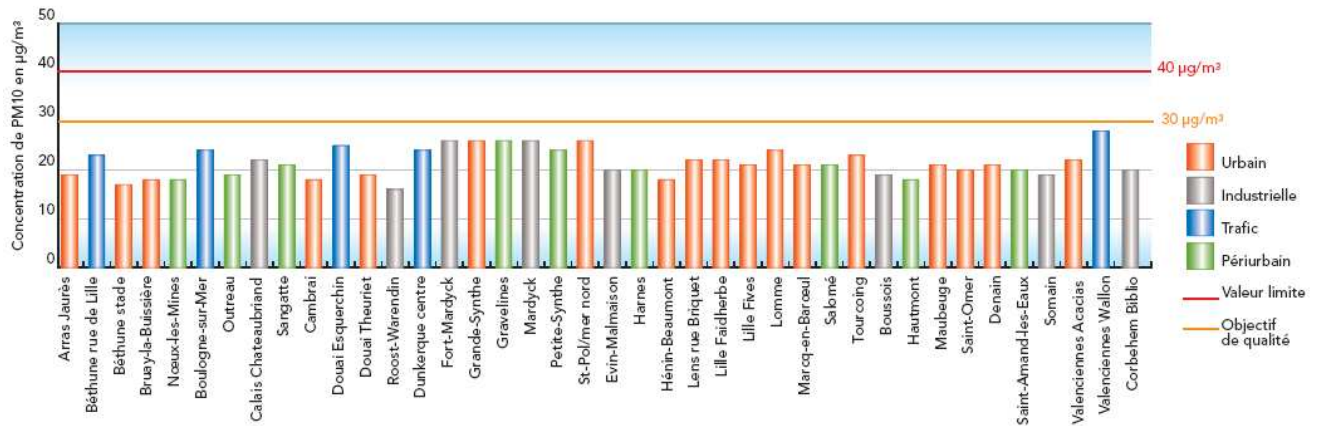


Figure 2.35 : Evolution de la moyenne annuelle en  $PM_{10}$  en site urbain de 2000 à 2006.

La Figure 2.36 indique que les concentrations annuelles les plus élevées en  $PM_{10}$  pour 2006 sont situées sur Valenciennes et la zone industrielle de Dunkerque. Les zones les plus touchées se situent sur la côte (Outreau avec  $55 \mu g/m^3$  en moyenne ou Sangatte avec  $51 \mu g/m^3$  en moyenne), Roubaix ( $48 \mu g/m^3$ ) ou dans l'Avesnois ( $50 \mu g/m^3$ ). La variabilité en termes de source d'émission des zones touchées par la pollution particulaire indique une origine multi-sectorielle des  $PM_{10}$ . Les principales sources pour la région NPDC sont les sites industriels au niveau de Dunkerque et Valenciennes ainsi que dans une moindre mesure le trafic routier.



**Figure 2.36 : Concentrations moyennes annuelles en PM<sub>10</sub> observées pour diverses stations de la région NPDC durant l'année 2006 (données Atmo-NPDC<sup>1</sup>).**

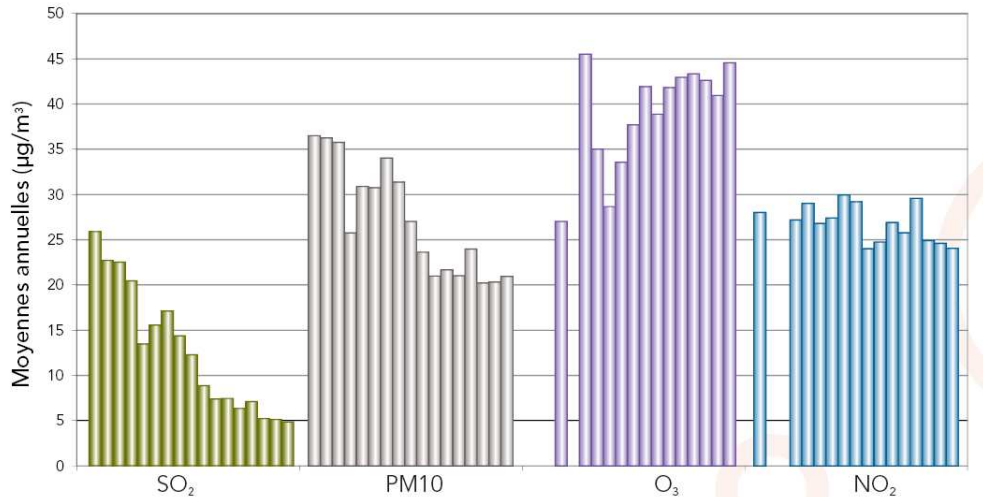
#### 2.2.4. Bilan régional

La Figure 2.37 présente la tendance des concentrations moyennes annuelles en SO<sub>2</sub>, PM<sub>10</sub>, O<sub>3</sub> et NO<sub>2</sub> pour la région NPDC de 1990 à 2006 pour des sites urbains qui sont aussi représentatifs de la pollution de fond de la région NPDC. Chaque histogramme représente une année en commençant sur la gauche pour chaque polluant avec l'année 1990. Les espaces entre les histogrammes marquent une absence de données pour l'année correspondante. Nous constatons :

- ▶ une baisse de 75 % des émissions de SO<sub>2</sub> sur la région depuis 1996,
- ▶ une baisse de 24 % des concentrations de NO<sub>2</sub> depuis 1998,
- ▶ une baisse de 42 % des concentrations en PM<sub>10</sub> entre 1997 et 2000 mais une stagnation depuis 2000 autour de 21 µg/m<sup>3</sup>. Cette stagnation peut être attribué Les dépassements de valeurs limites ont lieu à 80 % sur la zone industrielle de Dunkerque.
- ▶ une augmentation de 44 % des concentrations en O<sub>3</sub> entre 1990 et 2005. L'augmentation significative des concentrations est en opposition avec la diminution des concentrations maximales journalière. Au cours des dernières années, cette tendance est observée à l'échelle de la France (communication personnelle de P. Coddeville).

On note en 2003 des valeurs élevées pour les quatre polluants. Cette augmentation peut être expliquée pour l'ozone par les hautes températures et les conditions de stagnation engendrées par la canicule de 2003. Pour les autres polluants, l'hypothèse la plus probable est une augmentation de l'utilisation des combustibles fossiles émetteurs de particules, de NO<sub>x</sub> (fioul) et de SO<sub>2</sub> (charbon) dans une moindre mesure, due à un début d'hiver assez rigoureux en France.

<sup>1</sup> <http://www.atmo-npdc.fr/home.htm>



**Figure 2.37 : Tendence des concentrations moyennes annuelles en SO<sub>2</sub>, PM<sub>10</sub>, O<sub>3</sub> et NO<sub>2</sub> pour la région NPDC de 1993 à 2006.**

Les deux types de pollution dominant actuellement la troposphère ont été décrits. Le paragraphe suivant s'intéresse aux particularités topographiques de la région NPDC engendrant certains phénomènes dynamiques spécifiques.

## 2.3. Spécificités dynamiques de la région NPDC

### 2.3.1. La brise de mer

La brise de mer est un phénomène largement étudié afin de comprendre la dynamique météorologique côtière [Stull, 1988; Garratt, 1992; Steyn, 2003]. Sa représentation dans les modèles météorologiques est cruciale lors de l'étude de la qualité de l'air des agglomérations côtières [Mahrt., 1999]. L'étude de la brise de mer peut s'effectuer grâce à des réseaux de mesures déployés au sol et en altitude (avion de mesure) comme cela a été fait durant la campagne de mesure ESCOMPTE en 2001 [Delbarre *et al.*, 2005], ou par modélisation [Srinivas *et al.*, 2007; Han *et al.*, 2008].

La brise de mer est une circulation thermique classique méso-échelle. La mer ayant une inertie thermique plus grande que celle de la terre, de forts gradients horizontaux de température sont en général observés. La température de la mer varie en général de 2°C au cours du cycle journalier alors que l'amplitude thermique de l'air au dessus de la terre peut atteindre 10°C sur la même période.

En journée, la terre se réchauffe plus vite que la mer. La convection diurne au dessus des terres permet la mise en place d'une circulation de la mer vers la terre en surface et inversement en altitude. L'intensité de la cellule est maximale au cours de l'après-midi lorsque l'ensoleillement est le plus fort. La brise engendre des vents plus intenses en surface près de la côte qui diminuent rapidement au fur et

à mesure que l'on pénètre dans les terres. L'extension horizontale est d'autant plus intense que le contraste thermique entre l'air terrestre et marin est grand. La brise peut pénétrer de plusieurs dizaines de kilomètres dans les terres et sa hauteur est typiquement de quelques centaines de mètres (Figure 2.38).

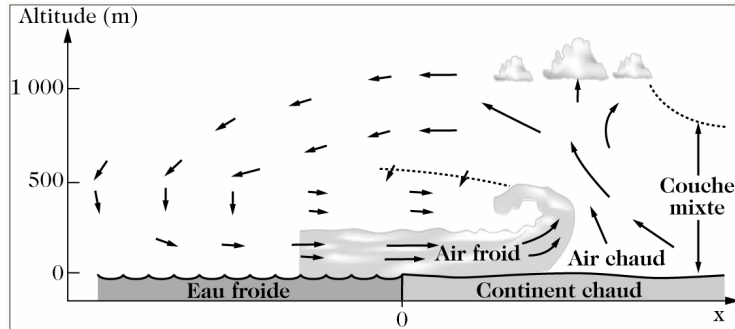


Figure 2.38 : Coupe verticale (0-1000m) représentant un système de brise de mer diurne, d'après Delmas *et al.* (2005).

La photo aérienne de la Figure 2.39 illustre la brise de mer au niveau de l'extrémité de la presqu'île du Cotentin. Le front de brise est matérialisé par des cumulus liés aux ascendances thermiques provoquées dans ce cas par la convergence des deux fronts de brise.

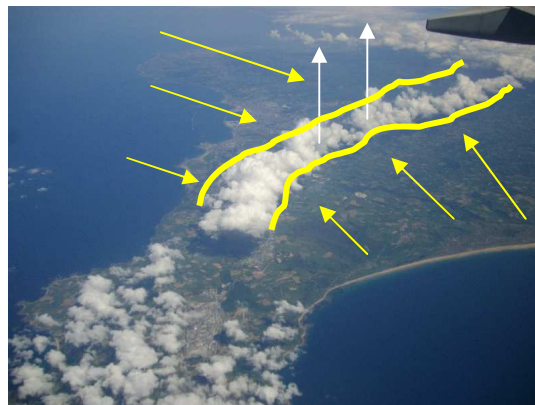


Figure 2.39 : Photographie montrant la convergence de deux brises de mer au niveau de la presqu'île du Cotentin<sup>1</sup>.

### 2.3.2. La brise de terre

Au cours de la nuit, le processus inverse se produit car la terre se refroidit plus rapidement que la mer. On observe alors une brise de terre. Cependant, les processus convectifs nocturnes au dessus de la mer sont beaucoup moins puissants qu'en journée au dessus de la terre. Son développement est

<sup>1</sup> <http://www.infoclimat.fr/multimedia>

moins marqué qu'au cours de la journée. La brise de terre commence en milieu de nuit et l'intensité maximale est observée juste avant le lever du soleil.

Ce type de circulation s'observe également à proximité des points d'eau tel que les grands lacs ou les fleuves importants. Néanmoins, les gradients thermiques sont faibles et les brises de lacs sont généralement plus faibles que celles observées en bordure de mer. Le développement des brises n'est pas systématique mais une masse d'air instable favorise l'apparition de ce type de circulation.

Talbot *et al.* (2007) montrent à l'aide de mesures LIDAR couplées au modèle Més0-NH que le développement de la brise de mer au niveau de Dunkerque provoque une stratification complexe de la CLA favorisant l'encapsulation et donc l'accumulation de polluants gazeux tel que le SO<sub>2</sub> au niveau de la zone côtière. L'impact de ce phénomène dynamique local sur la pollution photochimique à l'échelle de la région NPDC sera discuté dans le chapitre 3 de ce mémoire.

### ***L'îlot de chaleur urbain***

L'urbanisation engendre deux processus dynamiques susceptibles de modifier la circulation des basses couches troposphériques. Dynamiquement, les infrastructures perturbent les écoulements atmosphériques naturels et donc la dispersion des polluants. De plus, la ville introduit une perturbation thermique importante dans le bilan énergétique en surface. En effet, un flux énergétique vertical anthropique noté  $Q_A$  doit être pris en compte dans le bilan énergétique de surface [Makar *et al.*, 2006].

Le flux énergétique  $Q_A$  provient du chauffage urbain résidentiel et les matériaux stockant la chaleur. Un îlot de chaleur englobe alors la zone urbaine. En été, l'influence de l'îlot de chaleur urbain peut atteindre verticalement la première inversion thermique. Par conséquent, la hauteur de la couche limite peut être jusqu'à 40% plus haute en ville que celle observée en zone rurale [Stull, 1988]. L'impact de ce phénomène sur la qualité de l'air urbaine est un thème de recherche très actif à l'heure actuelle [Crutzen et Paul, 2004].

L'amplitude thermique entre l'îlot de chaleur urbain et la zone rurale peut atteindre plusieurs degrés Celsius. Une « brise de ville » (Figure 2.40) peut ainsi se développer selon le même principe que la brise de mer s'il n'y a pas de forçage mécanique dominant (passage d'un front). Le gradient est maximal la nuit et en hiver. La brise de ville provoque notamment la recirculation et parfois l'accumulation de masses d'air polluées sur une même zone.

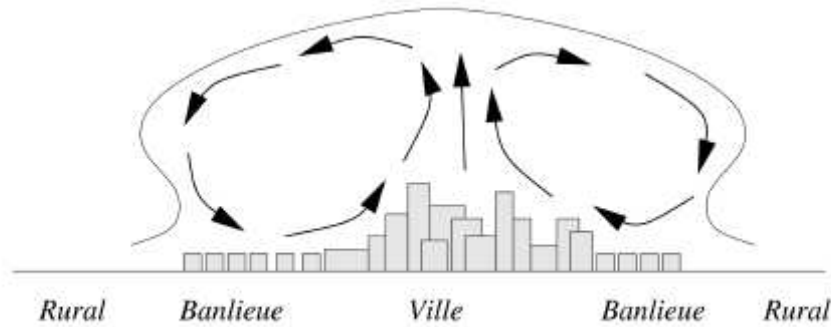


Figure 2.40 : Schématisation de la cellule de brise de ville.

Sarrat *et al.* (2006) démontrent que l'introduction d'une paramétrisation simulant l'îlot de chaleur Parisien au sein d'un modèle de Chimie-Transport, provoque une augmentation de la hauteur de la CLA diurne d'environ 400 m. De plus, les auteurs mettent en évidence le fait que la couche résiduelle nocturne est plus épaisse et plus haute lors de la prise en compte du flux anthropique urbain (1300 m contre 1100 m sans la paramétrisation). Lors d'épisodes d'ozone, une quantité plus importante de ce gaz se retrouve piégée dans la Couche Résiduelle (CR). En matinée, le développement de la CLA érode la CR et l'ozone contenu dans cette dernière peut se mélanger à la CLA. La répétition de ce processus sur plusieurs jours peut conduire à une forte accumulation d'ozone dans les basses couches troposphériques. L'urbanisation influence donc directement la distribution spatiale des polluants primaires et secondaires au sein de la CLA urbaine.

L'Annexe B-4 présente les résultats d'une campagne de mesures réalisée par le laboratoire de Géographie des Milieux Anthropisés de l'Université de Lille 1 en 1997. Les données de cette étude sont décrites dans le PDU de l'agglomération Lilloise<sup>1</sup>. Les écarts de températures entre le centre de Lille (place de la République) et l'ensemble de la métropole y sont représentés. Les mesures de température ont été effectuées au cours des mois de janvier et février 1997 entre 06h00 et 07h30 heure locale. L'ensemble des mesures a été réalisé en période anticyclonique propice au développement d'un îlot de chaleur.

Certaines parties de l'agglomération apparaissent plus chaudes que le point de référence. C'est le cas des quartiers de Wazemmes ou du Vieux-Lille, à l'ouest et au nord-est de Lille respectivement. Les villes de Roubaix et Tourcoing apparaissent comme une zone chaude d'où une organisation bipolaire de l'îlot de chaleur urbain avec d'une part l'agglomération Lilloise et d'autre part l'ensemble Roubaix-Tourcoing. Les mesures réalisées en zone rurale présentent des températures inférieures de 3 à 4,5°C par rapport au centre-ville de Lille.

La position géographique de l'agglomération n'est pas spécifiquement propice au développement d'une brise de ville. En effet, le faible relief conjugué aux vents dominant de Sud-

<sup>1</sup> [http://www.lillemetropole.fr/gallery\\_files/site/124009/124024.pdf](http://www.lillemetropole.fr/gallery_files/site/124009/124024.pdf)

Ouest (SO) soufflant régulièrement d'octobre à mars, a tendance à homogénéiser les contrastes thermiques entre les zones urbaines et rurales. Les périodes favorables au développement de l'îlot de chaleur correspondent aux situations météorologiques anticycloniques ou de marais barométrique.

### **2.3.3. Régime climatique régional du NPDC**

Selon Météo-France, la région NPDC peut être divisée en cinq types de climats régionaux numérotés de 1 à 5 sur la Figure 2.41.

La zone 1 est sous l'influence d'un régime océanique pur. Exposée aux vents dominants (SO), cette région enregistre les précipitations les plus fortes de la région NPDC (1000 mm/an sur le haut Pays d'Artois). Une contribution importante provient des grandes perturbations atlantiques d'octobre à mars. Les écarts saisonniers de température sont sensiblement atténués et l'amplitude thermique annuelle est de 13°C environ. Les maxima moyens estivaux approchent les 21°C dans l'arrière pays.

La zone 2 a un régime identique à la zone 1 mais l'absence de relief explique le niveau plus faible des précipitations (750 mm/an).

La zone 3 correspond à un climat dit « Artésien ». Les reliefs Artésiens connaissent une pluviométrie importante (800 à 900 mm/an) avec des pluies nettement moins intenses sur le versant nord-est, abrité des vents dominants. L'influence maritime ne se fait plus sentir directement et la part des pluies d'automne diminue en allant vers l'Est. L'amplitude thermique annuelle s'établit autour de 14°C et les maxima moyens estivaux avoisinent les 21°C.

La zone 4 couvrant la métropole Lilloise est un climat océanique de transition. Des Monts des Flandres au Hainaut-Crambrésis, les pluies automnales sont peu abondantes avec un minimum (300 mm/an) suivant le versant nord-est des reliefs artésiens, protégé des perturbations atlantiques. En revanche, on note une accentuation des averses à l'approche de l'été, liée à un réchauffement plus rapide des sols. Cette accentuation est très sensible sur l'Est de la région où le maximum mensuel des précipitations est enregistré en juin. L'amplitude thermique annuelle varie entre 14 et 15°C. Les maxima moyens estivaux approchent les 23°C.

Enfin la zone 5 possède un climat océanique altéré. L'automne en Avesnois est nettement moins pluvieux que sur le Haut Pays d'Artois, en dépit d'altitudes (100 m en moyenne) assez semblables. En revanche, les averses sont fréquentes de mai à juin. Cette zone possède la plus forte amplitude thermique de la région (16°C en moyenne) et les étés les plus chauds avec des maxima estivaux moyens de 24°C.



Figure 2.41 : Les différents régimes climatiques de la région NPDC (1 = Océanique pur, 2 = Océanique pur sans relief, 3 = Artésien, 4 = Océanique de transition, 5 = Océanique altéré).

La rose des vents de la Figure 2.42 a été établie à partir des mesures de direction et de vitesse du vent moyen (intégration sur 10 min) effectuées toutes les trois heures pour la période 1993-1997 à la station météorologique de Lille-Lesquin. On observe que les vents tri-horaires supérieurs à 2 m/s proviennent majoritairement du SO et du NE. Les vents les plus puissants (> 8 m/s) sont à dominante SO. La région NPDC est ainsi sous l'influence directe des vents océaniques la majeure partie de l'année.

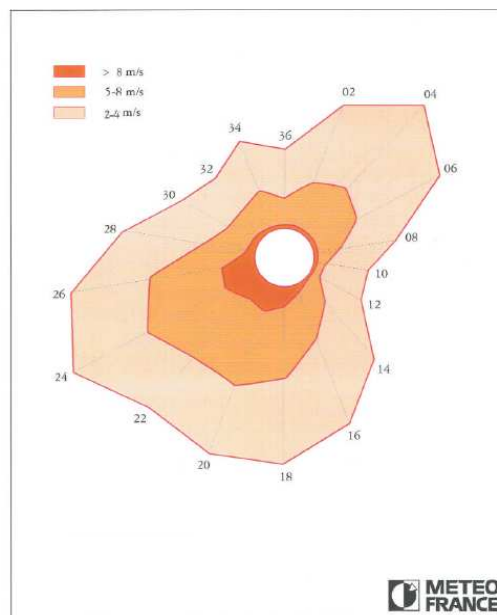


Figure 2.42 : Rose des vents établie pour la station Lille-Lesquin (moyenne tri-horaire 1993-1997).



## 2.4. Conclusion

Après avoir présenté la méthode de construction l'inventaire régional, les données issues de trois inventaires d'émissions pour la région NPDC ont été comparées au inventaire national français du CITEPA. Ceci a permis de caractériser la région NPDC en termes d'émissions polluantes ainsi que du point de vue dynamique. Il apparaît que les secteurs industriels et routiers sont largement dominants en terme d'émissions en NO<sub>x</sub>, COVNM, CO, CH<sub>4</sub> et TSP par rapport à la moyenne nationale.

Dans une deuxième partie, les concentrations moyennes annuelles de la région NPDC sont comparées aux moyennes annuelles nationales des autres régions françaises pour trois polluants clés. Il en ressort que la région NPDC se positionne comme l'une des sept régions les plus polluées de France pour le NO<sub>2</sub> et parmi les cinq régions, de la moitié nord de la France, les plus touchées par la pollution particulaire et l'ozone.

Enfin, deux spécificités dynamiques susceptibles d'être rencontrées en région NPDC ont été décrites à savoir la brise de mer et l'îlot de chaleur urbain.

La pollution de l'air en région NPDC est donc un sujet majeur qui est pris en compte dans les politiques environnementales de la région NPDC avec la plus grande attention. L'outil modélisation apparaît comme un outil de recherche intéressant afin de répondre aux différentes questions des décideurs. Le troisième chapitre de ce manuscrit décrit les différents modèles utilisés lors des travaux de thèse.

## **CHAPITRE 3**

# **MISE EN ŒUVRE DE LA PLATE-FORME POQAIR**



## INTRODUCTION

L'outil « modélisation » a été sélectionné afin de reproduire et, à terme, de prévoir les événements de pollutions photochimiques et particulaires affectant la région NPDC. Dans le cadre du développement de la plate-forme modélisation POQAIR, un certain nombre de modèles numériques ont été mis en place au laboratoire PC2A. Il s'agit du modèle météorologique MM5, du modèle de chimie-transport CHIMERE et du modèle de dispersion de particules FLEXPART. Ce chapitre s'attache à décrire les principales caractéristiques de ces modèles utiles à leur compréhension et à leur mise en œuvre.

### 3.1. Généralités sur le POrtail Qualité de l'AIR : POQAIR

#### *Cadre du projet POQAIR*

La mise en place du système de modélisation au PC2A est liée au projet de mise en œuvre d'une plateforme d'étude de la qualité de l'air appliquée à la région NPDC. Il a été initié en juillet 2005 par le Conseil Régional NPDC. Les systèmes utilisés lors des travaux de thèse font donc partie d'une plateforme test de recherche nommée POQAIR. Celle-ci est développée au PC2A en collaboration avec le LIFL (Laboratoire d'Informatique de Lille), le département informatique de l'IUT A, le TVES (Laboratoire Territoires, Villes, Environnement et Société) de Lille ainsi que le CETE NP (Centre d'Etudes Techniques de l'Équipement Nord Picardie) et l'APPA NPDC (Association de Prévention de la Pollution Atmosphérique). POQAIR est composé de divers modèles. Les modèles Eulériens de chimie-transport CHIMERE [Schmidt *et al.*, 2001; Vautard *et al.*, 2001] et POLAIR 3D [Quelo *et al.*, 2007], le modèle Lagrangien FLEXPART [Stohl *et al.*, 1998], le modèle météorologique méso-échelle MM5 [Grell, 1994] et le cadastre d'émissions de polluants de la région NPDC sont disponibles au sein de la plateforme (Figure 3.1).

Trois modèles ont été installés sur le portail lors de ce travail de thèse. Il s'agit du modèle Eulérien de chimie-transport CHIMERE, du modèle méso-échelle 5<sup>ème</sup> génération (MM5) pour la météorologie et enfin du modèle Lagrangien FLEXPART. Les données météorologiques nécessaires à CHIMERE et FLEXPART sont issues de calculs effectués avec MM5. Les systèmes de modélisation utilisés sont : MM5-CHIMERE et MM5-FLEXPART. Il s'agit de logiciels LPG. Un traitement statistique et la représentation graphique des données de polluants sont également disponibles sur POQAIR. Un site internet (<http://poqair.univ-lille1.fr>) permet l'extraction et la visualisation graphique des données issues des simulations météorologiques et physico-chimiques pour différents domaines allant de l'échelle régionale à l'échelle continentale.

L'utilisation de logiciels libres présente plusieurs avantages :

- il est possible pour l'ensemble des utilisateurs, de modifier et de rediffuser le code dans le but de l'optimiser : principe du développement par les utilisateurs pour les utilisateurs,
- l'utilisateur peut accéder et connaître les différentes paramétrisations utilisées dans le modèle (pas d'effet « boîte noire »),
- le code peut être développé et amélioré perpétuellement dans la direction désirée par l'utilisateur.

En revanche l'utilisateur doit être conscient de certaines problématiques liées à l'utilisation de ce type de logiciel :

- des parties de code non finalisées peuvent être introduites au sein du modèle,
- la difficulté de comprendre le code par le manque de renseignement lors de son écriture (par exemple : absence de commentaire),
- des erreurs peuvent être introduites dans le code par les utilisateurs ne le maîtrisant pas correctement,
- la documentation d'utilisation peut être absente ou incomplète.

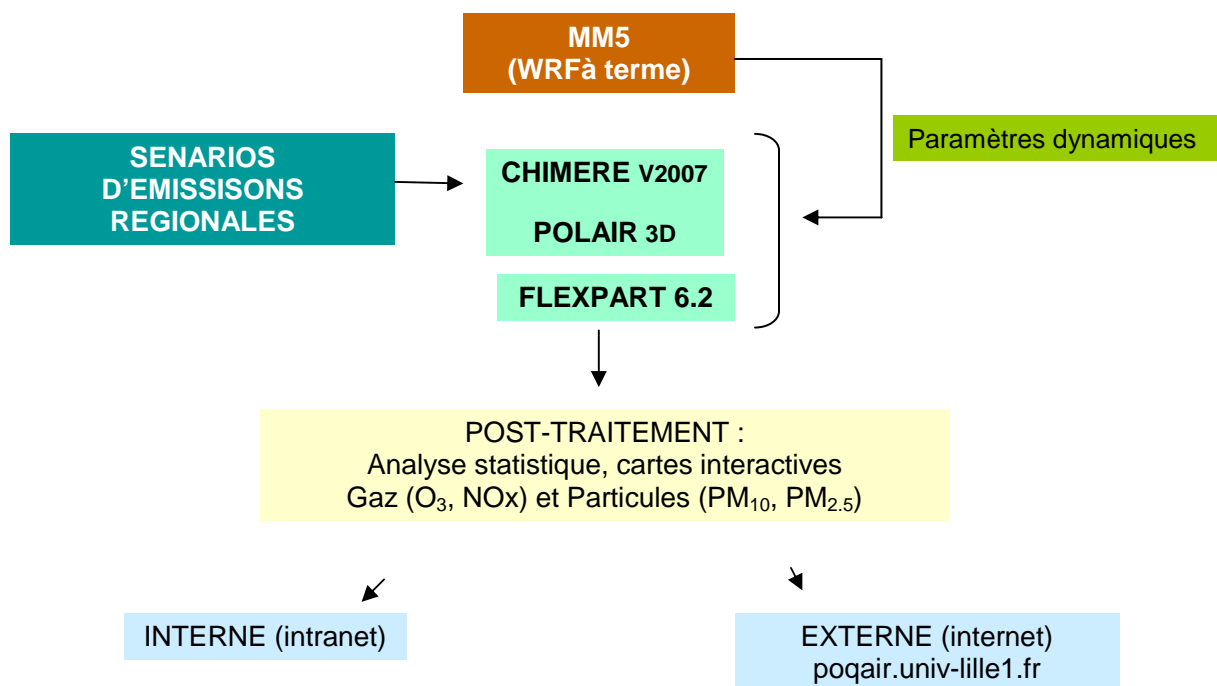


Figure 3.1 : Schéma de l'architecture globale de POQAIR

### *Motivations*

Trois raisons principales ont motivé la mise en œuvre de cette plate-forme :

- permettre au laboratoire PC2A d'acquérir une indépendance et un savoir-faire en matière de modélisation météorologique et en modélisation des polluants troposphériques à l'échelle de la région NPDC,
- apporter une expertise en matière de modélisation lors de l'implication du laboratoire PC2A dans divers projets de dimensions nationales ou internationales,
- développer une dynamique de recherche active en modélisation de la physico-chimie des polluants troposphériques au niveau régional permettant au PC2A d'initier de nouveaux projets de recherches et collaborations.

Des systèmes similaires sont utilisés et évalués par d'autres laboratoires de recherche se consacrant à la modélisation de la physico-chimie atmosphérique. Pour référence, nous pouvons citer les systèmes suivants pour des applications continentales :

- Eta-CMAQ utilisé sur le sud-est des Etat-Unis [Eder *et al.*, 2006],
- MM5-RAQM sur la Chine [Han, 2007],
- MM5-CAMx sur l'Afrique du Sud [Zunckel *et al.*, 2006] ou sur le sud de la France [Pirovano *et al.*, 2007].

Pour des applications en zones urbaines :

- ECMWF-CHIMERE sur Paris [Vautard *et al.*, 2001],
- MM5-CMAQ pour Madrid [San José *et al.*, 2005] ou Londres [Sokhi *et al.*, 2006].

Enfin pour des applications côtières :

- ECMWF-CHIMERE pour le Portugal [Monteiro *et al.*, 2005; Monteiro *et al.*, 2007],
- MM5-UAM-V pour la Corée du Sud [Oh *et al.*, 2006].

## 3.2. Mise en œuvre du modèle méso-échelle MM5

### 3.2.1. Description générale

MM5 est un projet développé par le Pennsylvania State University (PSU) et le National Center for Atmospheric Research (NCAR). L'optimisation du code est assurée grâce à la contribution de plusieurs universités et laboratoires américains. Une description détaillée des paramétrisations du modèle peut être trouvée en ligne<sup>1</sup>.

MM5 peut être utilisé sur une station de travail de type Unix-Linux, Cray ou IBM. Le modèle MM5 résout des équations de la mécanique des fluides géophysiques et de thermodynamiques appliquées à l'atmosphère. Toutes ces équations prennent en compte le paramètre de Coriolis lié à la rotation de la Terre. Ce modèle est basé sur la résolution de trois principaux jeux d'équations :

- les équations de Navier-Stokes pour le champ de vent,
- l'équation de la conservation de l'énergie liée au premier principe de la thermodynamique pour le champ de température,
- l'équation de continuité pour le champ de pression et la quantité de vapeur d'eau.

### 3.2.2. Architecture globale

Le terme MM5 désigne une série de six modules, dont deux optionnels, s'enchaînant et assurant les étapes nécessaires à l'élaboration d'un calcul pour un domaine prédéfini (Figure 3.2) :

• **TERRAIN** : Ce premier module permet de générer les limites géographiques des domaines à modéliser avec la topographie et l'occupation végétale des sols associés. Plusieurs types de projections sont possibles : Mercator pour les basses latitudes, Lambert pour les moyennes latitudes utilisé dans ce travail et polar stéréographique pour les hautes latitudes.

Le module TERRAIN utilise 14 classes définies par l'US Geological Survey<sup>2</sup> (USGS) pour l'occupation des sols. Chaque catégorie de sol correspond à 5 paramètres dynamiques (Annexe C-1) : l'albédo (en %), l'humidité disponible dans le sol (en %), l'émissivité (en % pour  $\lambda = 9 \mu\text{m}$ ), la hauteur de friction  $Z_0$  (en cm), et la capacité thermique (en  $\text{ca.cm}^2 \cdot \text{K}^{-1} \cdot \text{s}^{-1/2}$ ). La résolution des données varie entre 111 km et 1 km environ. Chaque paramètre dynamique dispose d'une valeur pour les mois d'été et d'une seconde pour les mois d'hivers.

---

<sup>1</sup> <http://www.mmm.ucar.edu/mm5>

<sup>2</sup> <http://www.usgs.gov>

• **REGRID** : Ce module extrait et interpole les données météorologiques, issues d'un modèle global, sur la grille du domaine choisie pour la modélisation. Dans le cadre des travaux de thèse, les fichiers globaux initialisant le modèle MM5 sont issus du Global Forecast System (GFS) géré par l'institution Américaine « National Oceanographic and Atmospheric Administration » (NOAA). Il s'agit des fichiers FNL<sup>1</sup> pour la modélisation diagnostique et GFS<sup>2</sup> pour la modélisation pronostique.

• **INTERPF** : Ce module interpole les données sur les lignes de coordonnées verticales et prépare des fichiers de données à la fois initiales et aux limites des domaines.

• **MM5** : Ce module est le dernier de la chaîne et procède aux calculs numériques : résolution des équations différentielles avec un schéma numérique approprié et les différentes options de paramétrisations sélectionnées par l'utilisateur.

• **LITTLE-R** (module optionnel) : Ce module permet de produire des fichiers issus de données mesurées, nécessaire à l'assimilation de données par la technique de l'*observational nudging* (paragraphe 2.3.7).

• **NESTDOWN** (module optionnel) : Ce module utilise la technique d'imbrication décrite dans la suite du chapitre au paragraphe 2.3.5 en mode *one-way* uniquement. Il utilise un fichier, MMOUT\_DOMAIN1 issu du module MM5 de résolution grossière ainsi que fichier TERRAIN\_DOMAIN2 de résolution plus fine afin de produire des fichiers d'entrées pour le module MM5. Le but est d'appliquer rapidement la technique du *nesting* afin d'affiner la résolution de fichiers issus du module MM5.

Le Tableau 3.1 récapitule les fichiers d'entrée et de sortie des différents modules indispensables au fonctionnement du modèle MM5.

---

<sup>1</sup> <http://dss.ucar.edu/datasets/ds083.2>

<sup>2</sup> <ftp://ftpprd.ncep.noaa.gov/pub/data/nccf/com/gfs/prod>



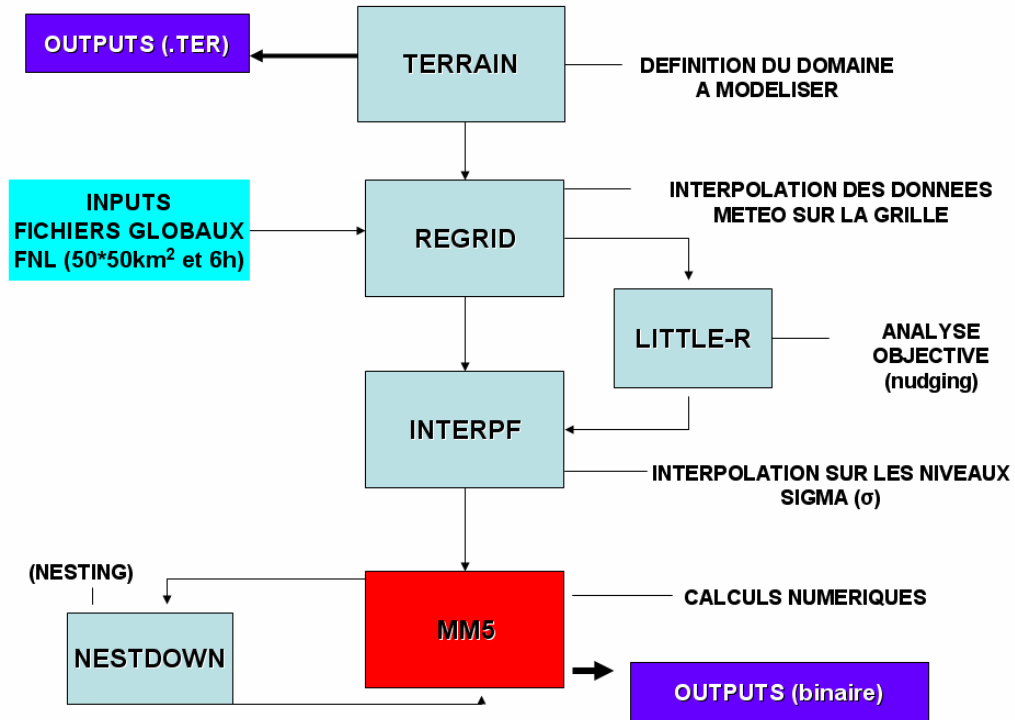


Figure 3.2 : Architecture générale et imbrication des différents modules composant le modèle MM5.

Tableau 3.1 : Récapitulatif des fichiers d'entrée et de sortie des différents modules du modèle MM5.

	FICHIERS D'ENTREES	FICHIERS DE SORTIES
<b>TERRAIN</b>	Topographie, occupation des sols	TERRAIN_DOMAINx
<b>REGRID</b>	TERRAIN_DOMAINx	REGRID-DOMAINx
<b>LITTLE-R (optionnel)*</b>	DONNEES MESUREES	LITTLE-R_DOMAINx
<b>INTERPF</b>	REGRID-DOMAINx LITTLE-R-DOMAINx*	BDYOUT_DOMAINx LOWBDY_DOMAINx MMINPUT_DOMAINx
<b>MM5</b>	LOWBDY_DOMAINx BDYOUT_DOMAINx MMINPUT_DOMAINx	MMOUT_DOMAINx
<b>NESTDOWN</b>	TERRAIN_DOMAINx MMOUT_DOMAINx-1	LOWBDY_DOMAINx BDYOUT_DOMAINx MMINPUT_DOMAINx

\*fichier optionnel

Le lancement du module MM5 implique la gestion de nombreux fichiers en moyenne de plusieurs centaines de Mb de données. Afin d'automatiser le lancement des différents modules, un script en langage *c-shell* nommé *mastermod* a été écrit pendant la thèse (Annexe C-2). Son utilisation est simple et destiné aussi bien à un utilisateur de MM5 averti qu'à un débutant. Seul l'indication des différents fichiers d'entrée est demandée par *mastermod*.

### 3.2.3. Système de coordonnées

#### *Coordonnées verticales du domaine modélisé*

Les lignes de niveaux verticaux épousent la topographie au niveau du sol puis deviennent progressivement horizontales en altitude. Ces coordonnées ont une progression verticale géométrique et sont dites *terrain-following*. Une meilleure résolution verticale est donc assurée au niveau de la CLA, principale zone d'intérêt pour la modélisation de la qualité de l'air. Les différents niveaux de pression verticale  $\sigma$  sont définis par l'Eq. 3.1 :

$$\sigma = \frac{(p_0 - p_t)}{(p_s - p_t)} \quad \text{Eq. (3.1)}$$

où  $p_0$  est la pression du niveau  $\sigma$  à déterminer,  $p_t$  la constante spécifique de la pression au niveau du plafond (100 hPa dans notre cas), et  $p_s$  la pression de référence au niveau du sol (1000 hPa dans notre cas).  $\sigma$  varie entre 0 et 1.

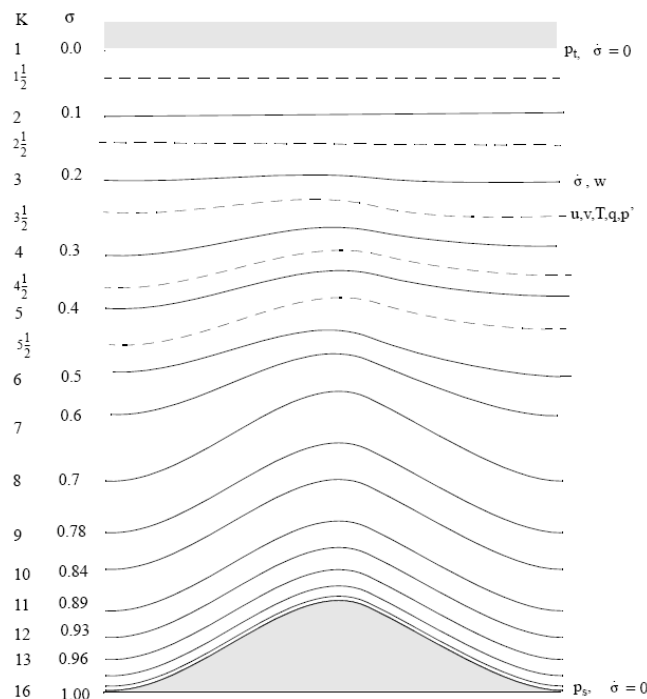


Figure 3.3 : Représentation schématique du maillage vertical du modèle MM5 : Exemple pour 15 couches verticales. Les lignes pleines représentent les niveaux  $\sigma$ , les lignes tirets représentent les niveaux  $\sigma$ -demi et K le numéro des différentes couches.

La Figure 3.3 représente de manière schématique la structure verticale des différentes couches (niveau  $\sigma$  et  $\sigma$ -demi) du modèle MM5. Leur nombre peut varier de 10 à 40. Les couches ne sont pas nécessairement de la même épaisseur et la résolution la plus fine se situe au niveau de la CLA. On remarque que les variables  $u$ ,  $v$ ,  $T$ ,  $q$  et  $p$  se situent sur les niveaux « demi- $\sigma$  » alors que la variable  $w$  se situe sur les niveaux  $\sigma$ .

### Coordonnées horizontales du domaine modélisé

La grille utilisée est de type Arakawa-Lamb avec comme variable le vecteur « vent » Est et Ouest localisé au coin de la maille (points). Les scalaires du type ( $T$ ,  $q$ ,  $p'$  et  $w$ ) sont localisés au centre de la maille (croix) (Figure 3.4). L'intérêt de cette méthode est de séparer la référence géographique sur la grille des variables scalaires et des vecteurs. Le traitement des calculs est alors simplifié. Cependant, le fait que toutes les variables n'appartiennent pas à un point identique de la maille peut poser un problème de représentativité.

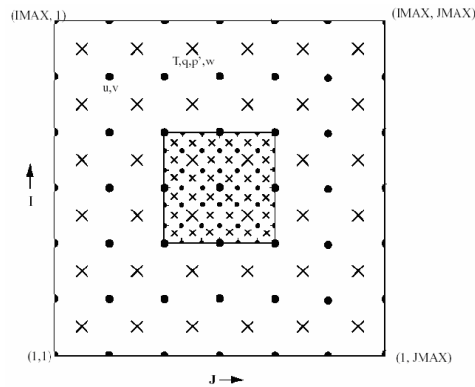


Figure 3.4: Représentation schématique d'une grille (fille et mère) de type Arakawa B (rapport de 3:1 entre la grille mère et la grille fille).

Il existe un certain nombre d'options propres à MM5. Nous détaillerons les techniques d'utilisation de quelques unes de ces options importantes pour la modélisation MM5. Il s'agit de l'option non-hydrostatique, de la technique d'imbrication ou *nesting* et de l'assimilation de données.

#### 3.2.4. L'option non-hydrostatique

L'hypothèse hydrostatique permet de négliger la composante verticale dans les équations de conservation de la quantité de mouvement sur la verticale. L'équation de conservation est donnée par l'Eq. 3.2 :

$$\frac{Dw}{Dt} + \frac{\partial p}{\partial z} = -\rho g \quad \text{Eq. (3.2)}$$

où  $g$  est l'accélération gravitationnelle ( $9,81 \text{ m.s}^{-2}$ ),  $p$  la pression atmosphérique (hPa),  $\frac{Dw}{Dt}$  la vitesse verticale et  $z$  l'altitude (m).

Dans le cas de l'hypothèse hydrostatique, le terme  $\frac{Dw}{Dt}$  est éliminé ( $w$  étant la composante verticale de la vitesse du vent). On a alors un équilibre hydrostatique entre la gravité ( $g$ ) et le gradient de pression verticale ( $\frac{\partial p}{\partial z}$ ). La pression est entièrement déterminée par la masse d'air présente au dessus de la zone modélisée.

L'accélération verticale peut être négligée pour les phénomènes d'échelles synoptiques. En revanche, lorsque que le rapport entre les échelles verticales et horizontales du système à modéliser est proche de 1 ou si l'échelle horizontale est petite devant l'échelle verticale, l'hypothèse de l'hydrostatique ne peut pas être utilisée. Ainsi, la modélisation des phénomènes dynamiques méso-échelle (ligne de grains, orages) utilise l'option non-hydrostatique. Dans le cadre du travail de thèse, nous travaillons à l'échelle régionale et l'option non-hydrostatique est utilisée.

### 3.2.5. La technique d'imbrication des domaines

Afin de définir les domaines modélisés, MM5 utilise la technique d'imbrication ou *nesting*. La technique implique la détermination d'une Grille Mère (GM) ou *master domain* de résolution grossière dans laquelle sera insérée une grille fille (GF) ou *small domain* de résolution plus fine. L'intérêt de cette technique est de fournir des données de résolution fine à chaque GF. Elle est particulièrement adaptée à la modélisation des domaines de fines résolutions ayant des topographies spécifiques (lacs, montagnes, mer). Dans le cadre de la thèse, les domaines de simulation sont à l'échelle de la région NPDC. Nous utiliserons le *nesting* afin de disposer de conditions aux limites du domaine de meilleures qualités. Ces données sont plus représentatives des conditions locales régionales que celles provenant d'un modèle global de résolution grossière.

La GF utilise pour ses conditions initiales et de bords des données provenant de sa GM : on parle de *nesting* en mode aller (*one-way*). Lorsque la GF renvoie à son tour des informations à sa GM, il s'agit du mode aller-retour (*two-way*). Les GF et la GM ont des résolutions verticales identiques avec le même nombre de couches verticales. En revanche, le rapport entre la résolution horizontale de la GM et celui de la GF est fixé à 3 par les concepteurs de MM5.

Les données provenant de la GM doivent être inévitablement interpolées. Les techniques traditionnelles d'interpolation utilisant le *polynomial-fitting* provoquent de fortes instabilités numériques au niveau des zones de fort gradient. Une solution consiste à implémenter une technique

dite de « lissage » ou à augmenter la diffusion. Ce type de technique engendre irrévocablement la perte d'information. Ainsi, MM5 utilise une technique avancée d'interpolation de type *shape-preserving* (conservation de structures) qui introduit des contraintes appropriées dans le schéma d'interpolation [Smolarkiewicz et Grell, 1992].

Il existe trois types d'options pour l'initialisation du *nesting* en mode allez-retour. La balise IOWERW du script « terrain.deck » (Annexe C-3) contrôle l'activation de ces trois options.

- **Si IOWERW = 0**

Chaque GF reçoit ses données initiales et de bords en interpolant les données provenant de chaque GM y compris la topographie. Il n'y a pas de fichiers d'entrée spécifiques pour chaque GF. Cette option peut être utilisée lorsque le début de la simulation d'une GF commence après celle de la GM. La résolution de la topographie correspond à celle du plus grand domaine. Il est donc préférable que la topographie des GF soit homogène.

- **Si IOWERW = 1**

Un fichier d'entrée MMINPUT doit être disponible pour chaque GF avant le début de la simulation. Chaque fichier contient les données météorologiques et topographiques à la résolution de chaque GF. Cette option s'applique uniquement si la date de départ de la simulation est la même pour les GM et GF. Du fait de l'importance de la topographie pour notre domaine (interface air-mer), cette option est utilisée lors de ce travail de thèse.

- **Si IOWERW = 2**

Cette option nécessite uniquement un fichier TERRAIN pour chaque domaine. Les données météorologiques sont interpolées à partir de la GM mais la topographie et l'occupation des sols proviennent des fichiers TERRAIN propres à chaque GF. Un ajustement vertical des données interpolées sur les champs du *terrain-following* est nécessaire pour chaque GF. Les simulations des GF peuvent commencer après la date de lancement de leur GM.

### **3.2.6. Conditions aux bords des grilles filles**

Les données provenant de la GM sont assimilées aux bords de la GF en utilisant la technique de la relaxation Newtonienne. La relaxation s'applique sur les 5 mailles du bord de la GF. Le coefficient de relaxation décroît linéairement lorsque l'on s'éloigne du bord du domaine imbriqué. Pour le plus grand domaine, les données initiales et de bords proviennent du modèle global GFS (Global Forecast System). Prenons une variable  $\alpha$ . Son assimilation est décrite par l'Eq. 3.3.

$$\left(\frac{\partial \alpha}{\partial t}\right)_n = F(n)F_1(\alpha_{LS} - \alpha_{MC}) - F(n)F_2\Delta_2(\alpha_{LS} - \alpha_{MC}) \quad \text{Eq. (3.3)}$$

avec  $n = 2, 3, 4$

Dans cette équation, MC (*Model Calculated*) traduit la tendance calculée par le modèle, LS (*Large Scale*) la tendance provenant dans notre cas du modèle global et n traduit la distance entre la maille et le bord du modèle. Dans le cas où  $n = 1$ , la relaxation s'applique à la maille au bord du domaine.

F(n) décroît linéairement depuis le bord du modèle vers le centre de la grille selon l'Eq. 3.4.

$$F(n) = \left(\frac{5-n}{3}\right) \text{ pour } n = 2, 3, 4 \quad \text{Eq. (3.4)}$$

et  $F(n) = 0$  pour  $n > 4$

$F_1$  et  $F_2$  sont données par les Eq. 3.5 et 3.6 respectivement.

$$F_1 = \frac{1}{10\Delta t} \quad \text{Eq. (3.5)}$$

$$F_2 = \frac{\Delta x^2}{50\Delta t} \quad \text{Eq. (3.6)}$$

$\Delta t$  correspond au pas de temps choisi pour la simulation et  $\Delta x^2$  à la distance au bord de la maille.

En mode non-hydrostatique, la vitesse verticale n'est pas relaxée. Elle peut varier librement excepté pour les mailles situées aux bords du domaine où les conditions de gradient nul sont appliquées.

Enfin, les variables d'humidité, précipitation, neige, glace sont considérées comme nulles en entrée et de gradient zéro en sortie. Ainsi, ces variables peuvent uniquement varier à l'intérieur du domaine dans lequel elles sont présentes. Elles ne peuvent être importées ou exportées et leur valeur initiale est donnée par le fichier de conditions initiales.

### 3.2.7. L'assimilation de données

L'assimilation de données ou *Four-Dimensional Data Assimilation* (FDDA) utilisé par MM5 est une méthode d'incorporation de données à chaque pas de temps de la simulation [Stauffer et

Seaman, 1994]. Les équations du modèle assurent la consistance dynamique du code. Les observations assimilées gardent alors les résultats numériques proches des conditions observées en masquant les données « oubliées » par l'analyse initiale et en comblant les lacunes du modèle. La technique utilisée pour intégrer les observations est la relaxation Newtonienne ou *nudging*. Deux types de relaxation peuvent être utilisés avec MM5 :

- **La relaxation d'analyse** ou *grid nudging* consiste à ajouter un terme dit artificiel à une ou plusieurs équations pronostiques du modèle afin de relaxer la donnée calculée par MM5 vers une valeur connue et issue d'un modèle d'échelle globale (GFS dans notre cas).

- **La relaxation d'observation** ou *observational nudging* est recommandée lorsque l'on dispose de données météorologiques de très fines résolutions (ex : profileurs de vents, ballons sondes). La donnée calculée est alors relaxée vers une donnée mesurée par les réseaux de mesures météorologiques. Cette option nécessite la présence de stations de mesures réparties de manière homogène sur le domaine modélisé. Chaque observation possède un rayon d'influence et est utilisée lorsque sa date d'observation coïncide avec le pas de temps de la simulation. En général, un point de la grille modélisée est sous l'influence de plusieurs données mesurées. Leur contribution respective est répartie proportionnellement en fonction de leur distance par rapport au point de la maille modélisée. Le facteur de relaxation (F) ajouté est artificiel et ne doit pas être le terme dominant des équations du modèle. Son ordre de grandeur doit être proche de la variable physique ayant la plus faible variation temporelle. Ainsi, la valeur de F sera proche du paramètre de Coriolis. Elle doit aussi respecter le critère de stabilité numérique :  $F \leq \frac{1}{\Delta t}$ . Les valeurs types de F varient entre  $10^{-4} \text{ s}^{-1}$  et  $10^{-3} \text{ s}^{-1}$ . Une valeur trop grande forcera de manière trop importante les données calculées vers les valeurs des données observées. Ces types de valeurs ne sont pas recommandés afin de ne pas gêner la capacité des équations du modèle à résoudre le principe de conservation de la masse ainsi qu'à développer ses propres structures méso-échelles.

### 3.2.8. Détermination des domaines

Le Tableau 3.2 présente pour chaque domaine le nombre de mailles en direction de X et de Y ainsi que la résolution associée. On remarque que le rapport 3:1 entre les grilles mères et fille est respecté pour les DOM1, 2 et 3. Le domaine EURO 1 a été produit séparément.

**Tableau 3.2: Récapitulatif des caractéristiques des différents domaines**

Nom	$N_x$	$N_y$	$N_z$	Résolution horizontale (km)
EURO1	85	85	23	60
EURO2	82	82	23	20
DOM 1	32	36	23	27
DOM 2	46	61	23	9
DOM 3	52	67	23	3

$N_x$  = nombre de maille en abscisse.

$N_y$  = nombre de maille en ordonnée.

$N_z$  = nombre de niveaux selon la verticale.

Les cartes de l'occupation des sols et de la topographie des différents domaines utilisés peuvent être trouvées dans l'Annexe C-4. Les données proviennent de l'USGS<sup>1</sup> et leur résolution varie entre 1 et 111 km. Pour la végétation, 24 catégories sont disponibles. Pour le DOM1, on note que des villes (mailles rouges) comme Lille et Dunkerque sont absentes et que les forêts (mailles vertes) sont partiellement représentées. La résolution du DOM2 est plus fine. Ainsi on préférera, le DOM2 pour réaliser la modélisation régionale. Le DOM3 correspondent aux meilleures résolutions disponibles avec MM5 mais le coût du calcul est élevé. Ce domaine est réservé à des études spécifiques sur la zone industrielle de Dunkerque.

MM5 calcule plusieurs dizaines de variables, disponibles dans les fichiers de sortie du module MM5 (Annexe C-5). L'utilisation du module de *post-processing* RIP4 des outils *open-source*, *NCARGRAPHIC*<sup>2</sup>, permet de tracer les cartes synoptiques des domaines modélisés comportant par exemple les isobares, les isothermes et les vecteurs vents (Figure 3.5). Les coupes verticales vont du nord-ouest au sud-est de la grille modélisée. Il est également possible de tracer des emmagrammes et des hodographes pour l'ensemble des mailles du domaine modélisé (Figure 3.6). Pour la figure de gauche (Figure 3.5), l'axe vertical gauche et horizontal inférieur représentent les numéros de maille de la grille. L'axe vertical de droite et horizontal supérieur correspondent à la latitude et la longitude respectivement.

<sup>1</sup> US Geological Survey

<sup>2</sup> <http://ngwww.ucar.edu/whatisncarg.html>



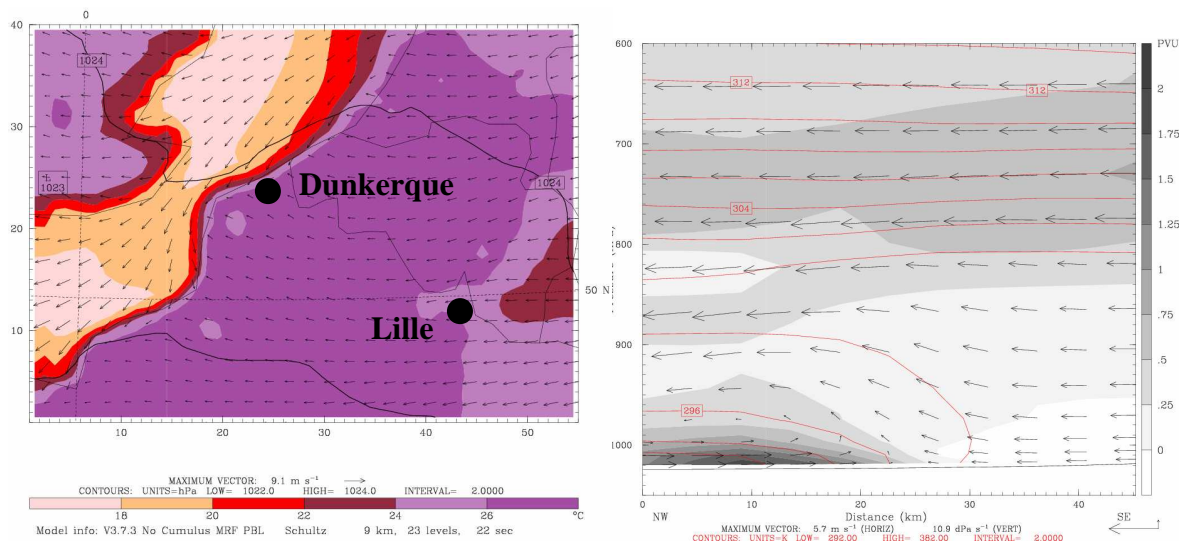


Figure 3.5: Exemple de carte synoptique (gauche) et de sa coupe verticale (droite) le 01/07/06 à 14h UTC.

La Figure 3.6 présente un des produits du modèle MM5 : l’emmagramme. Ce graphique représente les profils verticaux de température (en rouge) et du point de rosé (en bleu). Ils sont particulièrement utiles afin de visualiser la hauteur de la CLA, la direction et la vitesse du vent (cisaillement éventuel) selon la verticale.

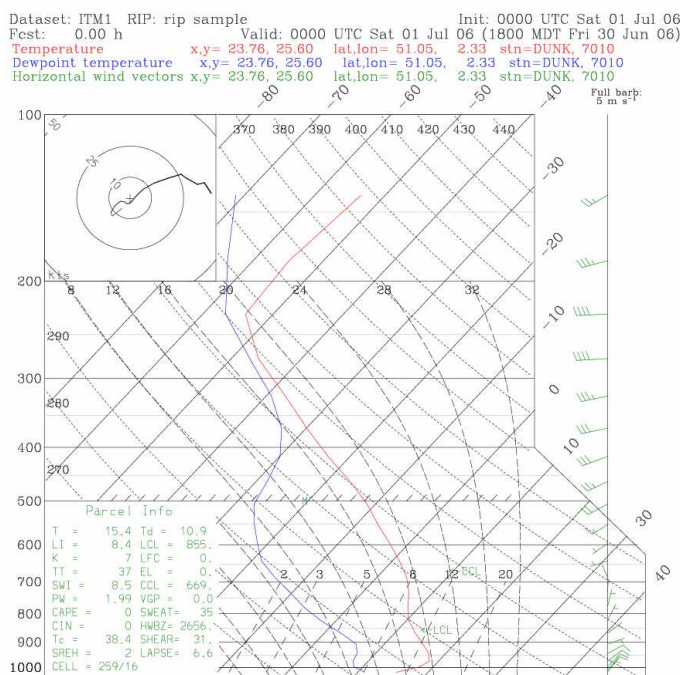
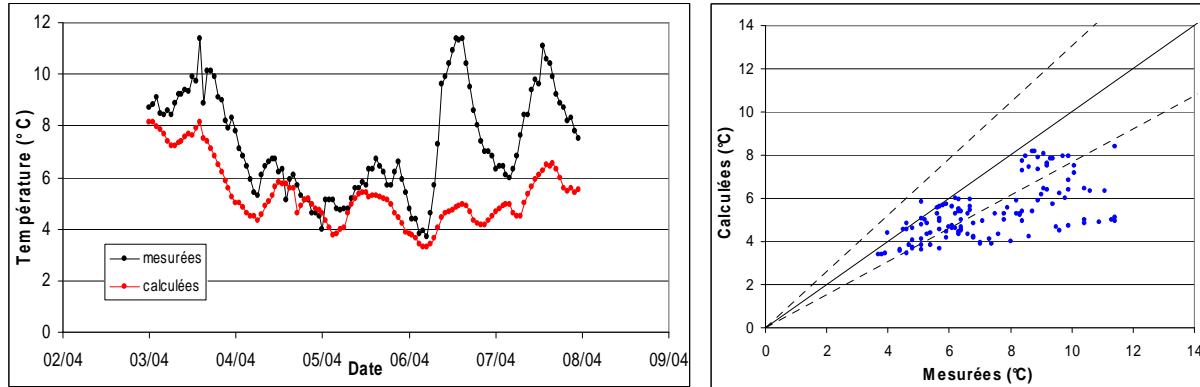


Figure 3.6: Exemple d’emmagramme et d’un hodographe pour Dunkerque (51,05°N ; 2,33°W), le 01/07/06 à 00h UTC.

### 3.2.9. Influence des coefficients de relaxation

Lorsque le coefficient de relaxation n’est pas utilisé lors de la simulation, MM5 sous-estime largement la température à 2 m (Figure 3.7). Le coefficient de corrélation est de 0,62 entre les valeurs

mesurées et calculées. Ainsi, l'option de relaxation est appliquée afin que le modèle soit capable de reproduire les variations marquées pour certaines variables comme la température ou la vitesse du vent.



**Figure 3.7: Evolution temporelle de la température mesurée et calculée sans application du coefficient de relaxation.**

Afin d'évaluer l'impact de l'option *FDDA* sur la performance du modèle MM5, cinq séries de simulations ont été effectuées en faisant varier les coefficients de relaxation pour trois variables : le vent (GV), la température (GT) et l'humidité spécifique (GQ) (Tableau 3.3). La colonne « Domaine » indique le nom des domaines relaxés. Les trois dernières colonnes renseignent sur la valeur du coefficient appliqué. Ainsi, pour FDDA1, DOM1 et DOM2 nous avons un coefficient de relaxation égal à  $4 \cdot 10^{-4}$  et  $1 \cdot 10^{-4}$  respectivement. Cinq configurations sont testées : FDDA 1, 2, 3, 4 et 5. Pour les variables température et humidité spécifique, la relaxation est appliquée uniquement au DOM 1 et 2.

Bien que Mao *et al.* (2006) démontrent le peu d'influence des différentes paramétrisations de la CLA sur la performance du modèle de chimie-transport CMAQ, nous avons effectué un test avec la paramétrisation de *BLACKADAR* pour FDDA3. Les autres simulations utilisent la paramétrisation de *MRF*. Les coefficients de relaxation sont similaires à ceux du FDDA4. *MRF* et *BLACKADAR* sont deux types de paramétrisations de la CLA. Leur description est disponible dans la documentation technique de MM5 [Grell, 1994].

**Tableau 3.3: Les différents coefficients de relaxation associés à leurs variables.**

Nom	Domaine (DOM)	Température	Vent	Humidité spé
FDDA 1	1,2	$4 \cdot 10^{-4}$ , $1 \cdot 10^{-4}$	$4 \cdot 10^{-4}$ , $1 \cdot 10^{-4}$	$6 \cdot 10^{-5}$ , $1 \cdot 10^{-4}$
FDDA 2	1,2	$4 \cdot 10^{-4}$ , $1 \cdot 10^{-4}$	$4 \cdot 10^{-3}$ , $1 \cdot 10^{-3}$	$6 \cdot 10^{-4}$ , $1 \cdot 10^{-4}$
FDDA 3	1,2,3	$4 \cdot 10^{-4}$ , $1 \cdot 10^{-4}$	$4 \cdot 10^{-3}$ , $1 \cdot 10^{-3}$ , $1 \cdot 10^{-4}$	$6 \cdot 10^{-4}$ , $1 \cdot 10^{-4}$
FDDA 4	1,2,3	$4 \cdot 10^{-4}$ , $1 \cdot 10^{-4}$	$4 \cdot 10^{-2}$ , $1 \cdot 10^{-2}$ , $1 \cdot 10^{-3}$	$6 \cdot 10^{-4}$ , $1 \cdot 10^{-4}$
FDDA 5	1,2,3	$4 \cdot 10^{-4}$ , $1 \cdot 10^{-4}$	$4 \cdot 10^{-3}$ , $1 \cdot 10^{-3}$ , $1 \cdot 10^{-4}$	$6 \cdot 10^{-4}$ , $1 \cdot 10^{-4}$

Les données présentées ci-dessous sont issues de la première couche (50 m d'épaisseur) du DOM2 (9 km de résolution horizontale). Les résultats des simulations MM5 sont comparés aux données mesurées par Météo-France pour les stations de Dunkerque (51,03°N ; 2,33°O) et de Lille

(50,34°N ; 3,06°O). Ils sont présentés sur les Figures 3.8 et 3.9 pour Dunkerque et sur les figures 3.10 et 3.11 pour Lille. Ces deux zones sont représentatives de deux situations topographiques et météorologiques distinctes. Lille correspond à une zone dans les terres fortement urbanisée et la ville de Dunkerque est localisée au niveau la côte d’Opale.

L’ensemble des cinq simulations reproduit très correctement les variations de température de la période étudiée. Cependant, les résultats de la simulation FDDA3 montrent que les maxima et les minima de température sont légèrement sous-estimés (-0.7 °C en moyenne) sur la ville de Dunkerque. En ce qui concerne la vitesse du vent, peu de différence est observée entre les cinq configurations. On note que la sous-estimation est plus marquée pour les maxima de vitesse de vent (4 à 5 m/s en moyenne). Seuls, les minima de la vitesse du vent sont correctement représentés par MM5. Une explication concernant ce biais négatif est difficile à apporter sur cette courte période. D’autres analyses statistiques pour la vitesse du vent sur de plus longues périodes (paragraphe 4.1.3 du chapitre 4) montrent une tendance similaire.

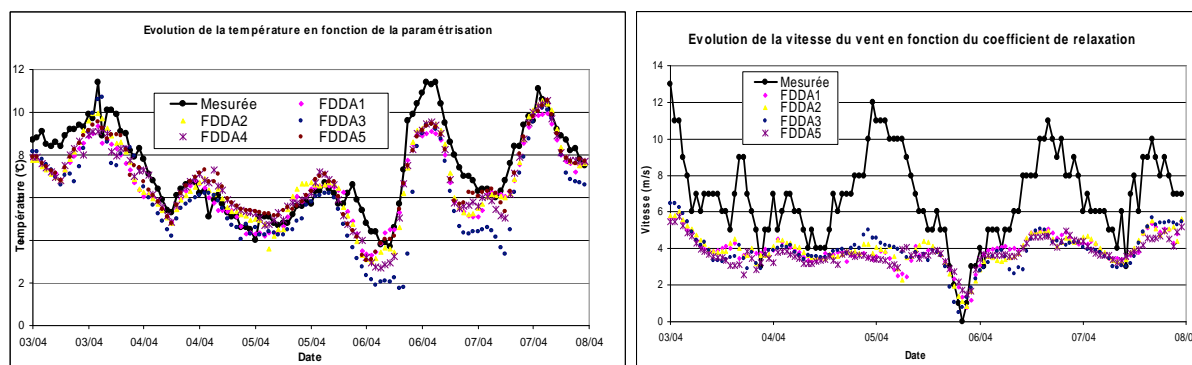


Figure 3.8: Evolution de la température (gauche) et de la vitesse du vent (droite) à Dunkerque en fonction du coefficient de relaxation pour la période du 03/04/06 au 08/04/06.

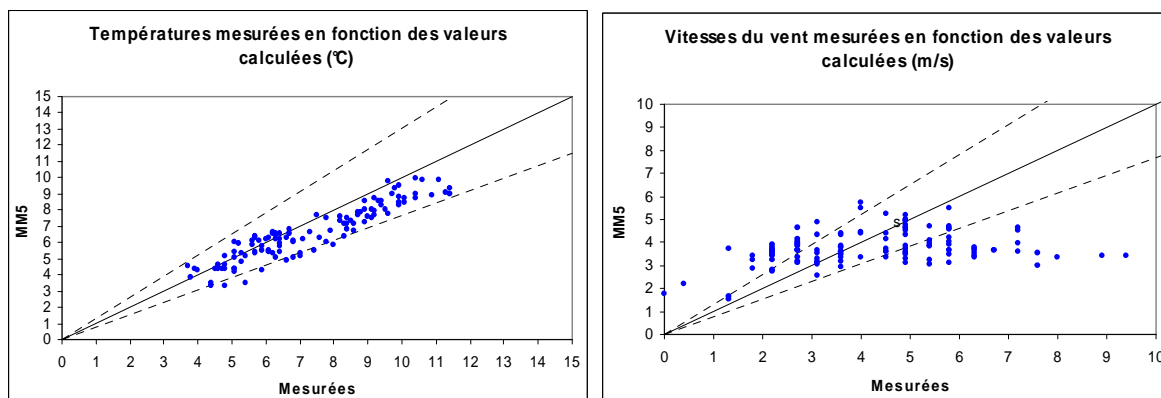


Figure 3.9 : Température (gauche) et vitesse du vent (droite) mesurées en fonction des calculs MM5 (FDDA5) pour la période du 03/04/06 au 08/04/06 à Dunkerque.

Pour la ville de Lille, les 5 simulations représentent de manière très satisfaisante la variation de température. Globalement, les maxima sont très bien représentés alors que les minima sont surestimés (1°C en moyenne). Les résultats pour la vitesse du vent sont assez variables d’une simulation à l’autre mais en meilleur accord avec les valeurs mesurées que pour la station de

Dunkerque. Ceci peut être expliqué par le fait que la variabilité temporelle de l'intensité de la vitesse du vent est plus importante au niveau de la côte que dans les terres ce qui rend sa simulation par le modèle plus délicate.

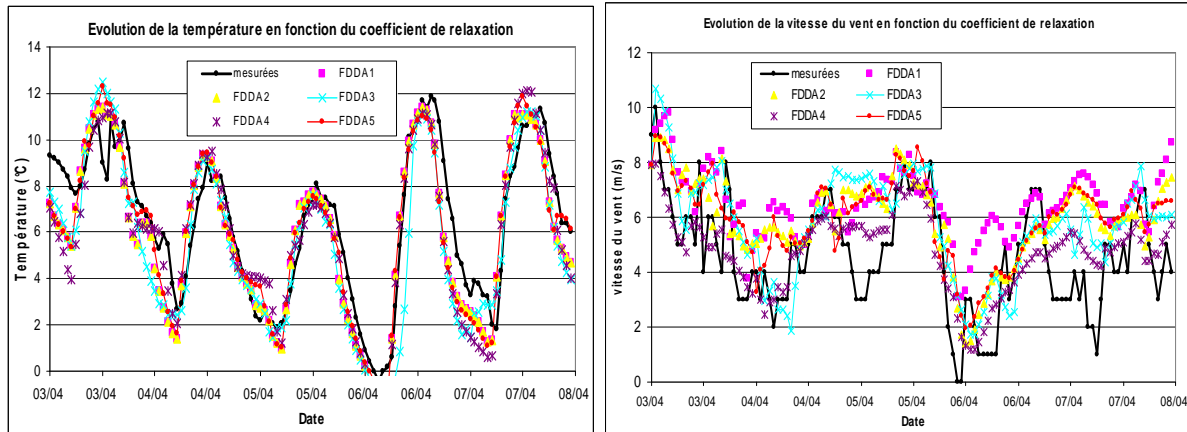


Figure 3.10 : Evolution de la température (gauche) et de la vitesse du vent (droite) à Lille en fonction du coefficient de relaxation pour la période du 03/04/06 au 08/04/06.

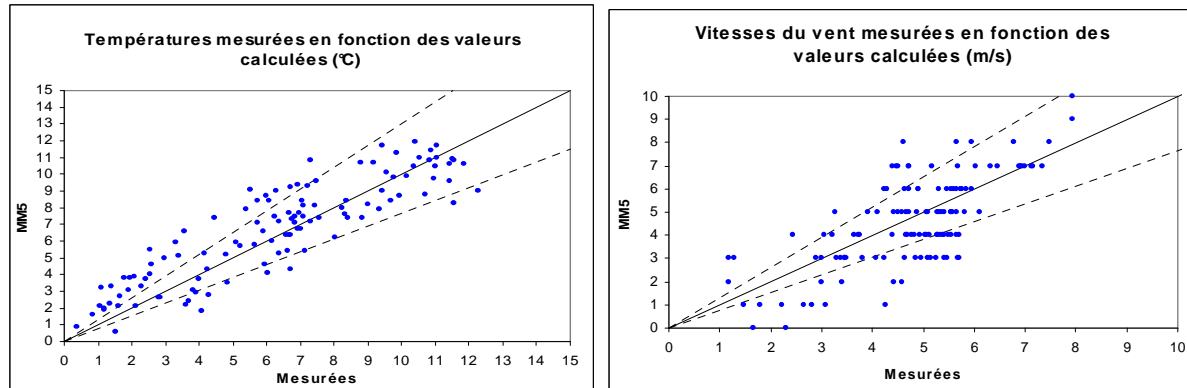


Figure 3.11 : Diagramme de dispersion pour la température (gauche) et vitesse du vent (droite) mesurées en fonction des calculs MM5 (FDDA5) pour la période du 03/04/06 au 08/04/06 à Lille.

Les valeurs du FDDA5 ont été sélectionnées pour être utilisées dans la suite des travaux. En effet, les meilleurs résultats notamment pour la température à Lille et la vitesse du vent à Dunkerque sont obtenus avec les coefficients de relaxation et de la CLA de la simulation FDDA5.

### 3.2.10. Données météorologiques utilisées dans CHIMERE

Les données nécessaires au fonctionnement de CHIMERE sont regroupées dans le Tableau 3.4. La majorité des variables sont issues des fichiers météorologiques MM5. Toutefois si elles ne sont pas disponibles (données *optionnelles* en italiques) elles sont calculées à partir des paramétrisations incluses au sein de CHIMERE. Les données 2D sont uniquement disponibles pour une même couche de maille alors les données 3D sont disponibles pour toutes les mailles de la grille. Le paragraphe

suivant s'intéresse à la description des différentes paramétrisations utilisées par le modèle de chimie-transport déterministe Eulérien CHIMERE.

**Tableau 3.4 : Variables météorologiques obligatoires et optionnelles utilisées par CHIMERE**

Données météorologiques	Dimension	Unité
Vitesse et du vent (U et V)	3D	m/s
Température	3D	K
Densité	3D	pas d'unité
Humidité spécifique	3D	kg eau/kg d'air sec
Hauteur des couches	3D	m
Contenu en eau dans les nuages	3D	kg eau/kg d'air sec
Précipitations convectives	3D	kg/m <sup>2</sup> /heure
Précipitations de grandes échelles	3D	kg/m <sup>2</sup> /heure
<i>Glace</i>	3D	kg/kg
<i>Flux de chaleur sensible</i>	2D	W/m <sup>2</sup>
<i>Flux de chaleur latent</i>	2D	W/m <sup>2</sup>
<i>Vitesse de friction</i>	2D	m/s
<i>Hauteur de la CLA</i>	2D	m
<i>Fraction nuageuse (couches basses)</i>	2D	m
<i>Fraction nuageuse (couches moyennes)</i>	2D	m
<i>Fraction nuageuse (couches hautes)</i>	2D	m

### 3.3. Description du modèle CHIMERE

Le modèle CHIMERE est largement utilisé par la communauté des chercheurs en physico-chimie de l'atmosphère. Des descriptions détaillées de divers applications de CHIMERE peuvent être trouvées dans la littérature [Schmidt *et al.*, 2001; Bessagnet *et al.*, 2004; Bessagnet *et al.*, 2005; Hodzic *et al.*, 2005; Monteiro *et al.*, 2005; Vautard *et al.*, 2005; Vivanco *et al.*, 2009]. Les versions V200511B, V200709C et V200709D ont été utilisées dans le cadre des recherches liées au cours de ce doctorat. La version V2007 est décrite dans les paragraphes suivants. Les différences entre la V200709C et la V200511B seront notifiées. Pour une description plus détaillée, une documentation est disponible sur le site internet du modèle CHIMERE<sup>1</sup>.

#### 3.3.1. Généralités sur CHIMERE

<sup>1</sup> <http://www.lmd.polytechnique.fr/chimere>

CHIMERE est un Modèle de Chimie-Transport (CTM en anglais) qui s'applique de l'échelle régionale à l'échelle continentale. Le projet CHIMERE a été initié par l'Institut Pierre et Simon Laplace (IPSL), il y a une quinzaine d'années. Son développement se poursuit régulièrement en collaboration avec le laboratoire d'aérodynamique (LA) et l'INERIS. Les contributions des différents utilisateurs sont également disponibles en ligne sur le site internet de CHIMERE.

CHIMERE est reconnu internationalement. Il a été employé pour simuler les concentrations de polluants ( $O_3$ ,  $NO_x$ ) lors de grandes campagnes de mesures tels que ESQUIF [Vautard *et al.*, 2003] et ESCOMPTE [Cros *et al.*, 2004; Cousin *et al.*, 2005]. De plus, CHIMERE est le modèle utilisé au sein de la plateforme PREV' AIR<sup>1</sup> afin d'assurer les prévisions quotidiennes nationales de la qualité de l'air [Honoré *et al.*, 2007]. La maintenance de cette plate-forme opérationnelle est assurée par l'Institut National de l'Environnement Industriel et des Risques (INERIS). CHIMERE est aussi utilisé au niveau régional par plusieurs associations de la qualité de l'air : Airparif<sup>2</sup>, Air Pays de Loire<sup>3</sup> et l'ORAMIP<sup>4</sup>.

Le but premier de ce travail de thèse est d'évaluer le comportement de CHIMERE sur la région NPDC, zone propice au développement de la pollution photochimique et particulaire de part ses émissions, sa situation géographique et ses particularités dynamiques. A notre connaissance, il s'agit de la première étude analysant les résultats issus de CHIMERE V200511B, V200709C et V200509D à l'échelle de la région NPDC pour la pollution particulaire ( $PM_{10}$ ) et photochimique ( $O_3$ ).

#### *Améliorations apportées à la version 2007 de CHIMERE*

Les principales améliorations apportées à la version V200709C du point de vue chimique sont :

- ▶ l'ajout des émissions des espèces carbonées,
- ▶ la prise en compte de la chimie des Polluants Organiques Persistants (POP) et des Aérosols Organiques Secondaires (AOS).

Cette version se caractérise également par l'ajout de la paramétrisation de Van Leer pour le transport horizontal, de données sur la résistance des végétaux pour la paramétrisation du dépôt sec et de la paramétrisation de la convection profonde. Une amélioration de la qualité des données simulées est ainsi attendue pour les concentrations en  $PM_{10}$  par rapport à la version 2005.

---

<sup>1</sup> <http://www.prevoir.org>

<sup>2</sup> <http://www.airparif.asso.fr>

<sup>3</sup> <http://www.airpl.org>

<sup>4</sup> <http://www.oramip.org>

### 3.3.2. Coordonnées horizontales et verticales

La progression horizontale du maillage est constante. Chaque domaine est défini par le centre de chaque cellule du maillage. Verticalement le modèle utilise un jeu de coordonnées « sigma hybride » ( $a_k$  et  $b_k$ ). La pression en hPa de la limite supérieure de chaque couche est donnée par l'Eq. (3.7) :

$$P_k = a_k 10^5 + b_k P_{surf} \quad \text{Eq. (3.7)}$$

où  $a_k$  et  $b_k$  sont deux coefficients choisis par l'utilisateur pour chaque couche.

Le Tableau 3.5 présente la hauteur en m et en hPa des huit couches verticales utilisées lors des modélisations CHIMERE :

**Tableau 3.5 : Niveau (hPa) et altitude (m) des huit couches verticales utilisées dans CHIMERE**

Couche	Hauteur (hPa)	Hauteur (m)
sol	1000	0
1	995	40
2	986	110
3	971	225
4	947	430
5	904	780
6	832	1420
7	709	2620
8	500	5150

### 3.3.3. Transport horizontal

Dans la version 2007 de CHIMERE, trois types de paramétrisations sont proposés :

- le schéma *upwind* du premier ordre est peu coûteux mais très diffusif.
- le schéma du premier ordre de Van Leer : il est peu coûteux et très précis pour le transport des espèces à hautes concentrations.
- un schéma du troisième ordre nommé *Parabolic Piecewise Method* [Colella et Woodward, 1984] assez coûteux mais de très bonne qualité pour les espèces à long temps de vie. Ce schéma est adapté à la modélisation régionale et est utilisé au cours des travaux de recherches.

### 3.3.4. Transport vertical

Le transport vertical est calculé selon la méthode du *upwind*. Le principe est basé sur la compensation des flux horizontaux (convergence et divergence) dans une maille par un flux vertical (vent ascendant) dirigé vers la maille située au dessus de celle dans laquelle le *upwind* est appliqué. La diffusion turbulente verticale est associée à ce vent ascendant.

### 3.3.5. Diffusion turbulente verticale

CHIMERE considère la diffusion turbulente horizontale comme négligeable et seule la diffusion turbulente verticale dans la CLA est traitée. La paramétrisation de la vitesse verticale turbulente utilise pour CHIMERE, le principe de la  $K$ -diffusion développée par Troen et Mahrt (1986).

Le coefficient de diffusivité turbulente ( $K_m$ ) verticale détermine la diffusion verticale d'une parcelle d'air due à la turbulence. Il détermine la capacité de la CLA à diluer les polluants et il est donc primordial de le déterminer avec soin. Il est cependant très difficile de mesurer des flux turbulents verticaux. Une solution basée sur la théorie cinétique des gaz permet de relier des gradients verticaux mesurables aux flux turbulent verticaux. [Brost, 1978] propose de paramétrer la diffusivité verticale turbulente ( $K_z$ ) selon l'Eq. 3.8.

$$K_z = u_* k z \Phi_m^{-1} \left(1 - \frac{z}{h}\right)^p \quad \text{Eq. (3.8)}$$

où  $u_*$  est la vitesse de frottement en (m/s),  $k$  la constante de Von Karman,  $\Phi_m$  un nombre adimensionnel représentant le cisaillement du vent,  $z$  est la hauteur au dessus du sol (m) et  $h$  la hauteur de la CLA (m).

Les variables  $u_*$  et  $h$  proviennent du fichier météorologique MM5 utilisé par CHIMERE. Dans le cas où  $h$  n'est pas disponible dans le fichier MM5, elle est recalculée en utilisant le nombre de Richardson ( $Ri$ ). Dans ce cas, la hauteur  $h$  correspond à la hauteur où le nombre est égal à 0,5. La vitesse de frottement quant à elle est recalculée en utilisant la paramétrisation de Louis (1979). Elle est recommandée pour les domaines de résolution grossière (>50 km).

Dans le cas où  $z \ll h$ :

$$K_m = u_* k z \Phi_m^{-1} \quad \text{Eq. (3.9)}$$

► en **conditions stables** (flux de chaleur < 0) :

$$\Phi_m = 1 + 4,7z/L \quad \text{Eq. (3.10)}$$



L étant la longueur de Monin-Obukhov.

Lorsque  $z \gg L/4,7$  on peut combiner les Eq. 3.9 et 3.10 pour obtenir :

$$K_m \approx (k/4,7) L u_* \left(1 - \frac{z}{h}\right)^p \quad \text{Eq. (3.11)}$$

► en conditions instables :

$$\text{pour } z \ll h \quad \Phi_m = (z/L) = (1-7z/L)^{-1/3} \quad \text{Eq. (3.12)}$$

On considère que  $z = \varepsilon.h$  avec  $\varepsilon = 0,1$

De plus on a :

$$u_* \Phi_m^{-1} = (u_*^3 + 7 \varepsilon.k.w_*^3)^{1/3} = w_s \quad \text{Eq. (3.13)}$$

où  $\Phi$  est évalué à la hauteur  $\varepsilon.h$  voulu et  $w_*$  correspond à la vitesse verticale convective :

$$w_* = (g/T_0) \overline{w'\theta'_0} . h)^{1/3} \quad \text{Eq. (3.14)}$$

Ainsi, l'Eq. 3.11 devient :

$$K_m = w_s h k \frac{z}{h} \left(1 - \frac{z}{h}\right)^h \quad \text{pour } z > \varepsilon.h \quad \text{Eq. (3.15)}$$

Lorsque  $h \gg -L$  :

$$w_s \approx w_* (7\varepsilon k)^{1/3} \approx 0.65 w_* \quad \text{Eq. (3.16)}$$

Il est alors possible de calculer la vitesse verticale turbulente ( $V_k$ ) à partir de  $K_z$  :

$$V_k = \frac{K_z}{\left(\frac{1}{2}(H_k + H_{k+1})\right)} \quad \text{Eq. (3.17)}$$

La paramétrisation décrite ci-dessus est utilisée dans CHIMERE et largement employée dans de nombreux modèles de Chimie-Transport. Elle n'est cependant pas adaptée lorsque la cinétique chimique de formation des polluants est inférieure à la vitesse du transport vertical (forte convection). Vautard *et al.* (2007), résumant les différentes approches utilisées en modélisation afin de prendre en compte les thermiques résultant d'une forte instabilité et s'attache à comparer des paramétrisations

représentant la turbulence verticale avec d'une part le concept de « diffusion turbulente » et « la théorie des flux de masse » engendrés par la convection d'autre part.

Les seules différences notoires décelées concernent la concentration des polluants au niveau du sol qui est souvent plus élevée lors de l'utilisation d'une paramétrisation classique de type diffusion turbulente. La version V200709C comporte une option assurant la représentation de la convection profonde [Tiedtke, 1989] qui est adaptée à la modélisation en période estivale.

### 3.3.6. Production des fichiers d'émissions anthropiques

Le modèle CHIMERE V2007 nécessite dans sa version complète (MELCHIOR) les valeurs des émissions anthropiques de trente espèces (Tableau 3.6). Au total, 12 fichiers (1/mois) nommés « EMISSION-[domaine].[MM].nc » regroupent les émissions horaires anthropiques pour chacune des 30 espèces. *MM* correspond au mois d'émission.

**Tableau 3.6 : Liste des espèces chimiques en entrée de MELCHIOR**

<b>MINERALES</b>	
NO	Monoxyde d'azote
NO2	Dioxyde d'azote
HONO	cide nitreux
SO2	Oxyde de soufre
NH3	Ammoniac
CO	Monoxyde de carbone
CH4	Méthane
<b>COVNM</b>	
NC4H10	<i>n</i> -butane
C2H4	Ethène
C2H6	Ethane
C3H6	Propène
C5H8	Isoprène
OXYL	<i>o</i> -xylène
HCHO	Formaldéhyde
CH3CHO	Acétaldéhyde
CH3COE	Méthyléthylcétone
APINEN	$\alpha$ -pinène
TOL	Toluène
TMB	Triméthylbenzène
<b>ALCOOLS</b>	
CH3OH	Méthanol
C2H5OH	Ethanol
<b>PARTICULES</b>	
PPM-fin	Particules primaires fines
PPM-coa	Particules primaire moyennes
PPM-big	Particules primaires grossières
H2SO4-fin	Particules acide sulfurique fines
BaP-fin	Particules benzo(a)pyrène fines
BbF-fin	Particules benzo(b)fluoranthène
BkF-fin	Particules benzo(b)fluoranthène
OCAR-fin	Carbone organique primaire
BCAR-fin	Carbone suie primaire

XXX\_fin :  $\varnothing$  aérodynamique < 2,5 $\mu$ m

XXX\_coa : 2,5 <  $\varnothing$  aérodynamique < 10 $\mu$ m

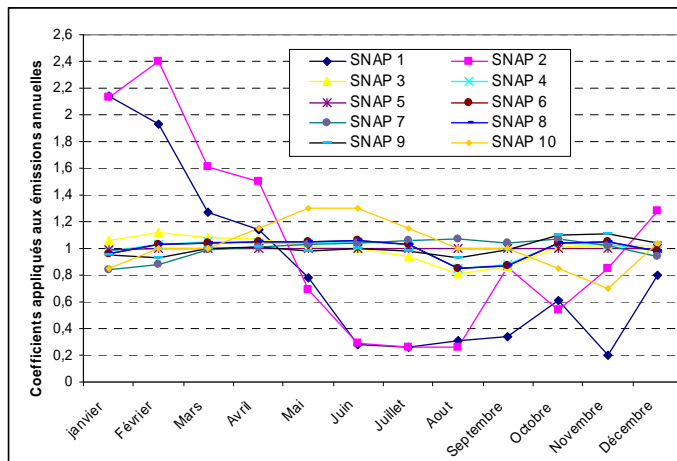
XXX\_big : Ø aérodynamique > 10 µm

Les travaux de modélisation utilisent deux cadastres séparément : le cadastre européen EMEP et le cadastre régional Atmo-NPDC. Les méthodologies de construction et les données de ces deux cadastres ont été décrites dans le deuxième chapitre de ce manuscrit.

**Principe de la spéciation horaire**

En général, les données issues des cadastres d'émissions sont exprimées en t/an. Or l'utilisation de CHIMERE nécessite des valeurs horaires pour les dix secteurs SNAP. La méthode consiste d'abord à répartir la valeur d'émission brute d'un polluant du cadastre EMEP (t/an pour l'ensemble de la France) par secteur SNAP (*sp*). Dans un second temps, des coefficients mensuels (*m* varie de 1 à 12), journaliers (*j* varie de 1 à 3 : pour jours ouvrés (1), samedi (2) et dimanche (3)) et horaires (*h* varie de 1 à 24) propres à chaque SNAP sont appliqués à la valeur brute de chaque SNAP [Society, 1994]. On note alors par exemple les émissions de COV :  $e_{COVNM}(h, j, m, sp)$ .

Les coefficients mensuels (*m*) appliqués aux valeurs d'émissions annuelles pour chaque SNAP sont représentés par la Figure 3.12. Par exemple, les coefficients des SNAP 1 et 2 correspondent aux processus de combustion énergétique industriels et non-industriels, respectivement. Ils ont donc une forte variabilité saisonnière. Leurs valeurs sont minimales en période estivale et maximales en hiver lorsque la contribution du chauffage est maximale. Cette variation est peu marquée pour les autres secteurs car l'activité n'a pas de variation saisonnière importante.



**Figure 3.12 : Coefficients mensuels appliqués aux valeurs d'émissions annuelles pour chaque SNAP utilisés par CHIMERE.**

La Figure 3.13 représente les coefficients horaires (*h*) appliqués aux émissions liées aux transports (SNAP 7). Pour les jours ouvrables, le coefficient passe par deux maxima représentant les pics de trafic en début de matinée et en fin d'après-midi. Le coefficient est maximal en fin de matinée et d'après-midi pour les journées du samedi et du dimanche respectivement.

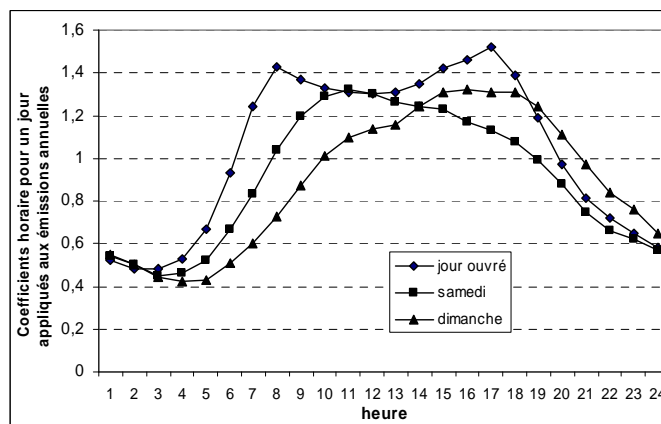


Figure 3.13: Coefficients horaires appliqués aux valeurs d'émissions mensuelles (EMEP et cadastre régional) utilisées par CHIMERE pour le secteur des transport (SNAP 7).

### *Le principe de la spéciation-agrégation*

Pour  $\text{SO}_2$ ,  $\text{CH}_4$ ,  $\text{NH}_3$  et  $\text{CO}$  les coefficients horaires sont appliqués directement. Les  $\text{NO}_x$  et les COVNM (COV Non Méthaniques) sont deux espèces traitées spécifiquement. La réactivité des COVNM varie fortement d'une espèce à l'autre. Les COV les plus réactifs présents en quantité importantes sont les alcènes et les aromatiques. Leur spéciation est donc particulièrement importante pour la modélisation de la pollution troposphérique. En plus de leur distribution par SNAP, les  $\text{NO}_x$  et les COVNM sont respectivement spécifiés par rapport à leur masse en 3 et 221 espèces dites « réelles » selon la méthodologie de Passant (2002). Les  $\text{NO}_x$  sont spécifiés en 3 espèces « modèles » : 90% de  $\text{NO}$ , 9,2%  $\text{NO}_2$  et 0,8%  $\text{N}_2\text{O}$  en masse. La spéciation des COVNM est beaucoup plus détaillée. Le paragraphe suivant s'attache à décrire le principe d'agrégation utilisée dans CHIMERE pour traiter les émissions brutes de COVNM.

Après leur spécification, les 221 espèces de COVNM sont distribuées dans une des neuf classes d'espèces « modèles » en fonction d'un coefficient d'agrégation.

Le coefficient d'agrégation est fonction de la réactivité de l'espèce réelle par rapport au radical OH selon la méthode développée par Middleton (1990). Les concentrations des 9 espèces « modèles » seront celles utilisées en finalité dans MELCHIOR.

En général, une espèce réelle participe à plusieurs réactions du mécanisme chimique. Dans ce cas, on affecte des parts de l'émission d'une l'espèce réelle notée «  $r$  » à diverses espèces modèles notées «  $m$  ». La proportion de chaque part est fonction du coefficient de réactivité noté  $R$  entre  $r$  et  $m$ .

Le coefficient d'agrégation  $coef(n)$ , appliqué entre chaque espèce réelle et modèle est fonction de deux termes représentés par l'Eq. 3.18.

Le premier terme ajuste l'unité de l'émission en molécule/s/cm<sup>2</sup>, le deuxième défini par l'Eq. 3.19 traduit le rapport de la réactivité entre l'espèce réelle et modélisée par rapport à OH.

$$coef(n) = \left( \frac{N_a}{3600 \cdot 10^{10} \cdot M(r)} \right) \cdot b(n) \quad \text{Eq. (3.18)}$$

avec

$$b(n) = \left( \frac{1 - e^{-INTOH \cdot R(r)}}{1 - e^{-INTOH \cdot R(m)}} \right) \quad \text{Eq. (3.19)}$$

où  $N_a$  est le nombre d'Avogadro,  $M(r)$  est la masse molaire de l'espèce réelle,  $R(r)$  est la réactivité de l'espèce réelle  $r$ ,  $R(m)$  est la réactivité de l'espèce modèle  $m$  et  $n$  correspond aux 221 espèces réelles. INTOH est égal à 1 selon la méthode définie par Middleton (1990).

Le terme  $b(n)$  est un facteur qui indique la différence de réactivité entre l'espèce réelle  $R$  et l'espèce du modèle  $M$ . Plus ce rapport est élevé, plus la part de l'espèce  $r$  affectée à l'espèce  $m$  est grande.

L'émission  $E_M$  (molécule/s/cm<sup>2</sup>) d'une espèce COVNM « modèle » du mécanisme MELCHIOR est ainsi définie par l'Eq. (3.20) :

$$E_M(h, j, m, sp) = \sum_{i=1}^n S(i) \quad \text{Eq. (3.20)}$$

$$S(i) = coef_{\rightarrow M}(n) \cdot e_{COVNM}(h, j, m, sp) \quad \text{Eq. (3.21)}$$

avec  $i = 12$  (nombres d'espèce anthropiques COVNM en entrée de CHIMERE disponible dans le Tableau 3.6) et  $\sum_{i=1}^n S(i)$  la somme des émissions réelles contenues dans chacune des 9 espèces modèles du mécanisme.  $S$  est le produit de la valeur d'émission d'une espèce réelle spécifiée (par heure, jour, mois et snap), notée  $e_{COVNM}(h, j, m, sp)$  par le facteur d'agrégation  $coef(n)$ .

La Figure 3.14 indique que la réactivité des COVNM avec OH dépend fortement de la nature du COVNM considéré. Les plus réactifs sont les COV aromatiques et les alcènes (limonène, terpène et isoprène en particulier). Le limonène, terpène et l'isoprène sont principalement des composés biogènes. Chaxel (2003) montre que plus les composés sont réactifs avec les radicaux OH, plus les radicaux RO• sont produits rapidement et plus la production d'ozone est rapide. Par conséquent, lors des simulations une importance particulière sera apportée à la détection des zones propices aux émissions de COV biogènes sur la région NPDC et donc à la formation d'ozone.

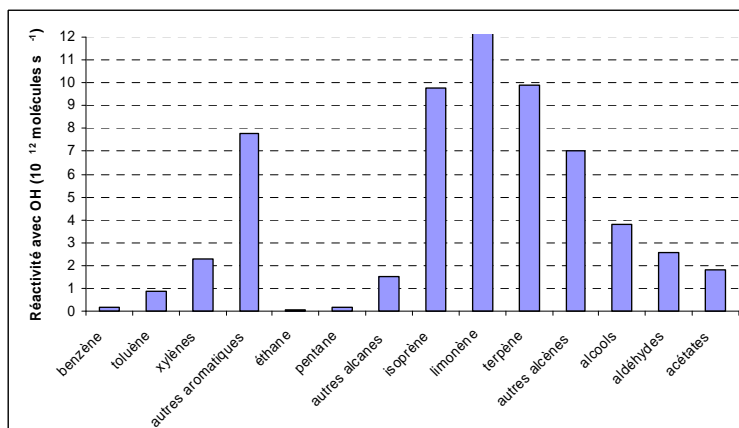


Figure 3.14 : Réactivité de COVNM réels ou réactivité moyenne d'une classe de COVNM avec OH pour les 221 COVNM proposés par Passant (2002) (température 298K et pression 1 atm).

### 3.3.7. Production des fichiers des émissions biogènes

Dans la version complète du mécanisme MELCHIOR, 16 espèces biogènes sont fournies au mécanisme chimique (Tableau 3.7).

Tableau 3.7: Liste des espèces biogènes en entrée du mécanisme MELCHIOR.

NO	Monoxyde d'azote
C5H8	Isoprène
APINEN	$\alpha$ -pinène
BPINEN	$\beta$ -pinène
LIMONE	Limonène
TERPEN	Terpène
OCIMEN	Ocimène
HUMULE	Humulène
DUST_big	poussières minérales
DUST_coa	poussières minérales
DUST_fin	poussières minérales
SALT_coa	sel de mer
NA_coa	Fraction en sodium du sel de mer
HCL_coa	Fraction en chlore du sel de mer
H2SO4_coa	Fraction en sulfate du sel de mer
WATER_coa	Fraction en eau du sel de mer

Les gaz isoprène et terpène sont paramétrés par la formule  $F_i = \varepsilon_i D \gamma_i$  [Günther, 1997].  $\varepsilon_i$  correspond au potentiel d'émission d'une espèce,  $D$  est la densité foliaire et  $\gamma_i$  est un facteur correcteur environnemental fonction de la température et du rayonnement solaire. L'isoprène est un gaz biogène dont l'émission est particulièrement bien corrélée avec la température.

Pour l'occupation des sols, CHIMERE utilise la base de données SEI (Stockholm Environment Institute) contenant 136 classes. Ces 136 classes sont agrégées en 11 classes et interpolées sur la grille de modélisation au sein de CHIMERE. La différenciation en classes est fondamentale car les flux des émissions biogènes varient en fonction des différentes essences d'arbres.

On note que les chênes sont classés en trois catégories : grands émetteurs d'isoprène, grands émetteurs de terpène, faibles émetteurs de COV biogènes. L'émission des aérosols marins (sel de mer) est paramétrée grâce à la formule de Monahan (1986). Celle-ci est fortement dépendante de la vitesse du vent au niveau du sol. Les émissions de l'aérosol terrigène utilisent quant à elle la paramétrisation décrite par Vautard., *et al* (2005a).

Les émissions de NO par les sols sont souvent considérées comme biogènes. Elles sont en fait issues de réactions d'oxydation et de réduction de l'ammoniaque utilisé pour l'engraisement des terres agricoles. Pour ce type d'émissions, CHIMERE utilise pour les mois de mai à août uniquement, les données provenant d'un cadastre européen détaillé dans Stohl *et al.* (1996). L'inventaire indique que les émissions de NO biogènes représentent en moyenne 20% des émissions de NO dues à la combustion et peuvent atteindre jusqu'à 27% en période estivale lors de fort ensoleillement.

### 3.3.8. Mécanisme chimique

Le mécanisme chimique « phase gazeuse » utilisé par CHIMERE est MELCHIOR (Modèle d'étude Lagrangienne de la Chimie de l'Ozone à l'échelle Régionale) développé au Service d'Aéronomie [Lattuati, 1997]. MELCHIOR (83 espèces et 338 réactions) est spécialisé dans la simulation de la pollution photochimique en zone rurale ou près des sources de polluants primaires (NO<sub>x</sub> et COV). Les constantes de vitesses du mécanisme ont été réactualisées selon [Atkinson, 2007]. MELCHIOR 2 [Derognat, 1998] est une version réduite et comprend 44 espèces gazeuses et 116 réactions (Annexe C-6). La réduction est basée sur la méthode des opérateurs chimiques développée par [Carter, 1990]. Les réactions en phase aqueuse et hétérogène sont détaillées dans le paragraphe 3.3.9.

L'élaboration des mécanismes est un point fondamental de la modélisation physico-chimique de la troposphère. En toute rigueur, les mécanismes chimiques devraient décrire en détail les mécanismes d'oxydation de chaque composé. Actuellement, les données cinétiques et mécanistiques disponibles sont insuffisantes pour concevoir un tel schéma, en particulier pour les espèces à chaîne carbonée longue et ramifiée. De plus, la description complète des processus chimiques de l'atmosphère impliquerait l'incorporation de plusieurs milliers de réactions élémentaires au sein du modèle. L'exécution d'un tel mécanisme n'est pas envisageable avec les moyens de calcul actuel.

Pour le traitement des COV, deux types de regroupements sont décrits dans la littérature : le regroupement par familles structurales (*lump structure mechanisms*) et par familles moléculaires (*lump molecule mechanism*).

Le regroupement par familles structurales est basé sur la structure des molécules. La méthode consiste à répartir chaque COV en autant de familles différentes que de type de liaison la caractérisant. La chimie d'une molécule est représentée comme étant la somme des réactivités associées à chacune de ses liaisons. Le désavantage de cette méthode est la perte d'individualité chimique pour les molécules. Un exemple de mécanisme utilisant ce regroupement est le Carbon Bond (CB IV) [Gery *et al.*, 1989].

Le principe du regroupement par famille moléculaire est de rassembler des COV de réactivité similaire. Chaque groupe est associé à une espèce « modèle » dont le comportement est considéré comme représentatif de la chimie induite par l'ensemble de ces constituants. Le mécanisme MELCHIOR et SAPRC 99 [Carter, 1990] sont des exemples des mécanismes de ce type de regroupement.

### 3.3.9. Représentation des aérosols dans CHIMERE

La représentation des aérosols a été introduite par le module développé initialement par Bessagnet *et al.* (2004). Il traite l'émission, le transport, la réactivité et la déposition des principaux aérosols. Nous avons vu précédemment que les aérosols sont caractérisés par leur distribution en taille et leur composition chimique. Ces deux paramètres essentiels de l'aérosol sont représentés dans CHIMERE.

#### *Distribution en taille et caractérisation chimique*

La distribution des aérosols dans CHIMERE est sectionnelle [Gelbard et Seinfeld, 1980]. Les aérosols sont répartis dans 6 classes de taille allant de 10 nm à 40 µm en suivant une progression géométrique (Figure 3.15). On définit  $x = \ln(m)$ ,  $m$  étant la masse de la particule et  $q(x)$  la fonction de distribution de densité (Eq 3.22).  $Q$  est la fonction de la concentration massique.  $Q_l^k$  ( $\mu\text{g}\cdot\text{m}^{-3}$ ) est la concentration massique de  $k$  dans la section  $l$  et  $Q_l$  ( $\mu\text{g}\cdot\text{m}^{-3}$ ) est la concentration massique totale de la section  $l$  (Eq. 3.23).

$$q(x) = \frac{dQ}{dx} \quad \text{Eq. (3.22)}$$

$$Q_l = \int_{x_{l-1}}^{x_l} q(x)dx = \sum_k Q_l^k \quad \text{Eq. (3.23)}$$



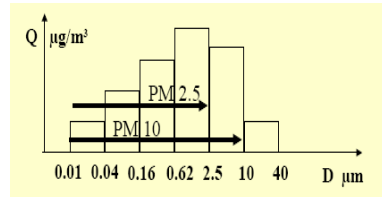


Figure 3.15: Les différentes sections du module aérosol de CHIMERE.

Le module aérosol utilisé dans CHIMERE comprend 8 espèces (Tableau 3.8).

Tableau 3.8: Liste des espèces particulières représentées dans MELCHIOR.

Espèces modèle	Espèces	Type
pPPM	primaires anthropique (BC, OC), poussières industrielles	primaire
pSOA	secondaire organique anthropique et biogènes	secondaire
pNH3	ammonium primaire*	primaire
pH2SO4	sulfate secondaire*	secondaire
pHNO3	nitrate secondaire*	secondaire
pNa	sodium	primaire
pCl	chlore	primaire
pwater	eau	primaire

\* l'espèce chimique modèle représente l'espèce sous toutes ses formes (ion, liquide, précipité, etc)

### *Processus dynamiques des aérosols*

Différents processus microdynamiques et chimiques sont pris en compte par le module aérosol de CHIMERE. Une description détaillée des processus peut être trouvée dans Bessagnet *et al.* (2004). Trois processus fondamentaux sont décrits dans le module aérosol :

- **Coagulation** : La paramétrisation est inspirée de [Gelbard *et al.*, 1980]. Le coefficient de coagulation dépend de la nature de la particule et des conditions météorologiques. Pour les particules submicroniques la coagulation est gérée par la diffusion Brownienne alors que pour les particules grossières la coagulation est faible. La sédimentation est un processus plus efficace pour cette section.

- **Absorption** : L'absorption est prise en compte pour les espèces organiques et inorganiques. Pour les espèces inorganiques, les concentrations à l'équilibre des espèces condensables sont modélisées avec le module thermodynamique ISORROPIA [Nenes, 1998]. CHIMERE utilise les données calculées par ISORROPIA regroupées dans un tableau indiquant le coefficient de partition entre la phase solide et liquide pour les nitrates, l'ammonium et les aérosols chargés d'eau. Les données sont calculées pour des températures allant de 260 K et 312 K, une humidité relative comprise entre 90% et 99% et des concentrations allant de  $10^{-2}$  à  $65 \mu\text{g}\cdot\text{m}^{-3}$ . Une option permet d'utiliser directement ISORROPIA en ligne. Cependant, cette méthode augmente significativement le temps de calcul et n'a pas d'impact significatif sur les résultats [Hodzic *et al.*, 2005]. L'acide sulfurique et le sodium sont deux espèces présentes uniquement en phase solide dans le mécanisme.

Pour les espèces organiques secondaires, les concentrations à l'équilibre sont calculées en utilisant un coefficient de partition selon la méthode de Pankow (2001). L'interaction entre les composés organiques et inorganiques n'est pas prise en compte dans le modèle CHIMERE.

- **Nucléation** : La paramétrisation pour la nucléation utilise l'approche de Kulmala (1998) décrivant la nucléation du mélange  $\text{H}_2\text{SO}_4/\text{H}_2\text{O}$ . Ce type de nucléation est favorisée en période froide et humide et affecte principalement les particules submicroniques. Les particules formées par nucléation sont ajoutées dans la section correspondant aux particules de plus petits diamètres. Ce processus est en compétition avec l'absorption et est supposé limiter en atmosphère polluée. Il n'y a pas de paramétrisation pour la nucléation des espèces organiques.

### *Chimie des espèces organiques secondaires*

Un schéma simplifié pour la formation des espèces organiques secondaires (*Secondary Organic Aerosol*) est implémenté dans CHIMERE. Il prend en compte trois types de précurseurs susceptibles de former des SOA : les alcanes à chaînes longues, les composés aromatiques et les monoterpènes. Les rendements de production des SOA sont basés sur des résultats expérimentaux obtenus en chambre de simulation, restitués par Grosjean et Seinfeld (1989) pour les espèces anthropiques et Pankow (2001) pour les espèces biogènes.

### *Dépôt sec et humide*

Pour les gaz, le dépôt sec est paramétré comme un flux vertical vers la première couche du modèle  $Flux_{d,i} = -v_{d,i}c_i$  avec  $c_i$  correspondant à la concentration de l'espèce et  $v_{d,i}$  la vitesse de dépôt (m/s). La vitesse de dépôt est paramétrée en utilisant l'analogie de la résistance développée par [Wesely, 1989]. Elle prend en compte certains paramètres micrométéorologiques ( $L, z_0$ ), la nature du sol et de la végétation (résistance des stomates). Pour les aérosols le principe de paramétrisation est le même que pour les gaz mais utilise la formule de Seinfeld et Pandis (1997). Deux types de résistances sont utilisés : la résistance aérodynamique calculée comme étant l'intégrale de l'inverse du coefficient de diffusivité ( $Kz$ ) et la résistance quasi-laminaire des particules. La nature de la végétation influence la vitesse du dépôt sec [Bouchou, 2004]. Ainsi dans la version 2007, des améliorations concernant la résistance des végétaux aux dépôts sont intégrés dans le module de traitement du dépôt sec [Zhang, 2003]. Pour traiter le dépôt humide, quatre cas sont distingués :

- **Gaz dans les gouttelettes nuageuses** : L'acide nitrique et l'ammoniac en phase gazeuse peuvent être captés par les gouttelettes des nuages. Ce processus est réversible. L'équilibre entre les phases gazeuse et aqueuse suit la paramétrisation de Seinfeld et Pandis (1997).

• **Gaz dans les gouttes de pluie** : Le lessivage des gaz dans les gouttes en précipitations en dessous du nuage est un processus considéré irréversible pour  $\text{HNO}_3$  et  $\text{NH}_3$ . La paramétrisation utilisée est celle de Mircea et Stefan (1998).

• **Particules dans les gouttelettes nuageuses** : Les particules à l'intérieur du nuage peuvent être absorbées par des gouttelettes ou servir de noyaux de condensation pour la formation de nouvelles gouttelettes. C'est ce dernier processus qui est le plus efficace. La paramétrisation utilisée pour le flux de dépôt s'inspire de Tsyro (2002) et Guelle (1998) et dépend du taux de précipitation, de l'humidité spécifique et de la nature de la particule.

• **Particules dans les gouttes de pluie** : Le lessivage des particules par les précipitations est défini à travers un flux de déposition selon la formule de Loosmore (2003). Il dépend de l'intensité des précipitations, d'un coefficient de collision entre particules et gouttes d'eau et de la vitesse de précipitation des gouttes.

### *Chimie multiphasique*

Lorsque l'option aérosol est activée, MELCHIOR traite la chimie en phase aqueuse du soufre et quelques réactions de la chimie hétérogène. Le dioxyde de soufre, le peroxyde d'hydrogène et l'ozone en phase aqueuse sont en équilibre avec les concentrations en phase gazeuse. De plus,  $\text{SO}_2$  se dissocie en  $\text{HSO}_3^-$  et  $\text{SO}_3^{2-}$ . L'oxydation catalytique du  $\text{SO}_2$  en phase aqueuse avec le fer et le manganèse est aussi considérée [Hoffman et Calvert, 1985]. La chimie des sulfates est très dépendante du pH. Celui-ci varie entre 4,5 et 6. La chimie en phase aqueuse contribue à la production de plus de la moitié des sulfates notamment en période humide lorsque le  $\text{SO}_2$  se dissout dans les gouttelettes d'eau pour ensuite former  $\text{HSO}_3^-$ . Ce type de réaction contribue à une large partie de la production de sulfates.

Il est maintenant établi que la chimie en phase hétérogène joue un rôle primordial dans le cycle chimique de l'ozone troposphérique. Jacob (2000) recommande lors de l'utilisation des CTM, l'introduction de réactions de base qui font intervenir certains gaz cibles ( $\text{HO}_2$ ,  $\text{NO}_3$ ,  $\text{NO}_2$  et  $\text{N}_2\text{O}_5$ ) sur des surfaces aqueuses solides et dans les gouttelettes d'eau (brouillard). Ces réactions contribuent majoritairement à la production de nitrate. La constante  $k$  de ces réactions hétérogènes est proportionnelle au diamètre, à la surface de contact ainsi qu'à la diffusivité moléculaire et au coefficient de capture de l'espèce gazeuse. Au laboratoire PC2A, Aghnatiou (2008) a étudié la réaction

hétérogène de NO<sub>2</sub> sur des particules de sels de mer (assimilées à NaCl). Ce type de réaction se produit majoritairement à proximité des côtes où les concentrations de sels de mers sont importantes. Elle montre que le coefficient de capture ( $\gamma$ ) augmente avec l'humidité et conclut qu'en dépit de la lenteur des processus multiphasiques par rapport aux processus se déroulant en phase gazeuse ( $\tau_{\text{NO}_2}$  avec chimie gazeuse  $\ll \tau_{\text{NO}_2}$  avec chimie hétérogène) les réactions sur les particules de sels doivent être prises en compte dans les CTM. De manière identique, les particules de sels peuvent être un puit pour le radical HO<sub>2</sub>. Taketani *et al.* (2008) ont mesuré expérimentalement que le coefficient de capture de sel de mer sur le radical HO<sub>2</sub> augmente en fonction de l'humidité relative (de 25 % et 75 %). Les auteurs recommandent l'utilisation d'une valeur de  $\gamma = 0,1$  dans les mécanismes chimiques des CTM.

### 3.3.10. Photolyse et atténuation par les nuages

Dans cette version de CHIMERE, on suppose que les nuages sont au dessus du couvercle du modèle ( 5 000 m environ) ainsi il n'y a pas d'effet albédo dû aux nuages au sein du modèle. Cette hypothèse est fondamentale. En réalité, les nuages sont tout à fait observables à des altitudes inférieures à 5 000m. Les constantes de photolyses sont calculées par ciel clair selon la méthode de Madronich (1998). L'impact des nuages sur les constantes de photolyse est paramétré à l'aide d'un coefficient d'atténuation ( $A(d)$ ) dépendant de l'épaisseur optique totale ( $d$ ) et définit par :

$$A(d) = e^{-0,11d^{2/3}} \quad \text{Eq. (3.24)}$$

L'Épaisseur Optique Totale (EOT) est la somme de l'Épaisseur Optique (EO) de trois couches (0-2000 m, 2000-6000 m et 6000 m-couvercle). Pour la basse couche l'EO est paramétrée en utilisant l'humidité relative de la couche. Les deux autres couches utilisent l'humidité spécifique (kg d'eau/kg d'air sec). Un fichier renseigne sur les constantes de photolyses pour chaque espèce photolysée du mécanisme MELCHIOR pour 12 angles zénithaux (90, 88, 86, 83 80, 75, 70, 60, 45, 30, 15 et 0°).

### 3.3.11. Conditions limites et initiales

Les concentrations de quelques principaux polluants gazeux et particulaires importés dans le domaine modélisé sont fournies aux limites du domaine par les moyennes mensuelles de modèles climatologiques globaux. Il s'agit de LMDZ-INCA2 pour les espèce gazeuses [Hauglustaine, 2004] et GOCART pour les espèces particulaires [Ginoux, 2001]. On comprend que pour des espèces à faibles durées de vie les résultats en début de «simulation» peuvent être de qualité médiocre. Pour nos simulations, une période de *spin-up* de cinq jours est instaurée.

Les concentrations initiales sont issues d'un fichier de modélisation précédant temporellement la nouvelle simulation ou de l'interpolation des données aux bornes du domaine.

Dans notre cas, afin de prendre en compte la variabilité des concentrations aux limites des domaines régionaux pour l'ozone notamment et les PM<sub>10</sub>, la technique du *nesting* est utilisée pour produire les conditions aux limites et initiales des domaines régionaux.

### 3.3.12. Discrétisation et schéma numérique

L'équation bilan appliquée à chaque maille de la grille peut s'exprimer selon l'Eq. (3.25) :

$$\frac{\partial c}{\partial t} + \nabla \cdot (cV) = P - L \quad \text{Eq. (3.25)}$$

où  $\frac{\partial c}{\partial t}$  représente la variation temporelle d'une espèce chimique notée  $c$ ,  $\nabla \cdot (cV)$  représente le transport de l'espèce par le vent  $V$  (advection). Les termes  $P$  ( $P = \text{Production}$ ) et  $L$  ( $L = \text{Loss}$ ) représentent respectivement la production et les pertes des espèces chimiques étudiées.  $P$  et  $L$  sont assurées par quatre processus : Emissions, Diffusion, Dépôt, Chimie. A noter que le processus d'émission et de dépôt n'appartiennent qu'aux termes  $P$  et  $L$  respectivement.

La Figure 3.16, schématise les deux approches utilisées pour résoudre les équations différentielles d'un CTM : la méthode de séparation des opérateurs (*operator-splitting*) et technique d'intégration globale des processus (*Prod-Loss budget*). CHIMERE utilise la seconde approche. L'avantage de traiter les cinq termes séparément est de permettre une mise à jour simultanée des processus chimiques et physiques à chaque pas de temps.

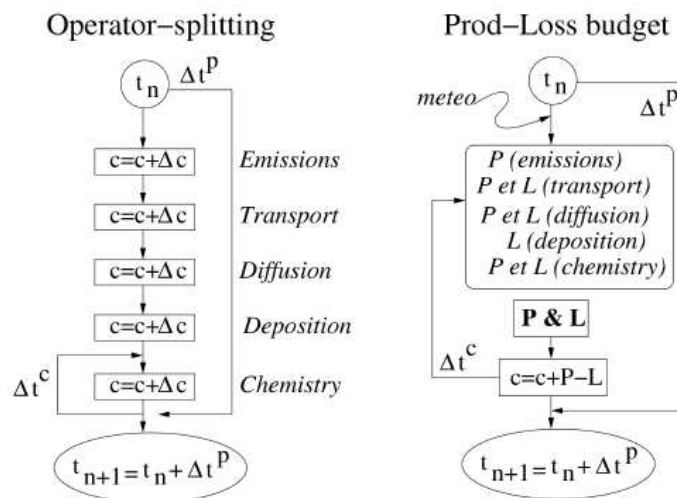


Figure 3.16 : Schéma du principe de calcul utilisé au sein d'un CTM.

La méthode numérique utilisée pour la résolution temporelle du système d'équations différentielles est dérivée de l'algorithme TWOSTEP proposé par Verwer (1994) pour la phase gazeuse uniquement. Il est basé sur la formule du schéma implicite centré de Gauss-Seidel :

$$c^{n+1} = \left( I + \frac{2}{3} \Delta t L(c^{n+1}) \right)^{-1} \left( \frac{4}{3} c^n - \frac{1}{3} c^{n-1} + \frac{2}{3} \Delta t P(c^{n+1}) \right) \quad \text{Eq. (3.26)}$$

CHIMERE utilise deux pas de temps : un pas grossier pour les variables physiques et un pas plus fin pour traiter la chimie durant lequel les variables physiques sont quant à elles gardées constantes. Nous utilisons un pas de temps grossier de 10 minutes pour la dynamique et de 100 s pour la chimie. Le temps de calcul pour le domaine NPDC2Fin, avec prise en compte des aérosols, est de cinq heures environ sur la station *Ireni* (2 Intel-Xéon quadcore - 8 x 2.6GHz - cache 4KB). Deux itérations sont utilisées. Enfin, on note que 80 % des calculs sont consacrés au module traitant de la chimie.

Le choix du pas de temps est particulièrement important en modélisation. Il correspond à l'incrément temporel (de  $t$  à  $t+1$ ) entre deux intégrations successives réalisé par le modèle. La détermination du pas de temps s'effectue en fonction de la vitesse moyenne de l'écoulement modélisé (vitesse du vent dans notre cas noté  $U$  dans l'Eq. 3.27). Le nombre de Courant-Friedrich-Levy (CFL) permet de contrôler le choix du pas de temps (Eq. 3.27) :

$$\text{CFL} = |U| \cdot \frac{\Delta t}{\Delta x} \quad \text{Eq. (3.27)}$$

Afin d'assurer le bon déroulement de la simulation le nombre de CFL doit être proche de 1.

En revanche si :

- CFL  $\ll 1$  : La distance parcourue pendant  $\Delta t$  est plus petite que  $\Delta x$  (la taille de la maille).

On observe une accumulation artificielle d'énergie cinétique dans une maille. Le modèle « explose ».

- CFL  $\gg 1$  : La distance parcourue pendant  $\Delta t$  d'une advection est plus grande que  $\Delta x$ . Des mailles sont alors « esquivées ». La simulation peut diverger et les résultats ne sont pas exploitables.

Lors de l'utilisation de CHIMERE, si le pas de temps « physique » est trop petit pour respecter le nombre de CFL, le modèle l'ajuste automatiquement toutes les heures durant la simulation. En revanche, si le pas de temps « physique » est trop élevé, la valeur choisie par l'utilisateur n'est pas modifiée.

### 3.3.13. Description des domaines CHIMERE

Au total, sept domaines sont utilisés lors du travail de thèse. Leurs caractéristiques sont répertoriées dans le Tableau 3.9. EUR1 est un domaine continental utilisé en tant que grille mère de NPDC1, NPDC2 et NPDC2Fin. Ces trois derniers domaines couvrent l'ensemble de la région NPDC.

**Tableau 3.9 : Caractéristiques des différents domaines utilisés pour la modélisation CHIMERE.**

DOMAINE	$N_X$	$N_Y$	$D_X$	$D_Y$	$X_{MIN}$	$Y_{MIN}$
EUR1	62	42	0,5°	0,5°	-9°O	36°N
NPDC1	50	40	0,1°	0,1°	0,7°E	48,5°N
NPDC2Fin	90	40	0,05°	0,05°	1°E	50°N
NPDC2TFin	150	80	0,02°	0,02°	1°E	50°N
NPDC3DK	50	50	0,01°	0,01°	2,8°E	50,8°N
NPDC3Lille	50	50	0,01°	0,01°	2,8°E	50,38°N
NPDC4	80	50	0,05°	0,05°	-1°O	49°N

$N_X$  = nombre de maille horizontalement

$N_Y$  = nombre de maille verticalement

$D_X$  = résolution horizontale (°)

$D_Y$  = résolution verticale (°)

$X_{MIN}$  = coordonnée longitudinale de la maille située en bas à gauche de la grille du domaine (°).

$Y_{MIN}$  = coordonnée latitudinale de la maille située en bas à gauche de la grille du domaine (°).

La Figure 3.17 illustre l'architecture des différents domaines MM5 et CHIMERE utilisés lors des simulations. En bleu, les trois domaines MM5 sont représentés : EURO1, DOM1 et DOM2 (du plus grand au petit) et en jaune les domaines CHIMERE EUR1, NPDC1 et NPDC2 (du plus grand au plus petit).

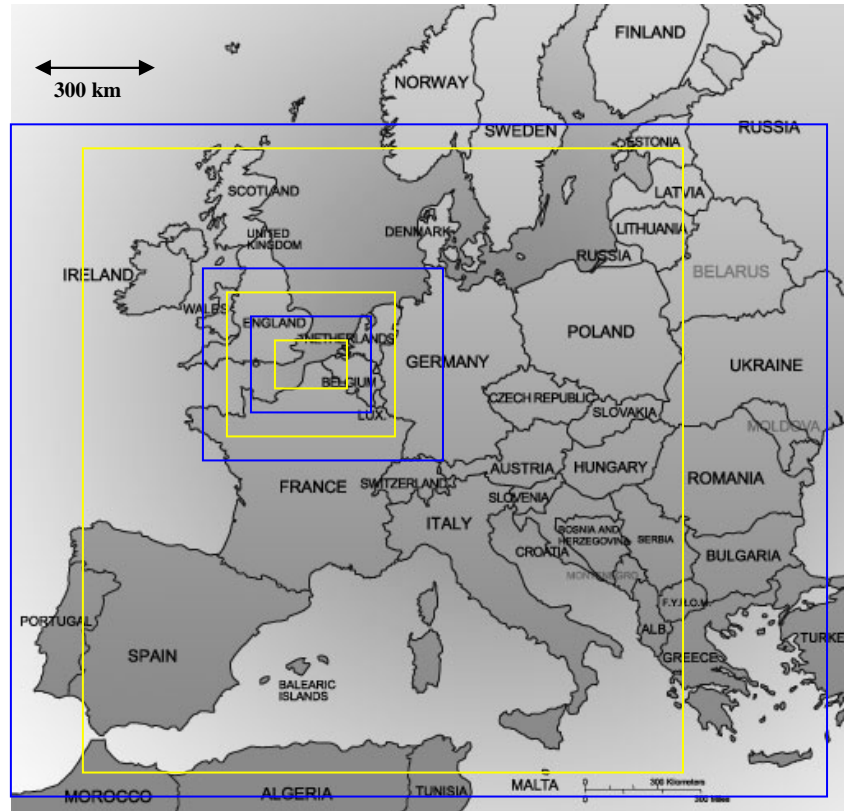


Figure 3.17 : Architectures des domaines MM5 et CHIMERE utilisées pour la modélisation (en jaune : CHIMERE ; en bleu : MM5).

Les domaines NPDC3DK et NPDC3Lille sont deux petits domaines de résolutions très fines centrés respectivement sur la zone industrielle de Dunkerque et la métropole Lilloise (Figure 3.18). NPDC4 est un domaine centré (non représenté sur les cartes) sur la Manche utilisé pour étudier le transport transmanche de la pollution.

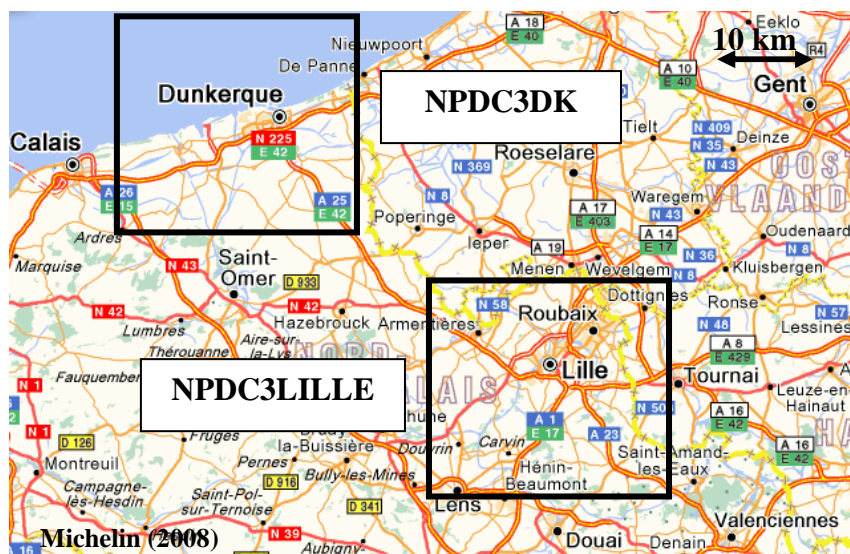


Figure 3.18 : Zone de couverture des domaines CHIMERE NPDC3DK et NPDC3Lille.



Les principales paramétrisations du système POQAIR sont résumées dans le Tableau 3.10. On remarque notamment des différences au niveau des systèmes de coordonnées ce qui implique inexorablement une interpolation linéaire des données météorologiques sur les grilles CHIMERE.

**Tableau 3.10: Caractéristiques techniques du système MM5-CHIMERE**

	MM5	CHIMERE
Résolution horizontale	27, 9, 3 km	10, 5, 2 km
Coordonnées horizontales	Arakawa type B	centre des mailles
Coordonnées verticales	sigma pression	hybrid sygma
Mécanisme chimique		MELCHIOR2 (44 espèces dont 22 COVNM, 120 réactions)
Nombres de niveaux	23	8
Plafond du modèle	100hPa	500hPa
Transport		PPM
Diffusion verticale		K-diffusion
Dépôt sec		Wesely (1989)
Microphysique	convection, nature du sol, radiation	Effet de l'humidité sur photolyse, convection, aérosols
Technique d'imbrication	two-way	one-way
Pas de temps	20 s	100s (variable selon les domaines)

La Figure 3.19 visualise l'ensemble des modules liés au système MM5-CHIMERE. On remarque que l'intégration des données météorologiques, des émissions et le traitement des données (*postprocessing*) nécessitent des interfaces dont le code varie en fonction du format des données.

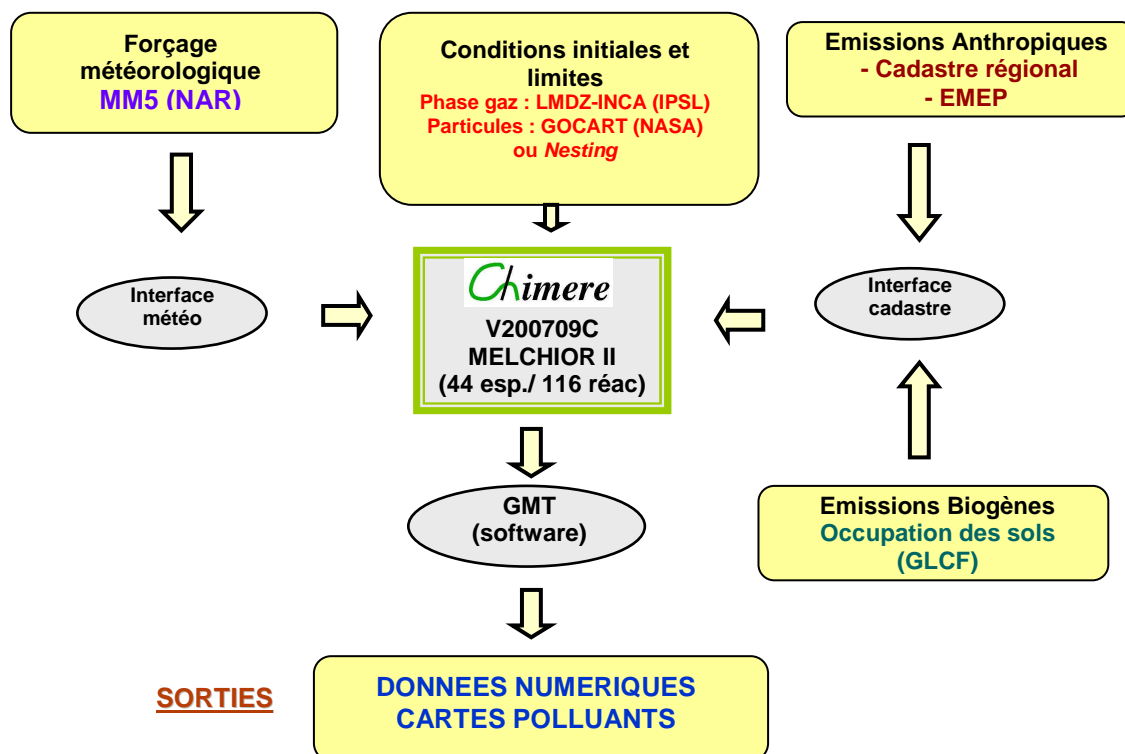


Figure 3.19 : Schématisation de l'imbrication des différents modules composant le système MM5-CHIMERE.

Deux modèles déterministes Eulériens ont été décrits au cours de cette partie. MM5-CHIMERE est l'outil principal utilisé lors des travaux de recherche. Cependant, un second système est utilisé dans le cadre de cette thèse. Il s'agit de MM5-FLEXPART. FLEXPART est un modèle Lagrangien utilisant les champs de vents issus du modèle MM5. Il est décrit dans le paragraphe 3.4.

### 3.4. Le modèle Lagrangien FLEXPART

Le modèle Lagrangien FLEXPART a été utilisé au cours de ce doctorat dans le cadre d'une collaboration avec l'équipe du Professeur K.Pericleous et du Dr M.Patel du *Centre of Numerical modelling and process analysis*. Un séjour de 6 mois, cofinancé par le collège Doctoral Européenne et le Conseil Régional NPDC, à l'Université de Greenwich en Angleterre a permis de me familiariser à son utilisation. Le but de cette collaboration était d'utiliser le modèle FLEXPART afin de simuler le transport transmanche de la pollution particulaire.

#### 3.4.1. Généralité sur FLEXPART

FLEXPART est un modèle Lagrangien de Dispersion de Particule (LPD) dédié au calcul du transport d'espèces chimiques et particulaires. Le modèle représente le transport et le dépôt d'une quantité infinitésimale de petites parcelles d'air. Ainsi, l'ensemble des équations paramétrant le transport, la diffusion turbulente et le dépôt sont appliqués à chaque parcelle d'air. Le principal avantage de ce type de modèle réside dans le fait qu'il n'y a pas de diffusion numérique au contraire des modèles Eulériens. En effet, dans le cas Eulérien lors de l'émission d'un polluant, celui-ci est instantanément dilué dans l'ensemble de la maille dans laquelle l'émission est localisée.

Le code FLEXPART a été initialement développé par Andreas Stohl de l'Université de Munich dans les années 90. Tout comme les codes CHIMERE et MM5, il s'agit d'un projet sous LPG (*open source*) et le code est disponible sur le site internet du modèle<sup>1</sup>. Le langage utilisé est Fortran 77 et il a été compilé avec *pgf90* sous la station de travail linux « *Ireni* » (x86-2x quadcore Intel). FLEXPART a été validé avec les données provenant d'une campagne de mesure utilisant des traceurs troposphériques [Stohl *et al.*, 1998]. Il peut être utilisé afin d'étudier le transport intercontinental de l'ozone [Stohl et Trickl, 1999], l'advection vers l'Europe des émissions de polluants résultant de feux de forêts Canadiennes [Forster *et al.*, 2001] mais également durant des études de cas visant à étudier des intrusions stratosphériques et la dispersion des émissions d'avions dans la stratosphère. FLEXPART a aussi été testé en mode retro-plume afin de déterminer l'origine au niveau régional, de certains panaches de pollution d'origines nord Américaines, transportés en Europe [Stohl *et al.*, 2003].

---

<sup>1</sup> <http://transport.nilu.no/flexpart>

De part son statut de logiciel libre, plusieurs utilisateurs ont développés des interfaces permettant d'utiliser les données météorologiques issues d'autres modèles. Ainsi l'intégration des données du modèle GFS est assuré par Caroline Forster (Norswegian Institute for Air Research, Norvège), par Jérôme Fast pour le modèle WRF [Janjic, 2004] et Helfried Scheifinger et Mathias Langer (Zentralanstalt fuer Meteorologie und Geodynamik) pour le modèle ALADIN<sup>1</sup>.

### 3.4.2. Données météorologiques

FLEXPART est un modèle *off-line*. Les premières versions de FLEXPART acceptaient uniquement les données météorologiques du Centre Européen de Prévisions Météorologiques à Moyens Termes (CEPMMT). Wotawa G. et Stohl A. (2000) ont développé par la suite une version de FLEXPART permettant l'utilisation des données provenant du modèle MM5. La version FLEXPART 6.2 adapté à MM5 est utilisée dans le cadre de cette thèse. Les fichiers de données provenant du modèle MM5 doivent être préalablement convertis aux formats GRIB2 (Gridded binary) afin d'être intégré à FLEXPART. Ce format a été développé par le CEPMMT et est largement utilisé dans la gestion des données météorologiques. L'ensemble des données nécessaire au fonctionnement de FLEXPART est indiqué dans le Tableau 3.11. Nous ajoutons que FLEXPART utilise pour l'occupation des sols les données de van de Velde *et al.* (1994).

**Tableau 3.11 : Variables météorologiques utilisées par FLEXPART**

Données météorologiques	Dimension	Unité
Vitesse et du vent (U, V, W)	3D	m/s
Température	3D	K
Humidité spécifique	3D	kg eau/kg d'air sec
Température du point de rosé	2D	K
Précipitations convectives	2D	kg/m <sup>2</sup> /heure
Précipitation grande échelle	2D	kg/m <sup>2</sup> /heure
Flux de chaleur sensible	2D	W/m <sup>2</sup>
Vitesse de friction	2D	m/s

### 3.4.3. Architecture

Cinq fichiers d'entrées sont à configurer selon les applications désirées (Figure 3.20). Le fichier COMMAND permet d'indiquer la période sur laquelle la simulation s'étend, le fichier OUTGRID spécifie les coordonnées et la résolution du domaine modélisé, le fichier SPECIES permet de sélectionner la ou les espèces à modéliser et le fichier RELEASE permet d'indiquer la quantité de matière (kg) émise ainsi que sa durée de l'émission dans l'atmosphère en un point donné. Les

<sup>1</sup> Aire Limitée Adaptation dynamique Développement InterNational

coordonnées du point d'émission sont également précisées dans ce dernier fichier. Plusieurs émissions peuvent être spécifiées. Enfin, le fichier *pathnames* indique les chemins des données en entrée et en sortie du modèle. Un module de post-traitement des données a été développé lors du séjour à Greenwich. Il s'agit d'un code original utilisant l'application *google-earth* pour la localisation géographique des particules. Un guide d'utilisateur a été écrit aux cours des travaux de recherches. Il est disponible au laboratoire PC2A.

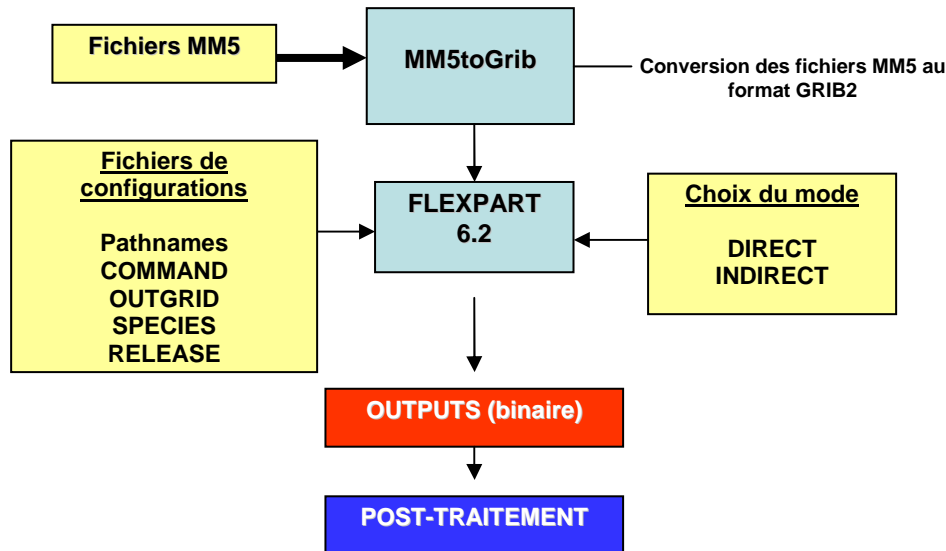


Figure 3.20 : Schématisation de l'imbrication des différents modules du système MM5-FLEXPART.

### 3.4.4. Principales paramétrisations du modèle FLEXPART

#### *Transport horizontal*

Sur le même principe que le modèle MM5, les coordonnées verticales sont définies sur une grille de type *terrain-following*. Le maillage horizontal est uniforme et régulier.

FLEXPART utilise le schéma dit « d'accélération nulle » pour le transport horizontal des particules :

$$X(t+\Delta t) = X(t) + v(X,t) \Delta t \quad \text{Eq. (3.28)}$$

ce qui revient à intégrer l'équation différentielle du premier ordre suivante [Stohl, 1998] :

$$\frac{dX}{dt} = v[X(t)] \quad \text{Eq. (3.29)}$$

où  $t$  est le temps (s),  $\Delta t$  le pas de temps,  $X$  la position du vecteur décrivant la trajectoire de la particule et  $v = \bar{v} + v_t + v_m$  le vecteur vent qui est composé du vecteur vent de la maille  $\bar{v}$ , du vent turbulent  $v_t$  et du vent turbulent meso-échelle  $v_m$ .

### *Vent turbulent*

Le vent turbulent  $v_{t_i}$  ( $i$  = composantes du vent) est paramétré pour chaque maille selon le processus de Markov basé sur l'équation de Langevin [Thomson, 1987] :

$$dv_{t_i} = a_i(x, v_t, t)dt + b_{i,j}(x, v_t, t)dW_j \quad \text{Eq. (3.30)}$$

où le terme de dérive (*drift*)  $a$  et le terme de diffusion  $b$  sont fonction de la position, de la vitesse turbulente et du temps.  $dW_j$  sont des composantes incrémentées du processus de Wiener avec une moyenne de 0 et une variance notée  $dt$  [Legg et Raupach., 1982].

Une diffusion Gaussienne est considérée dans FLEXPART ce qui est vérifié uniquement pour des conditions stable et neutre. Lors de forts mouvements convectifs, lorsque la turbulence est assurée pour les courants ascendants et descendants, l'hypothèse d'une diffusion Gaussienne n'est plus validée. Cependant pour le transport moyen et longue distance, les particules sont dispersées de manière homogène au sein de la CLA et l'erreur associée à l'hypothèse évoquée précédemment est minime.

Selon les hypothèses mentionnées ci-dessus, l'équation de Langevin pour le vent vertical ( $w$ ) peut s'écrire :

$$dw = -w \frac{dt}{\tau_{L_w}} + \frac{\partial \sigma_w^2}{\partial z} \frac{\partial \sigma_w^2}{\rho} \frac{\partial p}{\partial z} dt + \left( \frac{2}{\tau_{L_w}} \right)^{1/2} \sigma_w dW \quad \text{Eq. (3.31)}$$

où  $w$  et  $\sigma_w$  sont respectivement la composante verticale du vent turbulent et son écart type associé. Le deuxième et le troisième terme sont la correction de dérive (*drift*) et de la densité de l'air, respectivement. Cette équation de Langevin est identique à celle décrite par [Legg *et al.*, 1982] excepté pour l'ajout du terme de Stohl et Thomson (1999) paramétrisant la diminution de la densité de l'air avec l'altitude.

### Hauteur de la CLA

La hauteur de la CLA est calculée en utilisant le nombre de Richardson ( $R_i$ ) selon Vogelezang et Holtslag (1996) .

Le nombre de Richardson  $R_i$  est le rapport de flottabilité sur le terme de cisaillement :

$$R_i = \frac{\text{flottabilité}}{\text{cisaillement}} = \frac{\overline{\frac{g}{T} w' \theta'}}{\overline{u_i u_j} \frac{\partial u_i}{\partial x_j}} \quad \text{Eq. (3.32)}$$

où  $g = 9.81 \text{ m.s}^{-2}$ ,  $T$  est la température de la parcelle d'air en (K),  $w$  la vitesse verticale en (m/s),  $\theta$  est la température potentielle en (K) et  $u_i$  et  $u_j$  sont les composantes horizontales du vent (m/s).

On utilise en général le nombre de Richardson de couche pour déterminer la part de la flottabilité dans l'instabilité d'une parcelle d'air. Trois cas sont alors envisagés :

$$\begin{aligned} R_i > 0 & \text{ stable} \\ R_i = 0 & \text{ neutre} \\ R_i < 0 & \text{ instable} \end{aligned}$$

Le nombre de Richardson critique est souvent employé en modélisation. Il définit la hauteur de la CLA sur un profil vertical de  $R_i$ . Dans FLEXPART, la hauteur de la CLA correspond à la hauteur de la première couche verticale dans laquelle  $R_i$  excède la valeur critique de 0,25.

La convection a été implémentée au sein de FLEXPART selon la paramétrisation de Emanuel *et al.* (1999). Le principe de cette paramétrisation est similaire à celle décrite précédemment dans CHIMERE. FLEXPART utilise la paramétrisation de Wesely et Hicks (1977) pour le dépôt sec et de McMahon et Denison (1979) pour le dépôt humide. Le détail des différentes paramétrisations utilisées au sein de FLEXPART est disponible sur le site internet du modèle.

Les caractéristiques du système MM5-FLEXPART sélectionnées pour les travaux de recherches sont décrites dans le Tableau 3.12.

**Tableau 3.12 : Caractéristiques techniques du système MM5-FLEXPART utilisées dans le cadre de la thèse.**

	MM5	FLEXPART
<b>Résolution</b>	50 km	10 km
<b>Coordonnées horizontales</b>	Arakawa type B	Centre des mailles
<b>Coordonnées verticales</b>	sigma pression	sigma pression
<b>Transport</b>	conservation de la masse	conservation de la masse
<b>Pas de temps</b>	20s	100s

En résumé, le modèle FLEXPART simule le transport et le dépôt de minuscules parcelles d'air assimilées à des particules solides. Il n'y a pas de mécanisme chimique implanté au sein de FLEXPART. L'utilisateur peut sélectionner une espèce gazeuse ou particulaire. Dans le cadre de la thèse, seule la modélisation des particules a été réalisée.

### 3.5. Conclusion

Plusieurs outils de modélisations ont été mis en place au laboratoire PC2A : les modèles Eulérien méso-échelle de Chimie-Transport CHIMERE et météorologique MM5 ainsi que le modèle Lagrangien FLEXPART.

Trois options importantes sont utilisées avec MM5 : l'option non-hydrostatique, l'option d'imbrication (*nesting*) et la relaxation Newtonienne. La première permet de représenter les phénomènes dynamiques d'échelle régionale et la deuxième permet de disposer de conditions initiales et aux limites des domaines de meilleures qualités pour les domaines imbriqués. Enfin, après une série de tests, nous avons choisi d'appliquer un coefficient de relaxation aux domaines 1 et 2 pour les variables température et humidité spécifique. Le coefficient de relaxation pour la vitesse du vent est appliqué aux DOM 1, 2 et 3. Les données produites par MM5 sont destinées à fournir les données météorologiques nécessaires aux fonctionnements des modèles CHIMERE et FLEXPART.

Le modèle de Chimie-Transport CHIMERE est utilisé dans sa version 2005 et 2007. La version 2007 a été améliorée notamment au niveau du traitement chimique des aérosols. CHIMERE a été configuré pour sept domaines d'études. EUR1 correspond à la grille mère lors de l'utilisation de l'option *nesting*.

FLEXPART est un modèle Lagrangien utilisant les données météorologiques issues du modèle MM5 afin de déterminer le devenir ou l'origine d'un épisode de pollution gazeuse ou particulaire.

Les modèles MM5, CHIMERE et FLEXPART ainsi que les modules permettant l'intégration et le traitement des données d'entrées et de sorties constituent l'architecture centrale de POQAIR. Ces différents modèles sont utilisés pour réaliser les calculs analysés et discutés dans le quatrième chapitre.

## **CHAPITRE 4**

<p><b>VALIDATION DE POQAIR SUR LA REGION NPDC</b></p>
---





## INTRODUCTION

Le système MM5-CHIMERE de POQAIR a été testé durant les mois de juin et juillet 2006 au niveau de la région NPDC. Durant cette période, les températures enregistrées furent particulièrement élevées par rapport aux normales saisonnières sur le nord de la France. Les conditions météorologiques étaient propices au développement d'un épisode de pollution photochimique intense. L'impact sanitaire et environnemental est particulièrement marqué durant ce type d'évènement (exemple de la canicule en août 2003) justifiant ainsi une étude détaillée de celui-ci. Ce chapitre se découpe en deux parties. La première « étude A » décrit tout d'abord l'influence des conditions météorologiques sur les concentrations en O<sub>3</sub> et PM<sub>10</sub>. Puis, elle détaille les résultats de l'évaluation de la performance du système à reproduire d'une part les conditions météorologiques et d'autre part, les concentrations en ozone et en PM<sub>10</sub>. Au cours de l'étude, nous testons plusieurs paramètres du système :

- l'influence de la nature du cadastre d'émissions anthropiques,
- l'influence de la résolution du maillage de la grille CHIMERE sur les concentrations en polluants,
- l'influence de la résolution du maillage de la grille MM5 sur les données dynamiques concentrations en polluants.

Une seconde partie « étude B » s'intéresse à déterminer l'origine de la pollution en ozone et en PM<sub>10</sub> observée sur la région NPDC. Pour ce faire deux techniques sont utilisées : le *nesting* et l'application d'un scénario d'émissions nulles. Les données de l'étude B sont comparées à celles de l'étude A. Le Tableau 4.1 présente les versions et les configurations des modèles utilisés pour les études A et B.

**Tableau 4.1 : Versions et configurations des modèles utilisés pour l'étude de cas A et B.**

Etude de cas	Version CHIMERE	Version MM5	Extraction données	Type de cadastre
A	V200511B ou C	3.7.3	Lille, Dunkerque	CNPDC ou EMEP
B	V200709C ou D	3.7.3	ensemble NPDC	EMEP ou aucune

## 4.1. Etude A : La canicule de juin-juillet 2006

### 4.1.1. Analyse de l'évolution de la température

Des températures particulièrement élevées ont été enregistrées au cours des mois de juin et juillet 2006 sur l'ensemble du territoire français par Météo-France. L'analyse est issue des données de deux stations Météo-France où l'ensemble des données recherchées est disponible : Lesquin et Dunkerque. L'anomalie positive de la moyenne mensuelle pour juillet 2006 varie entre 4 et 5 °C pour

la station de Lesquin (50.59°N/3.11°E) près de Lille, ce qui en fait le second mois le plus chaud depuis 1950, après août 2003 (Figure 4.1).

Les enregistrements de la station périurbaine de Lesquin près de Lille permettent de différencier sept périodes distinctes. Parmi celles-ci, trois périodes principales (en gras) avec des températures moyennes horaires supérieures à 25°C (Tableau 4.2), ce qui est rare pour la région, ont retenu notre attention. En effet, on peut légitimement supposer que l'activité photochimique a été intense lors de ces trois périodes. Le maximum de la température moyenne horaire est mesuré le 19/07 durant la période 6. Les quatre autres séries sont des périodes de transitions où les températures moyennes horaires ne dépassent pas 25 °C.

A Dunkerque, de manière identique, sept séries sont distinguées pour l'ensemble du mois de juillet. Les trois périodes où la température moyenne horaire est supérieure à 25°C (Tableau 4.3) sont similaires à celles de Lesquin (périodes 2, 4 et 6). Un nouveau record (38°C en moyenne horaire) a d'ailleurs été enregistré le 19/07/06 au cours de la période 6. Les baisses de température (le 14 et 25 juin et le 05 et 20 juillet), sont liées pour les deux stations, aux précipitations orageuses générées par le passage successif de fronts froids sur la région NPDC (Figure 4.2). Il est important de noter que les températures moyennes horaires de Dunkerque sont supérieures à 15°C pour l'ensemble du mois de juillet.

**Tableau 4.2 : Températures moyennes horaires (maxima sur la période) enregistrées à Lesquin (50,59°N/3,11°E) au cours des sept périodes identifiées en juin-juillet 2006.**

Périodes	Date	Températures maximales (°C)
1	01-08 juin	23,5
<b>2</b>	<b>09-13 juin</b>	<b>31,0</b>
3	14-29 juin	27,7
<b>4</b>	<b>30 juin-05 juillet</b>	<b>31,4</b>
5	06-14 juillet	23,9
<b>6</b>	<b>15-26 juillet</b>	<b>35,7</b>
7	27-30 juillet	27,6

**Tableau 4.3 : Températures moyennes horaires (maxima sur la période) enregistrées à Dunkerque (51,03°N/3,37°E) au cours des sept périodes identifiées en juin-juillet 2006.**

Périodes	Date	Températures maximales (°C)
1	01-08 juin	20,0
<b>2</b>	<b>09-12 juin</b>	<b>31,3</b>
3	13-30 juin	25,4
<b>4</b>	<b>01-05 juillet</b>	<b>31,0</b>
5	06-17 juillet	24,4
<b>6</b>	<b>18-22 juillet</b>	<b>38,0 (nouveau record pour la station)</b>
7	23-30 juillet	28,3

#### 4.1.2. Analyse de la vitesse et de la direction du vent

L'analyse des profils temporels de la vitesse et la direction du vent, nous permet de distinguer huit périodes distinctes pour les stations de Lesquin et de Dunkerque. Pour les deux types de stations,

les vents de nord-est d'origines continentales coïncident avec les températures maximales journalières les plus élevées alors que les vents de sud-ouest engendrent une baisse des températures moyennes horaires. Cette baisse est provoquée par le passage des fronts froids advectant de l'air maritime plus frais sur les terres surchauffées (Figure 4.3 et Figure 4.4). Nous rappelons qu'un relevé météorologique de direction de vent correspondant à 0° s'interprète comme un vent de nord, 90° à un vent d'est, 180° à un vent de sud et 270° à un vent d'ouest.

Pour Lesquin, la vitesse moyenne horaire du vent (vitesse moyennée pour chaque période) varie entre 3 m/s (périodes 1, 2, 5 et 8) et 7 m/s (période 7) (Tableau 4.4). Les périodes 3 (4 m/s) et 6 (5 m/s) se situent entre ces deux extrêmes. Les deux périodes de vent les plus intenses ont des maxima moyens horaires de 8 m/s (période 4) et 10 m/s (période 7). A l'exception du passage des fronts, les vents sont donc relativement faibles durant la période d'étude.

Pour Dunkerque, les variations de vitesse et de direction sont plus marquées (Tableau 4.5). Les séries de vent les plus fortes sont observées pour les périodes 4 (7 m/s en moyenne avec un maximum 14 m/s), la période 2 (8 m/s en moyenne avec un maximum 12 m/s) et la période 7 (8 m/s en moyenne avec un maximum 14 m/s). Durant les autres périodes (1, 3, 5, 6 et 8), les moyennes sont inférieures à 6 m/s avec des maxima de 14 m/s pour les périodes 6 et 8. Les périodes de vitesses de vents maximales sont liées aux passages des fronts froids, excepté pour celle s'étendant du 13 au 18 juillet qui est dominée par un vent de nord-est dû à l'anticyclone.

**Tableau 4.4 : Vitesses moyennes horaires (maxima de la période entre parenthèses) du vent et directions moyennes associées pour Lesquin (50,59°N/3,11°E) moyennées sur chaque période pour juin-juillet 2006.**

Période	Date	Vitesse du vent (m/s)	Direction moyenne du vent
1	01-07 juin	3 (7)	variable
2	08-13 juin	3 (6)	sud
3	14-16 juin	4 (9)	nord
<b>4</b>	<b>17-27 juin</b>	<b>5 (8)</b>	<b>ouest</b>
5	28 juin-04 juillet	3 (6)	nord-est
6	05-12 juillet	5 (9)	nord-ouest
<b>7</b>	<b>13-16 juillet</b>	<b>7 (10)</b>	<b>nord-est</b>
8	17-30 juillet	3 (10)	variable

**Tableau 4.5 : Vitesses moyennes horaires (maxima de la période entre parenthèses) du vent et directions moyennes associées pour Dunkerque (51,03°N/3,37°E) moyennées sur chaque période pour juin-juillet 2006.**

Période	Date	Vitesse du vent (m/s)	Direction moyenne du vent
1	01-13 juin	5 (10)	variable
<b>2</b>	<b>14-15 juin</b>	<b>8 (12)</b>	<b>nord-est</b>
3	16-18 juin	2 (7)	variable
<b>4</b>	<b>19-23 juin</b>	<b>7 (14)</b>	<b>sud-ouest</b>
5	24 juin-05 juillet	4 (8)	nord-est
6	05-12 juillet	6 (14)	ouest
<b>7</b>	<b>13-18 juillet</b>	<b>8 (14)</b>	<b>nord-est</b>
8	19-30 juillet	4 (14)	variable

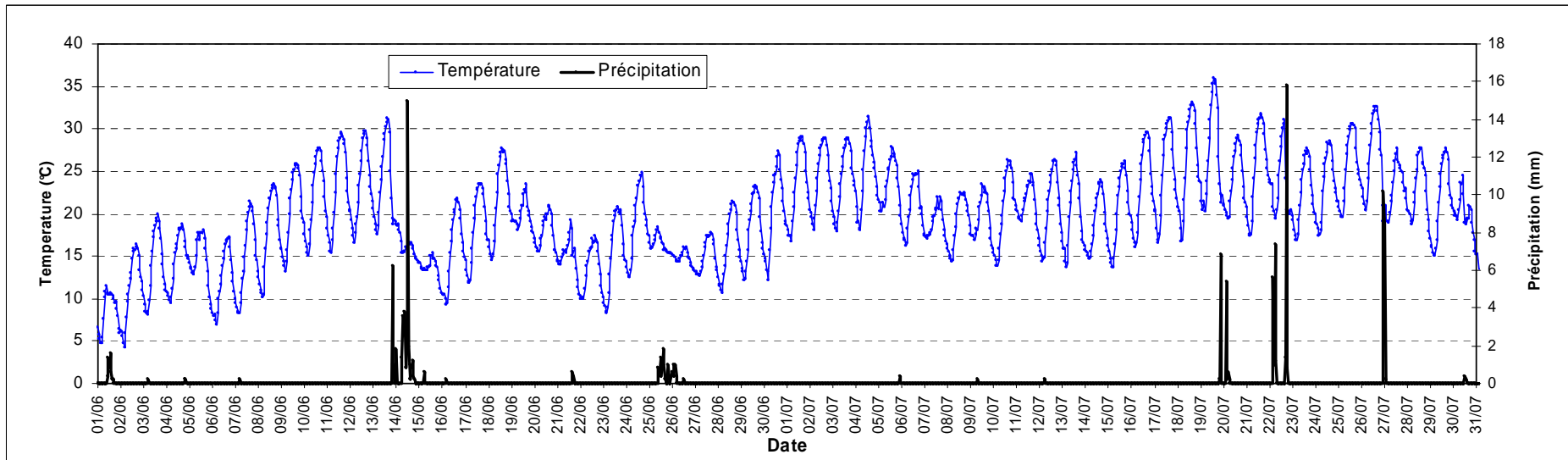


Figure 4.1 : Evolution temporelle de la température et des précipitations durant les mois de juin-juillet 2006 pour la station de Lesquin (50,59°N/3,11°E).

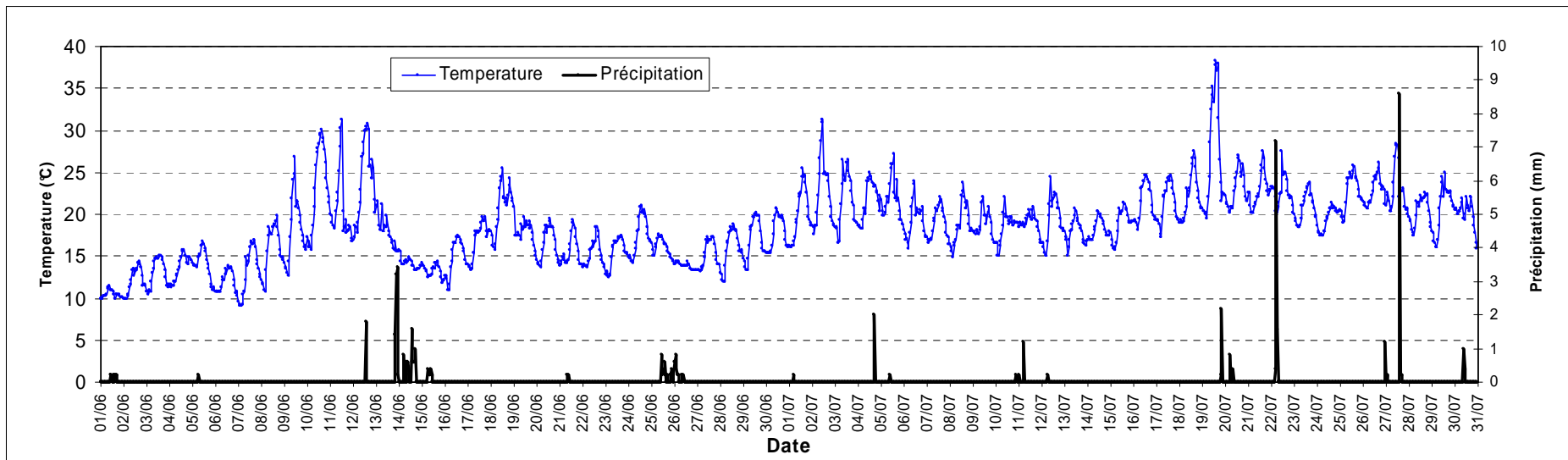


Figure 4.2 : Evolution temporelle de la température et des précipitations durant les mois de juin-juillet 2006 pour la station de Dunkerque (51,03°N/2,33°E).

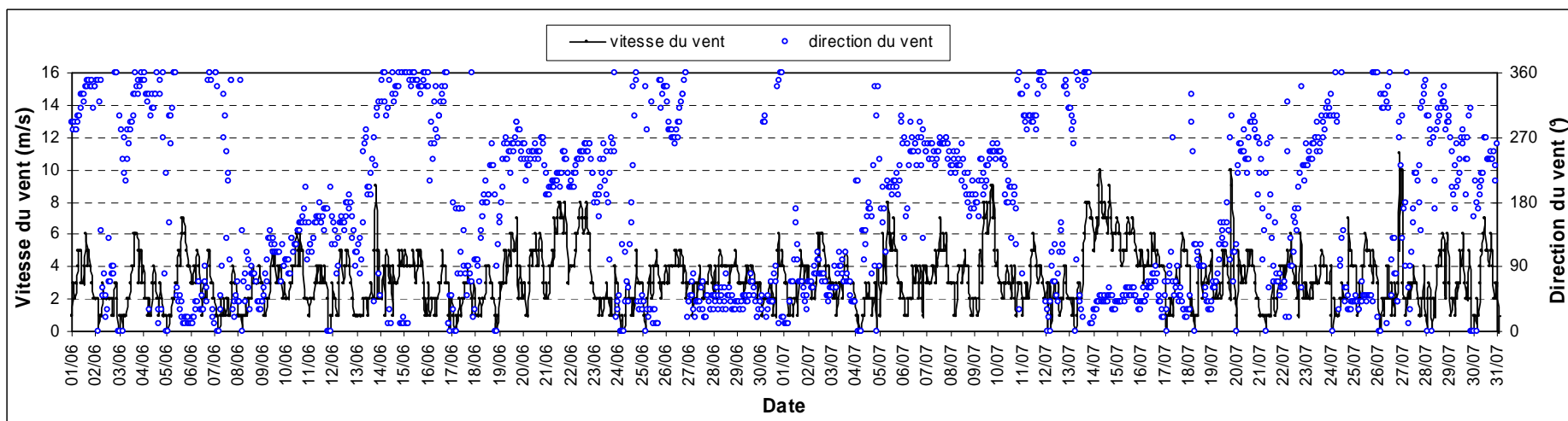


Figure 4.3 : Evolution temporelle de la vitesse et de la direction du vent durant les mois de juin-juillet 2006 pour la station de Lesquin (50,59°N/3,11°E).

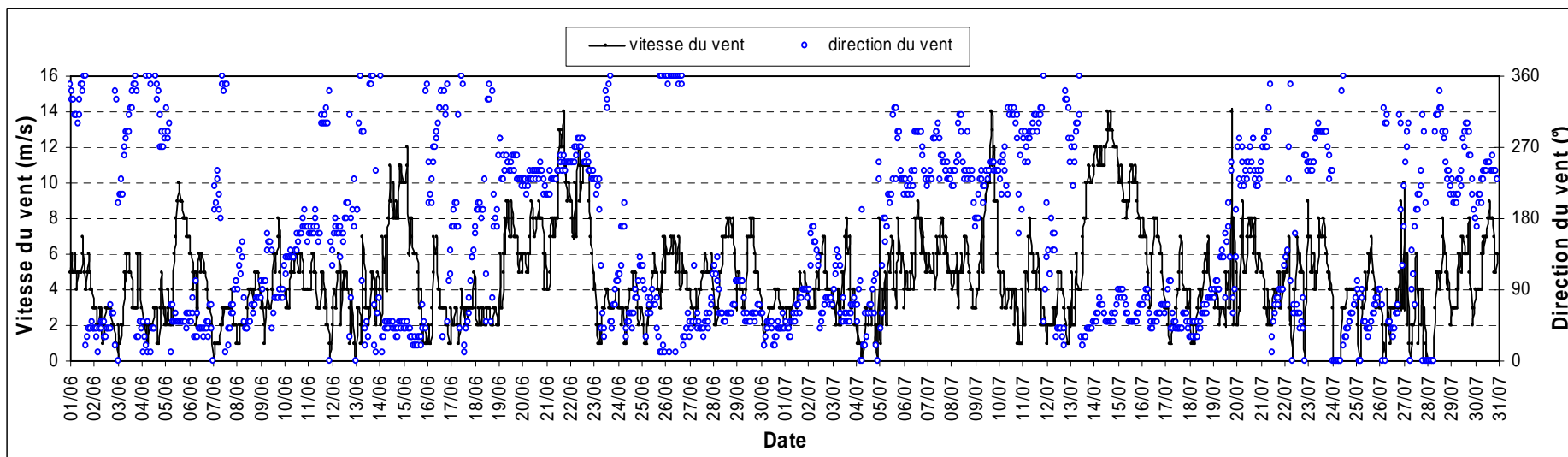


Figure 4.4 : Evolution temporelle de la vitesse et de la direction du vent durant les mois de juin-juillet 2006 pour la station de Dunkerque (51,03°N/2,33°E).

### 4.1.3. Analyse statistique de la performance du modèle MM5 pour le mois de juillet 2006

Plusieurs méthodes peuvent être utilisées afin d'évaluer la performance d'un modèle. Les données utilisées peuvent être issues de campagnes de mesures ou des réseaux de surveillance de la qualité de l'air. La résolution temporelle des données utilisées peuvent être horaires, journalières, mensuelles ou saisonnières. Enfin, la comparaison entre les données mesurées et les données modélisées peut être fait visuellement à l'aide de cartes 2D, de graphiques de dispersion, de séries temporelles et d'outils statistiques [Monteiro *et al.*, 2005; Sokhi *et al.*, 2006; San Jose *et al.*, 2007; van Loon *et al.*, 2007; Vautard *et al.*, 2007].

Dans notre cas, des cartes des champs de concentrations, des graphiques de dispersion, des séries temporelles et des outils statistiques sont employés afin d'évaluer objectivement la performance du modèle météorologique MM5 et du modèle de chimie-transport CHIMERE. Les données moyennes et maximales horaires de plusieurs stations réparties sur la région NPDC sont utilisées pour l'évaluation. Elles sont issues du réseau Atmo-NPDC pour les concentrations de polluants et de Météo-France pour les données météorologiques. Ce paragraphe s'intéresse à l'évaluation du modèle MM5 pour la période du mois de juillet 2006. Les données mesurées proviennent des stations Météo-France de Dunkerque et de Lille. Les outils statistiques utilisés dans ce travail sont décrits ci-dessous :

• *Le Coefficient Corrélation (CC) :*

$$CC = \frac{\sum_{j=1}^m \sum_{i=1}^n y_{o,i,j} y_{p,i,j}}{\sqrt{\sum_{j=1}^m \sum_{i=1}^n y_{o,i,j}^2 \sum_{j=1}^m \sum_{i=1}^n y_{p,i,j}^2}} \quad \text{Eq. (4.1)}$$

$$y_{p,i,j} = x_{o,i,j} - \overline{x_p}$$

$$y_{o,i,j} = x_{o,i,j} - \overline{x_o}$$

$\overline{x_p}$  et  $\overline{x_o}$  sont respectivement les moyennes des concentrations calculées et observées.

• *Normalized Mean Square Error (NMSE) :*

$$NMSE = \frac{\overline{(C_p - C_o)^2}}{\overline{C_p}^2} \quad \text{Eq. (4.2)}$$

- *l'Indice d'Agrément (IA)* :

$$IA = 1 - \frac{\sum_{i=1}^n |Cp - Co|}{\sum_{i=1}^n (|\overline{Cp} - Cp| + |\overline{Co} - Cp|)} \quad \text{Eq. (4.3)}$$

- *Le Biais Fractionnel (BF)* :

$$BF = \frac{\overline{Cp} - \overline{Co}}{0.5(\overline{Cp} + \overline{Co})} \quad \text{Eq. (4.4)}$$

- *L'écart type ( $\sigma$ )* :

$$\sigma = \sqrt{\frac{1}{n} \sum_{i=1}^N (Cp - \overline{Co})^2} \quad \text{Eq. (4.5)}$$

où  $n$  est le nombre de valeurs utilisées pour le calcul,  $Cp$  est la concentration calculée, et  $Co$  a concentration observée. L'écart type des concentrations mesurées et calculées est noté  $\sigma_m$  et  $\sigma_c$  respectivement.

Les indices  $CC$ ,  $NMSE$  et  $IA$  renseignent sur le degré de corrélation entre les valeurs calculées et mesurées. Ils ont été calculés pour chaque période d'étude.  $IA$  varie entre 0 et 1. Le  $BF$  rend compte de l'accord entre la moyenne de l'ensemble des valeurs calculées et mesurées. L'accord parfait entre les données calculées et observées est atteint lorsque  $IA = 1$  et  $NMSE = BF = 0$ .

Les quatre indices statistiques ont été calculés avec le domaine NPDC2Fin pour les stations de Dunkerque et de Lille-Lesquin. Quatre variables météorologiques sont évaluées : la température et la vitesse du vent en moyenne horaire, l'humidité relative et les précipitations. L'analyse est effectuée pour l'ensemble du mois de juillet 2006 et les résultats sont présentés dans le Tableau 4.6 pour Lille et le Tableau 4.7 pour Dunkerque. Les graphiques des différentes variables mesurées et calculées sont disponibles en Annexe D-1 pour la ville de Lille et en Annexe D-2 pour la ville de Dunkerque.

L'analyse des indices statistiques pour la station de Lesquin montre que le modèle MM5 reproduit très correctement la température moyenne horaire ( $CC = 0,99$  et  $IA = 0,99$ ) et l'humidité relative ( $CC = 0,98$  et  $IA = 0,99$ ) pour le mois de juillet 2006. Les températures calculées surestiment très légèrement celles mesurées ( $BF = 0,04$ ) alors que l'humidité relative est légèrement sous-estimée ( $BF = -0,09$ ) tout en étant de bonne qualité. La vitesse du vent est correctement reproduite ( $CC = 0,81$ ) mais les maxima sont en général sous-estimés ( $BF = -0,25$ ). Quand aux précipitations, elles sont sous-



estimées (3 à 6 mm) et parfois non représentées ce qui aurait tendance à engendrer une surestimation des polluants lors du passage des fronts.

**Tableau 4.6 : Indices statistiques calculés pour la température, la vitesse du vent, l'humidité relative et les précipitations avec le domaine NPDC2Fin à la station de Lille-Lesquin pour le mois de juillet 2006 ( $n = 720$ ).**

Variabes	<i>CC</i>	<i>NMSE</i>	<i>IA</i>	<i>BF</i>
Température	0,99	0,00	0,99	0,04
Vitesse du vent	0,81	0,65	0,87	-0,25
Humidité relative	0,98	0,03	0,99	-0,09
Précipitations	0,64	8,80	0,50	-1,50

De manière identique, au niveau de Dunkerque, les variables température ( $CC = 0,99$ ) et humidité relative ( $CC = 0,98$ ) sont très bien représentées. On note que la simulation de la vitesse du vent est meilleure à Dunkerque ( $CC = 0,93$ ). Les maxima moyens horaires (09/07 et 14/07) sont cependant sous-estimés de 5 m/s ce qui explique le *BF* négatif ( $BF = -0,21$ ). La principale différence avec la station de Lille concerne la modélisation des précipitations qui à l'inverse de Lille, sont surestimées (5 à 8 mm) à Dunkerque ( $BF = 1,01$ ). Les systèmes frontaux pluvieux bien marqué sont correctement reproduits, pour les autres, MM5 représente assez difficilement la pénétration des zones de pluies à l'intérieur des terres.

**Tableau 4.7 : Indices statistiques calculés pour la température, la vitesse du vent, l'humidité relative et les précipitations à la station de Dunkerque pour le mois de juillet 2006 ( $n = 720$ ).**

Variabes	<i>CC</i>	<i>NMSE</i>	<i>IA</i>	<i>BF</i>
Température	0,99	0,00	0,99	0,00
Vitesse du vent	0,93	0,25	0,95	-0,21
Humidité relative	0,98	0,03	0,88	-0,08
Précipitations	0,00	1,20	0,00	1,01

#### 4.1.4. Reproduction du profil thermique vertical

La reproduction correcte des profils verticaux est cruciale car elle détermine la stabilité de la basse troposphère et par conséquent l'intensité de la diffusion turbulente verticale. Afin d'estimer la capacité du modèle MM5 à reproduire les profils verticaux des températures au niveau de la côte, deux profils verticaux représentatifs des conditions estivales nocturnes (00h UTC) et diurnes (12h UTC) ont été extraits à Dunkerque pour la journée du 01/07/06. Ils ont été comparés aux profils verticaux de températures mesurées à Herstmonceux<sup>1</sup> (50,53°N ; 0.20°E), une localité proche de la côte sud-est de l'Angleterre (Figure 4.5 et Figure 4.6). Aucun radiosondage n'est effectué en routine à Dunkerque. Herstmonceux est la station la plus proche géographiquement de Dunkerque et est située à proximité de la Manche. Nous constatons que le modèle MM5 reproduit très correctement la tendance des profils

<sup>1</sup> <http://weather.uwyo.edu/upperair/sounding.html>

thermiques verticaux de la température sèche ( $T$ ) (en rouge) et de la température du point de rosé ( $Td$ ) (en bleu) à Dunkerque.

Les températures au niveau du sol sont identiques à 00h UTC (15°C) et un peu sous-estimées (de 4°C) à 12h UTC. L'allure du profil vertical de la température sèche ainsi que les niveaux des différentes inversions thermiques (à 950 hPa et 200 hPa) sont correctement reproduits par MM5 à 00h UTC.

En journée à 12h UTC, le niveau des inversions mesurées à 700 hPa et 200 hPa est légèrement décalé par rapport à ceux modélisés (800 hPa et 230 hPa respectivement). L'inversion vers 950 hPa est quant à elle correctement reproduite.

L'allure de la courbe de la température du point de rosé ( $Td$ ) est correctement reproduite dans les deux cas. En revanche, les fortes variations de  $Td$  observées entre 800 et 400 hPa ne sont pas correctement décrites par MM5.

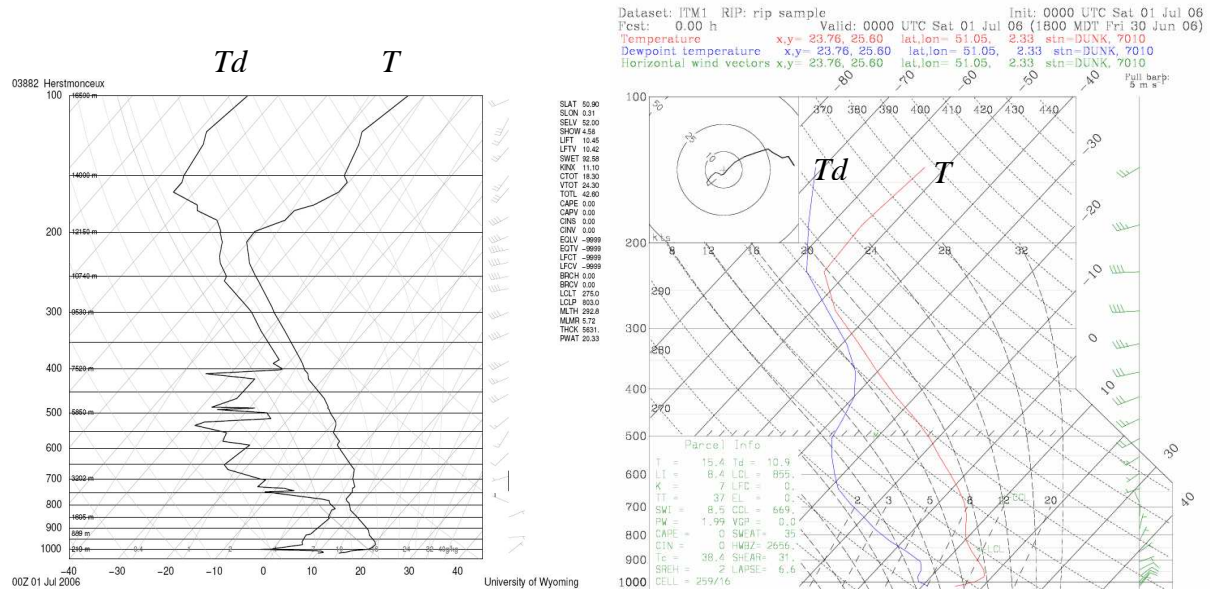


Figure 4.5 : Emmagrammes issus de données mesurées pour la station de Herstmonceux et calculées par MM5 pour Dunkerque (51.03°N/2.37°E) le 01/07/06 à 00h UTC.

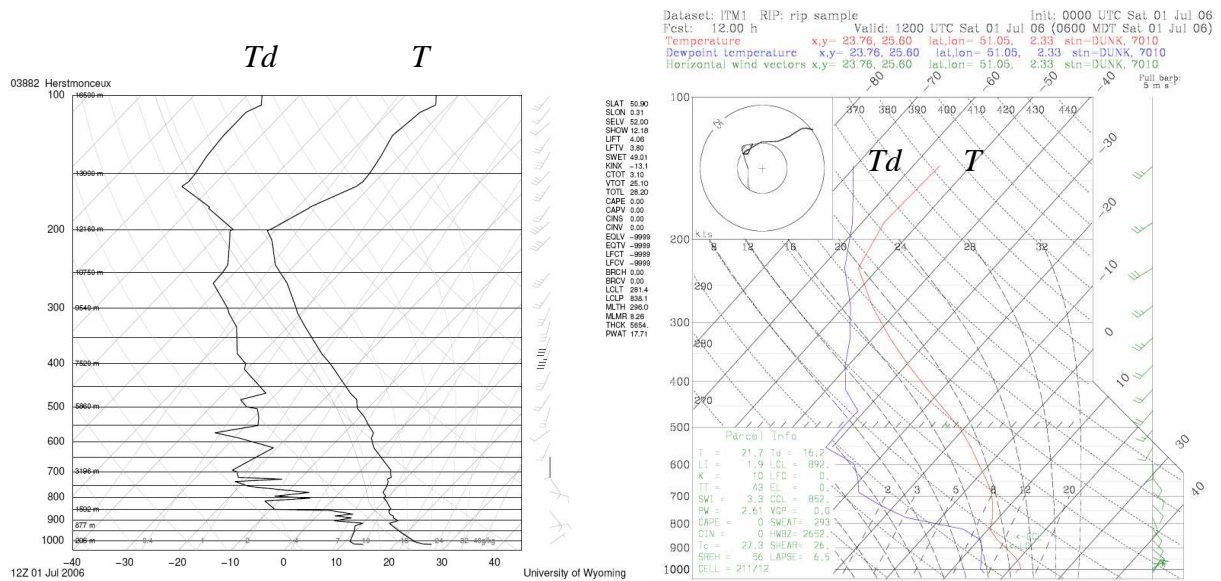


Figure 4.6 : Emmagrammes issus de données mesurées pour la station de Herstmonceux et calculées par MM5 pour Dunkerque (51.03°N/2.37°E) le 01/07/06 à 12h UTC.

#### 4.1.5. Reproduction de la brise de mer par le modèle MM5

Selon l'analyse synoptique du 03/07/06 à 00h UTC (Figure 4.7) la journée du 03/07 est propice au développement d'une brise de mer sur la région côtière du NPDC (période ensoleillée et présence d'un marais barométrique). La Figure 4.8 confirme le développement d'une brise de mer avec un vent virant du sud-est au nord-est en fin de matinée et une légère baisse de température vers 09h UTC liée au passage du front de brise, suivie d'une remontée des températures. Une augmentation de la vitesse du vent de 2 à 8 m/s est aussi notée.

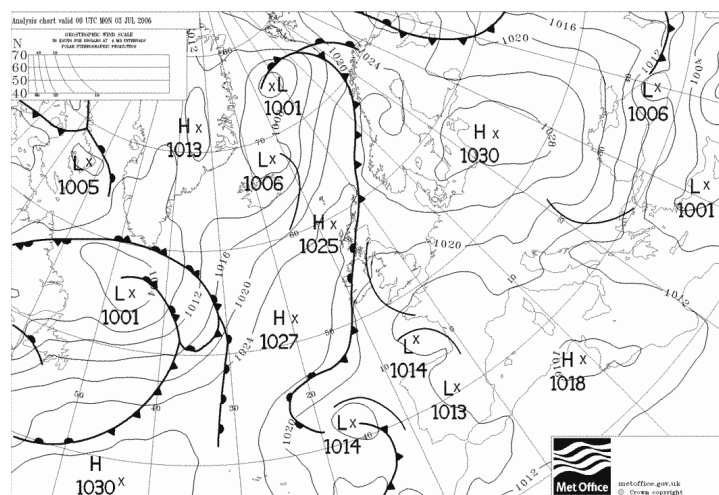
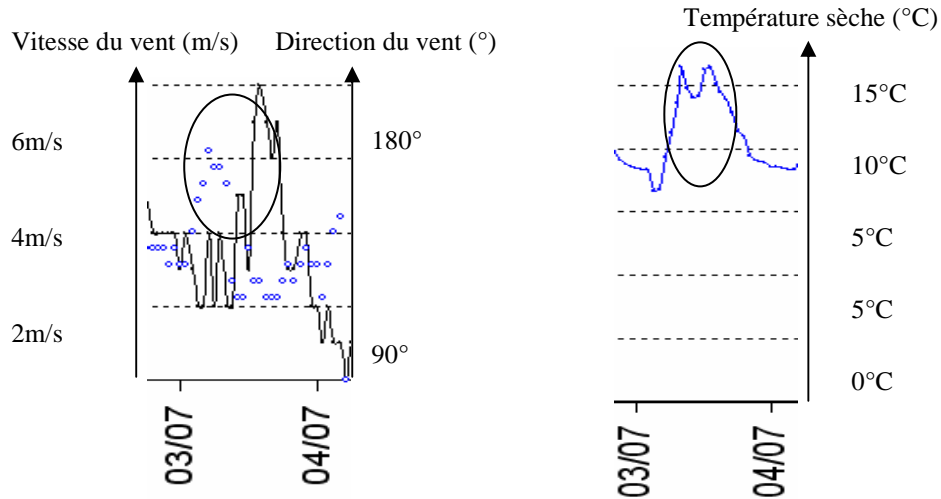


Figure 4.7 : Analyse synoptique (fronts froids, fronts chauds, maxima et minima de la pression au niveau de la mer) du 03/07/06 à 00h UTC (MetOffice<sup>1</sup>).

<sup>1</sup> <http://www.metoffice.gov.uk>



**Figure 4.8 : Profils de la vitesse (courbe noire) et direction du vent (points bleus) (à gauche) et de la température sèche (à droite) mesurés pour la journée du 03/07/06.**

L'analyse des coupes verticales calculées par MM5 (Figure 4.9) permet de constater que le modèle reproduit correctement le développement de la brise de mer au niveau de Dunkerque dans l'après-midi du 03/07/06 pour le DOM2 (9 x 9 km). La coupe est orientée selon un axe nord-ouest/sud-est et le point rouge localise la ville de Dunkerque. La brise est peu développée à 12h UTC (zone A de la Figure 4.9) alors qu'à 16h UTC la pénétration du front de brise est d'environ 10 km dans les terres (zone B de la Figure 4.9). On note que la propagation du front de brise s'accompagne d'un abaissement des isothermes de la température potentielle ce qui traduit la reproduction par le modèle du rafraîchissement de la masse d'air occasionné par le passage du front de brise. Enfin, l'établissement de la cellule de brise de mer s'accompagne d'une augmentation significative du Potentiel de Vorticité (PV) de 0,25 à 2 unités PV (échelle de gris sur la Figure 4.9). Le PV renseigne sur le caractère tourbillonnaire d'une parcelle d'air.

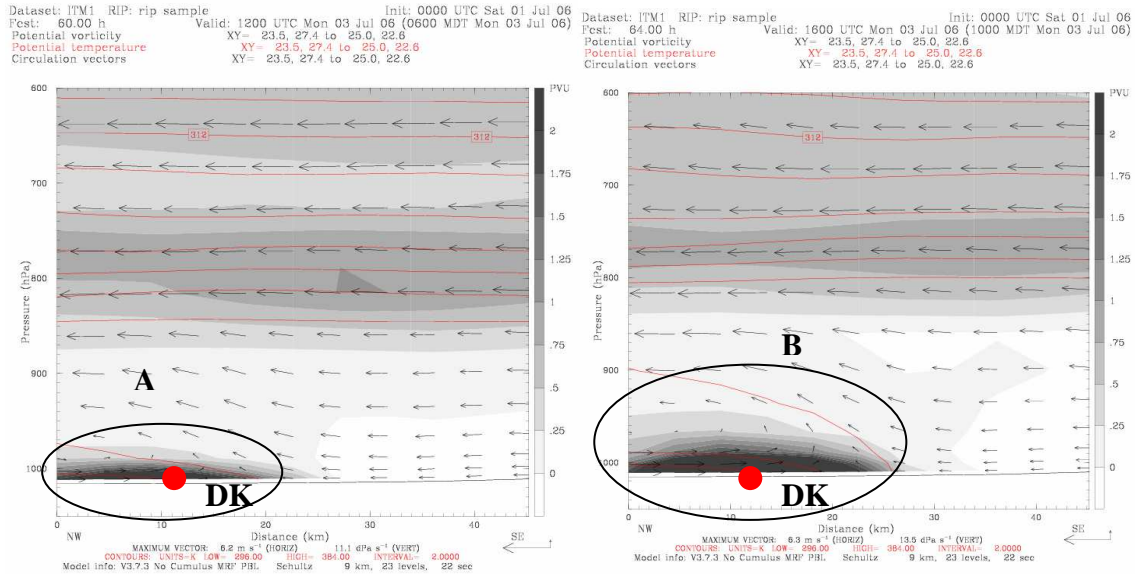


Figure 4.9 : Coupes verticales et vecteurs vents calculés le 03/07/06 à 12h UTC (droite) et à 16h UTC (gauche) pour le DOM2.

#### 4.1.6. Analyse des concentrations en ozone et en PM<sub>10</sub> calculées.

Au cours de cette étude de cas, nous comparons les données calculées par le système de modélisation issues de la première couche verticale (40 m d'épaisseur) avec les données au sol du réseau de mesure Atmo-NPDC. Les données mesurées peuvent également être issues d'instruments de télédétection active (LIDAR<sup>1</sup> ou SODAR<sup>2</sup>) ou passive (satellite). L'avantage de ces instruments est d'accéder à la concentration des polluants sur l'ensemble de la colonne troposphérique contrairement aux données des réseaux qui effectuent leurs mesures au niveau du sol.

##### 4.1.6.1. Localisation géographique des stations de mesures Atmo-NPDC

Les séries temporelles des concentrations en ozone mesurées et calculées ont été analysées pour huit stations à proximité de Lille et quatre stations de la zone de Dunkerque. La Figure 4.10 permet de localiser les différentes stations du réseau Atmo-NPDC (périurbaines, urbaines, trafic, industrielles et rurales). On constate que les stations sont situées préférentiellement au niveau des grandes agglomérations (Lille, Dunkerque, Boulogne, Valenciennes, Lens, Béthune, Douai). Peu de stations sont présentes en zones rurales (Pas-de-Calais). La modélisation apparaît comme une solution afin de disposer de données dans les zones dépourvues d'appareils de mesures. La position géographique de chaque station de mesures du réseau Atmo-NPDC est référencée dans l'Annexe D-3 de ce mémoire.

Les données calculées par MM5-CHIMERE sont issues du domaine NPDC2Fin. La technique du *nesting* n'est pas utilisée lors de cette première application. Les données initiales et aux limites du

<sup>1</sup> LIght Detection And Ranging

<sup>2</sup> SOund Detection And Ranging

domaine proviennent des moyennes mensuelles des modèles globaux. Les Figures 4.11 à 4.14 représentent l'évolution des concentrations en  $O_3$  et  $PM_{10}$  pour des stations périurbaines de Lille et de Dunkerque, en rouge avec le cadastre EMEP et en bleu avec le cadastre régional NPDC durant les mois de juin-juillet 2006. Les données utilisant le cadastre régional sont disponibles du 01/06/06 au 19/07/06. L'absence de lignes continues pour la station de Gravelines (Figure 4.12) et de Salomé (Figures 4.13) est liée à une absence de données mesurées au niveau de la période.

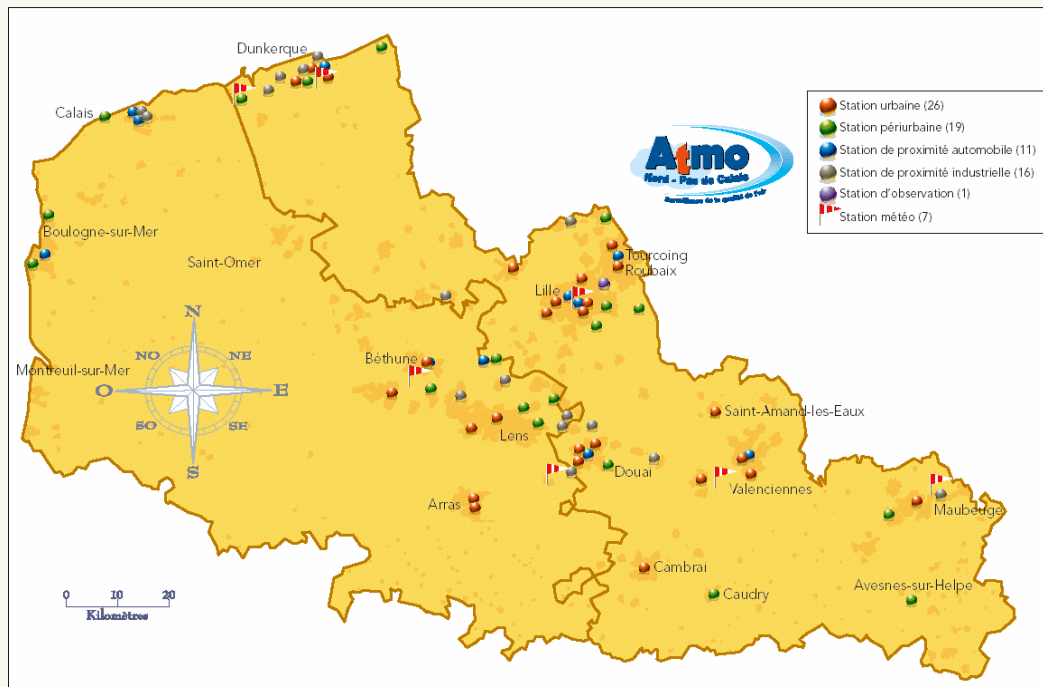


Figure 4.10 : Localisation des différentes stations du réseau Atmo-NPDC.

#### 4.1.6.2. Analyse de l'ozone

La Figure 4.11 et la Figure 4.12 présentent l'évolution temporelle de la concentration en ozone pour une station périurbaine (Lesquin) proche de Lille (3,11°E ; 50,59°N) et périurbaine côtière (Graveline) près de Dunkerque (2,14°E ; 50,98°N). La ligne rouge représente la limite législative de recommandation et d'information au public ( $180 \mu\text{g}/\text{m}^3$ ). L'étude comparative de l'ensemble des profils temporels des stations Lilloises et côtières (Dunkerque-Boulogne) permet d'affirmer que ces deux stations sont représentatives de la tendance générale des concentrations d'ozone mesurées par les stations périurbaines de ces deux villes en période estivale.

Globalement, MM5-CHIMERE reproduit très correctement le cycle journalier de l'ozone (minima la nuit, maxima en milieu d'après-midi). Les concentrations maximales journalières des pics les plus intenses ( $> 120 \mu\text{g}/\text{m}^3$ ) sont en revanche sous-estimées (par exemple du 16/07 au 20/07). La diminution de la concentration en  $O_3$  est liée au lessivage causé par le passage des fronts froids. Cette diminution est bien représentée par le système de modélisation mais en générale de manière pas assez marquée (14/06, 26/06 et 07/07). Peu de différence est à noter entre l'utilisation du cadastre EMEP et régional sur la reproduction des maxima journaliers. A Dunkerque, les minima en ozone sont

surestimés de 20 à 60  $\mu\text{g}/\text{m}^3$  durant la période du 5 au 13 juillet 2006 dans les deux cas. L'influence des réactions de titration de l'ozone ( $\text{NO} + \text{O}_3 \rightarrow \text{NO}_2 + \text{O}_2$  et  $\text{NO}_2 + \text{O}_3 \rightarrow \text{NO}_3 + \text{O}_2$ ) sur la diminution de l'ozone en période nocturne principalement semble donc être sous-estimée.

#### 4.1.6.3. Analyse des $\text{PM}_{10}$

Les séries temporelles des concentrations en  $\text{PM}_{10}$  mesurées et calculées ont été analysées pour 6 stations à proximité de Lille et pour 11 stations de la zone de Dunkerque.

De part la grande variabilité temporelle des concentrations de particules, il est délicat de sélectionner des stations représentatives pour les  $\text{PM}_{10}$ . Les Figures 4.13 et 4.14 détaillent l'évolution temporelle de la concentration en  $\text{PM}_{10}$  pour une station périurbaine de Lille (Salomé) (2,84°E ; 50,53°N) et de Dunkerque (Gravelines) (2,14°E ; 50,98°N). La ligne représente la limite législative de concentration (50  $\mu\text{g}/\text{m}^3$ ) à ne pas dépasser plus de 35 fois par an. Après comparaison des différents profils de concentrations moyennes horaires, ces stations sont sélectionnées comme représentant la tendance de l'évolution des concentrations en  $\text{PM}_{10}$ , des zones périurbaines Lilloise et Dunkerquoise en période estivale. Afin d'évaluer le comportement du système MM5-CHIMERE, il sera nécessaire dans de prochains travaux de réaliser une étude similaire en période hivernale, au cours desquelles les concentrations en particules sont souvent plus élevées qu'en été.

Au niveau de la station Lilloise, le système reproduit assez bien la tendance des concentrations en  $\text{PM}_{10}$  pour l'ensemble de la période juin-juillet 2006 avec l'utilisation du cadastre EMEP. Certains maxima sont correctement reproduits (les 1 et 15/07 en début de nuit) avec le cadastre EMEP ou parfois surestimés (les 8, 15 et 16 juillet) avec le cadastre régional. Globalement les deux cadastres ont tendance à sous-estimer les mesures (10  $\mu\text{g}/\text{m}^3$ ), excepté à Dunkerque en fin de période (du 15 au 19/07) durant laquelle le cadastre régional surestime plusieurs maxima (de 10 à 30  $\mu\text{g}/\text{m}^3$ ).

Les concentrations moyennes horaires en  $\text{PM}_{10}$  mesurées sur la zone industrielle de Dunkerque sont supérieures de 10  $\mu\text{g}/\text{m}^3$  en comparaison de celles observées sur la région Lilloise. La forte industrialisation de la zone engendre une augmentation de l'intensité et de la fréquence des pics de pollutions particulières. Le système sous-estime systématiquement de 10  $\mu\text{g}/\text{m}^3$  en moyenne les concentrations en  $\text{PM}_{10}$  que ce soit avec le cadastre EMEP ou le cadastre régional. Les maxima journaliers sont partiellement reproduits ou sous-estimés à Dunkerque par le système.

Les Figures 4.15 à 4.18 représentent les différences entre les concentrations calculées avec le cadastre régional et celles calculées avec EMEP à Lille et au niveau de la côte pour l'ozone et les  $\text{PM}_{10}$ . La Figure 4.15 permet de confirmer le peu de différence induit par l'utilisation des deux cadastres sur les concentrations en  $\text{O}_3$ . A Lille, lors de l'utilisation du cadastre EMEP les maxima journaliers sont supérieurs de 7  $\mu\text{g}/\text{m}^3$  en moyenne et les minima journaliers sont inférieurs de 10  $\mu\text{g}/\text{m}^3$  en moyenne en comparaison de ceux calculés avec le cadastre régional. Au niveau de la côte à Dunkerque (Figure 4.16)

les minima du cadastre régional sont inférieurs de  $40 \mu\text{g}/\text{m}^3$  en moyenne à ceux issues du cadastre EMEP dû à la titration plus efficace avec le cadastre régional.

Concernant les  $\text{PM}_{10}$ , à Lille, le biais est positif ( $5 \mu\text{g}/\text{m}^3$  en moyenne) durant le mois de juin puis négatif durant le mois de juillet ( $-10 \mu\text{g}/\text{m}^3$ ) (Figure 4.17 et Figure 4.18). Au niveau de Dunkerque, le biais est en moyenne positif et varie fortement entre 10 et  $50 \mu\text{g}/\text{m}^3$ . On note un pic surestimé lors de l'utilisation de EMEP alors que le cadastre régional ne le reproduit pas (biais largement négatif), le 01/07/06.

La version du cadastre régional bien que possédant une meilleure résolution (voir chapitre 2) n'apporte pas d'amélioration significative. La version 2005 (disponible depuis 2008) du cadastre régional est en cours d'installation au laboratoire PC2A. Ceci permettra très probablement d'améliorer les performances du système MM5-CHIMERE notamment pour la pollution particulaire.



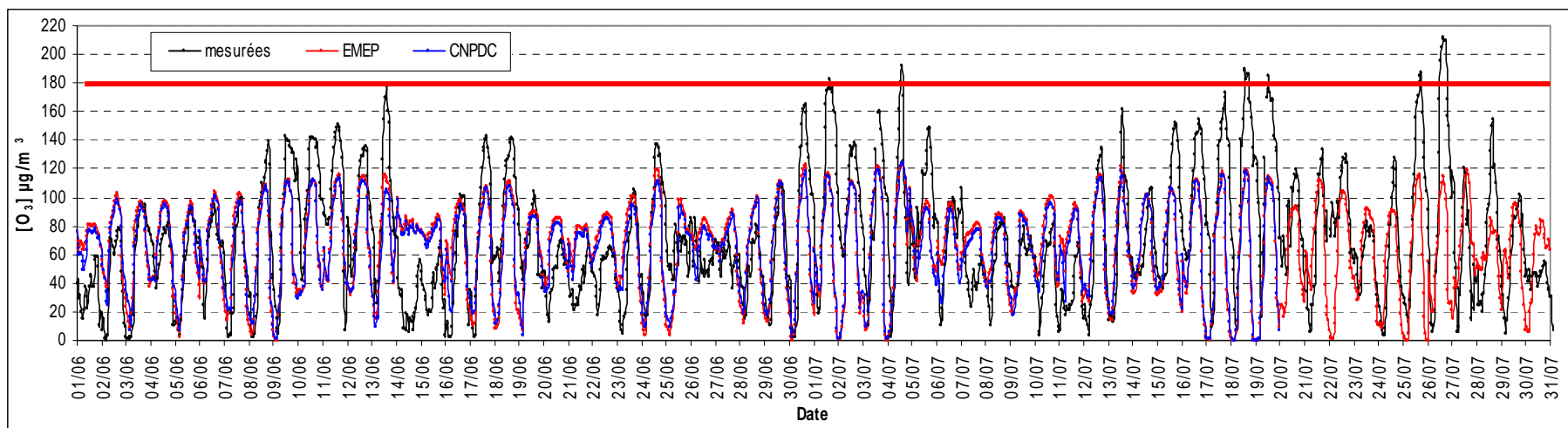


Figure 4.11 : Evolution de la concentration en ozone mesurée et calculée avec le cadastre EMEP (rouge) et régional (bleu) durant la période juin-juillet 2006 à la station de Lesquin (périurbaine) (3,11°E ; 50,59°N).

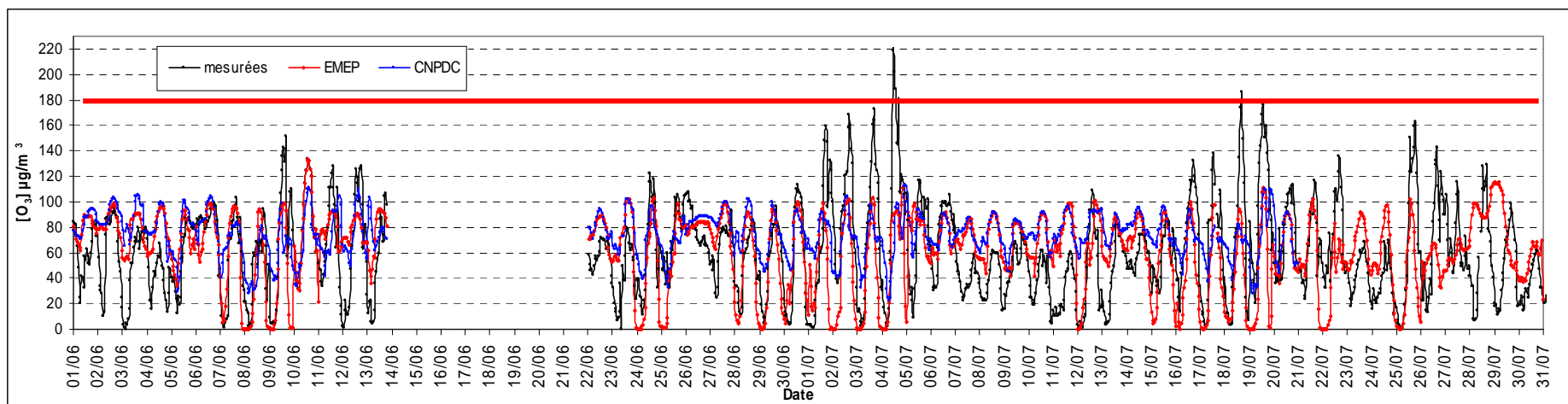


Figure 4.12: Evolution de la concentration en ozone mesurée et calculée avec le cadastre EMEP (rouge) et régional (bleu) durant la période juin-juillet 2006 à Gravelines près de Dunkerque (périurbaine) (2,14°E ; 50,98°N).

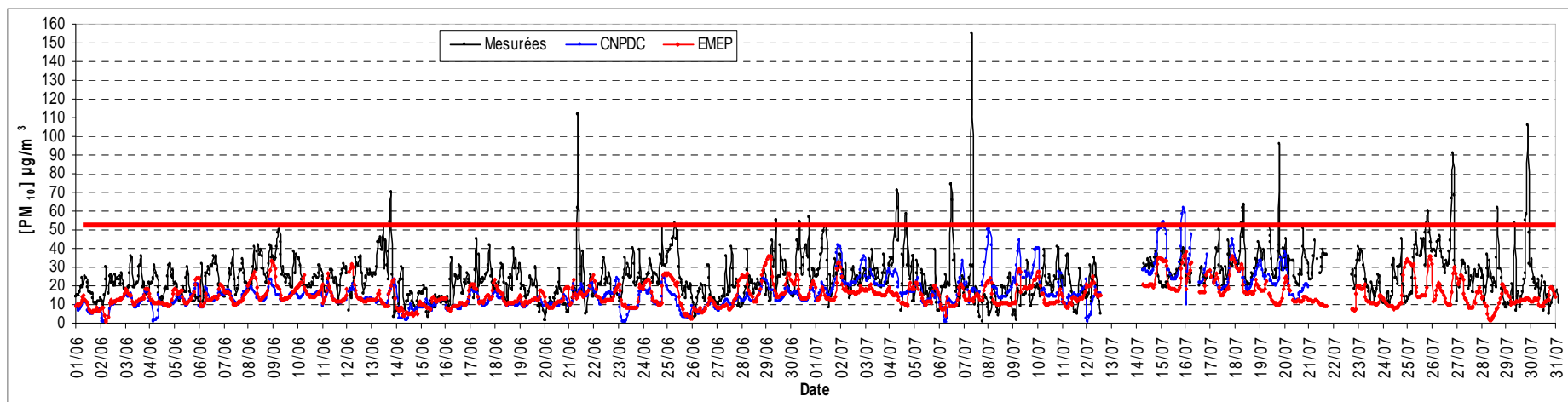


Figure 4.13 : Evolution de la concentration en PM<sub>10</sub> mesurée et calculée avec le cadastre EMEP (rouge) et régional (bleu) durant la période juin-juillet 2006 à la station de Salomé (périurbain) (2,84°E ; 50,53°N).

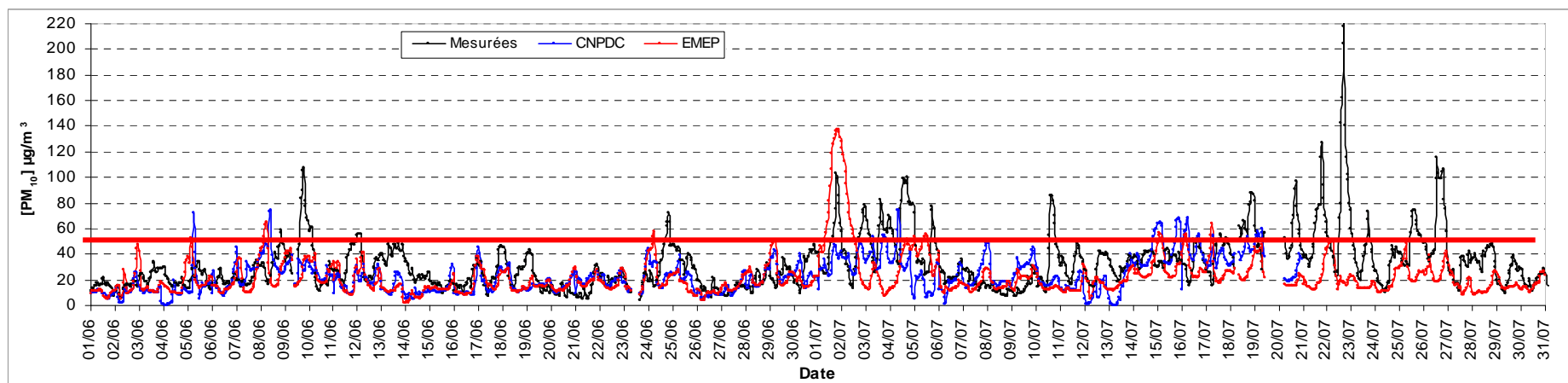


Figure 4.14 : Evolution de la concentration en PM<sub>10</sub> mesurée et calculée avec le cadastre EMEP (rouge) et régional (bleu) durant la période juin-juillet 2006 à Gravelines près de Dunkerque (périurbaine) (2,14°E ; 50,98°N).

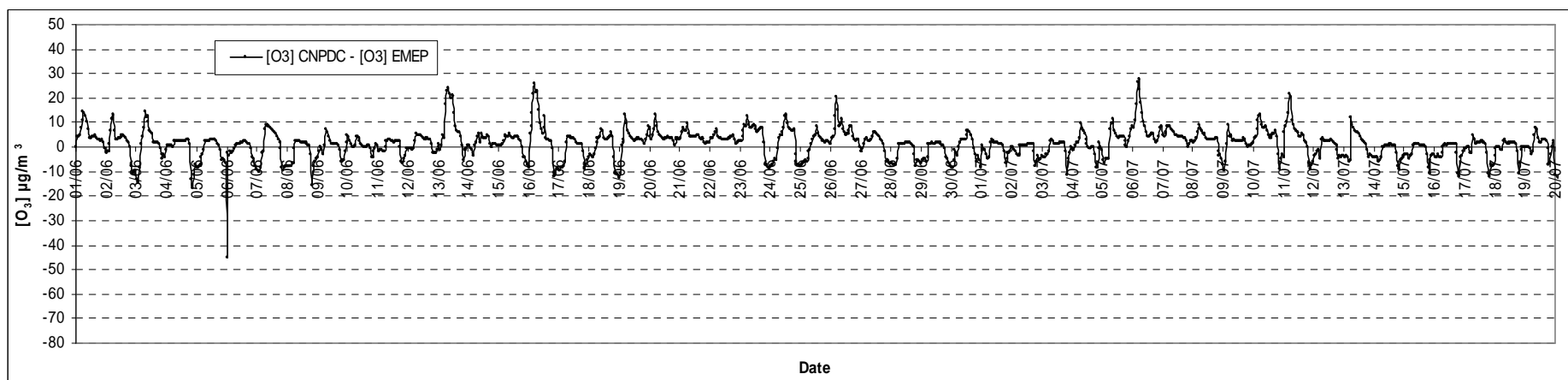


Figure 4.15 : Différence entre les concentrations en ozone calculées avec le cadastre régional et celles calculées avec EMEP pour la station de Lesquin.

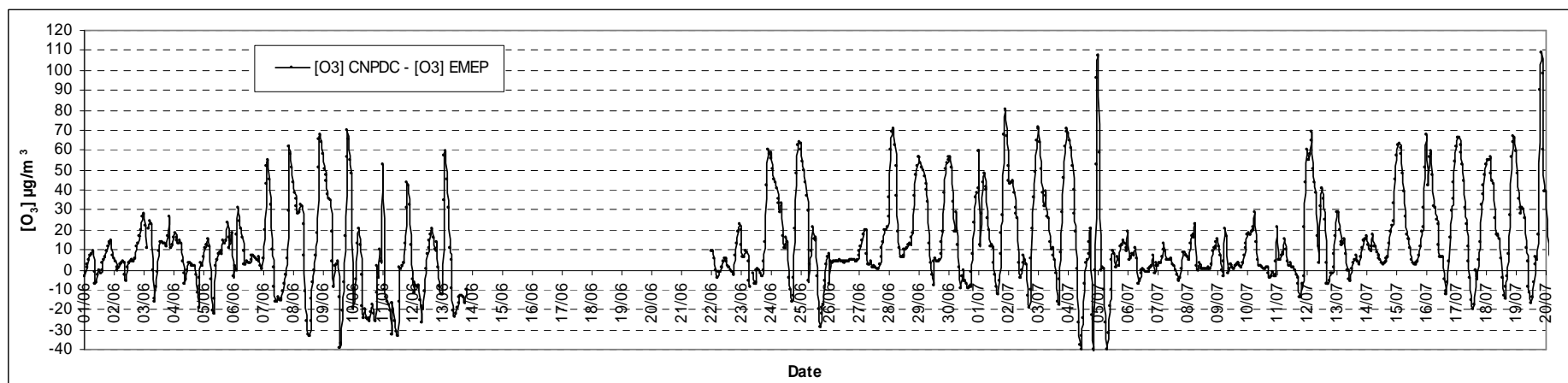


Figure 4.16 : Différence entre les concentrations en ozone calculées avec le cadastre régional et celles calculées avec EMEP pour la station de Gravelines.

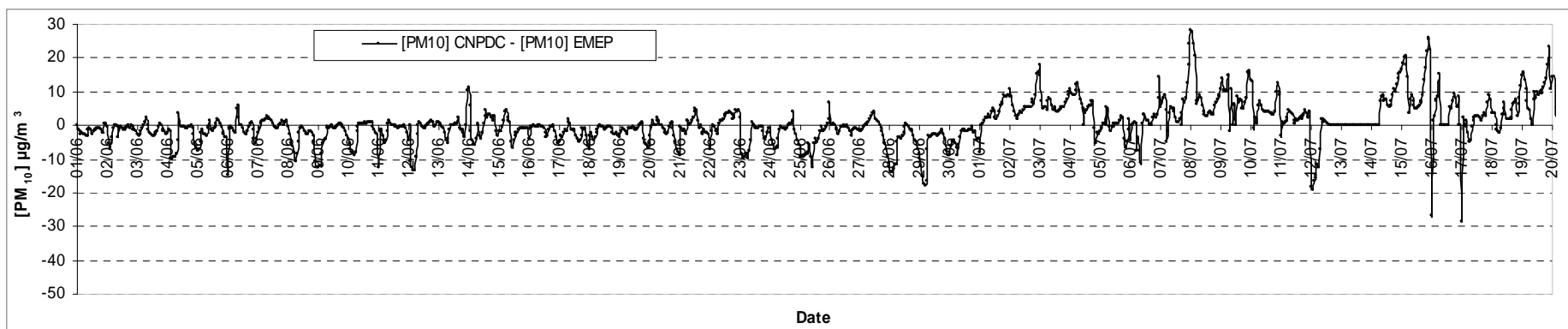


Figure 4.17 : Différence entre les concentrations en  $PM_{10}$  calculées avec le cadastre régional et celles calculées avec EMEP pour la station de Salomé.

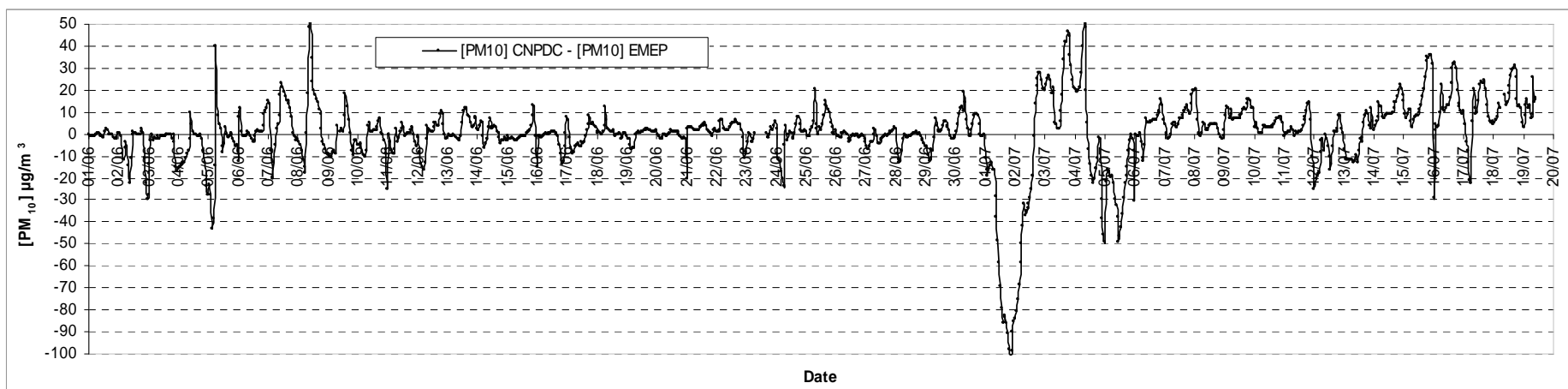


Figure 4.18 : Différence entre les concentrations en  $PM_{10}$  calculées avec le cadastre régional et celles calculées avec EMEP pour la station de Gravelines.

#### 4.1.6.4. Etudes des niveaux de concentration en O<sub>3</sub> et en PM<sub>10</sub> en fonction des conditions météorologiques

La comparaison des données météorologiques (Météo-France) et des concentrations en O<sub>3</sub> et PM<sub>10</sub> mesurées (Atmo-NPDC) est effectuée pour le mois de juillet 2006. La température, la vitesse et direction du vent et l'humidité relative sont représentées en fonction de la concentration moyenne horaire en ozone (Figure 4.19) et en PM<sub>10</sub> (Figure 4.20) à Lille-Lesquin. De manière similaire, les trois variables météorologiques sont représentées en fonction des concentrations moyennes horaires en ozone (Figure 4.21) et en PM<sub>10</sub> (Figure 4.22) à Dunkerque-centre.

Pour l'ozone, à Lille, les périodes de fortes concentrations (> 140 µg/m<sup>3</sup>) ont lieu durant les périodes de hautes températures (périodes 1, 2 et 4) décrites dans le paragraphe 3.1.1. Les périodes intenses de pollution à l'ozone sont également associées à des vents continentaux d'est ou de nord-est. Leurs vitesses sont généralement faibles (< 6 m/s) durant ces trois périodes. Ces vents sont hypothétiquement à l'origine du transport d'ozone provenant des pays limitrophes à la région NPDC. La composante non-locale (apport extérieur à la région NPDC) en ozone par rapport à celle produite localement sera évaluée dans le paragraphe 4.2 de ce chapitre. L'humidité relative est fortement corrélée à la concentration en O<sub>3</sub>. Les fortes concentrations en O<sub>3</sub> sont observées pour des humidités relatives inférieures à 50 % et pour des vents majoritairement de direction est-ouest ce qui semble indiquer un apport extérieur d'origine continentale.

En ce qui concerne les PM<sub>10</sub>, aucune corrélation n'est observée entre l'évolution de la température ou de l'humidité et les concentrations en PM<sub>10</sub>. On observe que les concentrations les plus élevées en PM<sub>10</sub> sont observées pour les vents inférieurs à 6 m/s. On note que tout comme pour l'ozone, les vents d'est sont favorables à une augmentation des PM<sub>10</sub> ainsi que ceux en provenance du nord-ouest. L'influence de la zone de Dunkerque pourrait expliquer cette augmentation en PM<sub>10</sub> liée à des vents de nord-ouest. L'apport extérieur peut être assez conséquent en fonction de la nature chimique des particules (aérosols désertiques par exemple). Ce phénomène sera étudié dans le chapitre 5 de ce manuscrit.

L'analyse de la Figure 4.21 ne fait pas apparaître de corrélation marquée entre les différentes variables météorologiques et les concentrations en O<sub>3</sub> et en PM<sub>10</sub> au niveau de Dunkerque. On note que les concentrations maximales en ozone sont majoritairement observées pour des humidités relatives supérieures à celles observées pour Lille (60 - 80 %) et pour des températures légèrement inférieures à 25 °C, ce qui à la différence de Lille, ne correspond pas aux températures mesurées les plus élevées. Tout comme à Lille, les vents favorables à la pollution en ozone sont très majoritairement en provenance de l'est. Pour ce qui est de la vitesse du vent, ce sont les vents moyens (4 m/s) qui sont liés aux concentrations les plus fortes. Pour les PM<sub>10</sub> (Figure 4.22), ce sont pour des températures et des humidités relatives comprises entre 20 et 25 °C et 60 et 80 % respectivement pour lesquelles les

concentrations en ozone les plus fortes sont rencontrées. Il n'y a pas de tendance similaire concernant la vitesse du vent. Enfin, nous notons deux directions favorables à la pollution aux particules : le Sud-ouest et le nord-est. Les industries sont orientées selon un axe sud-ouest/nord-est. Ainsi en fonction de la position des stations de mesures, celles-ci sont plus ou moins influencées par les sources industrielles en fonction de la direction du vent. La pollution particulaire semble être majoritairement d'origine industrielle locale à Dunkerque.

En résumé, l'analyse faite ci-dessus permet de mettre en évidence l'influence de certains paramètres météorologiques sur les concentrations en ozone et en  $PM_{10}$  observées sur la région NPDC. A Lille, les concentrations en  $O_3$  les plus fortes, sont rencontrées lors de températures élevées (forte activité photochimique), des vents faibles (faible diffusion) et une atmosphère relativement sèche (non propice au dépôt humide). Pour la température, la tendance Lilloise est également observable à Dunkerque mais de manière beaucoup moins marquée. Pour ce qui est de l'humidité et de la vitesse du vent, aucune véritable corrélation n'est observée avec les concentrations en  $O_3$  et  $PM_{10}$ . Dans les deux cas les vents d'est sont favorables à l'augmentation des concentrations en ozone. La pollution particulaire semble moins dépendante des conditions de température et d'humidité. Toutefois, un vent faible (de nord-ouest pour Lille et nord-est ou sud-ouest pour Dunkerque) peu favorable à la dispersion de celle-ci engendre une augmentation des concentrations moyennes horaires mesurées dans ces deux villes.

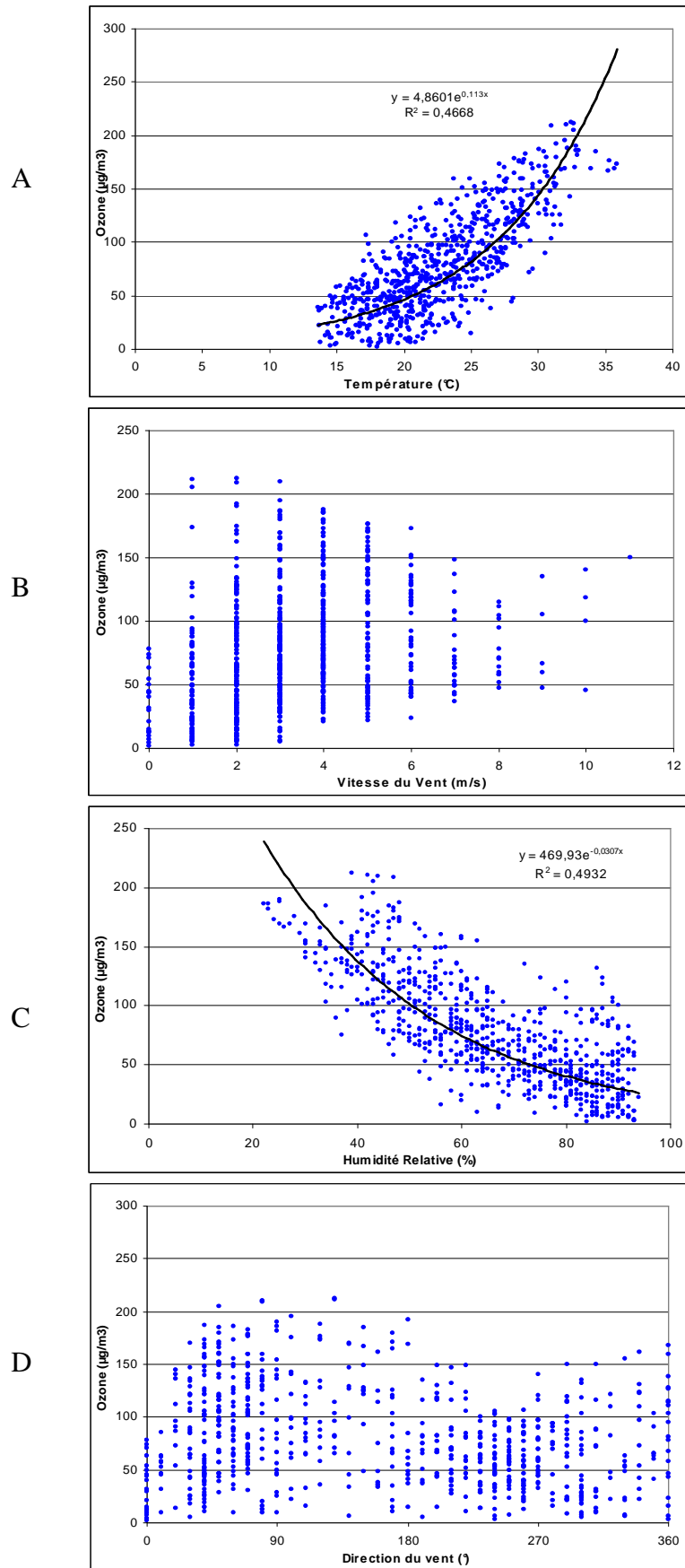


Figure 4.19 : Température (A), vitesse du vent (B), humidité relative (C) et direction du vent (D) mesurées en fonction de la concentration en ozone mesurée à Lille-Lesquin.

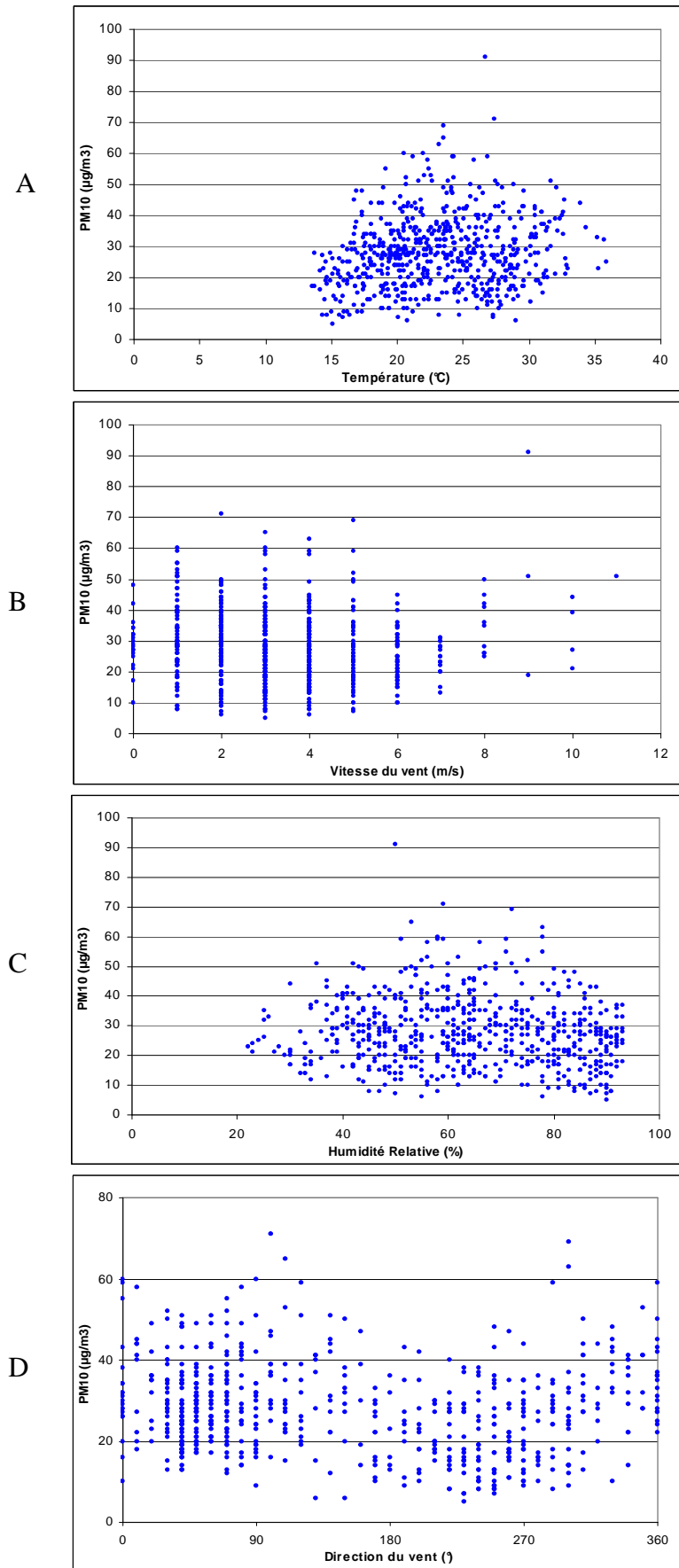


Figure 4.20 : Température (A), Vitesse du vent (B), humidité relative (C) et la direction du vent (D) mesurées en fonction de la concentration en  $PM_{10}$  mesurée à Lille-Lesquin.



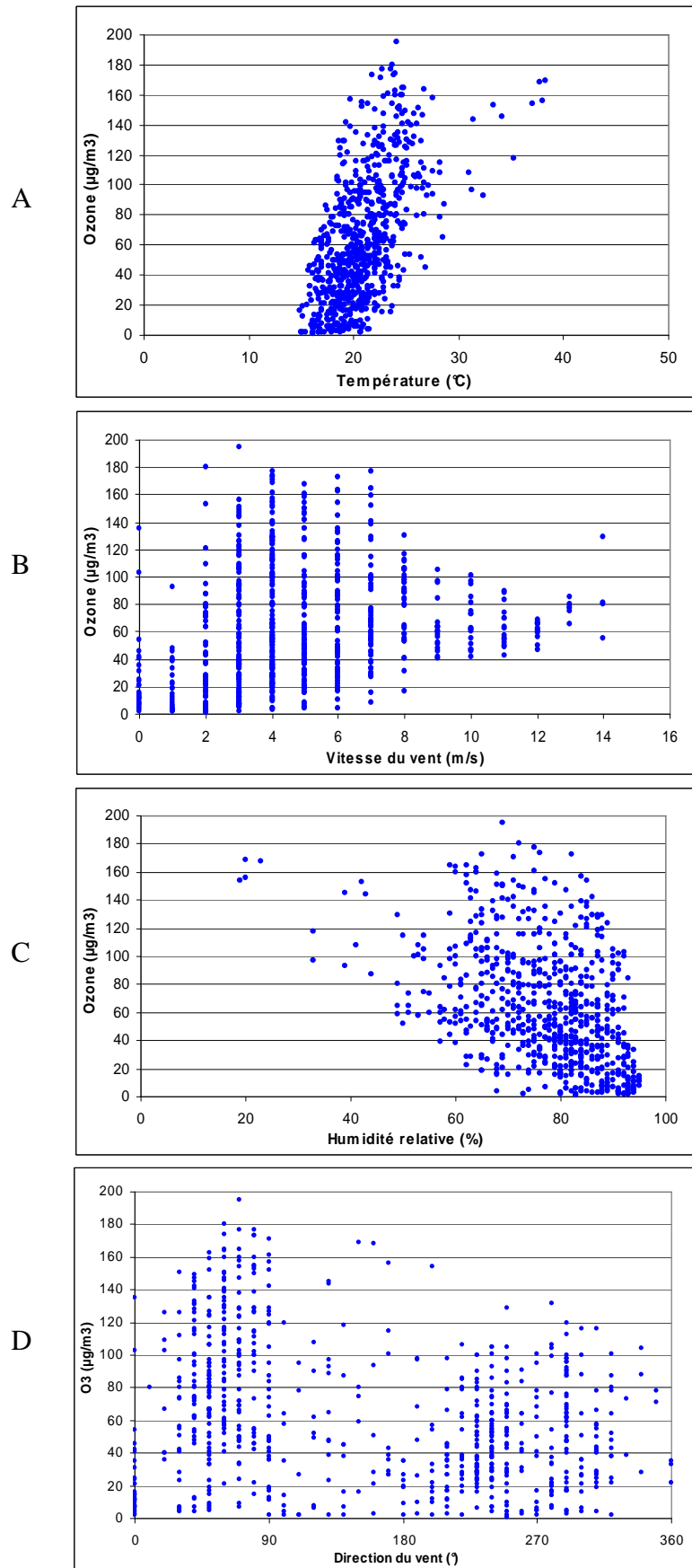


Figure 4.21 : Température (A), Vitesse du vent (B), humidité relative (C) et la direction du vent (D) mesurées en fonction de la concentration en ozone mesurée à Dunkerque.

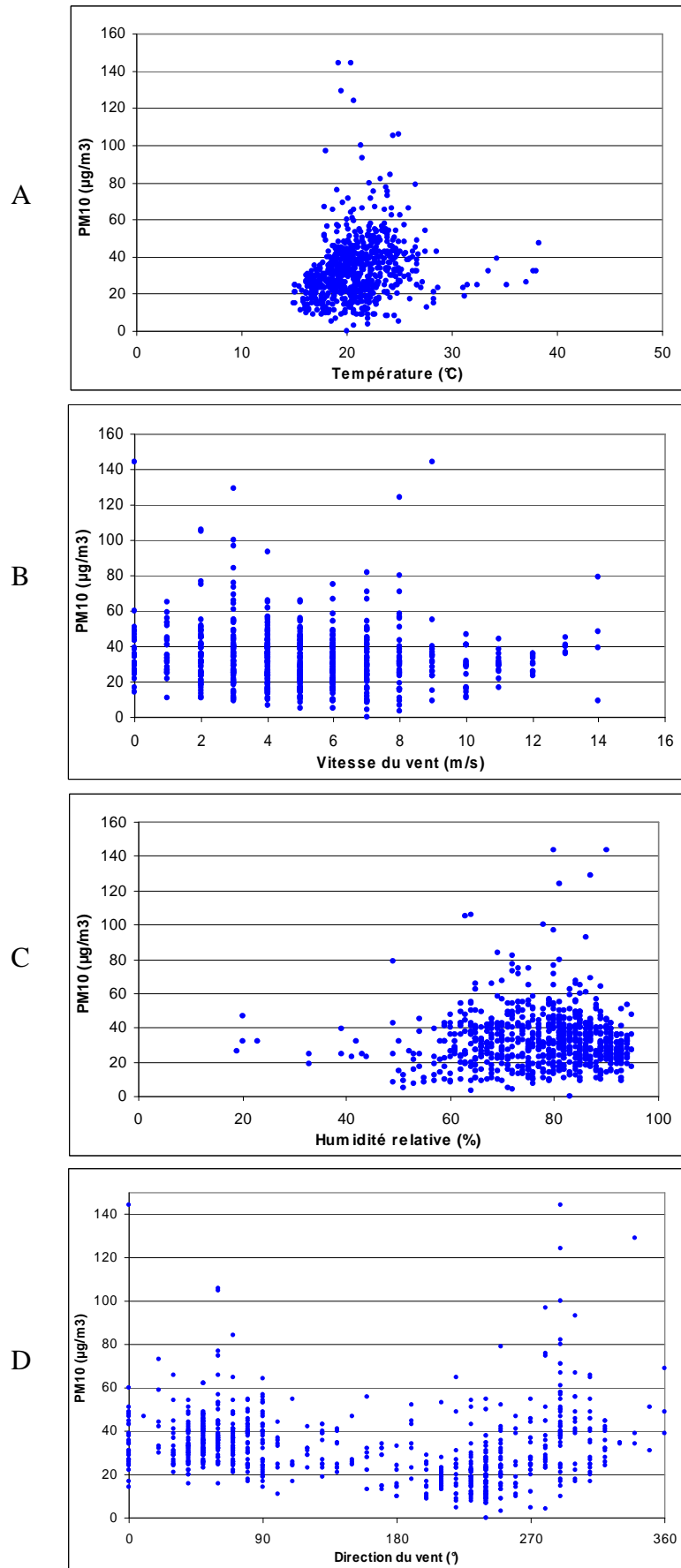
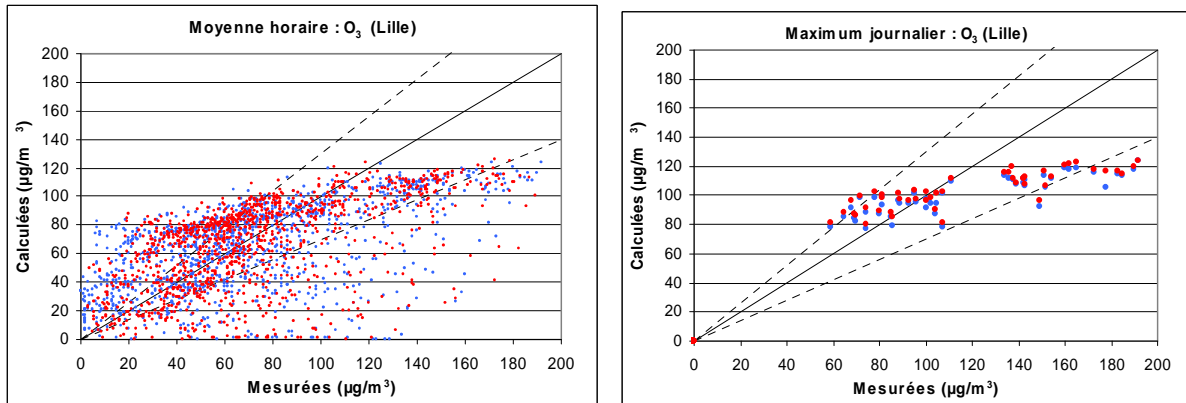


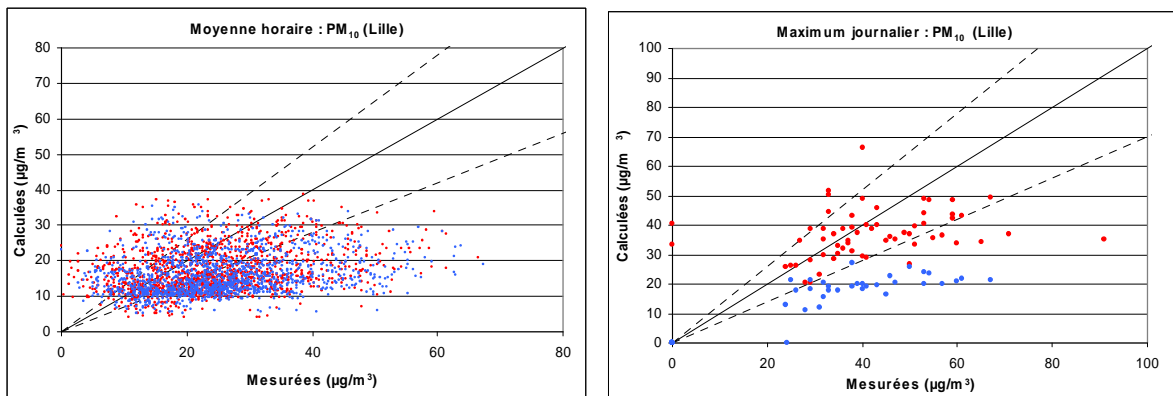
Figure 4.22 : Température (A), Vitesse du vent (B), humidité relative (C) et la direction du vent (D) mesurées en fonction de la concentration en  $\text{PM}_{10}$  mesurée à Dunkerque.

**4.1.6.5. Diagramme de dispersion (*Scatter Plots*) pour l’ozone et les  $PM_{10}$**

La Figure 4.23 et la Figure 4.24 représentent respectivement les concentrations moyennes horaires ( $n = 1200$ ) et journalières ( $n = 50$ ) en ozone et en  $PM_{10}$  calculées en fonction des concentrations mesurées à Lesquin, une station représentative des stations périurbaines de Lille pour la période du 01/06/06 au 20/07/06. La Figure 4.25 et la Figure 4.26 représentent respectivement les concentrations maximales horaires et journalières en ozone et en  $PM_{10}$  calculées en fonction des concentrations mesurées à Gravelines, une station représentative des stations périurbaines de Dunkerque. Les points rouges représentent les données calculées avec le cadastre EMEP et les points bleus avec le cadastre régional.



**Figure 4.23 : Concentrations calculées en fonction des concentrations mesurées en ozone pour une station périurbaine de Lille (Lesquin).**



**Figure 4.24 : Concentrations calculées en fonction des concentrations mesurées en  $PM_{10}$  pour une station périurbaine de Lille (Lesquin).**

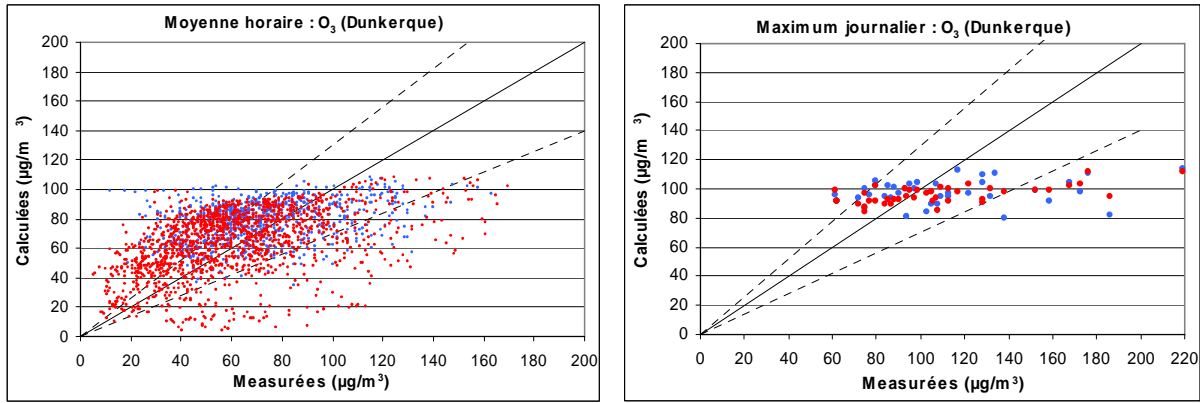


Figure 4.25 : Concentrations calculées en fonction des concentrations mesurées en ozone pour une station périurbaine de Dunkerque (Gravelines).

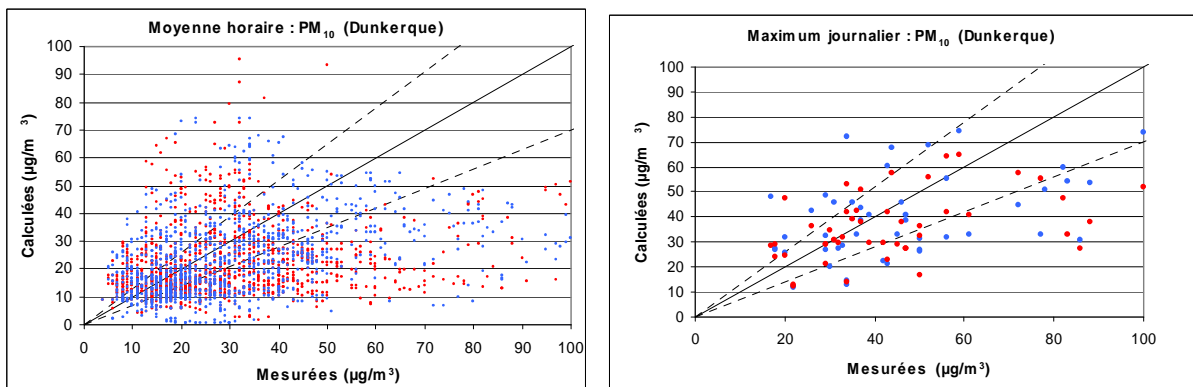


Figure 4.26 : Concentrations calculées en fonction des concentrations mesurées en PM<sub>10</sub> pour une station périurbaine de Dunkerque (Gravelines).

Pour les concentrations en O<sub>3</sub>, en moyenne, 60 % des valeurs mesurées sont comprises dans la zone  $\pm 30\%$  délimitée par les lignes discontinues. La fourchette de  $\pm 30\%$  représente la zone tolérée d'incertitude des valeurs calculées par le modèle. Les maxima journaliers sont très correctement représentés que ce soit à Lille ou à Dunkerque. Néanmoins, pour les valeurs supérieures à 170  $\mu\text{g}/\text{m}^3$  pour les stations dans les terres et 140  $\mu\text{g}/\text{m}^3$  pour les stations côtières, le système sous-estime les maxima journaliers mesurés de 50 et 80  $\mu\text{g}/\text{m}^3$  en moyenne respectivement.

Pour les concentrations en PM<sub>10</sub>, la sous-estimation par le système des données mesurées est assez marquée à Lille et plus particulièrement avec l'utilisation du cadastre NPDC. On note cependant une bonne reproduction des maxima journaliers (inférieurs à 50  $\mu\text{g}/\text{m}^3$ ) au niveau de la zone de Lille mais uniquement lors de l'utilisation du cadastre EMEP. Les maxima supérieurs à 50  $\mu\text{g}/\text{m}^3$  sont sous-estimés d'un facteur variant entre 2 et 3. Pour la zone côtière, la performance du système est assez fluctuante lors de l'utilisation des deux cadastres d'émissions.

Nous rappelons que le cadastre régional utilisé était incomplet au niveau du renseignement des particules et de certaines SNAP (1, 7 et 11). Nous nous attendions donc à des résultats mitigés

notamment pour les PM<sub>10</sub>. De nouvelles simulations sont envisagées avec la version 2005 du cadastre régional.

#### 4.1.6.6. Analyse statistique des concentrations en O<sub>3</sub> et en PM<sub>10</sub>

Les cinq indices statistiques ont été calculés pour l'ensemble des stations côtières de Dunkerque et de la métropole Lilloise pour les concentrations en O<sub>3</sub> (Tableau 4.8) et en PM<sub>10</sub> (Tableau 4.9). Les stations côtières sont notées en gras et le CC calculé avec les maxima journaliers est indiqué entre parenthèses. L'ensemble des données a été calculé avec le cadastre EMEP pour juillet 2006.

**Tableau 4.8 : Indices statistiques calculés pour O<sub>3</sub> pour différentes stations de la métropole Lilloise et de la zone industrielle de Dunkerque (en gras) pour le mois de juillet 2006 (cadastre EMEP) (n = 720).**

Station	Type	CC	NMSE	IA	BF	$\sigma_c / \sigma_m$
Lesquin	périurbaine	0,57 (0,78)	0,26	0,72	-0,10	0,70
Baisieux	périurbaine	0,55 (0,68)	0,24	0,74	-0,04	0,80
Halluin	périurbaine	0,56 (0,82)	0,27	0,72	-0,10	0,78
Salomé	périurbaine	0,65 (0,78)	0,24	0,74	-0,07	0,69
<b>Graveline</b>	<b>périurbaine</b>	<b>0,45 (0,07)</b>	<b>0,42</b>	<b>0,63</b>	<b>0,02</b>	<b>0,81</b>
<b>Outreau</b>	<b>périurbaine</b>	<b>0,31 (0,72)</b>	<b>0,17</b>	<b>0,62</b>	<b>0,19,</b>	<b>0,64</b>
<b>Petite-Synthes</b>	<b>périurbaine</b>	<b>0,53 (0,45)</b>	<b>0,37</b>	<b>0,76</b>	<b>-0,15</b>	<b>0,81</b>
Armentière	urbaine	0,56 (0,80)	0,26	0,70	-0,16	0,82
Tourcoing	urbaine	0,51 (0,77)	0,34	0,63	-0,25	0,77
Marcq	urbaine	0,57 (0,74)	0,26	0,70	-0,14	0,75
Lomme	urbaine	0,55 (0,69)	0,26	0,71	-0,12	0,75
<b>Calais</b>	<b>trafic</b>	<b>0,42 (0,19)</b>	<b>0,28</b>	<b>0,71</b>	<b>-0,02</b>	<b>0,63</b>

**Tableau 4.9 : Indices statistiques calculés pour les PM<sub>10</sub> pour différentes stations de la métropole Lilloise et de la zone industrielle de Dunkerque (en gras) pour le mois de juillet 2006 (EMEP) (n = 720).**

Station	Type	CC	NMSE	IA	BF	$\sigma_c / \sigma_m$
Salomé	périurbaine	0,16 (0,40)	0,90	0,53	-0,44	0,54
<b>Graveline</b>	<b>périurbaine</b>	<b>0,25 (0,36)</b>	<b>0,85</b>	<b>0,46</b>	<b>-0,37</b>	<b>0,75</b>
<b>Outreau</b>	<b>périurbaine</b>	<b>0,17 (0,25)</b>	<b>1,18</b>	<b>0,58</b>	<b>-0,54</b>	<b>0,50</b>
<b>Sangatte</b>	<b>périurbaine</b>	<b>0,18 (0,40)</b>	<b>0,66</b>	<b>0,71</b>	<b>-0,30</b>	<b>1,33</b>
<b>Petite-Synthes</b>	<b>périurbaine</b>	<b>0,11 (0,04)</b>	<b>1,03</b>	<b>0,46</b>	<b>-0,39</b>	<b>0,64</b>
Lille-Faidherbe	urbaine	0,30 (0,57)	1,74	0,52	-0,66	0,46
Lakanal	urbaine	0,24 (0,53)	0,58	0,61	-0,34	0,57
Tourcoing	urbaine	0,21 (0,54)	0,77	0,48	-0,41	0,50
Marcq	urbaine	0,28 (0,41)	0,74	0,57	-0,41	0,50
Lomme	urbaine	0,22 (0,39)	1,00	0,44	-0,51	0,50
<b>St Pol Nord</b>	<b>urbain</b>	<b>0,16 (0,13)</b>	<b>0,88</b>	<b>0,26</b>	<b>-0,43</b>	<b>0,67</b>
<b>Grande-Synthe</b>	<b>urbain</b>	<b>0,05 (0,33)</b>	<b>1,33</b>	<b>0,23</b>	<b>-0,43</b>	<b>0,66</b>
<b>Calais</b>	<b>trafic</b>	<b>0,16 (0,16)</b>	<b>0,71</b>	<b>0,66</b>	<b>-0,24</b>	<b>1,15</b>
<b>Boulogne centre</b>	<b>trafic</b>	<b>0,14 (0,39)</b>	<b>1,58</b>	<b>0,46</b>	<b>-0,64</b>	<b>0,46</b>
<b>Dunkerque</b>	<b>trafic</b>	<b>0,19 (0,22)</b>	<b>0,78</b>	<b>0,57</b>	<b>-0,37</b>	<b>0,65</b>
<b>Fort-Mardyck</b>	<b>industrielle</b>	<b>0,07 (0,10)</b>	<b>1,29</b>	<b>0,40</b>	<b>-0,55</b>	<b>0,62</b>
<b>Mardyck</b>	<b>industrielle</b>	<b>0,16 (0,24)</b>	<b>1,21</b>	<b>0,38</b>	<b>-0,42</b>	<b>0,57</b>

Pour l'ozone, les valeurs des CC (0,55 en moyenne pour les valeurs horaires et 0,75 pour les maxima journaliers) reflètent, pour l'ensemble des stations de la zone Lilloise, la performance satisfaisante du système MM5-FLEXPART. En ce qui concerne les valeurs côtières le CC est très variable d'une station à l'autre. Les valeurs de CC varient de 0,31 à 0,53 lors de l'utilisation des valeurs

horaires et de 0,07 à 0,72 lors de l'utilisation des maxima journaliers. Les concentrations des stations périurbaines sont les mieux représentées par le système de modélisation.

Pour les  $PM_{10}$  les  $CC$  sont relativement faibles comparés à ceux de l'ozone (en moyenne 0,25 pour Lille et 0,15 pour Dunkerque). Sur la zone Lilloise, les concentrations des stations urbaines sont légèrement mieux représentées par le système que les stations périurbaines (0,25 et 0,20 en moyenne respectivement). A Dunkerque, les valeurs des  $CC$  varient peu en fonction des différents types de stations. Les  $CC$  calculés avec les valeurs maximales sont satisfaisants pour les stations urbaines Lilloises (0,50 en moyenne) et restent très variables en zone côtière (de 0,04 à 0,40).

L' $IA$  varie peu en fonction du type de stations et vaut en moyenne 0,7 pour l'ozone et 0,5 pour les  $PM_{10}$ . Le  $FB$  est proche de 0 mais très majoritairement négatif (en moyenne -0,1 pour l'ozone et -0,5 pour les  $PM_{10}$ ). Le système a tendance à sous-estimer plus fortement les concentrations en  $PM_{10}$  que celles en ozone.

Le  $NMSE$  est assez faible pour les stations périurbaines mesurant l'ozone (0,25 en moyenne pour la zone de Lille et 0,32 pour Dunkerque) confirmant ainsi la correcte performance du système. Pour les  $PM_{10}$ , le coefficient des stations urbaines est plus élevé, en moyenne 0,96 et 1,1 pour la zone de Lille et de Dunkerque respectivement.

Le diagramme de Taylor [Taylor, 2001] permet de représenter deux calculs statistiques sur un même graphique : l'écart type normalisé (*normalized standard deviation*) et la corrélation. On peut alors visualiser graphiquement la performance d'un système de modélisation. Les coordonnées radiales représentent l'écart type des concentrations calculées, normalisé par celles des concentrations mesurées. Les coordonnées azimutales correspondent aux coefficients de corrélation entre concentrations calculées et mesurées. L'accord quasi parfait entre mesures et calculs est localisé sur les diagrammes de Taylor par un point bleu. Les cercles pleins représentent les stations périurbaines et les cercles vides les stations urbaines de Lille. Les triangles pleins représentent les stations périurbaines et le triangle vide la station trafic de Dunkerque.

La Figure 4.27 confirme la performance satisfaisante du système de modélisation à reproduire les concentrations en ozone des stations périurbaines et urbaines de Lille et de Dunkerque ( $CC$  supérieur à 0,5 en moyenne et écart type normalisé assez faible). On note que les résultats sont cependant légèrement meilleurs pour l'agglomération de Lille.

La Figure 4.28 met en évidence les lacunes du système au niveau de la modélisation des  $PM_{10}$ . Les triangles vides représentent les stations urbaines, trafic et industrielles. La légende est identique à celle de la Figure 4.27 pour le reste des cercles et des triangles. Les coefficients de corrélation sont très faibles ( $< 0,30$ ) et les concentrations en  $PM_{10}$  apparaissent comme particulièrement délicates à modéliser.

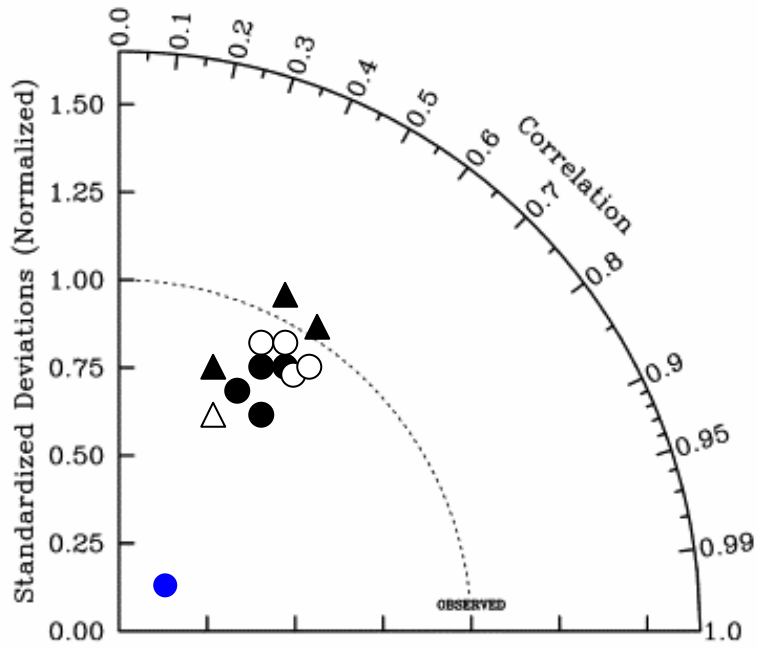


Figure 4.27 : Diagramme de Taylor pour l’ozone pour l’ensemble des maxima horaires de la période juin-juillet 2006. ( ▲ : stations périurbaines DK ; ● : stations périurbaine Lille ; △ : station trafics DK ; ○ : station urbaines Lille)

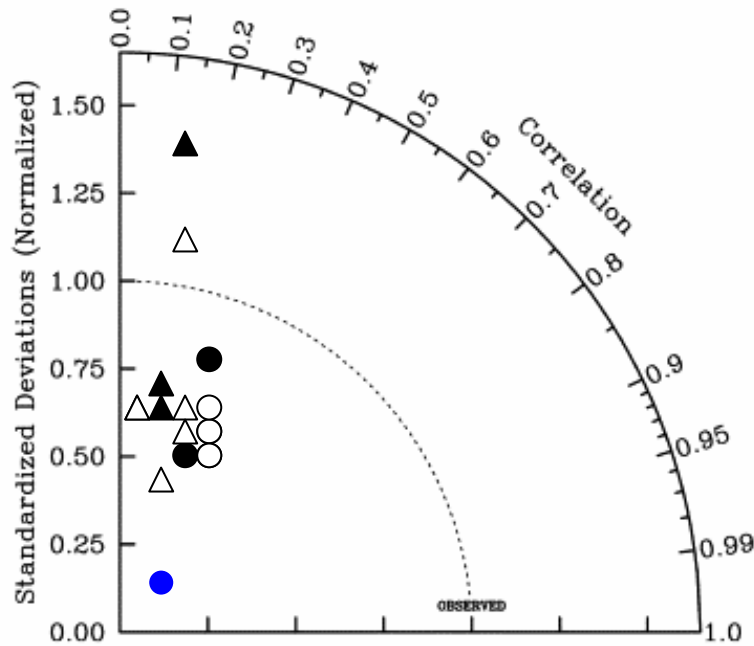


Figure 4.28 : Diagramme de Taylor pour les PM<sub>10</sub> pour l’ensemble des maxima horaires de la période juin-juillet 2006. ( ▲ : stations périurbaines DK ; ● : stations périurbaine Lille ; △ : station urbaines, trafics, industrielles DK ; ○ : station urbaines Lille)

Trois périodes sont identifiées lors desquelles le modèle sous-estime les maxima en O<sub>3</sub>. Elles correspondent aux températures les plus élevées enregistrées lorsque le flux est continental (nord-est).

Cette sous-estimation pourrait être la conséquence de l'advection de masses d'air continentales chargées en ozone troposphérique sur le domaine NPDC2Fin. L'apport des masses d'air polluées (âgées) en ozone ne serait pas correctement pris en compte par le système de modélisation. Nous présentons dans le paragraphe suivant la détermination de l'âge de la masse d'air au niveau de Lille pour la période du 01/07/06 au 15/07/06.

#### 4.1.6.7. Détermination de l'âge d'une masse d'air

Le concept d'échelle de temps photochimique est défini par l'état d'oxydation d'une masse d'air et son potentiel d'oxydation futur. L'âge d'une masse d'air peut être évalué à partir de la fraction de NO<sub>x</sub> ayant subi l'oxydation photochimique [Olszyna *et al.*, 1994]. Cette fraction est liée à l'ensemble des oxydes d'azotes (NO<sub>y</sub> = NO<sub>x</sub> + HNO<sub>3</sub> + PAN) et aux produits d'oxydation finaux de l'azote (NO<sub>z</sub> = HNO<sub>3</sub> + PAN) par la relation  $NO_z = NO_y (1 - NO_x / NO_y)$ . Lorsque  $1 - NO_x / NO_y$  tend vers 0, la parcelle d'air est jeune (NO<sub>x</sub> ≈ NO<sub>y</sub>) alors que lorsque le rapport est proche de 1 (NO<sub>x</sub> ≈ 0), le panache est décrit comme âgé. Le vieillissement d'une masse d'air est fonction principalement de son activité photochimique mais aussi du dépôt (sec et humide) de certaines de ces espèces. Par exemple, le dépôt intense d'espèces NO<sub>z</sub> implique le « rajeunissement » de la masse d'air car les NO<sub>x</sub> sont alors majoritaires.

La version 2007D de CHIMERE est utilisée à partir de ce paragraphe pour les calculs de modélisation. La différence entre la version 2007C et 2007D consiste en la correction d'un *bug* au niveau d'une réaction du mécanisme chimique. Cette version de CHIMERE permet d'accéder aux valeurs des concentrations en NO, NO<sub>2</sub>, HNO<sub>3</sub> et PAN. Les concentrations moyennes horaires en ozone ont ainsi été tracées en fonction du rapport  $1 - (NO_x/NO_y)$  pour la première quinzaine de juillet 2006 à la station de Lesquin (Figure 4.29). Cette période est représentative des conditions météorologiques de la période juin-juillet 2006 (anticyclonique, chaude, peu de vent).

L'analyse de la Figure 4.29 montre distinctivement deux groupes de points encadrés en rouge. Le cercle 1 correspond à des concentrations d'ozone situées entre 20 et 100 µg/m<sup>3</sup> alors que le cercle 2 concerne des valeurs situées entre 60 et 130 µg/m<sup>3</sup>. Les concentrations du cercle 1 sont liées à une masse d'air particulièrement jeune (rapport NO<sub>x</sub>/NO<sub>y</sub> élevé). Celles du cercle 2 correspondent à un rapport NO<sub>x</sub>/NO<sub>y</sub> proche de 0,5, la masse d'air est alors considérée comme moyennement âgée. Ainsi, on peut considérer que les maxima en ozone (> 100 µg/m<sup>3</sup>) observés en périphérie de l'agglomération de Lille sont influencés en partie par l'advection de parcelles d'air chargées en ozone au niveau de la région NPDC. La Figure 4.30 permet de constater que le nord de la Belgique est une zone propice à la formation de fortes concentrations en ozone (150 µg/m<sup>3</sup>). Nous concluons à partir de cette analyse que les pics en ozone observés durant la première quinzaine de juillet 2006 subissent à la fois un apport



local et extérieur. Une technique complémentaire est utilisée durant la seconde partie de ce chapitre (paragraphe 4.2) afin de confirmer la méthode de l'âge des masses d'air.

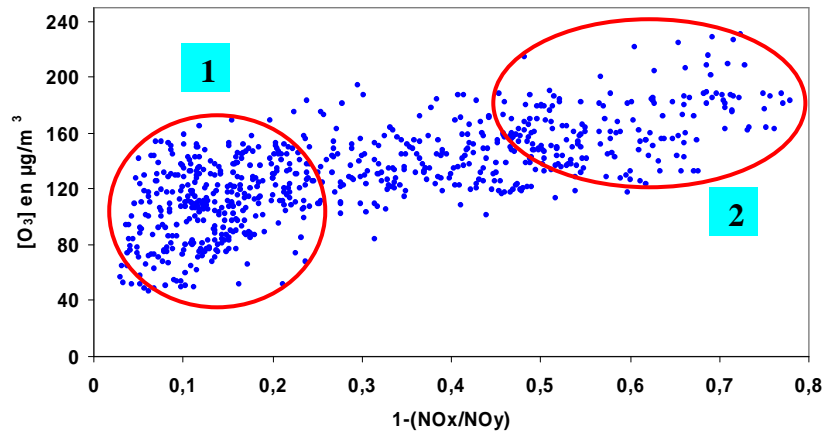


Figure 4.29 : Rapport  $1-(NO_x/NO_y)$  en fonction des concentrations horaires maximales en ozone à Lesquin durant le mois de juillet 2006 (NPDC2Fin) ( $n = 720$ ).

#### 4.1.6.8. Etude des profils horizontaux sur la région NPDC

Les concentrations d'ozone au niveau du sol ont été analysées pour la journée du 18/07/06 à 16h UTC afin d'établir les zones préférentielles de la production d'ozone en région NPDC. Cette journée se manifeste par plusieurs maxima d'ozone mesurés sur la région NPDC : Lille (95 ppb), Dunkerque (85 ppb) et Valenciennes (90 ppb). Cette période correspond à des vents faibles inférieurs à 6 m/s (période 8). On remarque que le système de modélisation reproduit correctement les concentrations au niveau du sol sur l'Artois (Lens-Arras-Douai) et l'Avesnois (sud-est de Valenciennes) en vert sur la Figure 4.30. En revanche, le système ne représente aucun pic d'ozone au niveau de Dunkerque et de Lille.

L'étude de l'occupation des sols permet d'y distinguer une importante couverture forestière notamment composée de résineux au sud-est de la région (Avesnois et Ardennes). Il s'agit d'une zone émettrice de COV biogènes tels que l'isoprène et le limonène. La Figure 4.31 permet de visualiser la présence de deux sources d'émissions en isoprène : la zone urbaine de Lille (industrielle) et les forêts des Ardennes belges (biogène). La Figure 4.32 confirme la présence d'une zone de forte concentration en isoprène sur les Ardennes (9 ppb) et en moindre mesure sur l'Avesnois (5 ppb).

L'analyse de plusieurs cartes des champs de concentrations montre que pour la période estivale de juin-juillet 2006, CHIMERE reproduit prioritairement les maxima d'ozone au niveau d'une zone située au sud-est de la région NPDC. Si les conditions météorologiques sont favorables (vent d'est à sud-est), la région de l'Avesnois est propice au mélange des émissions biogènes et urbaines chargées en NO<sub>x</sub> et par conséquent à la production d'ozone. Curci *et al.* confirment l'importance des COV biogènes sur le cycle de l'ozone. Ils concluent que leurs émissions augmentent en moyenne de 5 % en

période estivale et l'influence des COV biogènes sur la production d'ozone est encore mal connue et avoisine les 50 % d'erreurs.

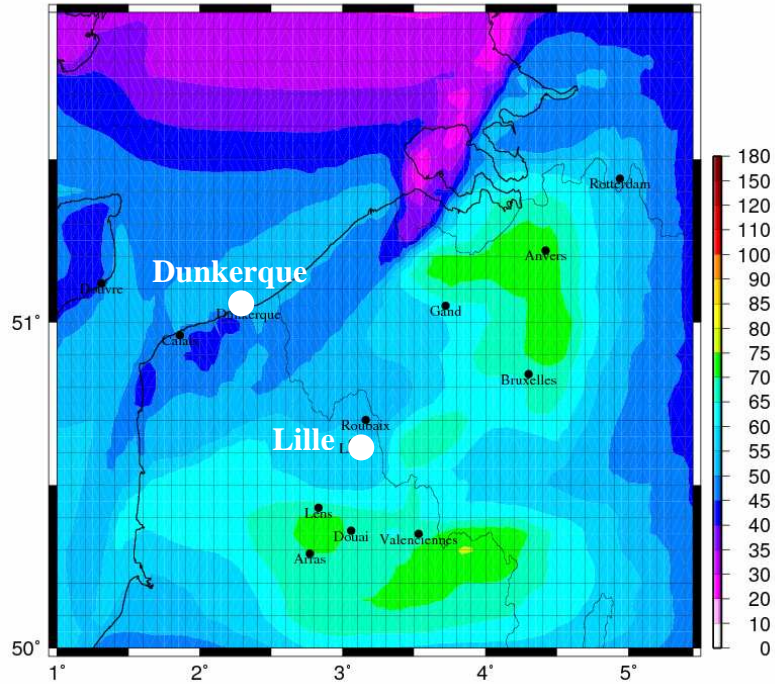


Figure 4.30 : Concentration en ozone (ppb) calculée (première couche verticale) pour le 18/07/06 à 16h UTC

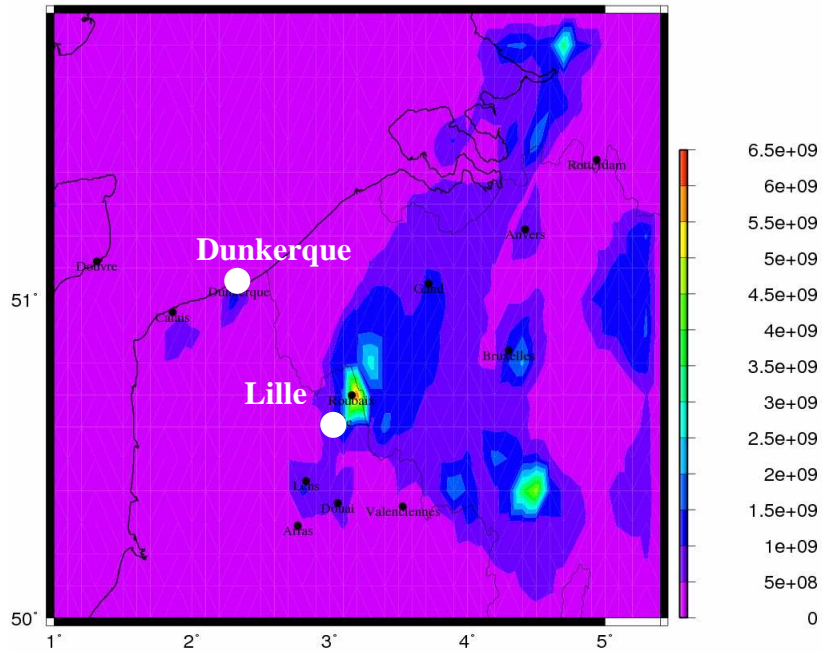


Figure 4.31 : Emission en isoprène ( $C_5H_8$ ) en ppb (première couche verticale) pour un jour ouvré à 12 h UTC durant le mois de juillet 2006.

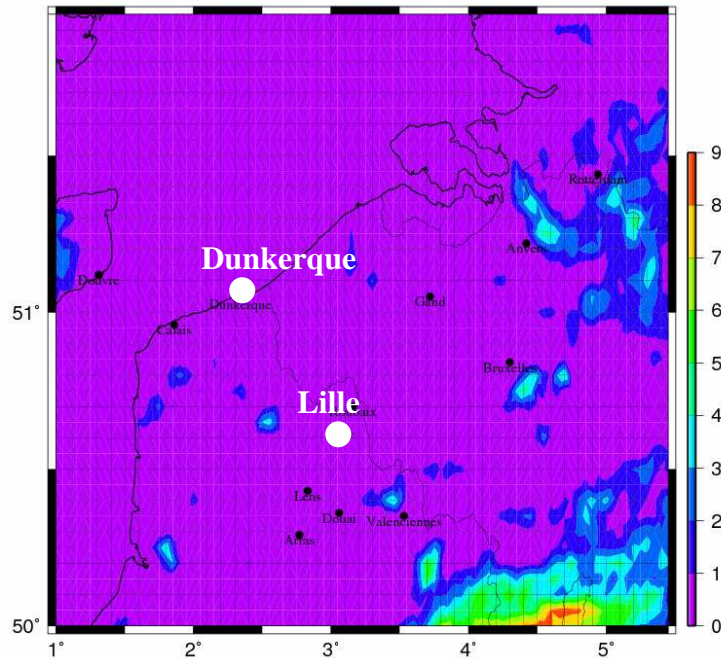
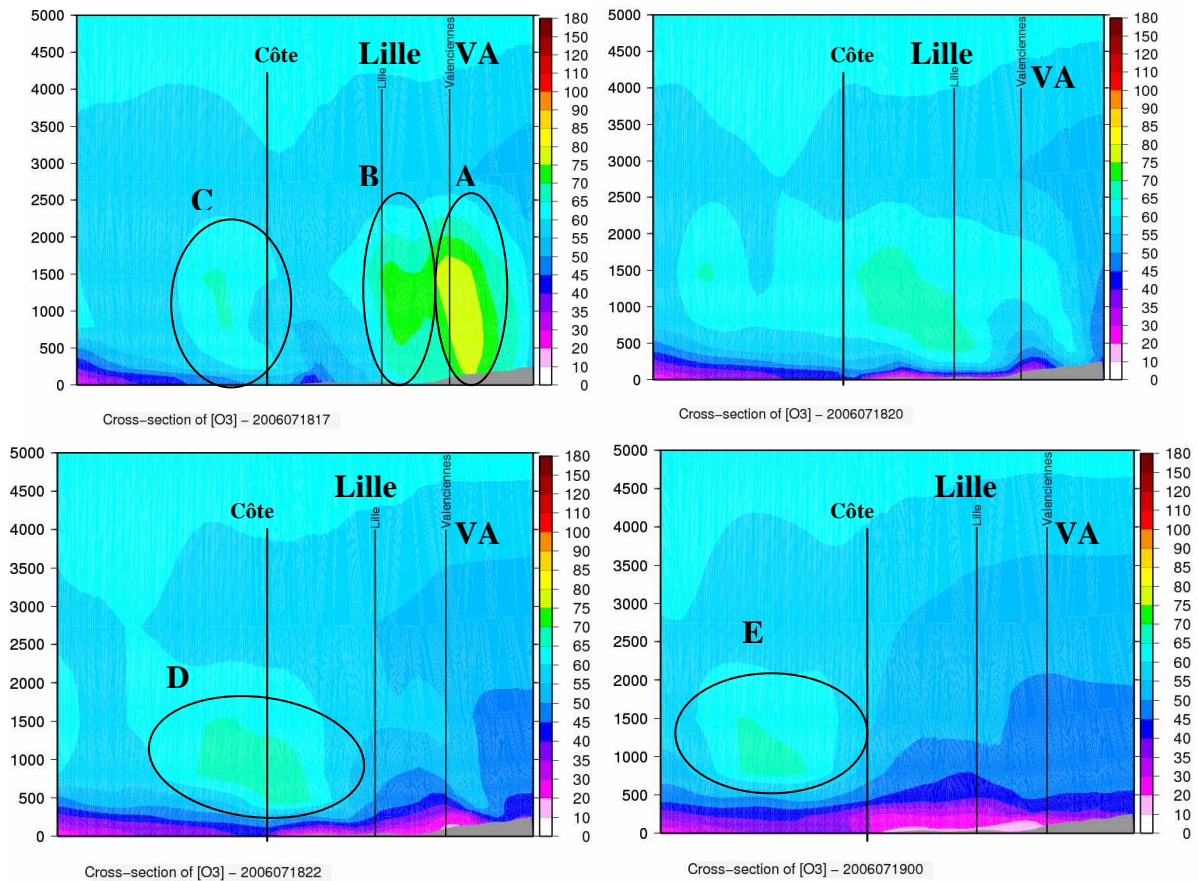


Figure 4.32 : Concentration d'isoprène ( $C_5H_8$ ) calculée en ppb (première couche verticale) pour le 18/07/06 à 16h UTC.

#### 4.1.6.9. Étude des profils verticaux sur la région NPDC

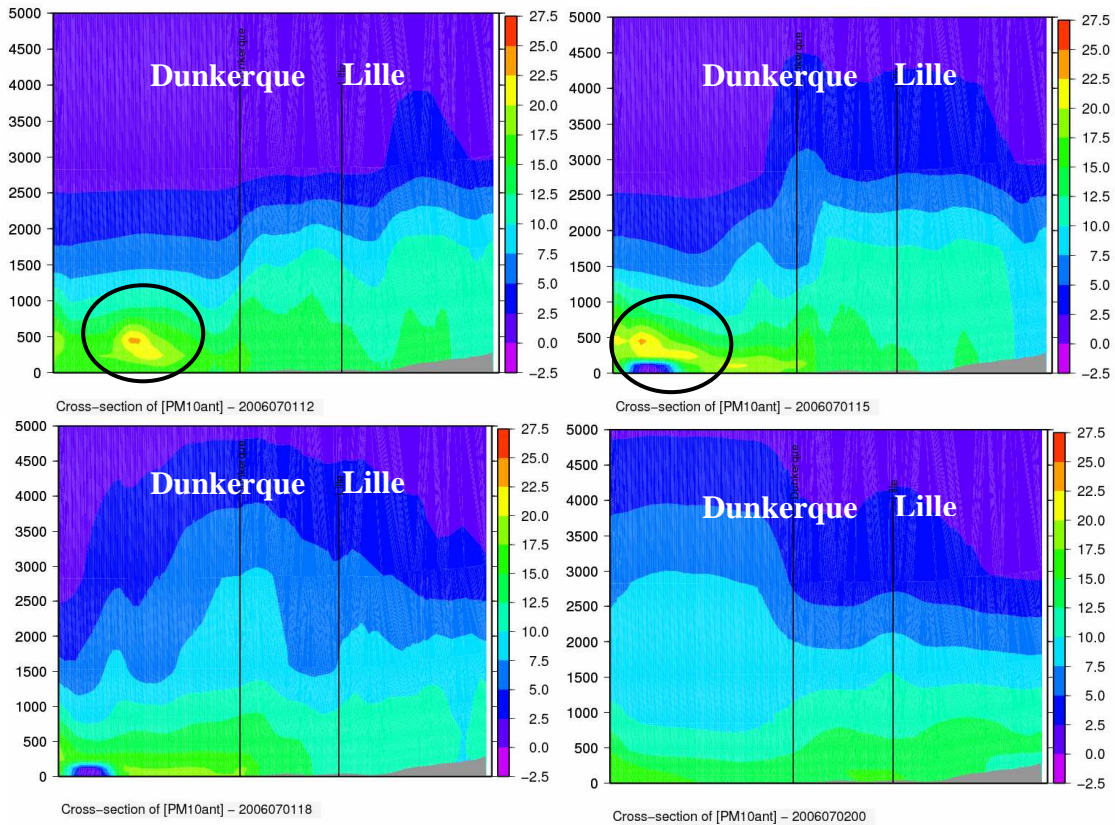
L'analyse des profils verticaux d'ozone simulés par le système MM5-CHIMERE fournit des indications sur le transport vertical de l'ozone. La Figure 4.33 présente le profil vertical en ozone pour la journée estivale du 18/07/06 à 17h, 20h et 22h UTC ainsi que pour la journée du 19/07/06 à 00h UTC. Elles sont propices à la production d'ozone (vent faible et fort ensoleillement). Les simulations montrent que la masse d'air fortement chargée en ozone ( $170 \mu g/m^3$ ) au niveau du sol sur l'Avesnois s'étend en altitude jusqu'à 2000 m (zone A de la Figure 4.33). Alors que les concentrations calculées au niveau du sol à Lille sont largement sous-estimées, le système simule une masse d'air chargée en ozone ( $145 \mu g/m^3$ ) entre 500 m et 1500 m au dessus de Lille (zone B de la Figure 4.33). Une seconde parcelle d'air polluée en altitude au niveau de la côte est observée (zone C de la Figure 4.33). Lors d'une journée estivale anticyclonique, une cellule de brise plus au moins intense se développe au niveau de la côte quasi-systématiquement. Sa structure et sa position sont caractéristiques de la présence d'une cellule de brise. Une encapsulation similaire a été observée avec le  $SO_2$  par Talbot *et al.* (2007).

Au cours de la soirée, les parcelles chargées en ozone, situées dans les terres au niveau de Lille et de Valenciennes sont transportées vers la côte et on observe la fusion des parcelles côtières et terrestres (zone D de la Figure 4.33). Une zone polluée stagne ainsi au niveau de la côte d'Opale au dessus de la mer en début de nuit (zone E de la Figure 4.33). Ce réservoir d'ozone peut être une source non négligeable de radicaux OH pour la journée suivante en période d'activité photochimique ( $O_3 + h\nu \rightarrow O + O_2$  et  $O + H \rightarrow OH$  avec H issu de la photolyse de l'eau).



**Figure 4.33 : Coupes verticales de la concentration (ppb) en ozone selon l'axe Lille-Valenciennes pour NPDC2Fin le 18/07/06 à 17h, 20h, 22h et le 19/07/06 à 00h UTC.**

La Figure 4.34 détaille les profils verticaux en  $PM_{10}$  pour la journée estivale du 01/07/06 à 12h UTC, 15h UTC, 18h UTC et pour la journée du 01/07/06 à 00h UTC. Contrairement à l'ozone, les concentrations maximales en  $PM_{10}$  se situent à des altitudes assez basses entre 200 et 500 m. Les concentrations les plus élevées ( $22 \mu g/m^3$ ) sont limitées au littoral de la côte d'Opale où les émissions en  $PM_{10}$  sont intenses. Contrairement à l'ozone, elles se dissipent dès la fin de l'après-midi et le transport vers les terres est très limité. L'influence du dépôt sec, du transport et de la chimie hétérogène sont privilégiés pour expliquer la diminution rapide des  $PM_{10}$ . Cependant, ces hypothèses doivent faire l'objet de prochaines études.



**Figure 4.34 :** Coupes verticales de la concentration ( $\mu\text{g}/\text{m}^3$ ) en  $\text{PM}_{10}$  selon l'axe Lille-Valenciennes pour NPDC2Fin le 01/07/06 à 12h, 15h, 18h UTC et le 02/07/06 à 00h UTC.

#### 4.1.6.10. Evaluation du système au niveau de la côte sud de l'Angleterre

Les conditions météorologiques rencontrées sur la côte sud de l'Angleterre durant la période de juin à juillet 2006 furent similaires à celles rencontrées à Dunkerque. Des concentrations très élevées en ozone ont touché le sud de l'Angleterre durant cette période. Nous avons souhaité tester notre système sur cette région également. Le domaine NPDC4 a été utilisé afin de simuler les concentrations en ozone et le possible transport trans-manche. Les données mesurées proviennent du réseau de surveillance de la qualité de l'air « *SUSSEX-Air<sup>1</sup>* ». Les Figures 4.35 et 4.36 illustrent des maxima d'ozone mesurés le 19/07 à Eastbourne ( $220 \mu\text{g}/\text{m}^3$ ) et à Rye ( $240 \mu\text{g}/\text{m}^3$ ). Dans les deux cas, la modélisation d'un pic d'ozone ( $160 \mu\text{g}/\text{m}^3$ ), absent au niveau des mesures, pour la journée du 15/07 (cercle A) peut être expliquée par une mauvaise représentation des conditions dynamiques (direction, vitesse du vent et/ou précipitations) par le modèle MM5, une résolution trop lâche des émissions anthropiques (EMEP) et/ou la non-prise en compte de la variabilité des concentrations en polluants aux limites des domaines.

<sup>1</sup> [http://www.sussex-air.net/air\\_quality.html](http://www.sussex-air.net/air_quality.html)

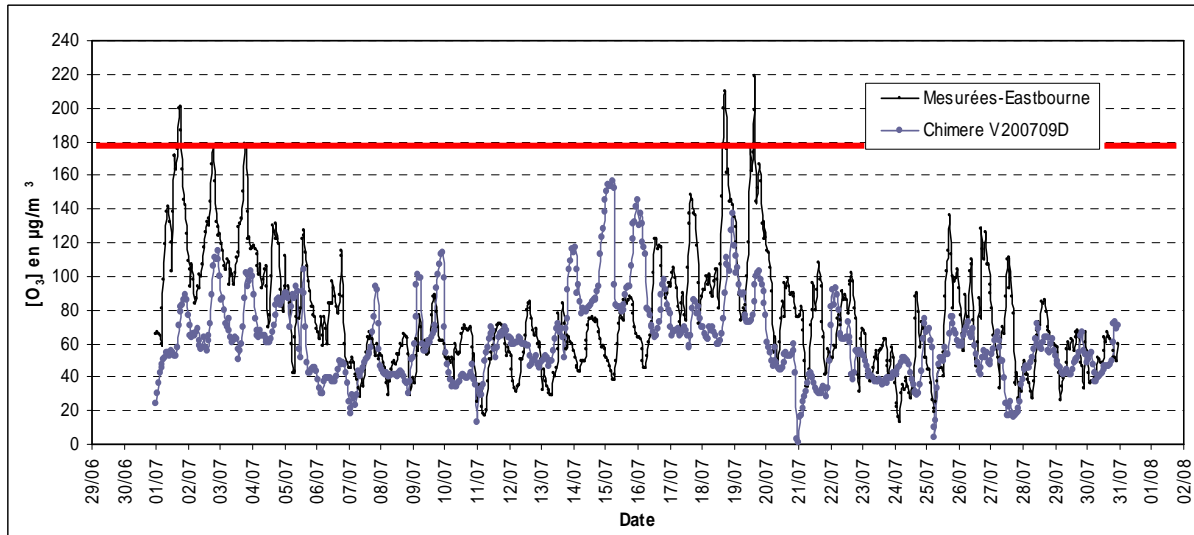


Figure 4.35 : Evolution temporelle de la concentration en ozone pour le mois de juillet 2006 à Eastbourne (50,80°N ; 0,28°E).

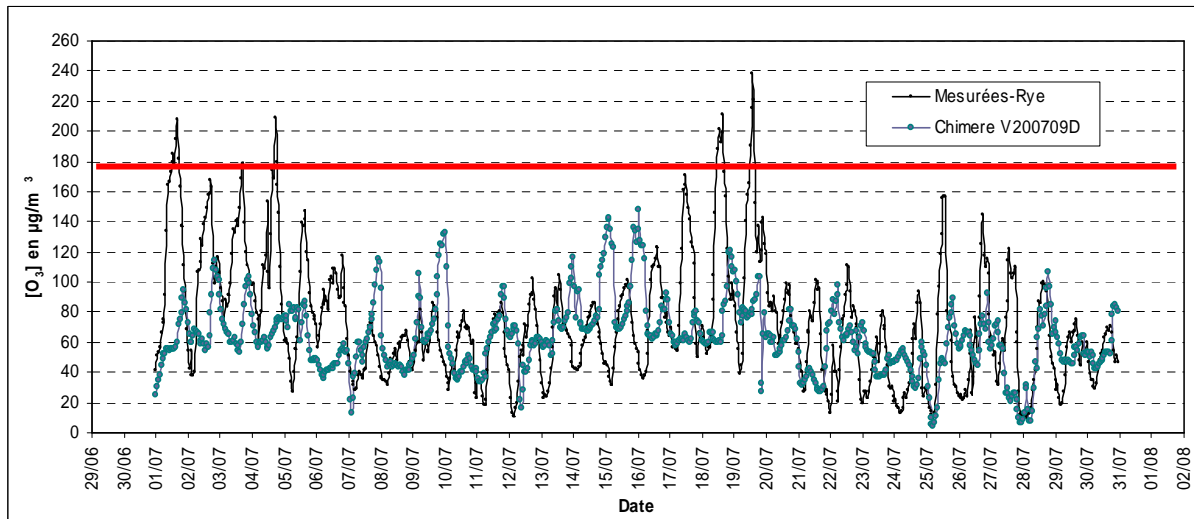


Figure 4.36 : Evolution temporelle de la concentration en ozone pour le mois de juillet 2006 à Rye (50,90°N ; 0,70°E).

Les indices statistiques ont été calculés et confirment les difficultés du système à reproduire les maxima d’ozone en zone côtière (Tableau 4.10). Le *BF* indique que le modèle sous-estime globalement les données en ozone mesuré. On note également que malgré les caractéristiques topographiques très proches des deux villes (zone côtière), le système reproduit de manière plus satisfaisante les concentrations mesurées à Eastbourne plutôt qu’à Rye.

Tableau 4.10 : Indices statistiques calculés pour l’ozone avec les valeurs maximales horaires pour deux stations de la côte située au sud de l’Angleterre (juillet 2006) ( $n = 720$ ).

	Eastbourne	Rye
<i>CC</i>	0,32 (0,36)	0,16 (0,03)
<i>NMSE</i>	0,33	0,01
<i>IA</i>	0,56	0,67
<i>BF</i>	-0,20	-0,14

La Figure 4.37 illustre les concentrations en ozone de la première couche verticale du domaine NPDC4 le 19/07/06. A 16h UTC, le réseau anglais mesure  $198 \mu\text{g}/\text{m}^3$  d'ozone à Eastbourne et  $152 \mu\text{g}/\text{m}^3$  à Rye. Les données calculées pour cette heure se situent entre  $100$  et  $110 \mu\text{g}/\text{m}^3$ . Les concentrations mesurées du sud de l'Angleterre sont donc sous-estimées de plusieurs dizaines de  $\mu\text{g}/\text{m}^3$ . Plusieurs hypothèses peuvent être émises concernant cette contre-performance : les données d'émissions primaires sont sous-estimées à cause de la résolution grossière du cadastre EMEP, les données météorologiques (vitesse du vent) sous-estime la réalité. Côté français, on remarque la présence d'une masse d'air fortement chargée en ozone (A) le long des côtes de la Manche, du Havre à la baie de Somme (entre  $120$  et  $150 \mu\text{g}/\text{m}^3$ ).

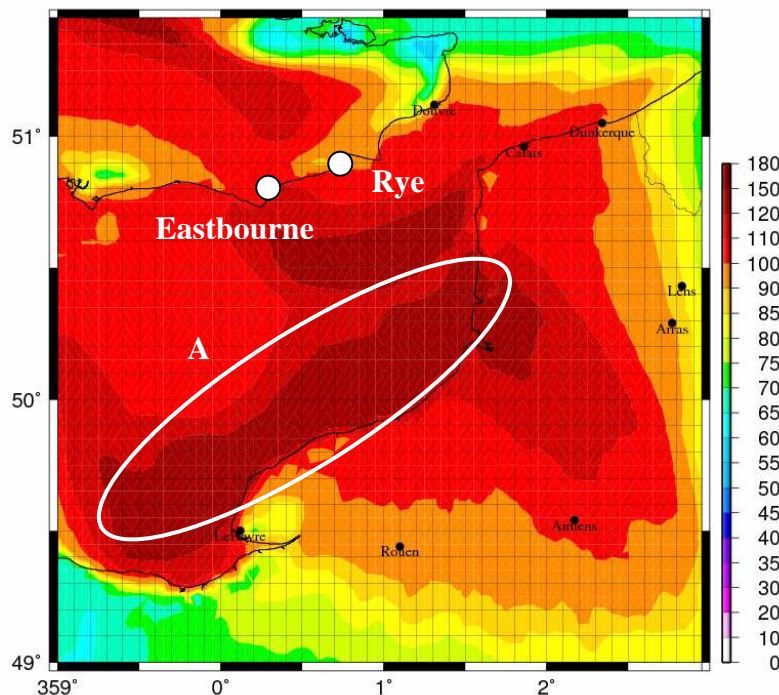


Figure 4.37 : Concentration en ozone ( $\mu\text{g}/\text{m}^3$ ) pour la première couche verticale du domaine NPDC4 le 19/07/06 à 16h UTC.

La Figure 4.38 est issue du site opérationnel *Prev'air*<sup>1</sup> fournissant des prévisions de la qualité de l'air pour la France et l'Europe à J+1 et J+2. On constate que la prévision *Prev'air* à J+1 pour la journée du 19/07/06 simule également une zone de forte concentration en ozone le long de la côte de la Manche (A) au nord de la France ( $200$  et  $220 \mu\text{g}/\text{m}^3$ ). Des concentrations du même ordre sont prévues à Amiens et sur la côte sud anglaise. Les données mesurées, notées en noir sur la carte *Prev'air*, indiquent que notre système sous-estime les données françaises mesurées au Havre et à Amiens de  $60 \mu\text{g}/\text{m}^3$  en moyenne.

<sup>1</sup> <http://www.prevoir.org/fr>

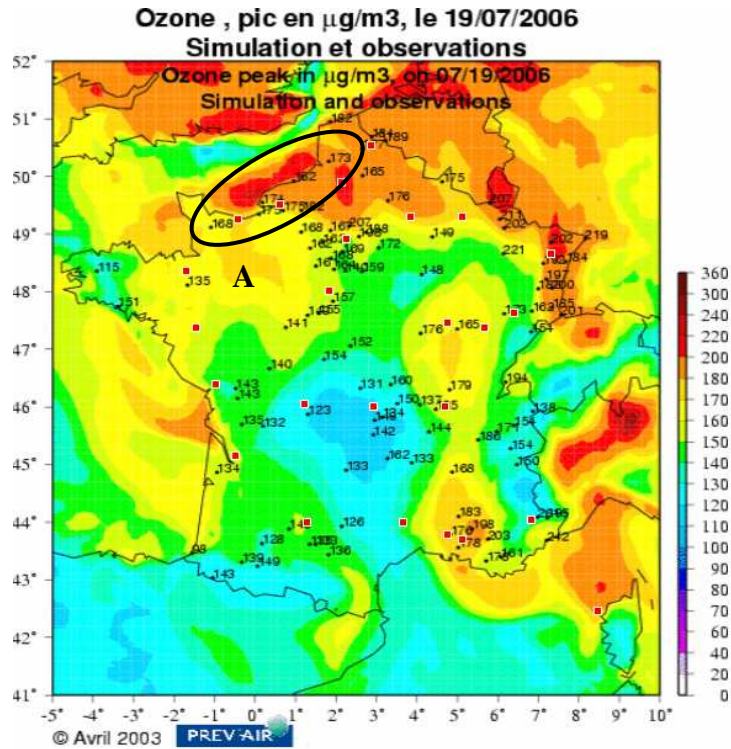
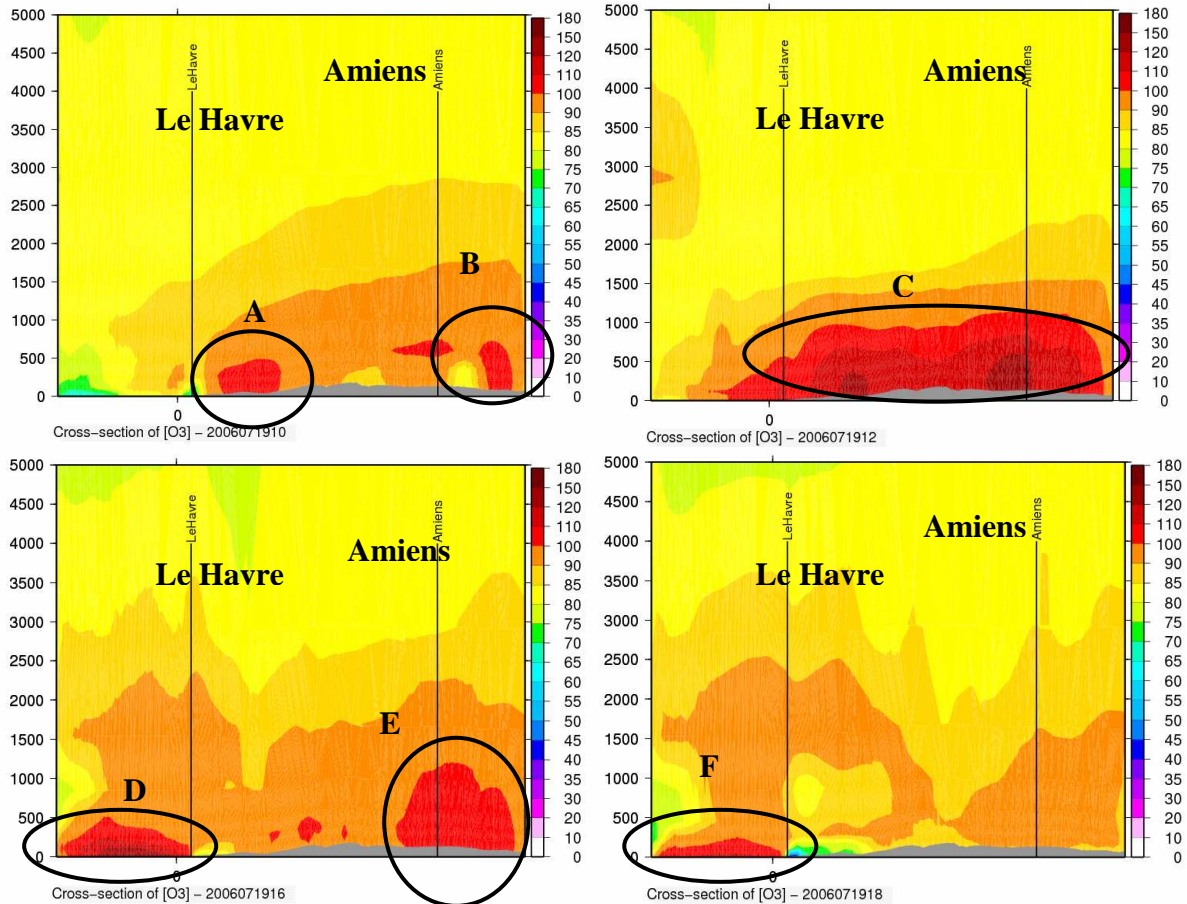


Figure 4.38 : Cartes Prev-Air à J+1 des champs de concentrations calculées et des concentrations maximales journalières mesurées pour diverses stations Françaises (en noir) le 19/07/2006.

La Figure 4.39 permet de visualiser la répartition verticale des champs de concentrations en ozone le long de l'axe le Havre-Amiens pour la journée du 19/07/06. L'orientation est quasiment est-ouest. On remarque que la production d'ozone débute vers 10h UTC en zone périurbaine du Havre (A) et d'Amiens (B). A 12h UTC, les deux zones A et B fusionnent pour donner une masse d'air (C) fortement chargée en ozone (entre 120 et 180  $\mu\text{g}/\text{m}^3$ ) s'étendant du Havre à Amiens. En fin d'après midi, à 16h UTC, on note deux zones distinctes polluées. Une première zone notée D (maximum de 110  $\mu\text{g}/\text{m}^3$ ) se situe au niveau d'Amiens sur une épaisseur de 1000 m environ. La seconde est localisée au large du Havre (maximum de 150  $\mu\text{g}/\text{m}^3$ ) et se limite aux 500 premiers mètres de la CLA (E). En début de soirée à 18h UTC, seule une parcelle localisée au large du Havre est observée (F). Les concentrations les plus élevées se cantonnent aux premiers 100 m de la CLA (100  $\mu\text{g}/\text{m}^3$ ).

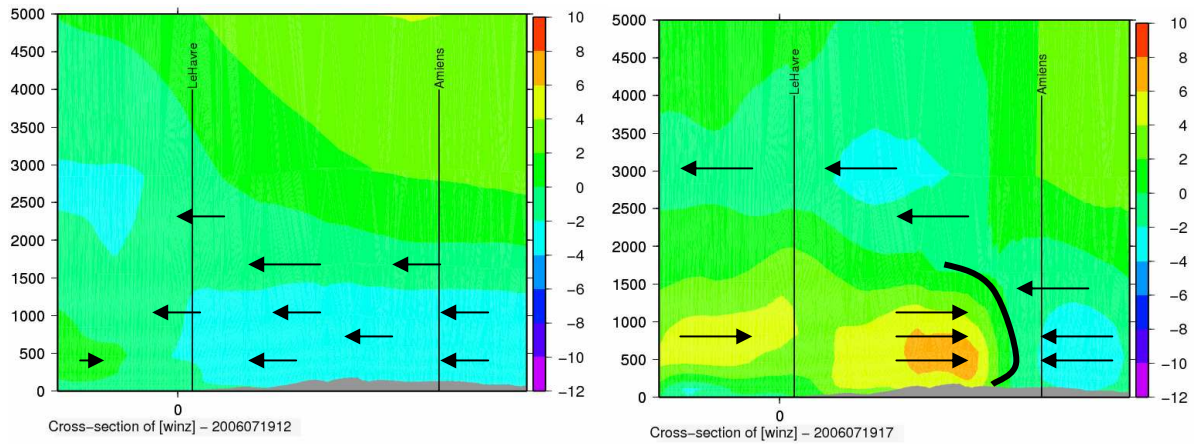
La zone D de la Figure 4.39 est une coupe verticale orientée selon la direction Le Havre – Amiens de la zone A de la Figure 4.37. On en déduit ainsi que l'ozone observé au niveau de la côte de la Manche est concentré dans les basses couches de la CLA. L'accumulation de l'ozone au niveau de la côte semble être causée par l'advection de parcelles d'air polluées au niveau de la mer. Le faible développement de la CLA sur la mer par rapport à celle observée au dessus des terres permet alors l'accumulation et l'augmentation des concentrations en ozone.





**Figure 4.39 : Profils verticaux des champs de concentration en ozone pour la journées du 19/07 à 10, 12, 16 et 18h UTC selon l'axe Le Havre-Amiens.**

La Figure 4.40 permet de constater le développement d'une cellule de brise de mer au niveau du Havre. A 12h le flux est de secteur est et souffle de la terre vers la mer. A 17h UTC, on observe un flux d'ouest bien établi (6-8 m/s). Le front de brise est matérialisé par la courbe noire. La cellule de brise favorise la recirculation par advection des masses d'air polluées au niveau de la côte. L'ozone se retrouve encapsulé et son accumulation provoque une augmentation significative des concentrations en O<sub>3</sub> au niveau de la côte en fin de journée. Les deux sites producteurs d'ozone (zones périurbaines du Havre et d'Amiens) associés à la cellule de brise de mer expliquent la présence d'une masse d'air fortement polluée le long de la côte de la Manche (zone A sur la Figure 4.37).



**Figure 4.40 :** Profils verticaux de la vitesse du vent zonale (m/s) selon l'axe Le Havre-Amiens à 12h (gauche) et 17h UTC (droite). Valeurs positives = flux d'ouest. Valeurs négatives = flux d'est.

#### 4.1.6.11. Discussion

Le système MM5-CHIMERE a été testé en mode diagnostique pour deux zones spécifiques de la région NPDC en période caniculaire : la zone industrielle côtière de Dunkerque et la métropole Lilloise.

Les résultats démontrent la capacité du système à simuler le cycle journalier de l'ozone en période estivale. Les principales difficultés rencontrées concernent la sous-estimation des maxima supérieurs à  $100 \mu\text{g}/\text{m}^3$ . Ces résultats sont en accord avec ceux de Sokhi *et al.* (2006) qui ont utilisé le système MM5-CMAQ sur la ville de Londres. Pour l'ozone, la performance du système varie peu en fonction de l'utilisation de cadastre EMEP ou du cadastre régional. L'impact du cadastre régional est minime. Le fait que la version 2001 du cadastre régional utilisée soit incomplète explique ces résultats. La nouvelle version mise à jour en 2005 est actuellement en cours d'intégration au sein de POQAIR. On note également que le système est en général moins performant sur la côte que dans les terres. Plusieurs auteurs perçoivent les difficultés des systèmes à reproduire les concentrations côtières en ozone : Monteiro *et al.* (2005) avec ECMWF-CHIMERE pour le Portugal, Pirovano *et al.* (2007) avec MM5 ou RAMS-CAMx sur le sud-est de la France ou encore Oh *et al.* (2006) avec MM5-UAM V en Corée du Sud. En zone côtière, la modélisation des paramètres dynamiques clés pour la modélisation de la qualité de l'air (vitesse et direction du vent, hauteur de la CLA, vitesse de frottement, flux de chaleur sensible et latent) est délicate. L'interface terre-mer engendre de forts gradients thermiques rendant, plus difficile, la simulation des paramètres énumérés précédemment. Actuellement dans le cadre du GIS IRENI, des travaux complémentaires afin de reproduire précisément la dynamique spécifique de la zone de Dunkerque sont effectués avec le modèle Mésos-NH au Laboratoire de Physico-Chimie de l'Atmosphère (LPCA).

Globalement, le système éprouve des difficultés lors de la modélisation des particules. Les concentrations de fond en  $\text{PM}_{10}$  sont sous-estimées avec le cadastre EMEP pour la zone de Lille et de Dunkerque. On note que dans les deux cas, les maxima sont partiellement reproduits par le système.

Au niveau de Dunkerque, la fréquence des pics de  $PM_{10}$  est difficilement reproduite. Plusieurs auteurs ont également souligné la difficulté à modéliser les concentrations en  $PM_{10}$  pour des sites dans les terres [Bessagnet *et al.*, 2004] ou côtiers [Augustin, 2006; Oh *et al.*, 2006; Monteiro *et al.*, 2007].

Tout d'abord, dans notre cas, la qualité du cadastre d'émissions anthropiques (poussières industrielles notamment) est primordiale. Une estimation correcte des quantités d'aérosols émis sur Dunkerque et la détermination de profils horaires précis sont une priorité afin d'améliorer les données du cadastre. On note également que les émissions des industries sidérurgiques et pétrochimiques de la zone de Dunkerque sont en général brèves et très localisées. Or, avec CHIMERE, les émissions sont instantanément diluées dans la maille correspondant au lieu d'émission ( $5 \times 5 \times 0,04 \text{ km}^3$  pour NPDC2Fin) expliquant en partie la sous-estimation des données calculées.

Ensuite, le manque de représentativité des stations côtières rend l'évaluation du système délicate pour cette zone. En effet, la plupart des stations de la zone de Dunkerque sont sous l'influence directe des panaches d'émissions industrielles alors que le système moyenne les concentrations sur  $5 \times 5 \text{ km}^2$  dans le cas de notre étude. Le problème de la représentativité des stations est discuté par Monteiro *et al.* (2005) pour une étude au Portugal.

De plus, le traitement de la chimie hétérogène concernant la production des aérosols organiques secondaires, important en milieux côtiers (sel de mer et poussières industrielles pour les zones industrielles), doit être amélioré. Une collaboration est actuellement en cours au PC2A entre l'équipe modélisation et chimie hétérogène (partie expérimentale) afin d'intégrer des réactions pertinentes pour des zones côtières au sein du mécanisme MELCHIOR.

Enfin, de fortes incertitudes concernent les mesures de  $PM_{10}$ . Deux méthodes sont utilisées : l'échantillonnage sur filtres (méthode gravimétrique) et les mesures en continu (TEOM et beta-atténuation). Plusieurs études ont montré que le TEOM peut sous-estimer les concentrations de  $PM_{10}$  de 20 à 50 % [Eatough *et al.*, 2003; Hodzic *et al.*, 2005]. La sous-estimation est plus marquée en hiver car la différence entre la température à l'intérieur de l'appareil et la température ambiante extérieure est plus importante en période froide qu'en saison estivale [Hauck *et al.*, 2004].

#### **4.1.7. Optimisation de la configuration des domaines**

##### **4.1.7.1. Influence de la résolution de la grille du domaine**

A l'occasion de l'installation de la version V200709D de CHIMERE, nous avons évalué l'influence de la résolution de la grille sur les concentrations d'ozone et de  $PM_{10}$  simulées pour des stations périurbaines et urbaines de Lille respectivement. Le but de cette application est de déterminer la meilleure résolution à utiliser lors de la modélisation régionale de la pollution en région NPDC. Différentes résolutions de grilles 10, 5, 2 et 1 km ont été testées. Elles correspondent respectivement aux domaines NPDC2, NPDC2Fin, NPDC2TFin et NPDC3Lille respectivement. On remarque que

les concentrations en  $O_3$  et  $PM_{10}$  calculées varient peu en fonction des quatre résolutions (Figure 4.41 et Figure 4.42 ).

Pour L'ozone, les indices statistiques du Tableau 4.11 ( $CC = 0,59$  et  $NMSE = 0,28$ ) indiquent qu'une résolution de 10 km est suffisante pour simuler les concentrations d'ozone. Ces résultats sont confirmés par ceux de Cohan *et al.* (2006). Ils indiquent même qu'une résolution de 12 km est suffisante pour simuler les principaux panaches en ozone. Pour des applications avec une topographie sinueuse ou spécifique, ils recommandent cependant une résolution plus fine (5 km). On note que le  $BF$  confirme la tendance du système à sous-estimer les concentrations en ozone mesurées. En fait, ce sont principalement les maxima que la modélisation sous-estime dans notre cas.

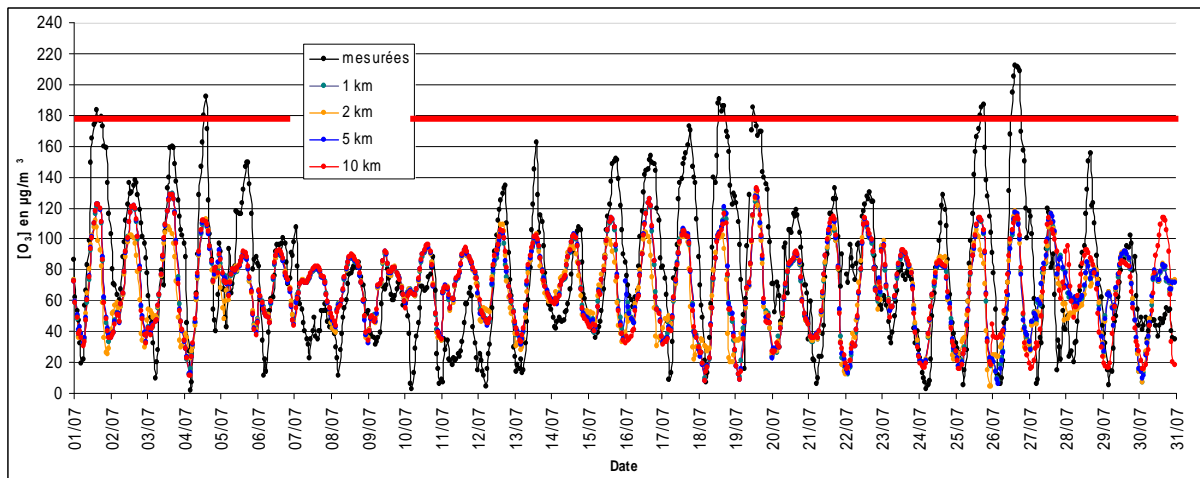


Figure 4.41 : Evolution de la concentration en ozone en fonction de quatre résolutions de grille pour le mois de juillet à la station de Lesquin (50,59°N ; 3,11°E).

Tableau 4.11 : Indices statistiques calculés pour l'ozone avec les valeurs maximales horaires pour le mois de juillet à la station de Lesquin (50,59°N ; 3,11°E) ( $n = 720$ ).

Résolution	10 km	5km	2km	1km
$CC$	0,59 (0,57)	0,60 (0,67)	0,51 (0,64)	0,60 (0,68)
$NMSE$	0,28	0,33	0,35	0,33
$IA$	0,71	0,70	0,64	0,70
$BF$	-0,15	-0,15	-0,18	-0,16

Pour les  $PM_{10}$ , les séries temporelles des concentrations moyennes horaires montrent que NPDC2 surestime légèrement plus les maxima que les autres résolutions. La résolution 2 km simule le plus correctement les minima. Le choix d'une résolution très fine est bénéfique pour la qualité des résultats des  $PM_{10}$ . Pour la modélisation des  $PM_{10}$ , une grille de 5 km minimum est conseillée. Les valeurs du  $CC$  (Tableau 4.12) confirment l'influence minimale de la résolution sur les concentrations calculées en ozone et en  $PM_{10}$ . Les concentrations en  $PM_{10}$  sont légèrement surestimées principalement au niveau des minima.

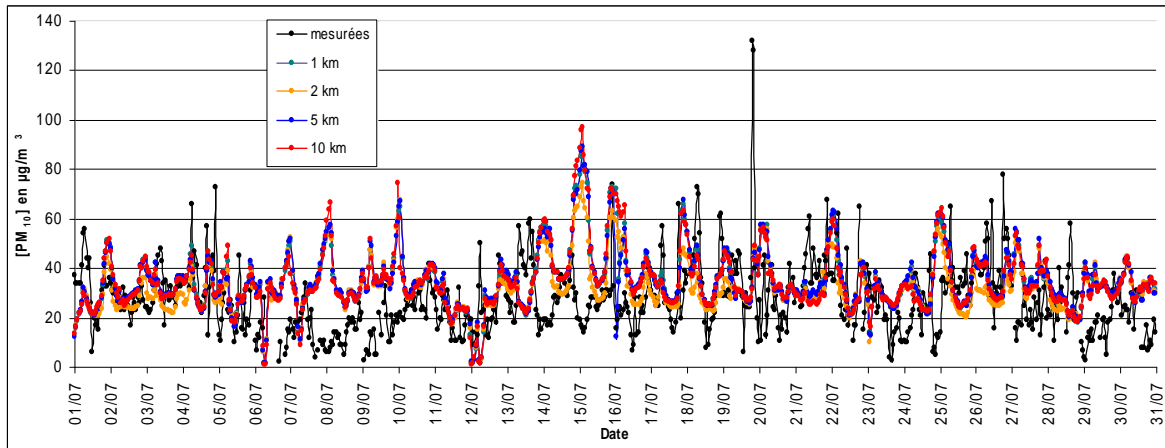


Figure 4.42 : Evolution de la concentration en  $PM_{10}$  en fonction de quatre résolutions de grille pour le mois de juillet à la station de Marcq ( $50,58^{\circ}N$  ;  $3,08^{\circ}E$ ).

Tableau 4.12 : Indices statistiques calculés pour les  $PM_{10}$  avec les valeurs maximales horaires pour le mois de juillet à la station de Marcq ( $50,58^{\circ}N$  ;  $3,08^{\circ}E$ ) ( $n = 720$ ).

Résolution	10 km	5km	2km	1km
CC	0,03 (0,06)	0,06 (0,13)	-0,03 (-0,04)	0,06 (0,13)
NMSE	0,31	0,30	0,32	0,30
IA	0,90	0,90	0,90	0,90
BF	0,24	0,25	0,17	0,24

La Figure 4.43 illustre bien le fait que l'augmentation de la résolution pour un domaine identique modifie les champs de concentrations en ozone au niveau de la région NPDC. Il faut noter que le domaine de résolution 1 km est différent des trois autres. Il se limite à une zone de  $50 \times 50 \text{ km}^2$  de Lille car une résolution de 1 km appliqué au domaine NPDC2 serait trop coûteuse en temps de calcul.

Au niveau de la zone de Lille, peu de changements sont observés lorsque la résolution augmente. En revanche, on constate que les concentrations en ozone sur l'Avesnois (45 ppb) simulées avec les domaines de résolution 10 et 5 km ne sont pas reproduites lors de l'utilisation du domaine NPDC2Tfin (2 km). Une diminution des concentrations en ozone calculées au niveau de l'Artois est également notée. En somme, une résolution de domaine inférieure à 5 km aura une tendance à sous-estimer les concentrations calculées. Ceci est expliqué par le fait que lorsque la résolution est très fine la titration de l'ozone par les  $NO_x$  (plus concentrés que pour une grille composée de mailles grossières) est renforcée [Valari et Menut, 2008]. Ce phénomène est observé à proximité de la zone critique de transition (quelques ppb en  $NO_x$ ) entre un régime limité ou saturé par les  $NO_x$  (zones urbaines en général).

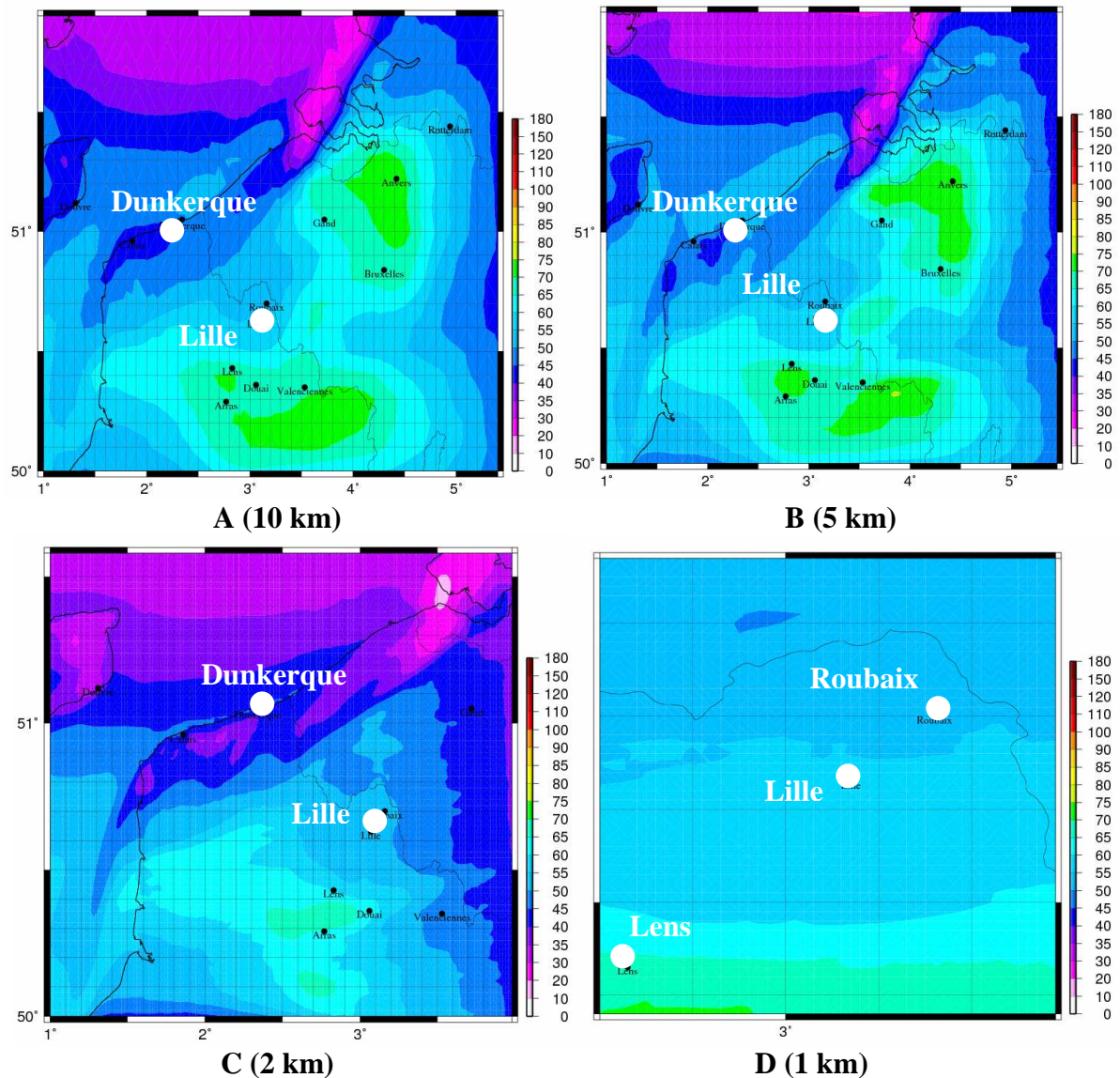


Figure 4.43 : Concentration en ozone (ppb) au niveau de la première couche verticale pour les domaines NPDC2 (A), NPDC2Fin (B), NPDC2Tfin (C) et NPDC3Lille (D), le 18/07/06 à 16h UTC.

#### 4.1.7.2. Influence de la résolution des données météorologiques

De manière similaire, l'influence de la résolution des données météorologiques issues du modèle MM5 sur les concentrations en  $O_3$  et  $PM_{10}$  ainsi que la température et la vitesse du vent pour une station côtière a été évaluée. Le domaine utilisé est NPDC3DK.

La Figure 4.44 décrit l'évolution temporelle des concentrations en ozone pour la période du 1<sup>er</sup> au 15 juillet 2006 en fonction de la résolution météorologique. Trois domaines météorologiques sont utilisés : DOM 2, 3 et 4. Ils correspondent aux résolutions 9, 3 et 1 km respectivement. Les courbes des DOM 3 et 4 sont confondues. Une différence notable est constatée entre le domaine de résolution large (9 km) et les domaines de résolutions fines (3 et 1 km).

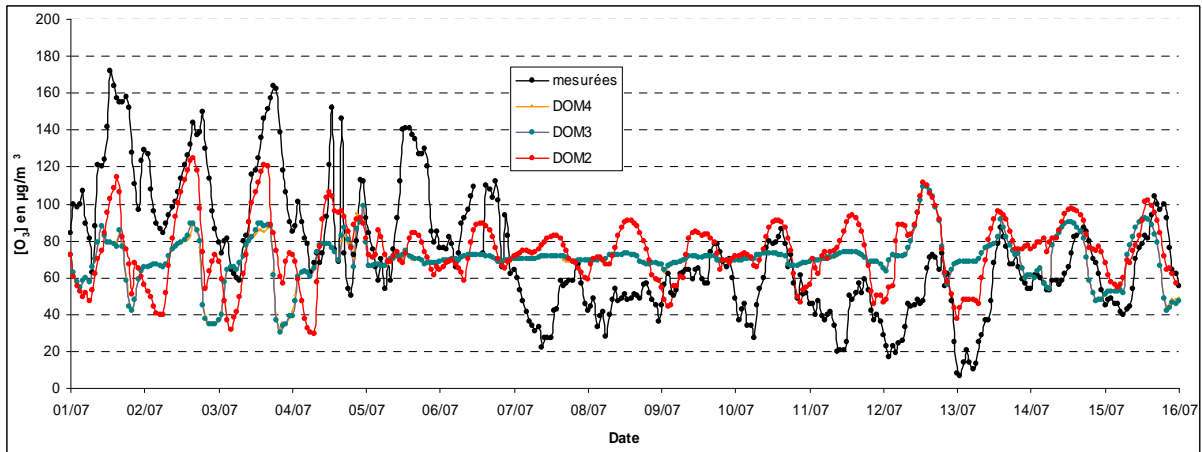


Figure 4.44 : Evolution de la concentration en ozone en fonction de trois résolutions des données météorologiques pour la période du 1<sup>er</sup> au 15 juillet 2006 à la station Outreau (50,69°N ; 1,59°E). DOM2 (9 km), DOM3 (3 km), DOM4 (1 km).

Le Tableau 4.13 permet de confirmer que les données météorologiques de résolution 9 km sont les plus adaptées pour la modélisation de l’ozone sur la zone de Dunkerque. En effet, pour une résolution de MM5 inférieure, le système n’est pas capable de simuler le cycle journalier de l’ozone. De plus pour l’ozone, à partir de 3 km de résolution, l’augmentation de celle-ci, n’a pas d’effet sur la performance du système.

Tableau 4.13 : Indices statistiques calculés pour les concentrations en ozone avec les valeurs maximales horaires pour la période du 1 au 15 juillet 2006 à la station Outreau (50,69°N ; 1,59°E) ( $n = 360$ ).

Résolution	9 km	3 km	1 km
<i>CC</i>	0,33 (0,64)	0,01(0,33)	0,01(0,33)
<i>NMSE</i>	0,19	0,26	0,26
<i>IA</i>	0,53	0,26	0,25
<i>BF</i>	+0,03	-0,03	-0,03

La Figure 4.45 présente l’évolution temporelle des concentrations en  $PM_{10}$  pour la période du 1<sup>er</sup> au 15 juillet 2006 en fonction de la résolution des données météorologiques. De manière similaire, les courbes des DOM 3 et 4 sont confondues. A l’inverse, les données dynamiques issues des résolutions les plus fines (3 ou 1 km) produisent les meilleurs résultats pour les  $PM_{10}$  (Tableau 4.14). Cependant, on constate que le *BF* du DOM2 est plus proche de 0 (-0,05) que celui du DOM3 et du DOM4 (-0,25). Ceci résulte du fait que le DOM2 surestime largement les concentrations mesurées ( $60 \mu\text{g}/\text{m}^3$  en moyenne) les 7 et 09/07 comparé au DOM3 et 4 ( $10 \mu\text{g}/\text{m}^3$  en moyenne). Lors de la modélisation des  $PM_{10}$ , une résolution des données météorologiques de 3 km minimum est donc recommandée.

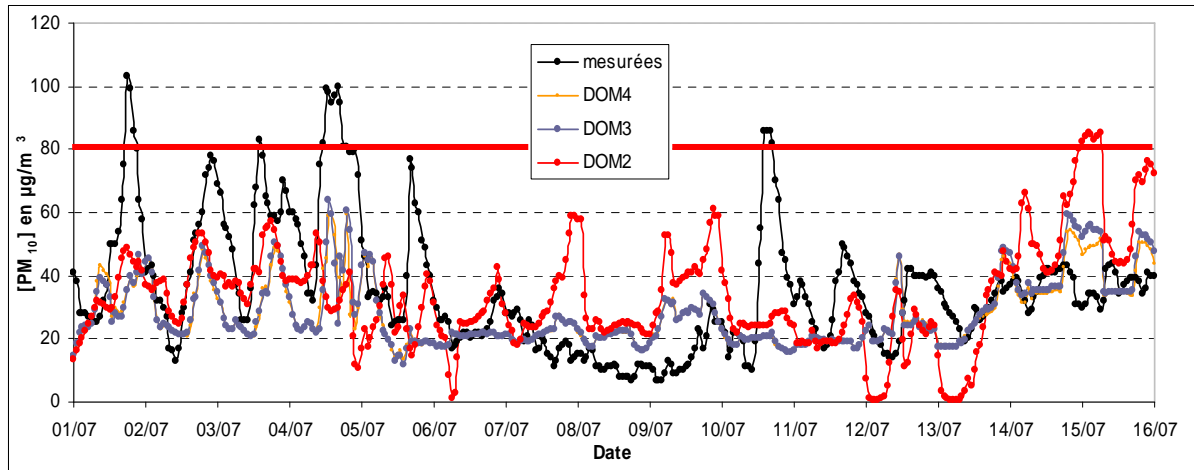


Figure 4.45 : Evolution de la concentration en PM<sub>10</sub> en fonction de trois résolutions des données météorologiques pour la période du 1<sup>er</sup> au 15 juillet 2006 à la station de Gravelines (50,98°N ; 2,14°E).

Tableau 4.14 : Indices statistiques calculés pour les concentrations en PM<sub>10</sub> avec les valeurs maximales horaires pour la période du 1<sup>er</sup> au 15 juillet 2006 à la station de Gravelines (50,98°N ; 2,14°E) ( $n = 360$ ).

Résolution MM5	9 km - DOM2	3 km - DOM3	1 km - DOM4
CC	0,18 (-0,21)	0,39(0,41)	0,39(0,42)
NMSE	0,51	0,47	0,49
IA	0,45	0,56	0,55
BF	-0,05	-0,24	-0,25

La Figure 4.46 présente l'évolution temporelle de la température pour la période du 1<sup>er</sup> au 15 juillet 2006 en fonction de la résolution des données météorologiques. Peu de différence est observée en fonction de la finesse du maillage (Tableau 4.15). Les trois types de résolution peuvent donc être employés. La résolution du DOM2 (9 x 9 km<sup>2</sup>) est recommandée afin d'économiser le temps de calcul.

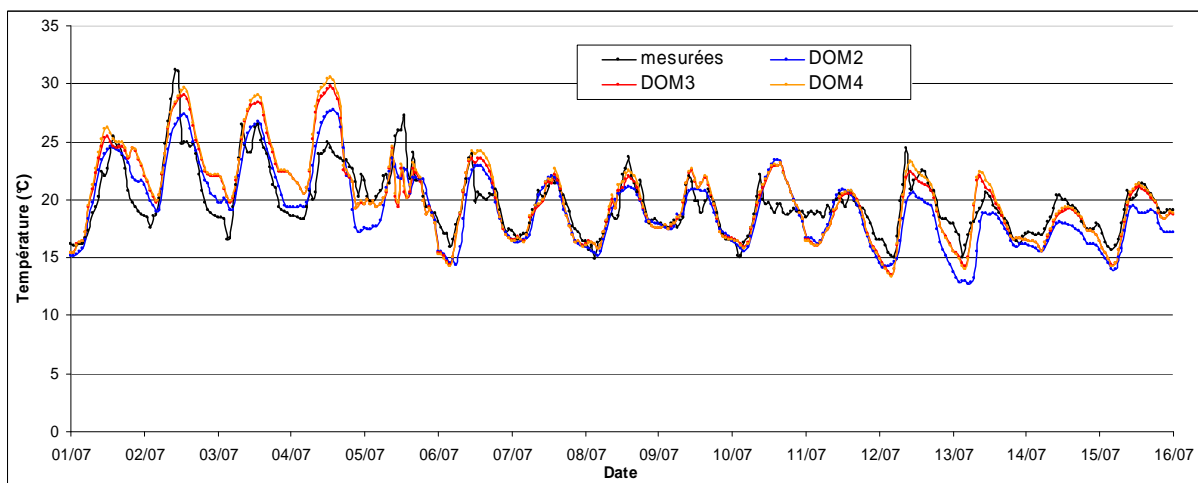


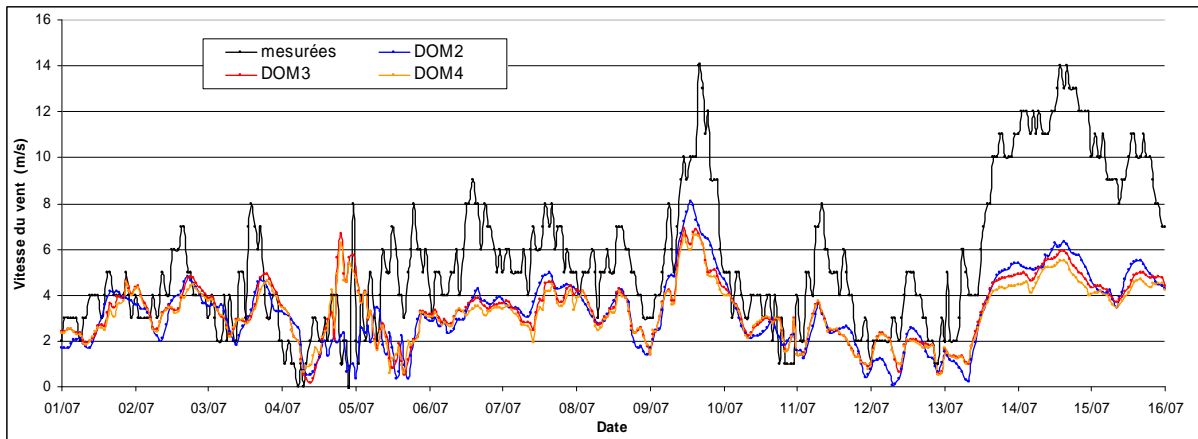
Figure 4.46 : Evolution de la température en fonction de trois résolutions des données météorologiques pour la période du 1<sup>er</sup> au 15 juillet 2006 à la station de Dunkerque (51,03°N ; 2,33°E).



**Tableau 4.15 : Indices statistiques calculés avec les valeurs maximales horaires de la température pour la période du 1<sup>er</sup> au 15 juillet 2006 à la station de Dunkerque (51,03°N ; 2,33°E) (n = 360).**

Résolution MM5	9 km -DOM2	3 km -DOM3	1 km -DOM4
CC	0,83	0,83	0,84
NMSE	0,01	0,01	0,01
IA	0,90	0,89	0,89
BF	-0,02	0,02	0,03

La Figure 4.47 détaille l'évolution temporelle de la vitesse du vent pour la période du 1 au 15 juillet 2006 en fonction de la résolution des données météorologiques. La différence notable entre les trois types de résolutions concerne le pic du 04/07 vers 22h UTC (8 m/s). Il est reproduit par le DOM 3 et 4 mais de manière légèrement décalée dans le temps. Le DOM2 quant à lui simule une valeur proche de 0. Les indices statistiques (Tableau 4.16) indiquent une sous estimation des valeurs mesurées (BF = -0,50 en moyenne) pour les trois domaines.



**Figure 4.47 : Evolution de la vitesse du vent en fonction de trois résolutions des données météorologiques pour la période du 1 au 15 juillet 2006 à la station de Dunkerque (51,03°N ; 2,33°E).**

**Tableau 4.16 : Indices statistiques calculés avec les valeurs maximales horaires de la vitesse du vent pour la période du 1 au 15 juillet 2006 à la station de Dunkerque (51,03°N ; 2,33°E) (n = 360).**

Résolution	9 km	3 km	1 km
CC	0,78	0,68	0,65
NMSE	0,74	0,80	0,82
IA	0,65	0,59	0,55
BF	-0,51	-0,48	-0,47

La Figure 4.48 représente l'évolution temporelle de l'humidité relative pour la période du 1<sup>er</sup> au 15 juillet 2006 en fonction de la résolution des données météorologiques. Nous observons que les données issues des résolutions DOM3 et DOM4 sont très proches. La résolution DOM2 (CC = 0,75) est celle qui reproduit le mieux les données mesurées. Les biais négatifs des valeurs observées avec

les résolutions DOM3 et 4 traduisent la tendance de MM5 à sous-estimer l'humidité relative (Tableau 4.17).

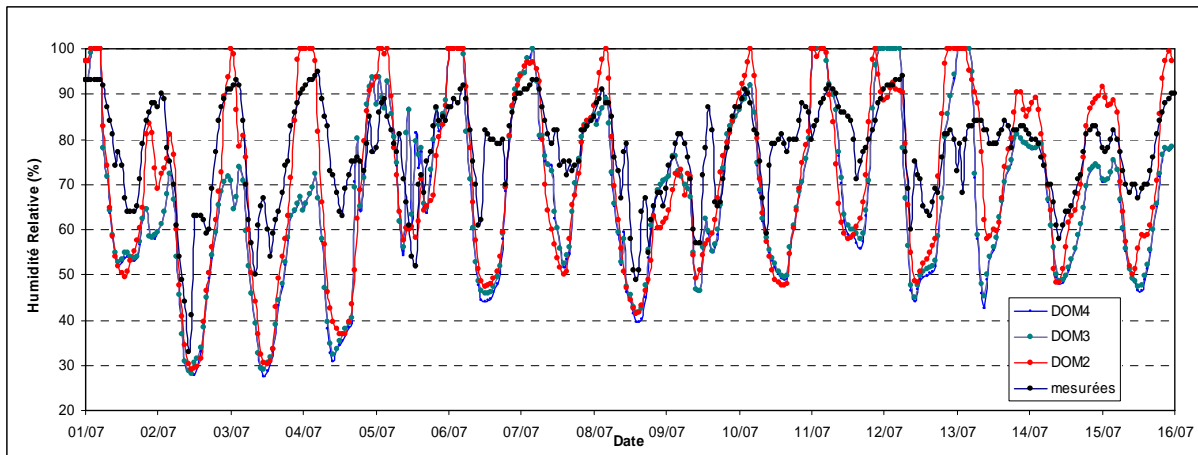


Figure 4.48 : Evolution de l'humidité relative en fonction de trois résolutions des données météorologiques pour la période du 1<sup>er</sup> au 15 juillet 2006 à la station de Dunkerque (51,03°N ; 2,33°E).

Tableau 4.17 : Indices statistiques calculé avec les valeurs maximales horaires l'humidité relative pour la période du 1<sup>er</sup> au 15 juillet 2006 à la station de Dunkerque (51,03°N ; 2,33°E) ( $n = 360$ ).

Résolution	9 km	3 km	1 km
CC	0,75	0,69	0,68
NMSE	0,04	0,06	0,06
IA	0,76	0,70	0,69
BF	-0,08	-0,13	-0,14

La Figure 4.49 représente l'évolution temporelle de la hauteur de la CLA pour la période du 1<sup>er</sup> au 15 juillet 2006 en fonction de la résolution des données météorologiques. On observe que les DOM3 et 4 calculent des hauteurs de couches limites supérieures à celles décrites par la résolution DOM2. La différence peut varier entre 1500 m (le 04/07) et quelques dizaines de mètres (le 10/07). On note qu'à partir du 06/07,  $h$  est relativement basse pour les résolutions les plus fines (DOM 3 et 4). Ces deux points constituent des pistes afin d'expliquer le fait que pour les domaines de résolution fine, le cycle journaliers de l'ozone n'est pas correctement reproduit (Figure 4.44). La hauteur de la CLA serait trop élevée et ne fluctuerait pas correctement au cours de la journée en fonction des conditions météorologiques. Les concentrations en ozone, très dépendantes de  $h$ , varient donc peu en fonction du temps. Ces conclusions doivent être confirmées par l'exploitation d'autres paramètres micro-dynamique de la CLA et par des mesures de  $h$ .

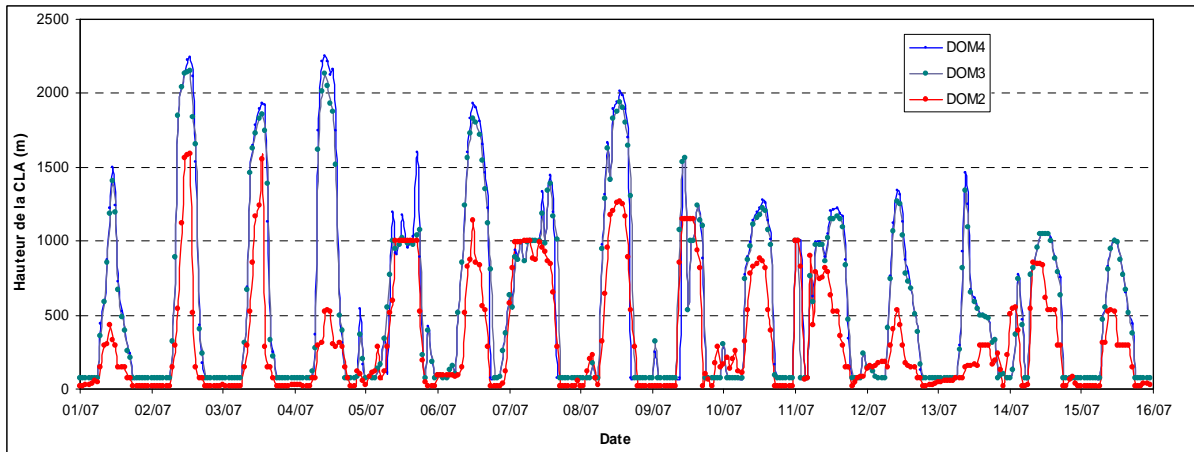


Figure 4.49 : Evolution de la hauteur de la CLA en fonction de trois résolutions des données météorologiques pour la période du 1<sup>er</sup> au 15 juillet 2006 à la station de Dunkerque (51,03°N ; 2,33°E).

#### 4.1.7.3. Conclusion

L'influence de la résolution des domaines et des données météorologiques sur la qualité des résultats issus de la modélisation ont été testées.

Pour des domaines de résolution inférieure à 5 km, les données en ozone sont sous-estimées. Pour les PM<sub>10</sub>, la performance du système augmente plus la résolution est fine. Une résolution de 5 km minimum est recommandée dans les deux cas.

Une résolution des données météorologiques inférieures à 9 km, détériore la capacité du système à reproduire le cycle journalier de l'ozone. En revanche, pour les PM<sub>10</sub> les résolutions les plus fines (3 et 1 km) donnent les meilleurs résultats. Nous recommandons, une résolution de 9 km au maximum pour la modélisation de l'ozone et de 3 km minimum pour les PM<sub>10</sub>.

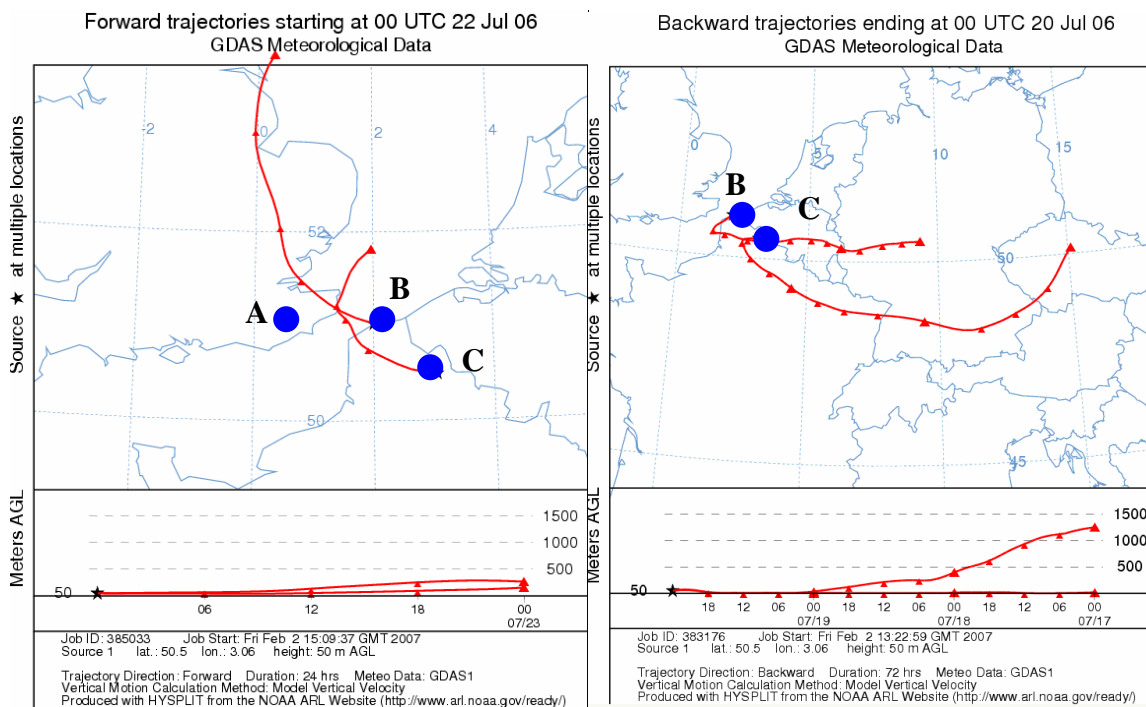
## 4.2. Etude B : Origine de la pollution en ozone et PM<sub>10</sub> sur la région NPDC en juillet 2006.

### 4.2.1. Origine de la masse d'air

Nous utilisons le modèle HYSPLIT disponible en ligne afin de tracer les trajectoires en mode direct et indirect (rétro-trajectoire) au niveau de Lille et de Dunkerque [Draxler et Rolph, 2003]. Le principe de ce modèle est identique à FLEXPART à la différence que seul le transport d'une parcelle d'air est considéré. Il n'y a pas de module chimique. Les données dynamiques proviennent dans notre cas du modèle global *GFS*. En mode direct, les champs de vents sont utilisés pour advecter la parcelle d'air. En mode indirect les champs de vents servent à trouver la position originelle des parcelles d'air par advection en arrière dans le temps (inversion des champs de vents). Les rétro-trajectoires issues du modèle « *HYSPLIT* » confirment l'origine continentale des masses d'air localisées à Lille et à Dunkerque, le 20/07/06 00h UTC. Durant la période d'advection des parcelles d'air (du 17/07/06 au

20/07/06) le flux était orienté au nord-est (Figure 4.50). Les trajectoires en mode direct permettent d'observer que les masses d'air localisées à Lille ou Dunkerque durant la journée du 22/07/06 continuent leur trajet vers le nord-est de l'Angleterre.

L'utilisation d'HYSPLIT a permis de rendre compte du transport de masse d'air depuis l'Europe centrale vers le nord de la France durant la période du 17/07 au 20/07/2006. D'autres simulation avec HYSPLIT montrent que cette situation se répète au mois de juillet 2006 lorsque le flux est orienté à l'est ou au nord-est. On peut alors supposer qu'une partie de la pollution (O<sub>3</sub> et particules) mesurée en région NPDC durant le mois de juillet 2006 à une origine trans-frontalière. Afin de confirmer cette hypothèse, les techniques du *nesting* et de la réduction des émissions seront utilisées dans nos prochaines simulations.



**Figure 4.50 : Trajectoire en mode direct (à gauche) du 23/07/06 à 00h UTC au 24/07/06 à 00h UTC et en mode indirect (à droite) commençant le 20/07/06 à 00h UTC et finissant le 17/07/06 à 00h UTC pour les villes de Dunkerque et Lille. A = Herstmonceux, B = Dunkerque et C = Lille.**

#### 4.2.2. Utilisation du *nesting* durant le mois de juillet 2006 pour le domaine NPDC1

Lors des précédentes simulations avec NPDC2Fin en juillet 2006, les données issues des modèles climatologiques mensuelles LMDZ-INCA pour les gaz et GOCART pour les particules étaient utilisées comme conditions initiales et aux limites du domaine NPDC2Fin. Ces données ne peuvent reproduire les variations journalières de concentration des polluants advectés aux limites du domaine. Afin de remédier à ce problème, la technique du *nesting* est utilisée. Elle consiste à modéliser un domaine d'échelle continentale englobant un domaine d'étude plus petit. Ainsi, le grand

domaine peut fournir au petit domaine des conditions limites plus réalistes prenant en compte les variations horaires des concentrations en polluants. Plusieurs configurations ont été testées en faisant varier la résolution des données météorologiques et des domaines CHIMERE. La configuration retenue à l'heure actuelle est un domaine d'échelle continentale nommé EUR2 (50 x 50 km<sup>2</sup>) associé au domaine d'échelle régionale NPDC1 (30 x 30 km<sup>2</sup>) (Tableau 4.18). Géographiquement EUR2 et NPDC1 s'apparentent respectivement aux domaines EUR1 et NPDC1 décrits dans le chapitre 3 de ce mémoire.

**Tableau 4.18 Caractéristiques des deux domaines CHIMERE utilisés.**

DOMAINE	Nx	Ny	Dx	Dy	Xmin	Ymin
EUR2	40	24	0,5	0,5	-8,00	43,5
NPDC1	30	25	0,3	0,3	-1,00	46

Nous présentons les résultats différentes stations du réseau Atmo-NPDC. Une station par sous-zone géographique de la région NPDC est sélectionnée afin d'effectuer une analyse statistique objective sur l'ensemble de la région NPDC. Les données sont extraites des modélisations du domaine NPDC1 (30 x 30 km<sup>2</sup>) pour le mois de juillet 2006.

Le Tableau 4.19 regroupe les indices statistiques calculés pour l'ensemble des stations du réseau Atmo-NPDC mesurant les concentrations moyennes horaires en ozone. Nous constatons d'une manière générale une surestimation des concentrations horaires moyennes mesurées en ozone par le système MM5-CHIMERE. Peu de différences sont observées entre les stations urbaines et périurbaines terrestres. Les *BF* les plus faibles sont observés pour les villes de Haumont (*BF* = 0,31) et de Douai (0,36) alors que les plus grands biais sont observés pour les stations côtières de Petite Synthe et de Sangatte (*BF* = 0,74 en moyenne).

Le Tableau 4.20 et le Tableau 4.21 permettent d'apprécier la performance du système pour le domaine NPDC1 avec l'utilisation du *nesting* pour les PM<sub>10</sub> et les PM<sub>2,5</sub> respectivement. L'ensemble des quatre indices statiques indique une surestimation des concentrations moyennes horaires mesurées. La performance du système diffère faiblement en fonction des types de stations.

**Tableau 4.19 : Indices statistiques calculés pour O<sub>3</sub> pour différentes stations de la région NPDC durant le mois de juillet 2006 (n = 720) : domaine NPDC1 - *nesting* – EMEP.**

Station	Type	CC	NMSE	IA	BF
<b>Petite Synthe</b>	<b>périurbain</b>	<b>0,34</b>	<b>0,36</b>	<b>0,48</b>	<b>0,72</b>
Haumont	périurbain	0,61	0,13	0,71	0,31
Lesquin	périurbain	0,64	0,18	0,70	0,40
Halluin	périurbain	0,65	0,19	0,71	0,42
Noeux	périurbain	0,60	0,22	0,64	0,50
<b>Outreau</b>	<b>périurbain</b>	<b>0,33</b>	<b>0,25</b>	<b>0,49</b>	<b>0,54</b>
<b>Sangatte</b>	<b>périurbain</b>	<b>0,31</b>	<b>0,35</b>	<b>0,41</b>	<b>0,76</b>
Oignies	périurbain	0,62	0,20	0,67	0,46
Salomé	périurbain	0,66	0,19	0,70	0,45
Guesnai	périurbain	0,63	0,19	0,69	0,43
Armentières	urbain	0,55	0,20	0,66	0,41
St Amand	urbain	0,63	0,19	0,70	0,42
Arras	urbain	0,58	0,16	0,67	0,39
Cambrai	urbain	0,62	0,18	0,67	0,43
Douai	urbain	0,62	0,17	0,71	0,36

**Tableau 4.20 : Indices statistiques calculés pour PM<sub>10</sub> pour différentes stations de la région NPDC durant le mois de juillet 2006 (n = 720) : domaine NPDC1 - *nesting* – EMEP.**

Station	Type	CC	NMSE	IA	BF
Salomé	périurbain	0,30	0,40	0,34	0,75
Cambrai	urbain	0,22	0,43	0,30	0,83
Wazier	urbain	0,33	0,41	0,35	0,81
<b>Petite Synthe</b>	<b>urbain</b>	<b>0,04</b>	<b>0,46</b>	<b>0,35</b>	<b>0,43</b>
Maubeuge	urbain	0,09	0,50	0,25	0,77
Lille Faidherbe	urbain	0,28	0,38	0,34	0,74
Tourcoing	urbain	0,31	0,35	0,41	0,67
Lomme	urbain	0,33	0,37	0,41	0,71
Valenciennes	urbain	0,26	0,36	0,37	0,68
Arras	urbain	0,25	0,40	0,40	0,70
Lens	urbain	0,41	0,38	0,38	0,76
Béthune	urbain	0,50	0,48	0,35	1,00
<b>Boulogne</b>	<b>trafic</b>	<b>0,30</b>	<b>0,38</b>	<b>0,45</b>	<b>0,49</b>
<b>Calais</b>	<b>industriel</b>	<b>0,30</b>	<b>0,43</b>	<b>0,38</b>	<b>0,65</b>

**Tableau 4.21 : Indices statistiques calculés pour PM<sub>2,5</sub> pour différentes stations de la région NPDC durant le mois de juillet 2006 (n = 720) : domaine NPDC1 - *nesting* - EMEP.**

Station	Type	CC	NMSE	IA	BF
Douai	trafic	0,37	0,43	0,35	0,87
<b>Dunkerque</b>	<b>trafic</b>	<b>0,11</b>	<b>0,41</b>	<b>0,34</b>	<b>0,44</b>
<b>Petite Synthe</b>	<b>périurbain</b>	<b>0,16</b>	<b>0,43</b>	<b>0,40</b>	<b>0,43</b>
<b>Sangatte</b>	<b>périurbain</b>	<b>0,20</b>	<b>0,42</b>	<b>0,38</b>	<b>0,54</b>
Lille Faidherbe	urbain	0,39	0,44	0,36	0,86
Valenciennes	trafic	0,29	0,44	0,38	0,82
Béthune	trafic	0,32	0,42	0,35	0,78

En comparaison des modélisations sans *nesting*, nous observons avec l'utilisation du *nesting*, une inversion de la tendance qui consistait à sous-estimer les concentrations mesurées en O<sub>3</sub> et en PM<sub>10</sub>. Les résultats statistiques indiquent notamment un *BF* positif variant entre 0,31 (Haumont) et 0,76 (Sangatte) pour l'ozone, 0,49 (Boulogne) et 1,00 (Béthune) pour les PM<sub>10</sub> et 0,43 (Petite Synthe) et 0,87 (Douai) pour les PM<sub>2,5</sub>. L'analyse démontre que les concentrations de polluants aux limites du domaine ont une forte influence sur les niveaux des concentrations moyennes horaires calculées pour

chaque maille de la grille. Prenons l'exemple, de Lesquin (O<sub>3</sub>) et de Salomé (PM<sub>10</sub>), deux stations représentatives des concentrations périurbaines de l'agglomération de Lille. Les concentrations calculées avec *nesting* augmentent de 30 % à 90 % impliquant une bonne estimation de la majorité des pointes d'ozone à Lesquin (180 à 210 µg/m<sup>3</sup>). Les maxima les plus faibles (80 µg/m<sup>3</sup>) sont en revanche surestimés (Figure 4.11).

Pour les pics d'ozone les 4, 18, 19, 25 et 26/07 le biais entre valeurs mesurées et calculées est quasi nul ou de quelques µg/m<sup>3</sup> et la performance du système MM5-CHIMERE est très satisfaisante. La différence de concentration observée entre les données issues de NPDC1 utilisant ou non le *nesting* permet de supposer la présence d'une forte composante régionale pour chacune des pointes d'ozone évoquées précédemment. Ceci est en accord avec la tendance donnée par la méthode de l'étude de l'âge de la masse d'air évoqué lors du paragraphe 4.1.6.7. Ce constat n'est en revanche pas valable pour la pollution particulaire où l'utilisation du *nesting* engendre une surestimation (d'un facteur 2 à 4) trop importante des concentrations calculées (Figure 4.52).

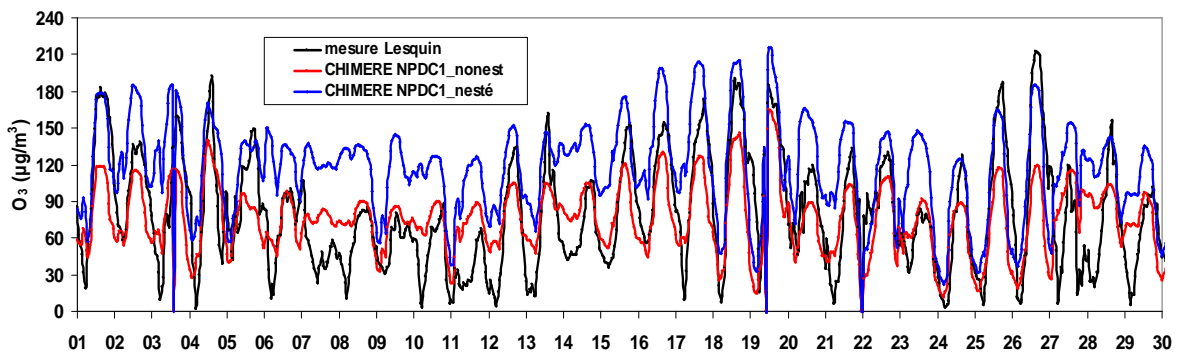


Figure 4.51 : Evolution des concentrations en ozone mesurées et calculées pour NPDC1 avec et sans *nesting* durant le mois de juillet 2006 à la station de Lesquin.

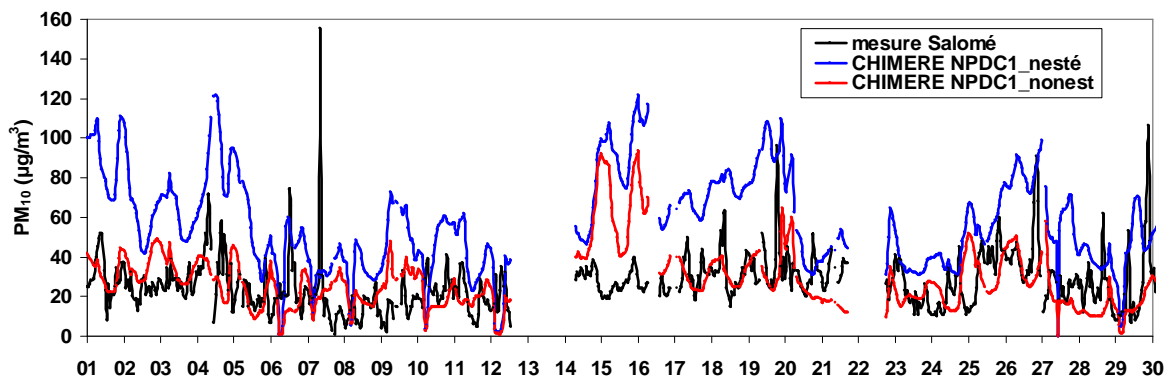


Figure 4.52 : Evolution des concentrations en PM<sub>10</sub> mesurées et calculées pour NPDC1 avec et sans *nesting* durant le mois de juillet 2006 à la station de Salomé.

La surestimation des données mesurées peut être expliquée par deux phénomènes. Nous avons remarqué au cours de plusieurs tests de simulations que l'influence des polluants advectés est trop

importante si le domaine nesté possède une superficie trop restreinte. Le domaine nesté ne doit pas être confiné uniquement à la région d'étude (NPDC2). Nous recommandons l'utilisation d'un domaine de type NPDC1 pour simuler correctement les pointes d'ozones sur la région NPDC. Afin d'atténuer l'influence du domaine continental sur le domaine régional, nous avons étendu la superficie du domaine NPDC2. Une seconde explication concerne la sous-estimation de la vitesse du vent par MM5 durant certaines périodes de juillet 2006, cela pourrait engendrer une accumulation des concentrations en O<sub>3</sub> et en PM<sub>10</sub> au sein des mailles expliquant ainsi les fortes surestimations constatées sur la région NPDC.

#### **4.2.3. Analyse de la différence entre les concentrations en ozone modélisées avec et sans émissions**

Afin d'évaluer précisément l'influence de l'advection des polluants sur les niveaux de concentrations calculées par le système, nous effectuons une simulation avec le domaine NPDC1 en supprimant les émissions anthropiques et biogènes. La différence de concentration entre les données calculées avec et sans émissions permet de quantifier la part de la composante non-locale de l'ozone rencontré en juillet 2006 sur la région NPDC.

La Figure 4.53 et la Figure 4.54 illustrent l'évolution temporelle des concentrations en ozone mesurées et issues du domaine NPDC1 nesté et sans émissions durant le mois de juillet 2006 pour la station périurbaine de Lesquin (O<sub>3</sub>) et de Salomé (PM<sub>10</sub>) respectivement. Bien que certains maxima journaliers soient surestimés, les pics les plus intenses (les 1, 4, 17, 18, 19, 25, 26/07) sont très correctement reproduits par le système pour l'ozone. Pour les PM<sub>10</sub>, le domaine nesté surestime les concentrations mesurées comme décrit précédemment.

La Figure 4.55 et la Figure 4.56 permettent de visualiser la différence entre les concentrations (moyenne horaire) issues du domaine NPDC1 avec et sans utilisation des émissions pour l'ozone et les PM<sub>10</sub> respectivement. Le biais est positif lorsque les concentrations calculées avec le cadastre sont supérieures à celles calculées sans les émissions. Nous observons un biais positif lors des forts pics d'ozone : période du 1 au 4 (maximum de 185 µg/m<sup>3</sup>), période du 12 au 18 (maximum de 183 µg/m<sup>3</sup>) et période du 25 au 26 juillet 2006 (maximum de 210 µg/m<sup>3</sup>). La présence de ces périodes a été précédemment soulignée. Le biais moyenné sur l'ensemble des stations de la région NPDC, varie entre 3 et 30 µg/m<sup>3</sup>. Cette différence peut être assimilée à la composante locale des concentrations en ozone observées en région NPDC. Les résultats des simulations, nous indiquent que lors des fortes pointes d'ozone (> 170 µg/m<sup>3</sup>), 80 à 90 % en moyenne de l'ozone est d'origine extérieure. Nous pouvons conclure que les dépassements des valeurs limites en ozone sur la région NPDC ne se produiraient pas si la production en ozone était uniquement locale. On peut ainsi préciser qu'une réduction totale des émissions locales de la région NPDC n'induirait qu'une baisse de 12 µg/m<sup>3</sup> en moyenne pour les pics d'ozone les plus intenses.



Pour les périodes de concentrations inférieures à  $100 \mu\text{g}/\text{m}^3$ , les biais sont négatifs (de  $-20$  à  $-75 \mu\text{g}/\text{m}^3$ ). Les biais les plus faibles sont rencontrés en période nocturne. Cette particularité est expliquée par le fait que la nuit, en l'absence d'activité photochimique, la titration de l' $\text{O}_3$  par les  $\text{NO}_x$  est un mécanisme prépondérant dans la destruction de l'ozone. Or, il est logiquement plus intense lorsque les émissions en  $\text{NO}_x$  du cadastre EMEP sont présentes en donnée d'entrée expliquant ainsi le biais négatif.

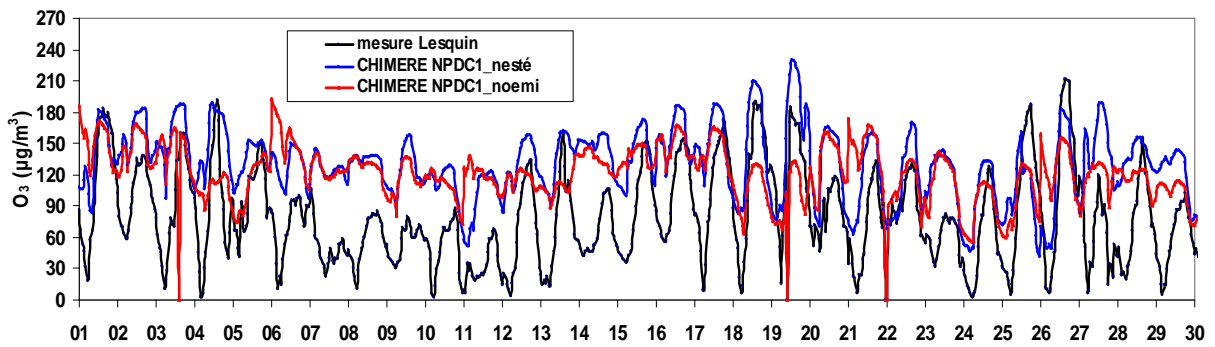


Figure 4.53 : Evolution temporelle des concentrations en ozone mesurées et issues du domaine NPDC1 nesté et sans émission durant le mois de juillet 2006 pour la station périurbaine de Lesquin.

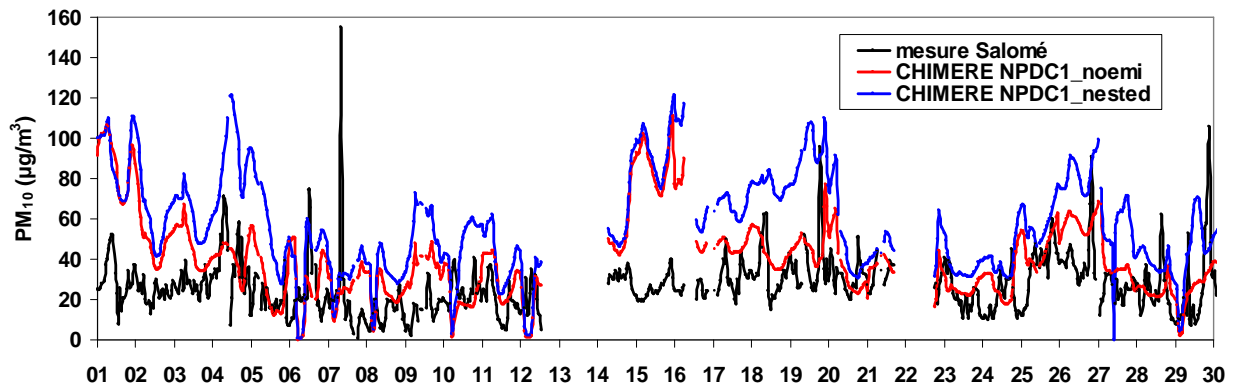
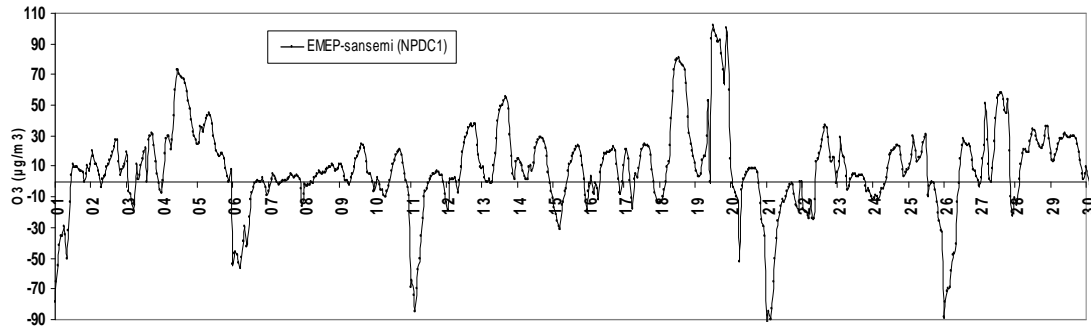
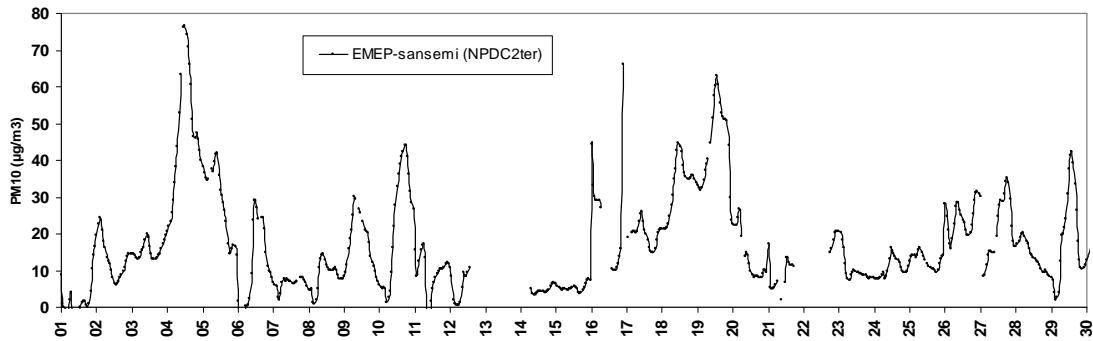


Figure 4.54 : Evolution temporelle des concentrations en  $\text{PM}_{10}$  mesurées et issues du domaine NPDC1 nesté et sans émission durant le mois de juillet 2006 pour la station urbaine de Salomé.

Pour les  $\text{PM}_{10}$ , on observe que les données sont toujours surestimées lors de la simulation sans émission. Le biais est strictement positif et varie entre 0 et  $55 \mu\text{g}/\text{m}^3$ . Cependant ce biais est calculé à partir de données qui surestiment largement les concentrations calculées. Ainsi, il est difficile d'estimer définitivement la part locale des émissions influant les concentrations mesurées. Néanmoins, les simulations nous indiquent que pour les pics correctement reproduits le 19 et le 26 juillet, 10 % en moyenne des concentrations en  $\text{PM}_{10}$  observées à Lille sont d'origine locale. La majorité de la pollution en  $\text{PM}_{10}$  est d'origine extérieure à la région NPDC. Contrairement à l'ozone, la valeur de la contribution locale n'est pas proportionnelle à l'intensité du pic. Dans le chapitre 5, nous utiliserons la technique des rétro-trajectoires avec le système MM5-FLEXPART afin d'évaluer l'origine de deux épisodes de pollution particulaire durant l'année 2007.



**Figure 4.55 : Différence de concentrations en ozone issues du domaine NPDC1 avec et sans utilisation des émissions durant le mois de juillet 2006 pour la station périurbaine de Lesquin.**



**Figure 4.56 : Différence de concentrations en PM<sub>10</sub> issues du domaine NPDC1 avec et sans utilisation des émissions durant le mois de juillet 2006 moyennées la station périurbaine de Salomé.**

Afin de déterminer la part des émissions biogènes de celles anthropiques dans la production locale de l’ozone, nous avons effectué des simulations pour la même période que précédemment mais en annulant les émissions anthropiques uniquement. La Figure 4.57 permet de visualiser la différence entre les champs de concentration ( $\mu\text{g}/\text{m}^3$ ) en ozone, du domaine NPDC1, avec émissions (A), sans émissions anthropiques (B) et sans émissions anthropiques et biogènes (C) pour la journée du 18/07/06 à 12h UTC. Les plus fortes pointes d’ozone mesurées en région NPDC au cours du mois juillet 2006 ( $210 \mu\text{g}/\text{m}^3$  à Lesquin) ont eu lieu durant cette journée. La zone sud-est de la région (D) est la plus touchée par la pollution à l’ozone avec des concentrations calculées atteignant 200 à  $210 \mu\text{g}/\text{m}^3$ . Lorsque les émissions anthropiques sont supprimées les concentrations de cette même zone (E) sont diminuées de 1 à  $20 \mu\text{g}/\text{m}^3$  (valeurs comprises entre 190 et  $200 \mu\text{g}/\text{m}^3$ ). Enfin, lorsque l’ensemble des émissions est nul, les seuils de recommandations ne sont plus dépassés (valeurs comprises entre 160 et  $180 \mu\text{g}/\text{m}^3$ ) mis à part sur l’extrême sud-est de la région. Ainsi les simulations nous enseignent que durant la journée du 18/07/06, les niveaux de concentration en ozone au niveau de la région sont influencés à part égale par les émissions anthropiques et les émissions biogènes locales. Elles confirment également qu’environ 80 % de l’ozone mesurée en région NPDC est d’origine extérieure. Les conditions décrites ci-dessus sont représentatives de l’évolution des concentrations d’ozone lors des journées où les plus fortes pointes d’ozone (les 1, 4, 17, 18, 19, 25, 26/07) sont observées en région NPDC en juillet 2006.

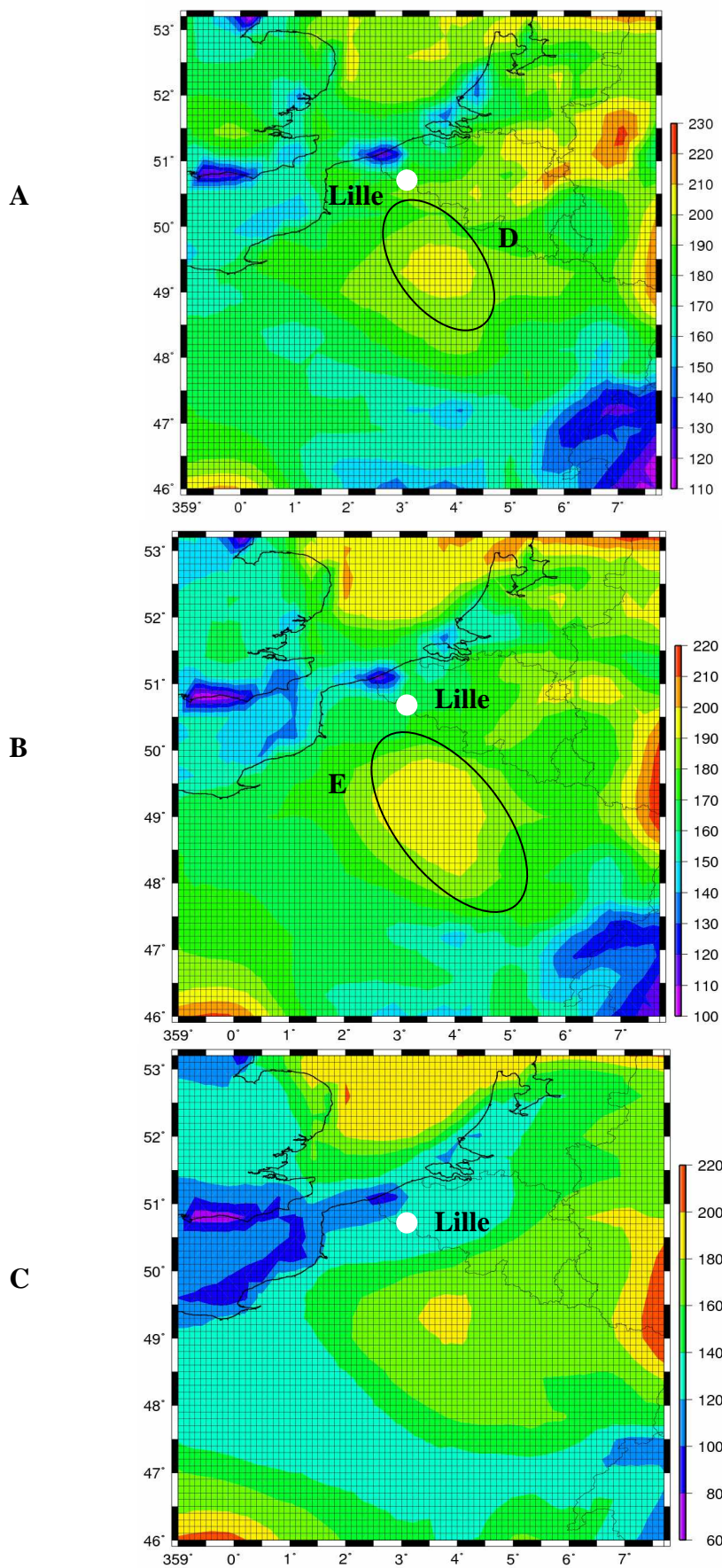


Figure 4.57: Champs de concentration en ozone ( $\mu\text{g}/\text{m}^3$ ) du domaine NPDC1 avec émissions (A), sans émissions anthropiques (B) et sans émissions anthropiques et biogènes (C) pour la journée du 18/07/06 à 12h UTC.

La Figure 4.58 permet de visualiser la différence entre les champs de concentrations ( $\mu\text{g}/\text{m}^3$ ) en  $\text{PM}_{10}$ , du domaine NPDC1, avec émissions (A) et sans émissions (B) pour la journée du 18/07/06 à 12h UTC. Dans ce cas, très peu de différence est observée entre les résultats issus de la suppression totale des émissions et ceux produits sans les émissions anthropiques uniquement (deux cartes seulement). Ceci nous indique que la majorité dans aérosols observés en région NPDC est d'origine anthropique. On note une zone de forte concentration au niveau de la baie de Somme (C) sans doute liée à une production locale (entre 100 et 120  $\mu\text{g}/\text{m}^3$ ). La suppression totale des émissions de la région NPDC permet de diminuer entre 40 et 50  $\mu\text{g}/\text{m}^3$  en moyenne les concentrations en  $\text{PM}_{10}$  au niveau des zones C et D. Cependant la baisse est moins marquée que pour l'ozone. Ainsi, d'après les simulations, la production locale en  $\text{PM}_{10}$  est essentiellement d'origine anthropique et l'apport extérieur à la région NPDC est assez variable selon les zones de la région.

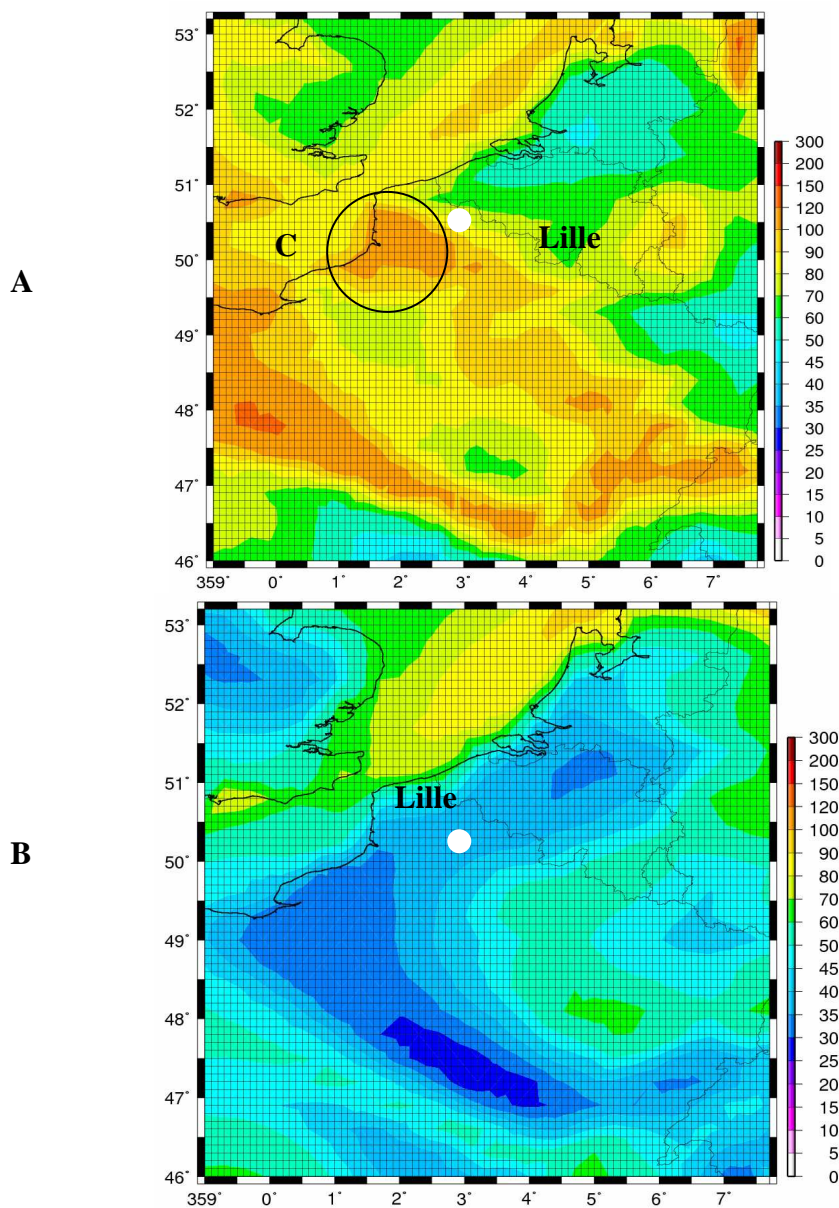


Figure 4.58: Champs de concentration en  $\text{PM}_{10}$  ( $\mu\text{g}/\text{m}^3$ ) du domaine NPDC1 avec émissions (A), sans émissions anthropiques (B) pour la journée du 18/07/06 à 12h UTC.

Afin de disposer d'une vision globale de l'influence de la suppression des émissions, l'Annexe D-4 présente le pourcentage d'ozone produit par les émissions anthropiques et biogènes de la région NPDC (courbes noires) d'une part et par les émissions anthropiques seules de la région NPDC (courbes bleues) d'autre part. Les données ont été calculées pour différentes stations urbaines et périurbaines réparties sur l'ensemble de la région NPDC. Les valeurs (%) sont calculées à partir des maxima journaliers du mois de juillet 2006 ( $n = 30$ ).

Pour l'ozone, nous observons que l'absence d'émissions au niveau de la région NPDC durant la période du 14 au 19 juillet, entraîne une réduction des concentrations en ozone variant de quelques % à près de 40 % pour les stations de Valenciennes, Petite Synthe ou Lesquin (courbes noires). Nous notons que plus l'intensité des pics est grande plus la réduction des concentrations en ozone est conséquente. Les courbes bleues permettent d'estimer qu'aux niveaux des stations de Lesquin et de Valenciennes, durant la même période, les émissions anthropiques contribuent en moyenne à 50% de la production d'ozone locale. L'influence anthropique est minimale au niveau de la station de Cambrai (33 % des émissions locales) et au niveau de la région NPDC les émissions biogènes sont prépondérantes dans la production d'ozone. Ainsi, la production d'ozone à proximités des grandes agglomérations est influencée préférentiellement par les émissions anthropiques. Pour les villes de plus faible superficie tel que Cambrai, la production d'ozone locale est influencée principalement par les émissions biogènes.

On note que lorsque les maxima ne sont pas très élevés ( $< 180 \mu\text{g}/\text{m}^3$ ) l'influence de la réduction des émissions reste limitée. Au niveau de la région NPDC l'influence extérieure est donc ressentie essentiellement lors des pointes d'ozones supérieures à  $180 \mu\text{g}/\text{m}^3$ .

### 4.3. Conclusion

La période de canicule en juillet 2006 a été sélectionnée afin d'étudier les concentrations en  $\text{O}_3$  et en  $\text{PM}_{10}$ .

Pour l'ozone, nous avons mis en évidence :

- une corrélation entre l'augmentation de la température et des concentrations moyennes horaires en ozone,
- une corrélation entre la diminution de l'humidité relative et l'augmentation des concentrations moyennes horaires en ozone,
- une corrélation entre la diminution de la vitesse du vent et l'augmentation des concentrations moyennes horaires en ozone,

- une corrélation entre les vents variants du nord-est au sud-est (en provenances de Belgique et d'Allemagne) et les fortes concentrations en ozone.

Nous avons également démontré, au niveau de Lille et Dunkerque, la bonne capacité du système MM5-CHIMERE à reproduire les concentrations moyennes horaires en ozone avec une tendance à sous-estimer les maxima journaliers les plus intenses.

L'utilisation du *nesting* a permis de mettre en évidence l'importante composante extérieure des fortes concentrations d'ozone observées durant les périodes du 1 au 4, du 12 au 18 et du 25 au 26 juillet 2006. La suppression des émissions indique quant à elle un apport extérieur à la région NPDC variant entre 80 et 90 % lors les pointes d'ozone maximales. Dans les 10 à 20 % d'ozone produit localement, les émissions anthropiques y contribuent de 25 à 50 % en fonction de la localisation des stations considérées. Enfin, nous concluons que les dépassements du seuil d'information pour l'ozone ( $180 \mu\text{g}/\text{m}^3$ ) observés en région NPDC durant le mois de juillet 2006 sont la conséquence de l'advection d'ozone en provenance de la Belgique et de l'Allemagne au niveau de la région.

Pour les  $\text{PM}_{10}$  aucune corrélation marquée n'a été observée entre les différents paramètres météorologiques mesurés et les maxima journaliers de  $\text{PM}_{10}$ .

MM5-CHIMERE éprouve des difficultés à reproduire les concentrations en  $\text{PM}_{10}$ . Il sous-estime les concentrations moyennes horaires et les maxima journaliers en  $\text{PM}_{10}$ . Deux principales explications sont retenues quant à la performance du système. Une mauvaise représentation des émissions particulaires dû à la résolution grossière du cadastre EMEP et la représentation partielle des processus microphysiques conduisant à la formation des AOS.

L'utilisation du cadastre régional engendre une légère sous-estimation des concentrations moyennes horaires calculées en  $\text{PM}_{10}$  par rapport à l'utilisation du cadastre EMEP. Le renseignement incomplet des émissions particulaires semble être la cause principale de cette mauvaise performance. L'intégration de la version 2005 du cadastre régional d'AtmoNPDC à CHIMERE permettra de vérifier cette hypothèse.

Au cours du dernier chapitre de ce mémoire, la technique des rétro-trajectoires multiples de particules est utilisée. Le système MM5-FLEXPART est employé. Nous présentons les résultats de deux études de cas pour des épisodes ayant eu lieu au printemps et durant l'hiver 2007. Enfin, une étude dynamique et chimique à l'échelle locale est réalisée au niveau de la région industrielle de Dunkerque.



## **CHAPITRE 5**

<p><b>APPLICATION DE POQAIR A LA ZONE INDUSTRIELLE DE DUNKERQUE</b></p>
---





## INTRODUCTION

La zone industrielle de Dunkerque fait l'objet d'une attention particulière du fait des nombreuses sources de pollution présentes sur la zone. Plusieurs projets visent à étudier et caractériser la pollution observée à proximité de Dunkerque (GIS IRENI<sup>1</sup> par exemple). Ce chapitre se divise en deux grandes parties.

La première partie s'intéresse à déterminer l'origine de deux épisodes de pollution particulaire particulièrement intenses durant l'année 2007. La première période A s'étend du 16 mars au 10 avril 2007 et la période B du 15 au 30 décembre 2007. Le système MM5-FLEXPART est utilisé afin de déterminer l'origine des deux événements.

Dans la seconde partie du chapitre, deux périodes de mesures réalisées par le Laboratoire de Physico-Chimie de l'Atmosphère au niveau de Dunkerque sont modélisées avec le système MM5-CHIMERE. La première période s'étend du 3 au 7 avril 2006 et la seconde du 1 au 15 mai 2006. Une attention particulière est donnée à l'évaluation de la reproduction des données dynamiques et des concentrations de quelques polluants en fonction de deux paramétrisations de la CLA au niveau de la zone côtière de Dunkerque. Les données sont extraites du domaine NPDC3DK sans l'utilisation du *nesting*.

### 5.1. Identification de l'origine de deux épisodes de pollution particulaire

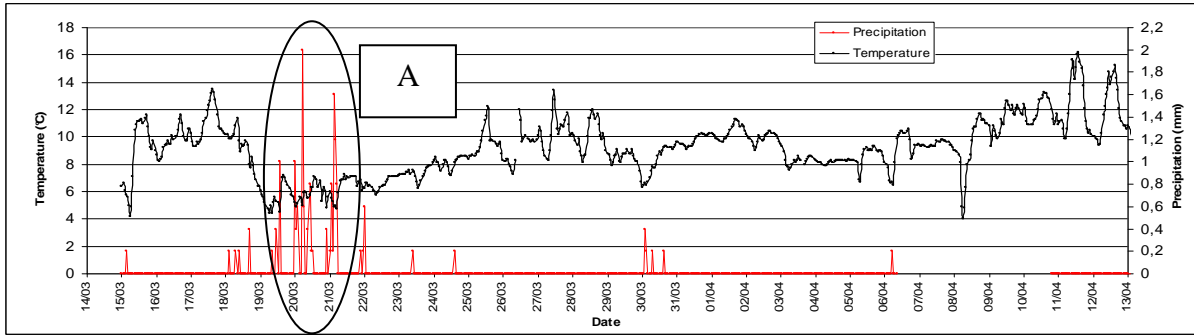
#### 5.1.1. Période A : Période du 16 mars au 10 avril 2007

##### 5.1.1.1. Analyse de la situation météorologique et de la performance de MM5

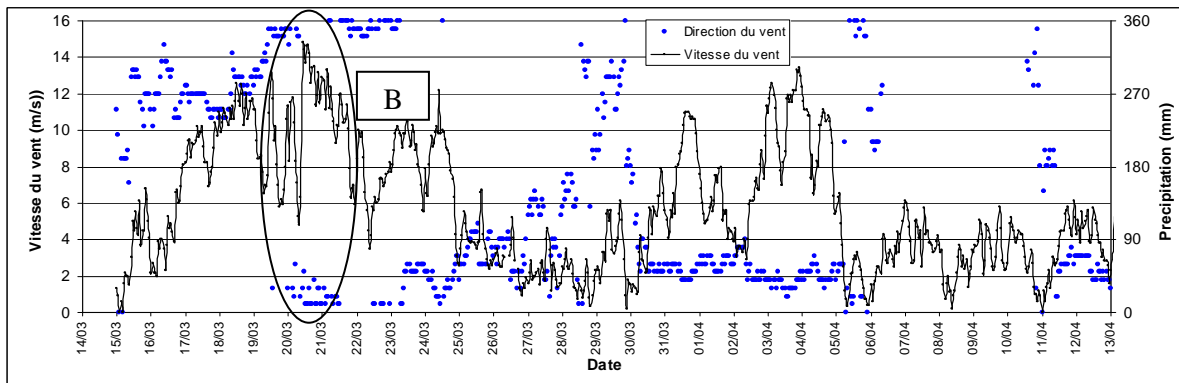
Au cours de la période, la température varie entre 4°C et 16°C, ce qui correspond aux normales saisonnières d'un début de printemps. On note cependant une période de basses températures (< 8°C) entre les 19 et 24 mars (Figure 5.1). Cette période est liée au passage d'un front froid actif caractérisé par des précipitations du 18 au 22 mars (5 mm) (zone A de la Figure 5.1) et des vents plus élevés (jusqu'à 15 m/s) (zone B de la Figure 5.2) de direction nord ou nord-est. On note également de faibles précipitations (< 2 mm) le 30/03 et le 06/04.

---

<sup>1</sup> <http://www.ireni.fr/>



**Figure 5.1 : Evolution temporelle des températures et des précipitations mesurées pour la période du 14 mars au 12 avril 2007 à la station de Dunkerque (51,03°N ; 2,33°E).**



**Figure 5.2 : Evolution temporelle des vitesses et des directions de vent mesurées pour la période du 14 mars au 12 avril 2007 à la station de Dunkerque (51,03°N ; 2,33°E).**

Les Figures 5.3, 5.4 et 5.5 présentent l'évolution temporelle, pour la période du 16 mars au 11 avril 2007, des valeurs mesurées et calculées pour la température, la vitesse du vent et l'humidité relative respectivement. On note l'absence de valeurs mesurées durant la journée du 01/04/07. Le système décrit très correctement la température pour les périodes du 18 au 25 mars et du 31 mars au 4 avril. Pour les deux autres périodes (26 – 30 mars et 5 – 10 avril), une sous-estimation des minima (de 1 à 6°C) est observée. La tendance de l'évolution temporelle de la vitesse du vent est bien reproduite mais les maxima supérieurs à 8 m/s sont sous-estimés de 3 à 6 m/s durant les périodes du 19 au 25 mars et du 2 au 5 avril (zone A et B respectivement sur la Figure 5.4). L'évolution temporelle de l'humidité relative est plutôt bien décrite. On note cependant que les maxima sont parfois surestimés (10 % en moyenne) en fin de période. Il est intéressant de noter que les deux périodes les mieux reproduites pour la vitesse du vent correspondent aux périodes les moins bien simulées pour la température. Inversement, les deux périodes au cours desquelles la vitesse du vent est sous-estimée correspondent aux périodes où la température est correctement décrite par le système. Ceci est expliqué par le fait que les périodes de vent fort (sous-estimées) correspondent aux périodes de températures les plus basses (bien reproduites) et vice versa.

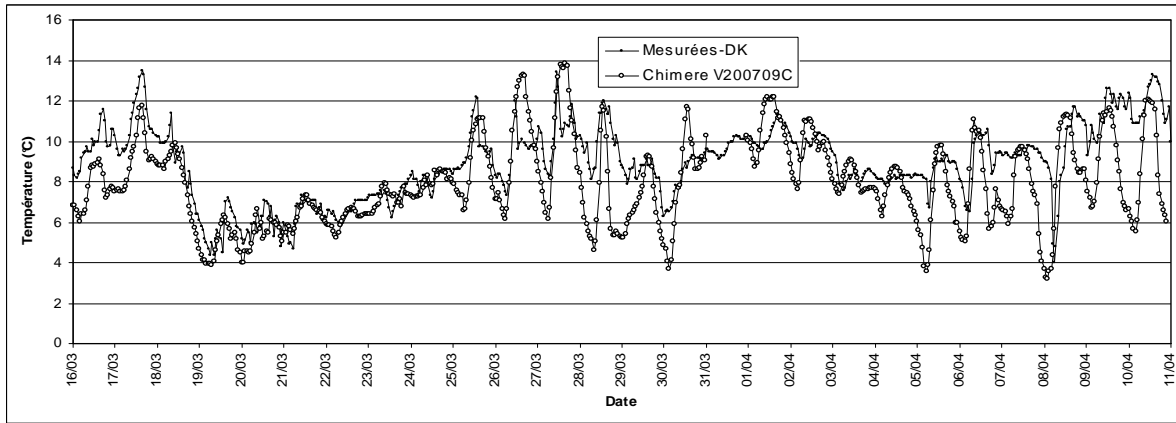


Figure 5.3 : Evolution temporelle des températures mesurées et calculées pour la période du 16 mars au 10 avril 2007 à la station de Dunkerque (51,03°N ; 2,33°E).

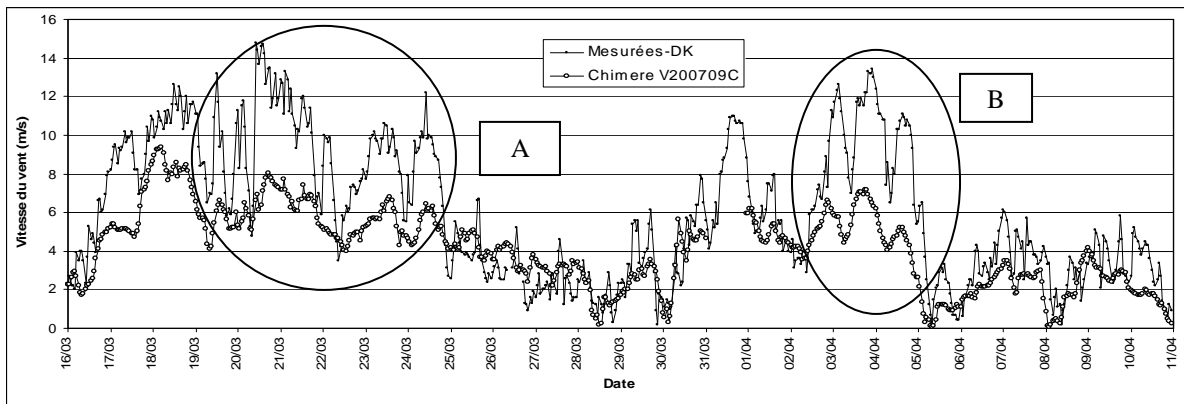


Figure 5.4 : Evolution temporelle de la vitesse du vent mesurée et calculée pour la période du 16 mars au 10 avril 2007 à la station de Dunkerque (51,03°N ; 2,33°E).

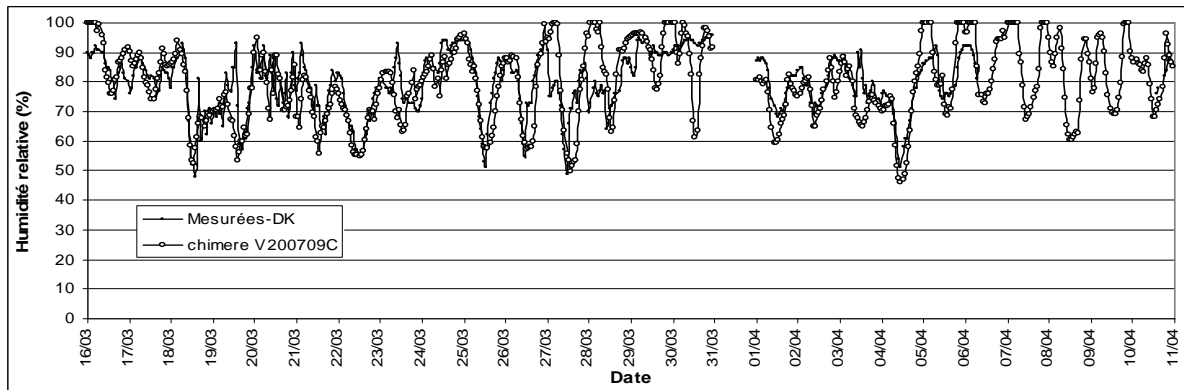


Figure 5.5 : Evolution temporelle de l'humidité relative mesurée et calculée pour la période du 16 mars au 10 avril 2007 à la station de Dunkerque (51,03°N ; 2,33°E).

Le Tableau 5.1 présente les indices statistiques calculés sur l'ensemble de la période pour la température, la vitesse du vent et l'humidité relative. Ils confirment la bonne performance du système pour la reproduction de la température ( $CC = 0,67$  et  $0,88$  pour les maxima) et une sous-estimation des valeurs horaires de la vitesse du vent ( $FB = -0,38$ ) notamment pour les valeurs supérieures à 7 m/s. Le BF est positif pour l'humidité relative ( $0,54$ ) ce qui confirme la tendance du système à

surestimer cette variable. La performance du système pour la zone de Lille a été évaluée et est similaire.

**Tableau 5.1 : Indices statistiques calculés avec les valeurs maximales horaires de la température et de la vitesse du vent pour la période du 16 mars au 11 avril 2007 à la station de Dunkerque (51,03°N ; 2,33°E) ( $n = 624$ ).**

	Température	Vitesse de vent	Humidité relative
CC	0,67	0,85	0,72
NMSE	0,12	0,38	0,20
IA	0,97	0,97	-0,04
FB	1,88	-0,38	0,54

#### 5.1.1.2. Evolution des concentration en $PM_{10}$ et $PM_{2,5}$ du 16 mars au 10 avril 2007

Les Figures 5.6 et 5.7 présentent les concentrations en  $PM_{10}$  mesurées et calculées durant la période s'étendant du 16 mars au 10 avril 2007. Les concentrations dépassent à plusieurs reprises le seuil d'information de  $50 \mu\text{g}/\text{m}^3$  en moyenne journalière (ligne rouge sur les graphiques). Sur la zone de Dunkerque, plusieurs pics intenses en  $PM_{10}$  sont mesurés le 25 ( $180 \mu\text{g}/\text{m}^3$  pour l'ensemble des stations), les 28, 29 et 30 mars (de 120 à  $180 \mu\text{g}/\text{m}^3$  selon les stations). Une forte baisse des concentrations (proche de zéro) est enregistrée pour le 30 mars. Elle est causée par une atmosphère quasi saturée en eau combinée aux précipitations décrites précédemment par la Figure 5.1.

La Figure 5.7 présente les concentrations en  $PM_{2,5}$  mesurées durant la période étudiée. En période de pollution de fond, la proportion de  $PM_{2,5}$  au sein des  $PM_{10}$  varie entre 20 et 80 %. En revanche, leur contribution est minimale lors des pics du 25/03 (A) et du 03/04 (B). Ces deux pics sont donc causés par une augmentation significative des particules de diamètres aérodynamiques supérieurs à  $2,5 \mu\text{m}$ . En général, les particules d'origines naturelles sont de plus gros diamètres que celles d'origine anthropique. Ainsi les résultats de la Figure 5.7 attestent d'un évènement de pollution particulaire d'origine naturelle pour les pics du 25 mars et 3 avril. Toutefois, entre le 26 mars et le 2 avril, la proportion en  $PM_{2,5}$  approche les 80 % en moyenne et atteste d'une pollution particulaire d'origine locale comme nous le montrons dans le paragraphe 5.1.1.3. Une analyse chimique de l'aérosol serait nécessaire afin de confirmer l'origine locale de la pollution durant la période du 26 mars au 2 avril.

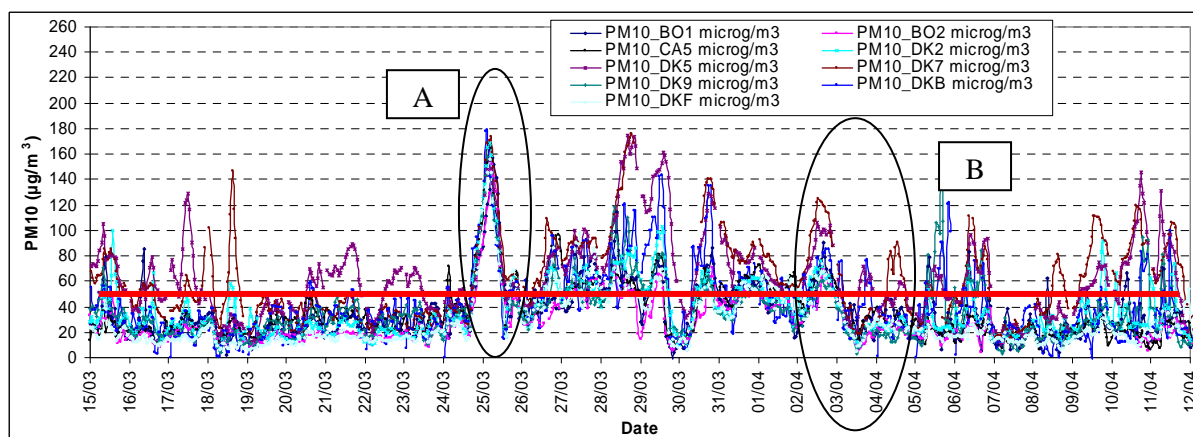


Figure 5.6 : Evolution temporelle des concentrations moyennes horaires en  $PM_{10}$  mesurées pour la période du 16 mars au 10 avril 2007 pour l'ensemble de stations côtières du NPDC.

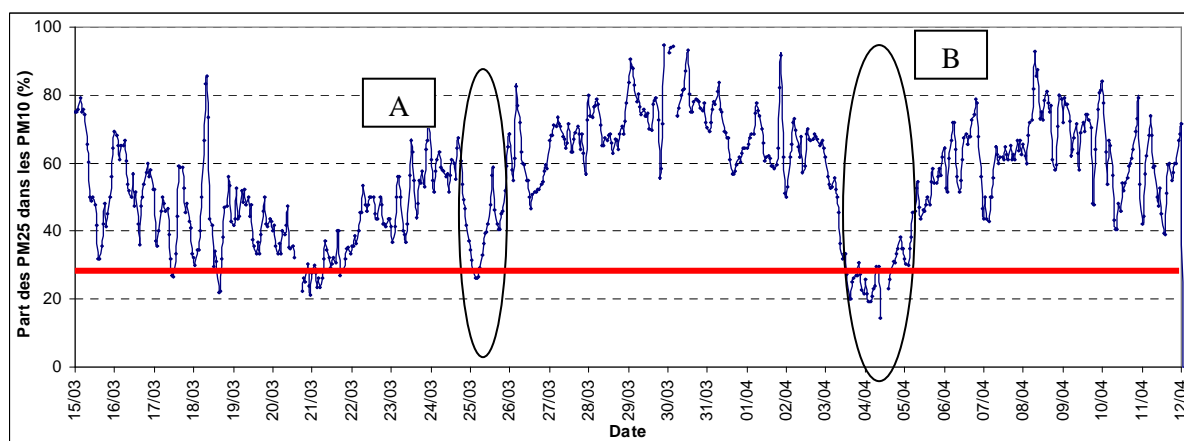


Figure 5.7 : Proportion de  $PM_{2,5}$  (en %) au sein des  $PM_{10}$  mesurées pour la période du 16 mars au 10 avril 2007 à la station de Dunkerque centre ( $51,03^{\circ}N$  ;  $2,37^{\circ}E$ ).

Afin d'évaluer l'étendue de la zone affectée par cet évènement nous utilisons également les données issues de stations de mesures anglaises. La Figure 5.8 permet de constater que les stations de mesures utilisées pour l'étude sont réparties de manière homogène au niveau du sud-est de l'Angleterre. Les Figures 5.9 et 5.10 décrivent l'évolution des concentrations en  $PM_{10}$  pour des localités du sud-est de l'Angleterre et de Londres respectivement. On remarque ainsi que l'ensemble du sud de l'Angleterre a également connu des épisodes de fortes concentrations en  $PM_{10}$  entre le 25 mars et le 3 avril 2007. Un pic particulièrement élevé est mesuré le 25/03 ( $180 \mu g/m^3$ ) à Canterbury dans le Kent et  $160 \mu g/m^3$  à Londres (zone A sur les Figure 5.9 et 5.10). Nous notons une forte baisse des concentrations mesurées, le 29 mars en fin de journée, causée par les précipitations d'un front froid traversant le nord de l'Europe. La comparaison des observations au sud-est de l'Angleterre et de la région NPDC rend compte du caractère transfrontalier de cette pollution particulière.



Figure 5.8 : Localisation géographique de stations de mesures en  $PM_{10}$  anglaises sélectionnées.

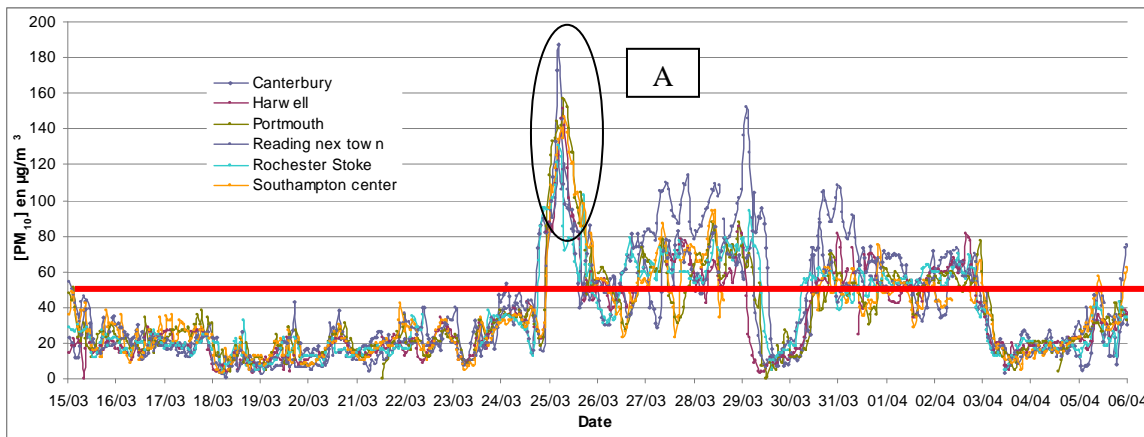


Figure 5.9 : Evolution temporelle de la concentration en  $PM_{10}$  pour la période du 15 mars au 6 avril 2007 pour plusieurs localités du sud de l'Angleterre.

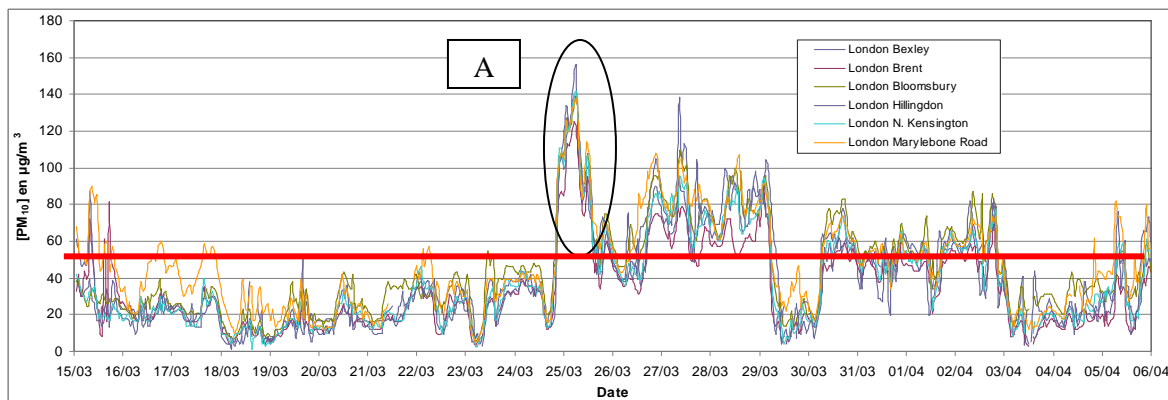


Figure 5.10 : Evolution temporelle de la concentration en  $PM_{10}$  pour la période du 15 mars au 6 avril 2007 pour plusieurs stations urbaines de la ville de Londres.

### 5.1.1.3. Etude des concentrations en NOx

Nous avons souhaité savoir si l'évènement était associé à une augmentation de la pollution en NOx. La Figure 5.11 et la Figure 5.12 illustrent respectivement les concentrations en NO et NO<sub>2</sub> au

cours de la période étudiée. On constate qu'il n'y a pas d'augmentation significative en NO<sub>x</sub> (zone A sur la Figure 5.11) liée au principal pic de PM<sub>10</sub> observé le 25/03 à Dunkerque et dans le sud de l'Angleterre. Cette observation renforce l'hypothèse d'une pollution d'origine non-locale. On observe néanmoins une augmentation de NO et de NO<sub>2</sub> (zone B sur les Figures 5.11 et 5.12) du 26 au 30 mars favorisée par un vent faible. Elle très probablement liée au secteur résidentiel tertiaire local (combustion essentiellement). L'augmentation des particules fines du 26 au 30 mars serait donc liée aux processus de combustion essentiellement d'origine locale. Ainsi, on peut supposer que les fortes concentrations en PM<sub>10</sub> durant la période du 26 au 30 mars auraient à la fois une composante locale et continentale.

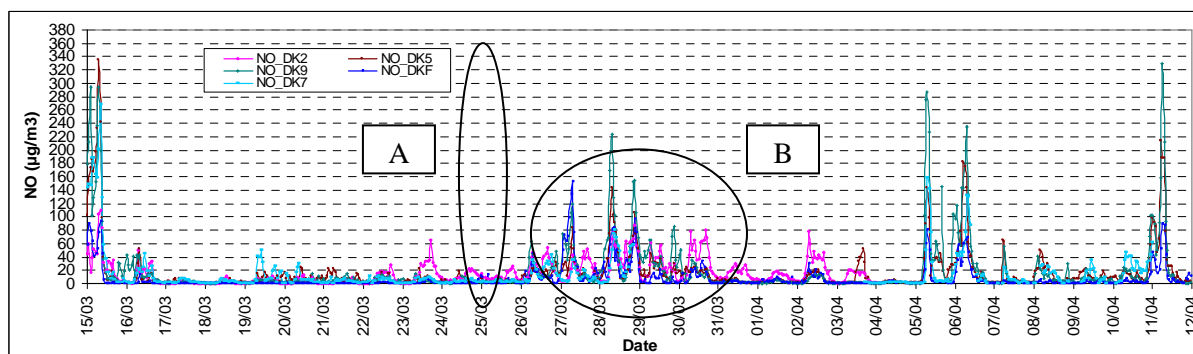


Figure 5.11 : Evolution temporelle de la concentration en NO pour la période 15 mars au 11 avril 2007 pour plusieurs stations de la zone de Dunkerque.

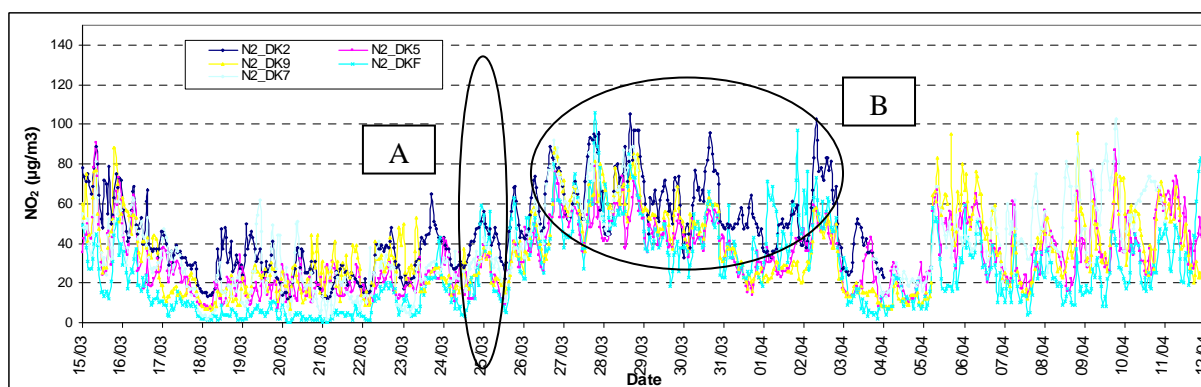


Figure 5.12 : Evolution temporelle de la concentration en NO<sub>2</sub> pour la période 15 mars au 11 avril 2007 pour plusieurs stations de la zone de Dunkerque.

L'ampleur de la zone géographique touchée par cet épisode de concentrations élevées en PM<sub>10</sub> laisse cependant penser que la pollution est liée à un phénomène de grande échelle. Deux hypothèses peuvent être émises quant à la provenance de ce type d'évènement : la possibilité d'une origine volcanique ou désertique. Du fait de la présence d'une circulation générale ouest - est, les émissions volcaniques susceptibles d'atteindre le continent Européen sont situées par exemple en Islande. Les émissions désertiques proviennent majoritairement des zones Sahariennes. Il s'agit de poussières désertiques soulevées par le vent, en général, lors du passage de puissantes lignes de grain au niveau des zones arides. On parle alors d'épisodes de *dust*. Le système MM5-FLEXPART est utilisé afin de



déterminer l'origine de l'évènement décrit précédemment. Les résultats sont présentés dans le paragraphe 5.3.

### 5.1.2. Application de MM5-FLEXPART à l'épisode du 16 mars au 10 Avril 2007

Il est important de connaître la provenance des particules lors des évènements de pollutions particulaires afin d'évaluer la part d'aérosols d'origines naturelles dans les mesures de  $PM_{10}$ . En effet, la Commission Européenne a fait part récemment de son souhait de différencier la contribution naturelle de celle anthropique dans la mesure de la masse totale en aérosol ( $PM_{10}$  par exemple). Elle considère que l'excédent de la valeur réglementaire pour les  $PM_{10}$  dû aux aérosols d'origines naturelles ne doit pas être pris en compte car leurs émissions ne peuvent être contrôlées par la réglementation européenne. Jones et Harrison (2006) montrent que si la masse d'aérosol naturel est soustraite de la masse totale mesurée, alors le nombre de jour de dépassement du seuil de réglementation, baisse très sensiblement de 70 à 40 %.

Plusieurs études utilisent des modèles Lagrangien comme HYSPLIT ou FLEXPART afin de déterminer l'origine d'épisodes de pollution particulaire touchant l'Europe de l'ouest [Plainiotis, 2006]. Le modèle Eulérien CHIMERE-DUST<sup>2</sup> est un autre exemple de modèle pouvant être utilisé pour de telles applications. Dans notre cas, nous utiliserons pour les évènements de mars et décembre 2007, les systèmes MM5-FLEXPART et HYSPLIT. Le Tableau 5.2 regroupe les caractéristiques techniques des domaines FLEXPART utilisées pour les épisodes étudiés. Le domaine MM5 utilisé est commun aux deux applications et couvre l'ensemble de l'Europe avec une résolution de 60 km. Le DOMAINE 1 est utilisé pour l'épisode printanier et le DOMAINE 2 pour l'évènement hivernal.

**Tableau 5.2 : Caractéristiques techniques des domaines FLEXPART utilisées afin de déterminer l'origine de deux épisodes de pollution particulaire durant l'année 2007.**

DOMAINE	$N_X$	$N_Y$	$D_X$	$D_Y$	$X_{MIN}$	$Y_{MIN}$
DOMAINE 1	100	40	0,5°	0,5°	-1°O	46°N
DOMAINE2	50	60	0,5°	0,5°	0°	48°N

$N_X$  = nombre de mailles horizontalement

$N_Y$  = nombre de mailles verticalement

$D_X$  = résolution horizontale (°)

$D_Y$  = résolution verticale (°)

$X_{MIN}$  = coordonnée longitudinale de la maille située en bas à gauche de la grille du domaine (°).

$Y_{MIN}$  = coordonnée latitudinale de la maille située en bas à gauche de la grille du domaine (°).

Plusieurs auteurs ont examiné cet épisode particulaire tout à fait exceptionnel. Burt (2007) attribue les fortes concentrations en  $PM_{10}$  observées le 25 mars 2007 sur le sud de l'Angleterre à un épisode de *dust*, par la suite, lessivé par des pluies liées à une activité météorologique frontale. De plus, plusieurs systèmes de prévision de *dust* comme le modèle global d'aérosol *Navy Aerosol Analysis and Prediction System* du *Naval Research Laboratory* à Monterey aux Etats-Unis ou les

<sup>2</sup> <http://www.lmd.polytechnique.fr/dust/chimdust.php>

prévisions régionales issues du centre de *supercalcul* de Barcelone confirment cette hypothèse. En revanche, Birmili (2008) conclut que les particules sont en provenance des *chernozems* ou « terres noires » en Russe, une zone d'agriculture intensive située en Ukraine.

Bessagnet *et al.* (2008), quant à eux, ont utilisé la version V200709A de CHIMERE afin de confirmer l'origine Ukrainienne des  $PM_{10}$ . Ils ont modifié les paramètres d'émissions du modèle au niveau des plaines Ukrainiennes qu'ils supposent être la source des émissions. Le processus de saltation est appliqué à l'ensemble de la zone d'émissions, la description de l'occupation des sols a été raffinée et la distribution en taille des émissions a été adaptée au diamètre aérodynamique des particules terrigènes plus grossières. La simulation s'étend du 23/03/07 à 12h UTC au 25/03/07 à 12h UTC. Elle confirme l'émission de particules au niveau des plaines agricoles Ukrainiennes et de leur transport vers le nord de la France et le sud de l'Angleterre. On note qu'une analyse chimique très utile effectuée par chromatographie ionique sur des particules prélevées à Gravelines confirme l'origine terrigène des particules. Les analyses montrent que l'augmentation de la concentration des particules à Gravelines est proportionnelle à celle de l'ion  $K^+$  considéré comme un traceur des « terres noires » Ukrainiennes riches en humus à l'inverse du traceur des poussières désertiques Sahariennes ( $Ca^{2+}$ ) qui reste constant.

Dans notre cas, nous avons utilisé FLEXPART en mode indirect afin de déterminer l'origine de l'épisode de fortes concentrations en  $PM_{10}$  observées sur la région NPDC. 10 000 particules ont été émises entre le sol et 40 m d'altitude pendant 3 heures de 00h à 03h UTC le 25/03/07 au niveau de Dunkerque (51.03°N/2.37°E). La Figure 5.13 détaille le rétro-panache issu du système MM5-FLEXPART commençant le 23/03/07 à 10h UTC et se terminant le 25/03/07 à 03h UTC. La simulation permet d'observer un large panache se déplaçant vers l'Europe centrale et restant relativement proche du sol. Notre simulation confirme l'origine trans-frontalière de l'évènement et FLEXPART indique que les particules observées le 25/03/07 proviennent des plaines agricoles du sud de l'Ukraine (A). Nos travaux confirment l'hypothèse de Burt (2007) et Bessagnet *et al.* (2008). La Figure 5.14 représente la rétro trajectoire d'une parcelle issue du modèle HYSPLIT commençant à Dunkerque le 26/03/07 à 00h UTC et se terminant le 23/03/07 à 00h UTC. Le modèle est en accord avec les résultats du système MM5-FLEXPART à la fois au niveau de la position géographique (horizontale et verticale) et temporelle du panache.

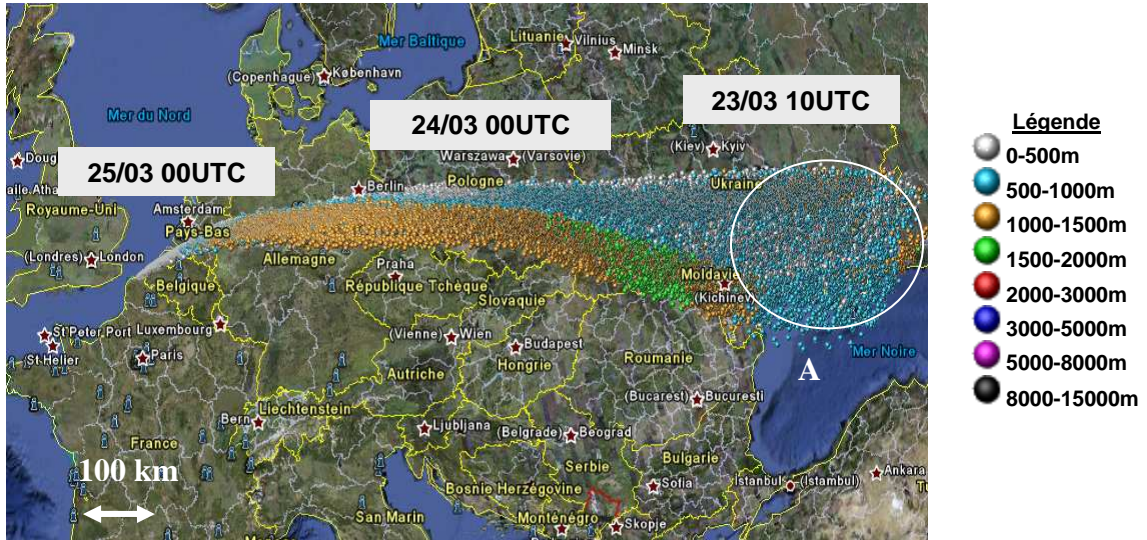


Figure 5.13 : Rétro-panache issu du système MM5-FLEXPART commençant le 25/03/07 à 00h UTC et se terminant le 23/03/07 à 10h UTC.

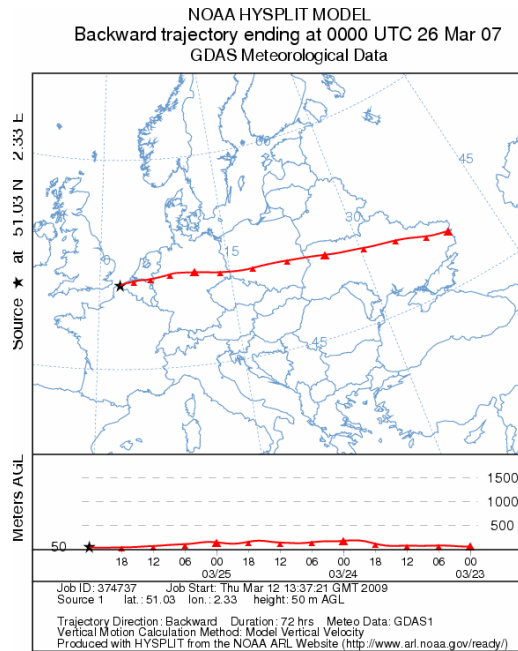


Figure 5.14 : Rétro trajectoire issue du modèle HYSPLIT commençant à Dunkerque le 26/03/07 à 00h UTC et se terminant le 23/03/07 à 00h UTC.

### 5.1.3. Etude de cas B : Période du 16 au 30 décembre 2007

#### 5.1.3.1. Analyse de la situation météorologique et de la performance de MM5

L'analyse de la situation météorologique permet de mettre en évidence une période de basses températures en début de période (du 16 au 22/12) avec des températures nocturnes négatives (Figure 5.15). Les conditions sont anticycloniques tout au long de la période et les précipitations sont quasi inexistantes. La période froide est accompagnée de vent d'Est variant entre 4 et 10 m/s (Figure 5.16). Durant le reste de la période les vents sont de direction Sud-Ouest et relativement faibles excepté du

16 au 18/12 (maximum de 11 m/s) (zone A de la figure 5.16) et deux pointes les 28 et 29/12 (10 m/s) (zone B de la figure 5.16).

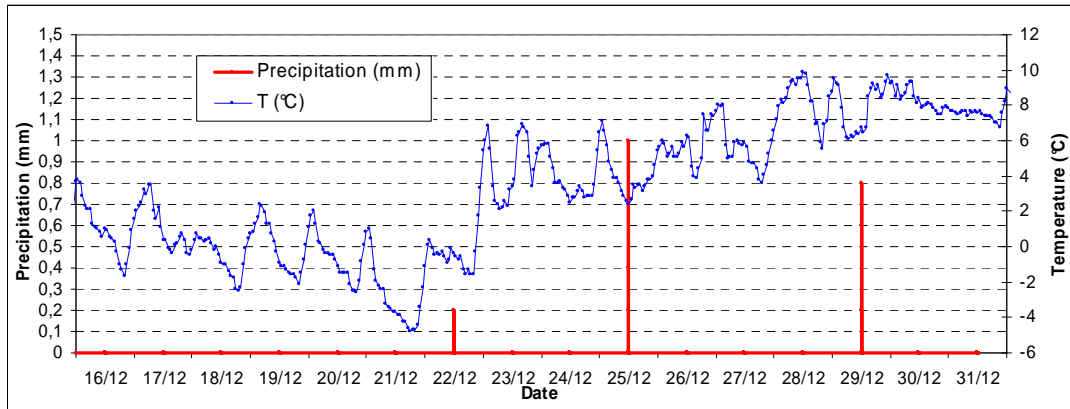


Figure 5.15 : Evolution temporelle des températures et des précipitations mesurées pour la période du 16 au 31 décembre 2007 à la station de Dunkerque (51,03°N ; 2,33°E).

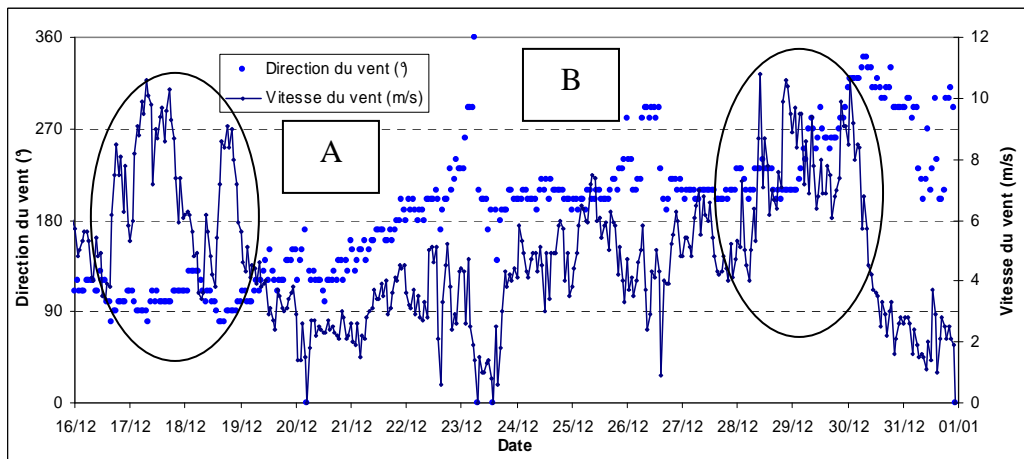


Figure 5.16 : Evolution temporelle des températures et des précipitations mesurées pour la période du 16 au 31 décembre 2007 à la station de Dunkerque (51,03°N ; 2,33°E).

Les Figures 5.17, 5.18 et 5.19 présentent pour la période du 16 au 30 décembre 2007, l'évolution temporelle des valeurs mesurées et calculées pour la température, la vitesse du vent et l'humidité relative respectivement. Les moyennes horaires des températures mesurées sont sous-estimées du 16 au 23 décembre (de 1 à 10°C). Ce fort biais est assez surprenant pour la température et est vraisemblablement dû à la divergence du modèle MM5 sur cette période. Pour le reste de la période le système décrit très correctement l'évolution de la température. De manière identique, la vitesse du vent mesurée est sous-estimée du 16 au 19 décembre (entre 1 et 4 m/s) et très bien simulée pour le reste de la période. L'humidité relative est plus élevée que lors de la période printanière. Le système a tendance à surestimer les données mesurées de cette variable particulièrement durant la première moitié de la période.

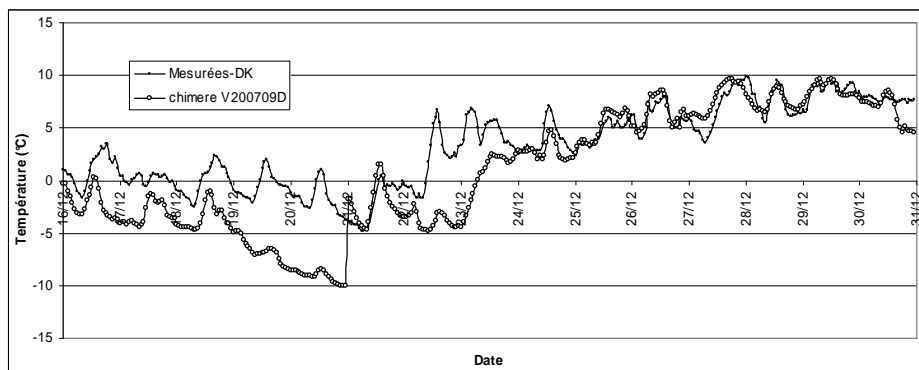


Figure 5.17 : Evolution temporelle des températures mesurées et calculées pour la période du 16 au 30 décembre 2007 à la station de Dunkerque (51,03°N ; 2,33°E).

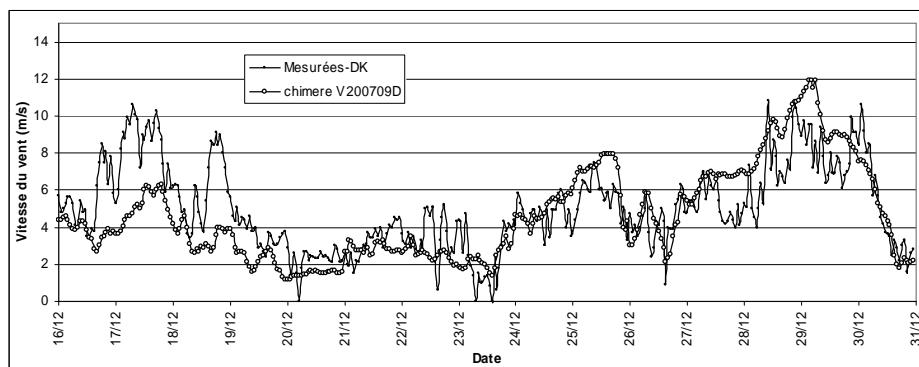


Figure 5.18 : Evolution temporelle de la vitesse du vent mesurée et calculée pour la période du 16 au 30 décembre 2007 à la station de Dunkerque (51,03°N ; 2,33°E).

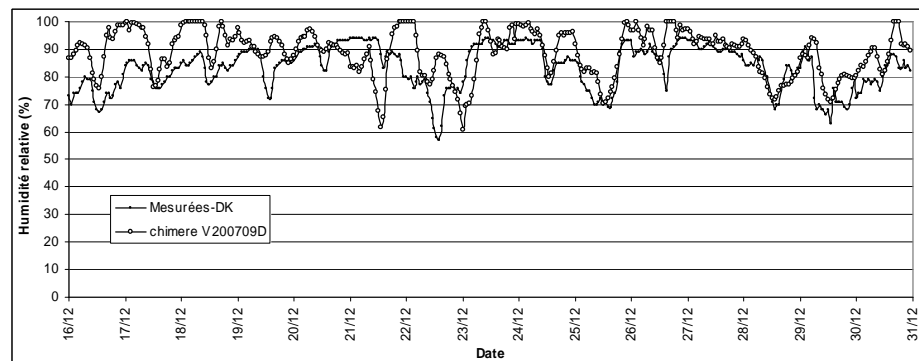


Figure 5.19 : Evolution temporelle de l'humidité relative mesurée et calculée pour la période du 16 au 30 décembre 2007 à la station de Dunkerque (51,03°N ; 2,33°E).

Le Tableau 5.3 regroupe l'ensemble des quatre indices statistiques calculés pour la période étudiée. Les valeurs des CC confirment que la température est la variable la mieux décrite (CC = 0,87) par le système suivie de la vitesse du vent (CC = 0,70) et de l'humidité relative (CC = 0,49). On note également le fort BF de la variable température lié à la mauvaise performance du système en début de période. Il est légèrement négatif pour la vitesse du vent et positif pour l'humidité relative traduisant ainsi la tendance du système à sous-estimer la vitesse du vent et surestimer l'humidité relative.

**Tableau 5.3 : Indices statistiques calculés avec les valeurs maximales horaires de la température et de la vitesse du vent pour la période du 16 au 30 décembre 2007 à la station de Dunkerque (51,03°N ; 2,33°E) ( $n = 360$ ).**

Indices	Température	Vitesse de vent	Humidité relative
CC	0,87	0,70	0,49
NMSE	0,42	0,13	0,01
IA	0,84	0,82	0,63
FB	-1.0	-0,07	0,06

### 5.1.3.2. Analyse des PM<sub>10</sub>

La période étudiée est caractérisée par un épisode de pollution particulaire intense du 19 au 26 décembre 2007. La Figure 5.20 permet de constater la présence d'un fort épisode de pollution particulaire s'étendant du 19 au 26 décembre. Son apogée est atteinte dans la nuit du 20 au 21 décembre (zone A de la figure 5.20). L'épisode est plus bref et plus intense (pic de 240  $\mu\text{g}/\text{m}^3$ ) que durant l'évènement de mars-avril 2007 (pic de 190  $\mu\text{g}/\text{m}^3$ ). On observe également un seul grand pic alors que nous notons jusqu'à trois pics au cours de l'évènement printanier. La proportion de PM<sub>2,5</sub> au sein des PM<sub>10</sub> varie entre 20 et 100 % au cours de la période mais est maximale durant la journée du 20/12 (zone B de la Figure 5.21) lors du pic de PM<sub>10</sub>. Ceci nous apprend que, lors de la phase la plus intense de l'épisode (20/12) la pollution est essentiellement d'origine locale.

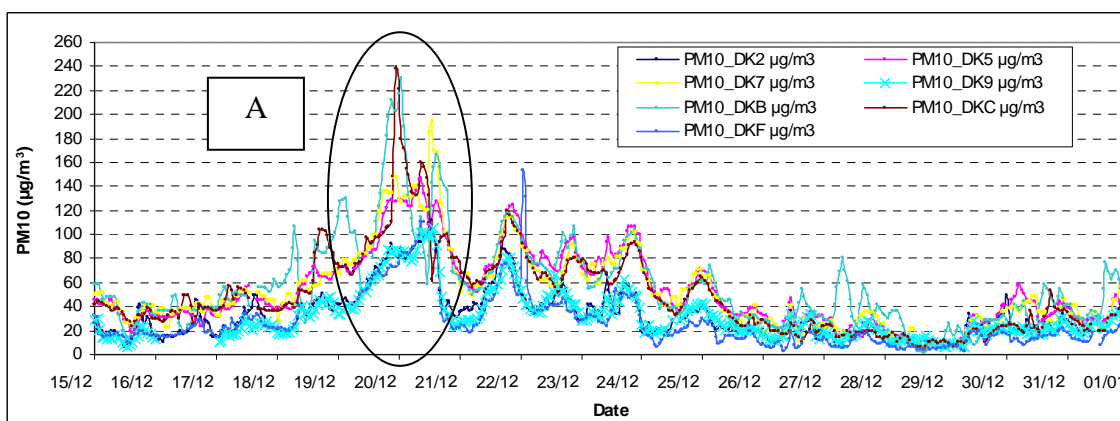


Figure 5.20 : Evolution temporelle des concentrations en PM<sub>10</sub> pour différentes stations de la zone de Dunkerque du 16 au 30 décembre 2007.

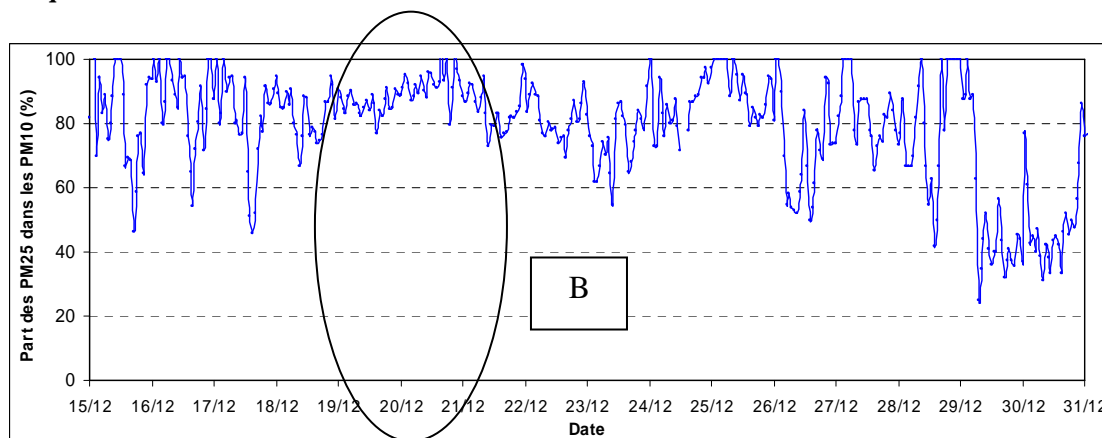


Figure 5.21 : Proportion de PM<sub>2,5</sub> (en %) au sein des PM<sub>10</sub> mesurées pour la période du 15 au 30 décembre 2007 à la station de Dunkerque centre (51,03°N ; 2,37°E).

### 5.1.3.3. Analyse en NOx

La Figure 5.22 illustre l'évolution des concentrations en NO et NO<sub>2</sub> durant l'épisode de pollution particulaire de décembre 2007. Nous constatons que les fortes augmentations en PM<sub>10</sub> et en PM<sub>2,5</sub> sont corrélées à celles en NO et NO<sub>2</sub>. Les concentrations les plus élevées sont mesurées dans la nuit du 19 au 20 décembre (zone A de la figure 5.22). Cette période correspondant aux températures les plus basses enregistrées. A cette période de l'année, les NOx sont majoritairement émis par la combustion des énergies fossiles liées au chauffage des bâtiments des secteurs résidentiel et tertiaire. Nous concluons que l'épisode de décembre 2007 est principalement d'origine locale.

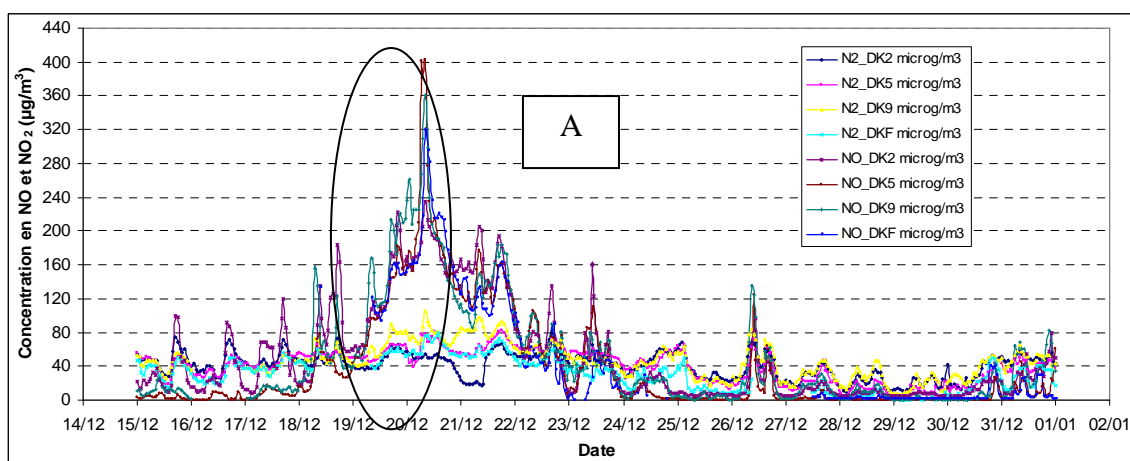


Figure 5.22 : Evolution temporelle des concentrations en NO et NO<sub>2</sub> pour différentes stations de la zone de Dunkerque du 16 au 30 décembre 2007.

### 5.1.4. Application de MM5-FLEXPART à la période du 16 au 30 décembre 2007

Pour la seconde période (du 16 au 30 décembre), FLEXPART est également configuré en mode indirect afin de déterminer l'origine de l'épisode de fortes concentrations en PM<sub>10</sub> observées sur la région NPDC. Pour cette application, 10 000 particules ont été émises entre le sol et 40 m d'altitude pendant 3 heures de 00h à 03h UTC le 20/12/07 au niveau de Dunkerque (51.03°N/2.37°E). Le rétro-panache (Figure 5.23) est plus complexe que pour le premier cas d'étude (Figure 5.13). Il suggère une double origine de l'évènement observé en région NPDC : l'Italie et l'Europe centrale. On observe également que les particules se déplacent à des altitudes se situant entre 2000 et 3000 m pour celles provenant de l'Europe centrale et des altitudes supérieures à 8000 m pour celles originaires d'Italie. Cependant au niveau de la chaîne montagneuse des Alpes, les deux trajectoires convergent pour s'abaisser entre 0 et 500 m. Le dernier jour les particules se déplacent à des altitudes proche du sol. La Figure 5.24 représente la rétro-trajectoire issue du modèle HYSPLIT commençant à Dunkerque le 15/12/07 à 00h UTC et se terminant le 20/12/07 à 00h UTC. HYSPLIT reproduit une des deux trajectoires simulées par MM5-FLEXPART à savoir celle se dirigeant vers le nord de l'Europe. Tout comme MM5-FLEXPART, il simule une circulation de la parcelle d'air à des niveaux proches du sol pour la journée du 20/12. L'intérêt de MM5-FLEXPART par rapport à HYSPLIT a été démontré à

travers l'exemple précédent. En effet, le système permet de modéliser plusieurs rétro-trajectoires. Ainsi, il représente de manière plus réaliste le mouvement d'une masse d'air par opposition à HYSPLIT qui se cantonne à représenter une seule trajectoire.

Il est difficile de trancher sur l'origine des particules à partir de l'analyse du rétro-panache sans une analyse chimique élémentaire. Nous n'observons pas de stagnation marquée de la masse d'air durant la période étudiée. On note cependant que les parcelles d'air modélisées sont proches de la surface dans la journée du 19/12 et traverse plusieurs zones industrielles de l'est de la France et la métropole Lilloise avant d'atteindre Dunkerque. Une masse non négligeable de pollution d'origine anthropique (PM et NOx) était donc présente au sein de la masse d'air. Nous concluons que cet évènement de pollution particulaire comporte une composante d'origine locale mais également régionale. Une analyse chimique de l'aérosol serait nécessaire afin de connaître les proportions des deux composantes.

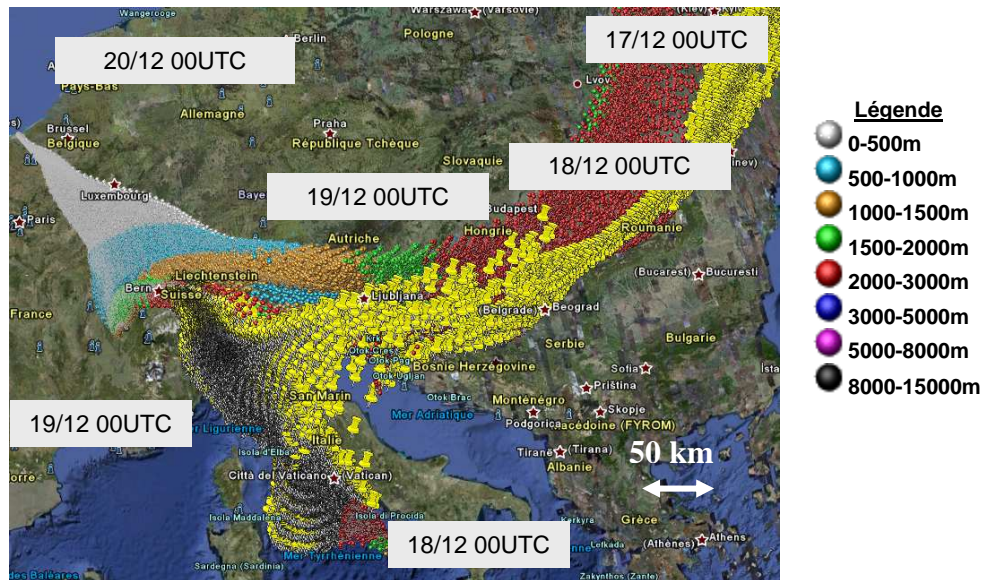


Figure 5.23 : Rétro-panache issu du système MMS-FLEXPART commençant le 20/12/07 à 00h UTC et se terminant le 17/12/07 à 00h UTC (les points jaunes sont à ignorer).



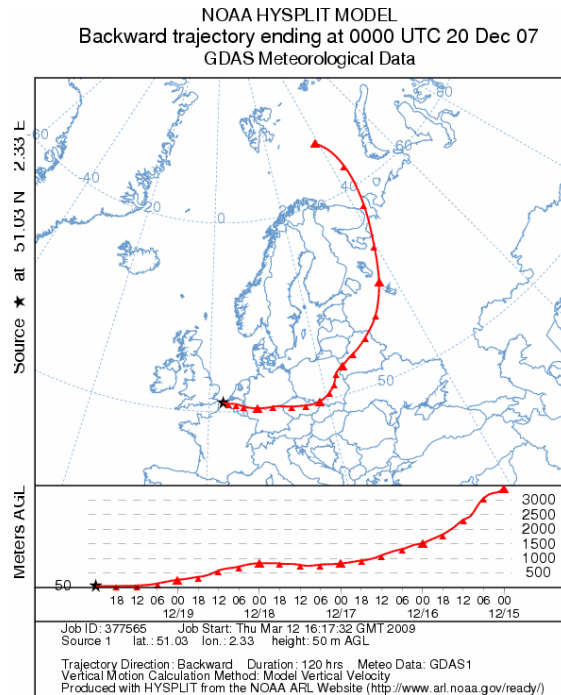


Figure 5.24 : Rétro-trajectoire issue du modèle HYSPLIT commençant à Dunkerque le 15/12/07 à 00h UTC et se terminant le 20/12/07 à 00h UTC.

### 5.1.5. Conclusion : Origine de deux épisodes de pollution particulaire sur Dunkerque

Deux évènements de pollution particulaire intenses sur la région NPDC ont été analysés en utilisant le système MM5-FLEXPART et le modèle HYSPLIT. L'avantage principal du modèle FLEXPART est qu'il simule le transport et le dépôt d'une multitude de rétro-trajectoires à la différence de HYSPLIT qui n'en modélise qu'une sans prendre en compte le dépôt. On s'attend ainsi à ce que FLEXPART donne des résultats plus réalistes à l'égard du transport et du dépôt de particules dans l'atmosphère.

L'évènement printanier d'origine continentale est caractérisé par :

- un flux est-ouest bien établi, des conditions sèches et une activité frontale 24 h avant le pic maximal
- une proportion en  $PM_{2,5}$  variant entre 25 et 40 % de la masse en  $PM_{10}$ ,
- aucune augmentation significative de la pollution en NO et  $NO_2$
- une zone étendue concernée par l'évènement.

L'évènement hivernal a une origine à la fois locale et régionale. Il est caractérisé par :

- des conditions anticycloniques bien établies
- une proportion en  $PM_{2,5}$  élevée et égale à 90 % en moyenne de la masse en  $PM_{10}$  durant le pic principal,
- une augmentation significative de la pollution en NO et  $NO_2$ .

Les futurs travaux de recherche pourront se baser sur les techniques décrites et utilisées dans le paragraphe 4.2 du chapitre 4 afin de confirmer l'origine des deux événements étudiés dans la première partie de ce chapitre.

## 5.2. Campagnes de mesures sur la région industrielle côtière de Dunkerque

La seconde partie de ce chapitre évalue la capacité du système MM5-CHIMERE de POQAIR à reproduire certains paramètres dynamiques de la CLA et la concentration de quelques polluants atmosphériques ( $O_3$ ,  $PM_{10}$  et  $SO_2$ ) affectant la région industrielle côtière Dunkerquoise. Deux types de paramétrisations de la CLA sont testés : *Blackadar (BK)* et *MRF*. Nous caractériserons également l'évolution des concentrations de ces polluants en fonction des conditions météorologiques.

Cette étude a été réalisée en collaboration avec le Laboratoire de Physico-Chimie de l'Atmosphère (LPCA) de l'Université de Côte d'Opale. Les données mesurées présentées dans ce travail proviennent d'une campagne de mesures réalisée par le LPCA. Celle-ci visait à mesurer d'une part, différents paramètres dynamiques de la CLA, et d'autre part les concentrations de plusieurs COVNM. Les paramètres dynamiques ont été mesurés à l'aide d'une station météorologique localisée sur le toit de la Maison de la Recherche en Environnement Industriel (MREID) à Dunkerque (51.03°N ; 2.37°E) et d'un SODAR situé au sud de la ville de Dunkerque.

Du point de vue chimique, les concentrations en ozone,  $SO_2$  et  $PM_{10}$  mesurées par Atmo-NPDC sont comparées aux valeurs calculées avec le système MM5-V200511B. Ces polluants ont été sélectionnés car ils engendrent les plus grands nombres de dépassements par rapport aux valeurs limites réglementaires sur la zone industrielle de Dunkerque. Pour les polluants primaires, les sources principales sont les complexes pétrochimiques (raffineries) et sidérurgiques. Pour l'ozone, les fortes sources d'émissions en  $NO_x$  (secteur industriel, tertiaire, transport) et en COV (secteur industriel essentiellement) situées sur la zone industrielle de Dunkerque sont favorables à la production de ce polluant secondaire. Les conditions dynamiques complexes de la côte jouent un rôle tout à fait déterminant dans le développement de panaches de pollution à l'ozone. En période de vents forts, les conditions sont peu favorables. En revanche, le développement d'une cellule de brise de mer peut engendrer de fortes concentrations d'ozone en favorisant la recirculation et l'encapsulation d'une parcelle d'air pollué. Ce phénomène provoque en général une accumulation de polluants comme l'ozone ou le  $SO_2$ .

Ainsi, la description correcte, au niveau de l'interface terre-mer à Dunkerque, de paramètres dynamiques tel que le flux de chaleur sensible ( $F_{CS}$ ), la vitesse de friction ( $U_*$ ) ou la hauteur de la CLA ( $h$ ), par le système de modélisation, est tout à fait fondamentale.

De plus, afin d'étudier l'influence des conditions météorologiques sur les concentrations en O<sub>3</sub>, PM<sub>10</sub> et SO<sub>2</sub> et les paramètres dynamiques décrits précédemment, nous avons sélectionné deux périodes particulièrement actives d'un point de vue dynamique.

La campagne 1 s'étend du 3 au 7 avril 2006 et la campagne 2 analyse quant à elle la période du 1 au 15 mai 2006. Elles ont été choisies car les données de mesures exploitables étaient disponibles à ces périodes afin d'évaluer la performance du système MM5-CHIMERE du point de vue chimique et dynamique. Le Tableau 5.4 résume la configuration des modèles utilisés pour les deux phases.

**Tableau 5.4 : Spécificités techniques des modèles utilisés pour les campagnes 1 et 2**

CHIMERE	MM5	Extraction données	schéma CLA	cadastre
V2005111B	3.7.3	Dunkerque	MRF ou BK	EMEP (pas de <i>nesting</i> )

La Figure 5.25 localise les principales sources d'émissions de polluants industriels (COV, NO<sub>x</sub>, SO<sub>2</sub> et particules) (losanges jaunes) et les stations du réseau Atmo-NPDC (points roses) de la zone industrielle de Dunkerque. Le point bleu localise la station Météo-France de Dunkerque (51,01°N ; 2,15°E).

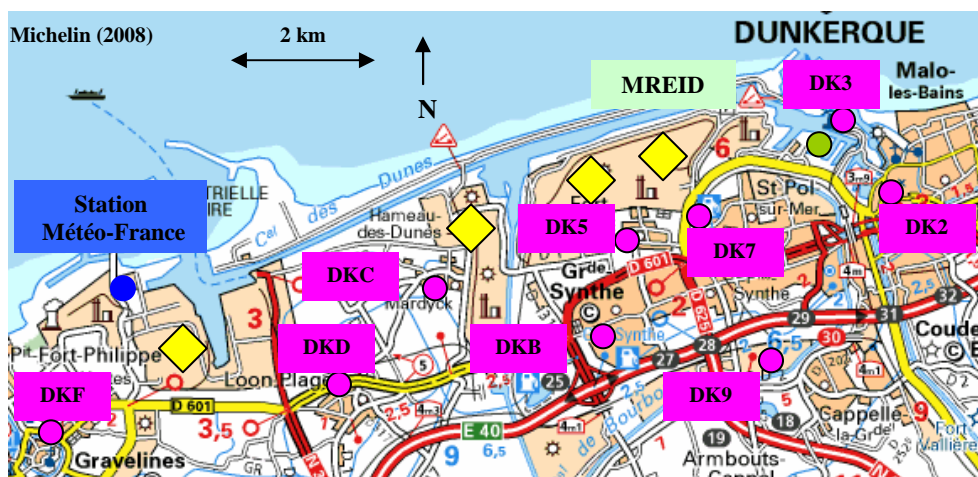


Figure 5.25: Localisation géographique des principales sources d'émissions ponctuelles (losanges jaunes) et des stations du réseau Atmo-NPDC (points mauves) de la zone industrielle de Dunkerque. Le point bleu localise la station Météo-France.

## 5.2.1. Analyse de la situation météorologique

### 5.2.1.1. Période du 3 au 7 avril 2006

Pour la première période, l'analyse des cartes synoptiques indique la présence en début de période d'une dorsale dominant largement le nord de la France et confirme la présence d'un front froid orienté sud-ouest/nord-est, positionné sur le sud de l'Angleterre, le 07/04 à 00h UTC (Figure 5.26). De faibles précipitations sont enregistrées le 03/04 (0,8 mm) et le 05/04 (0,2 mm).

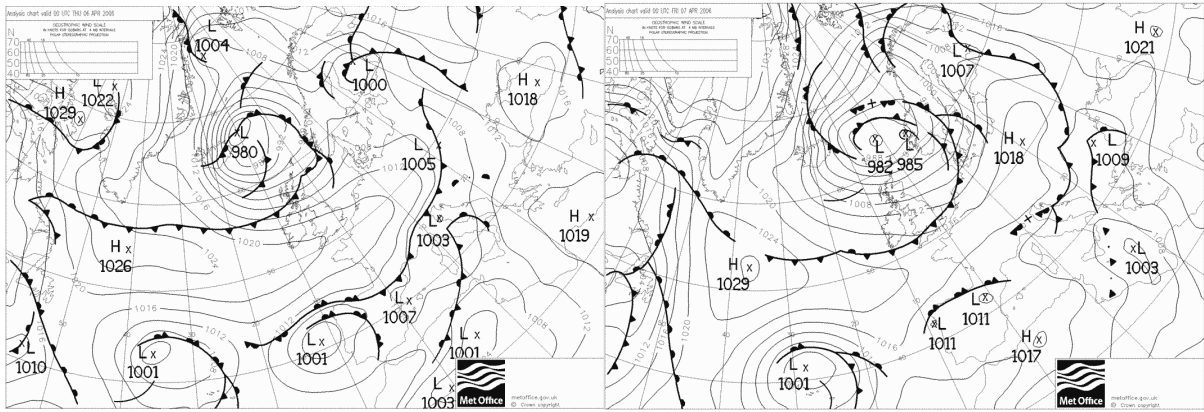


Figure 5.26 : Analyse synoptique pour le 06/04/06 (gauche) et le 07/04/06 (droite) à 00h UTC.

Le passage d'un front froid de faible activité est noté durant la journée du 07/04. Le présence du front est caractérisée par une augmentation de la vitesse du vent avec un pic à 12 m/s, une baisse de la pression et une augmentation de l'Humidité Relative (HR) à l'avant du front. Un assèchement de la masse d'air est enregistré à l'arrière du front. L'humidité relative diminue de 20% (passage de 90 à 70%) en quelques heures durant la journée du 07/04 (Figure 5.27). Nous remarquons une augmentation assez marquée de la température durant la journée du 06/04 (pic à 12°C), conséquence du flux de sud-ouest chaud et humide (*warm conveyor belt*) situé à l'avant du front froid.

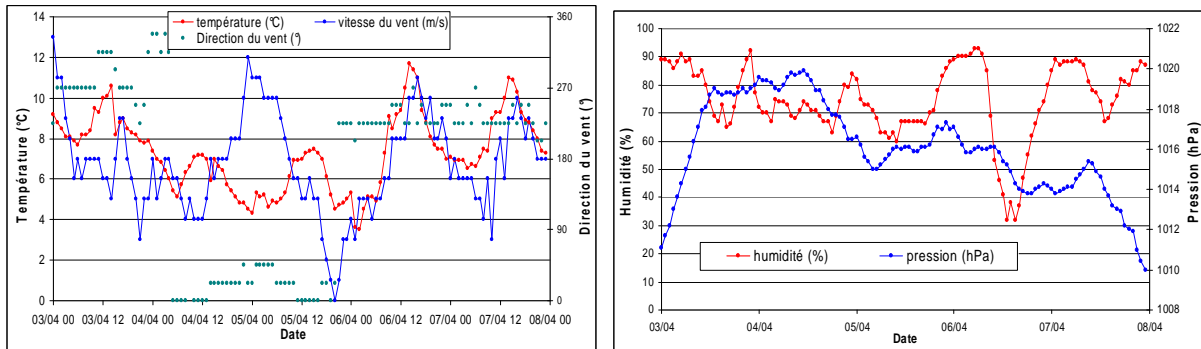


Figure 5.27 : Evolution temporelle de la température et de la vitesse du vent (gauche), de l'humidité relative et de la pression atmosphérique (droite) mesurées à Dunkerque (51,03 °N; 2,33°E) du 3 au 7 avril 2006 par la station météorologique de la MREID.

### 5.2.1.2. Période du 1 au 15 mai 2006

La seconde période d'étude s'étend du 1 au 15 mai 2006. Elle est caractérisée par le passage de plusieurs systèmes frontaux. La série temporelle de la température mesurée et calculée par MM5-CHIMERE à Dunkerque au cours de la quinzaine est illustrée par la Figure 5.28. La température moyenne mesurée est de 13°C. L'amplitude thermique est plus marquée les quatre premiers jours de la période (10°C en moyenne) que pour le reste de la période (5°C en moyenne). On note un pic de température à 26°C pour la journée du 04/05.

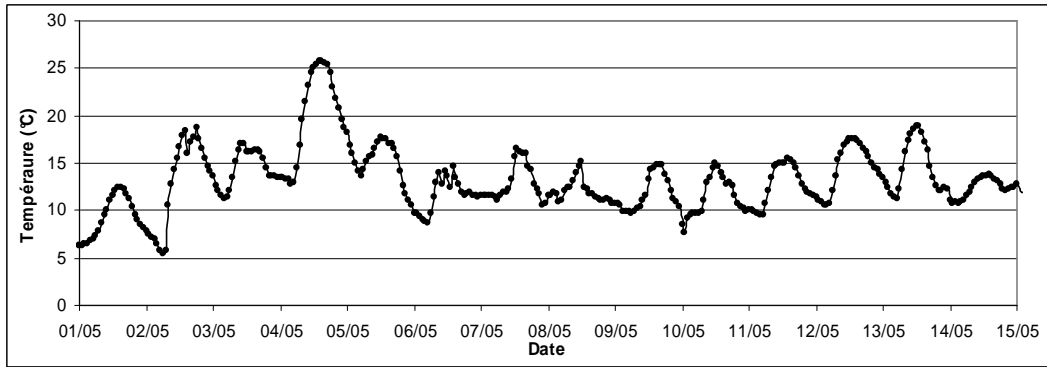


Figure 5.28 : Série temporelle de la température mesurée du 1 au 14 mai 2006 à Dunkerque (MREID).

La série de la Figure 5.29 indique une forte variation de la vitesse du vent avec la présence de quatre zones principales où la vitesse du vent est supérieure à 6 m/s (le 01/05, 02/05, 09/05 et le 13/05). Les quatre périodes correspondent au passage d'un front froid de forte activité pour les journées du 01/05 et du 13/05 et de faible activité pour celles du 05/05 et du 09/05 (Figure 5.30).

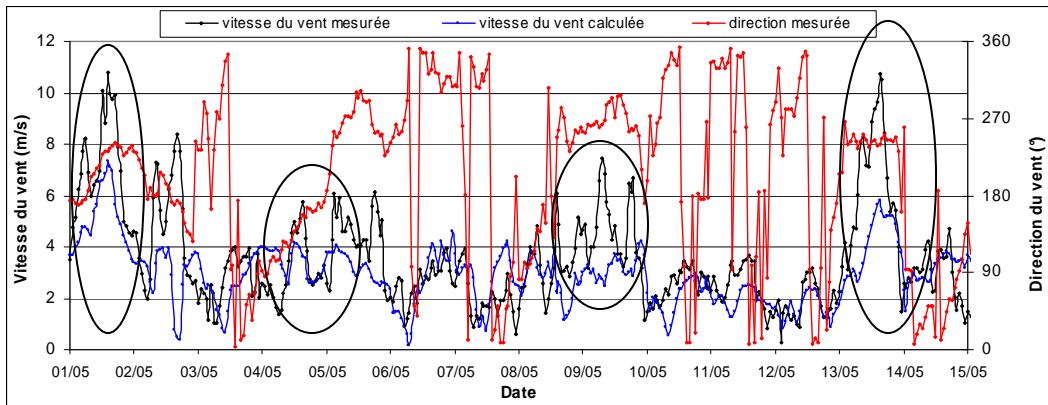
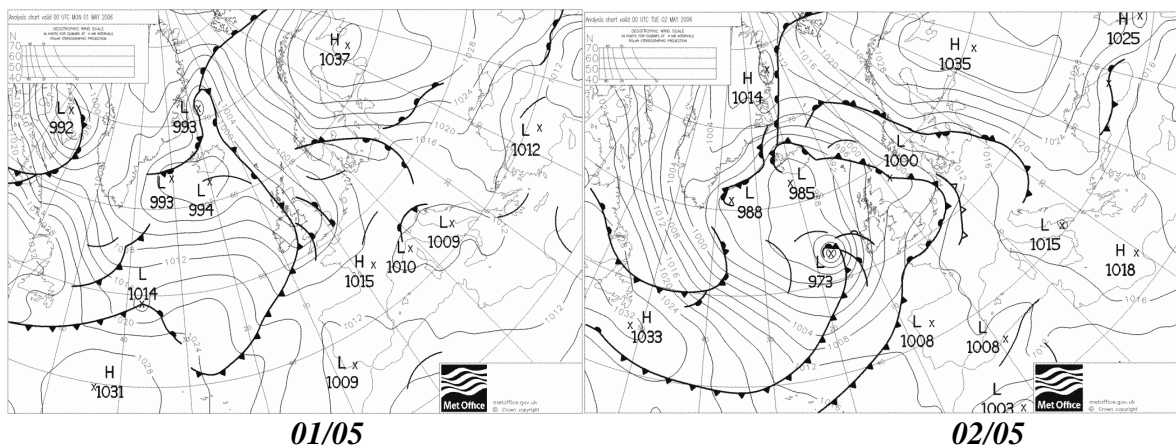


Figure 5.29 : Série temporelle de la vitesse et de la direction du vent mesurées ainsi que de la vitesse du vent calculée du 1 au 14 mai 2006 à Dunkerque.



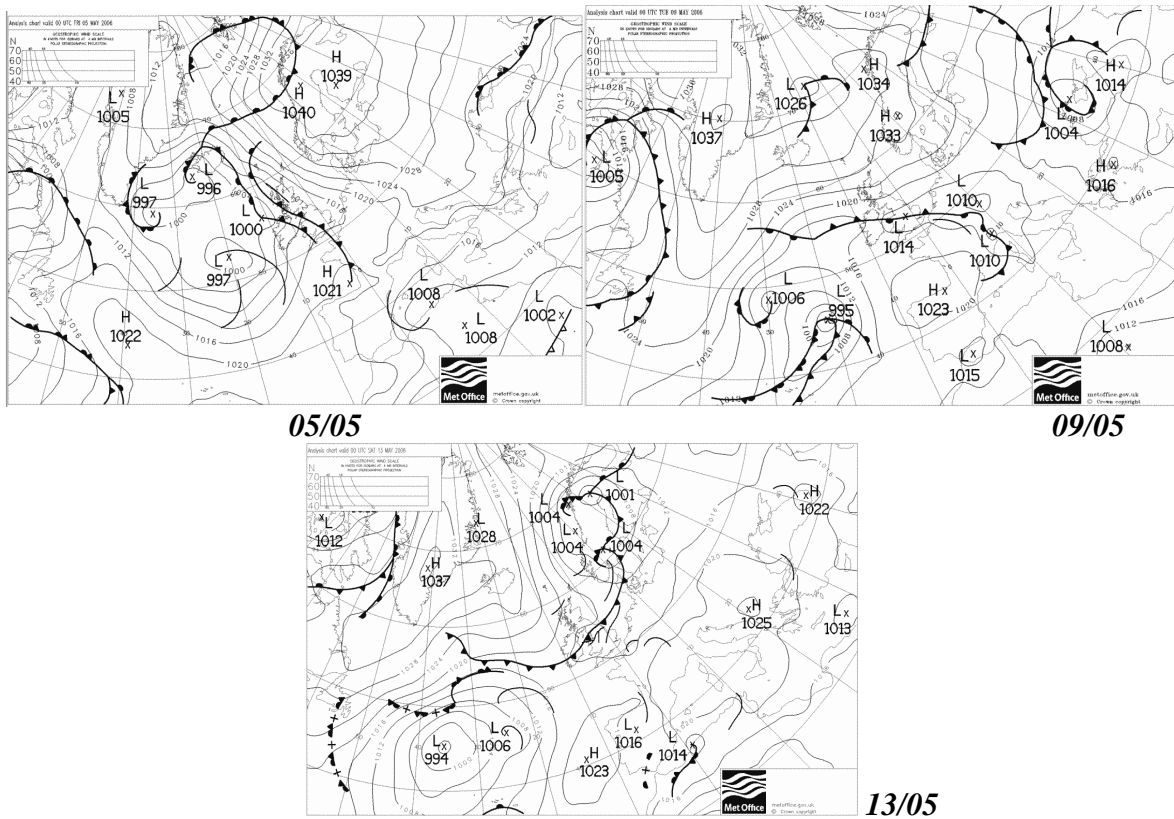


Figure 5.30 : Analyses synoptiques du 1, 2, 5, 9 et 13/05/06 à 00h UTC (source : Met-office).

### 5.2.2. Influence de la paramétrisation de la CLA sur trois paramètres dynamiques durant la période du 3 au 7 avril 2006

La variation de la hauteur de la CLA ( $h$ ), du flux de chaleur sensible ( $F_{CS}$ ) et de la vitesse de friction ( $U_*$ ) en fonction de la paramétrisation de  $BK$  et  $MRF$  sont étudiées dans ce paragraphe. Ces paramètres sont déterminants dans l'évaluation du flux turbulent vertical calculé par CHIMERE.

#### *Description des paramétrisations de la PBL*

La paramétrisation de *Blackadar (BK)* est un schéma du premier ordre qui contient deux régimes turbulents : un régime stable ou nocturne et un régime de convection libre. La diffusion turbulente est fonction du nombre de Richardson en régime convectif stable et forcé. Dans le cas d'un régime convectif libre, le transport vertical de la chaleur, de l'humidité et de la quantité de mouvement sont fonctions de la structure thermique de l'ensemble de la CLA ainsi que du flux de chaleur sensible.

La paramétrisation *MRF* est un schéma du premier ordre qui est composé tout comme *BK* de deux régimes : un régime stable pour lequel la *K-diffusion* est appliquée et un régime de convection libre pour lequel les processus de turbulences méso-échelles sont pris en compte au niveau local permettant l'introduction de l'effet d'entraînement au sommet de la CLA dans les processus de mélanges turbulents. Les coefficients de diffusion turbulente pour les quantités de mouvement sont fonctions de la vitesse de friction et de la hauteur de la CLA alors que ceux pour la température et

l'humidité sont calculés selon la relation du nombre de Prandtl. La paramétrisation de *MRF* apparaît comme plus élaborée et nous nous attendons à une meilleure reproduction de  $h$  avec celle-ci.

### Hauteur de la CLA

La Figure 5.31 représente l'évolution temporelle de la hauteur de la CLA pour les deux paramétrisations ainsi que la température. Une importante disparité est observée pour  $h$  en fonction du type de paramétrisation. *MRF* calcule une hauteur  $h$  supérieure de plusieurs centaines de mètres (en moyenne 500 m) à celle calculée avec *BK*. Contrairement à ce que l'on pouvait attendre, la corrélation entre la variation de  $h$  et la température est peu marquée. L'évaluation de  $h$  a été effectuée à partir d'un emmagramme mesuré à Hertmonceux (50,38°N ; 2,33°O) (Figure 5.32), une localité du sud de l'Angleterre. L'analyse de l'emmagramme permet d'estimer la hauteur maximale de la CLA à 1 400 m durant la journée du 06/04/06. Les analyses des autres emmagrammes pour le reste de la période (du 04/04 au 07/04) indiquent une hauteur  $h_{\max}$  (ligne noire) du même ordre de grandeur. Or, la moyenne des cinq  $h_{\max}$  reproduit par la paramétrisation *MRF* sur la période du 4 au 7 avril est plus proche de la valeur mesurée (1500 m). *MRF* est donc recommandée lors de l'utilisation de MM5. Nous observons enfin que pour *BK*,  $h$  est nul la nuit alors que selon *MRF*,  $h$  est en moyenne proche de 70 m, ce qui est encore une fois plus réaliste.

Nous tenons à préciser que des mesures de la hauteur de la CLA au niveau de Dunkerque seraient nécessaires afin de confirmer nos conclusions. En effet, la station la plus proche de Dunkerque effectuant des radiosondages est celle de Hertmonceux. Cette station s'apparente à celle de Dunkerque car elle se situe proche de la côte et les conditions météorologiques susceptibles d'y être rencontrées sont voisines de celles observées à Dunkerque. La courbe rouge représente la courbe de température, la courbe bleu continue, la température du thermomètre mouillé et la courbe bleu tiretée, la température du point de rosée. Les zones colorées donnent des renseignements sur l'état thermodynamique de la colonne troposphérique. Plus il y a de bleu plus la masse d'air sera froid, plus il y a de rouge plus la masse d'air est chaude et plus il y a de vert plus la masse d'air est humide.

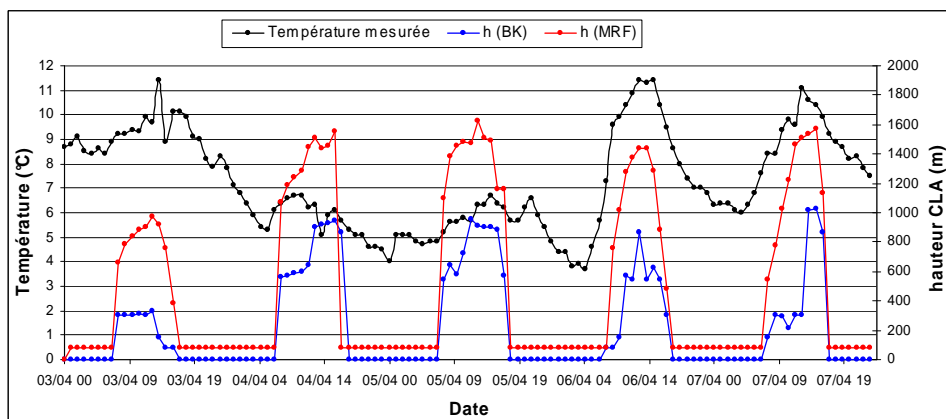


Figure 5.31 : Evolution temporelle de la température mesurée et de la hauteur de la CLA calculée selon deux types de paramétrisations (*BK* et *MRF* du modèle MM5) du 3 au 7 avril 2006 à Dunkerque.

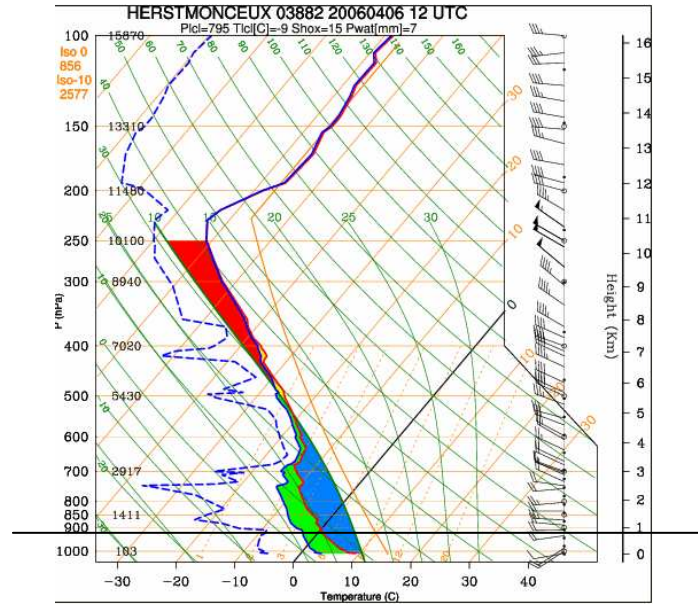


Figure 5.32 : Emagramme issu de données mesurées pour la station de Hertmonceux (50,53°N ; 0,20°E) le 06/04/2006 à 12h UTC.

Nous avons souhaité comparer la hauteur de la CLA simulée à Dunkerque avec celles calculées à Lille et en zone rurale. La Figure 5.33 et la Figure 5.34 illustrent la variation de la hauteur de la CLA calculée pour les deux paramétrisations à Lille et en zone rurale respectivement. La paramétrisation de *MRF* décrit pour Lille une évolution de  $h$  proche de celle calculée pour Dunkerque (maximum de 1600 m en moyenne) avec cependant une hauteur plus élevée le 03/04 à Lille. Ceci est conforme à nos attentes car les villes de Lille et Dunkerque sont représentées comme un couvert urbain par le module *TERRAIN*. On note qu'à la différence de Dunkerque, *BK* donne des résultats quasi similaires à ceux calculés avec *MRF*. De plus, la corrélation entre  $h$  et la température mesurée est plus importante à Lille qu'à Dunkerque. On en déduit qu'à Lille  $h$  est principalement fonction de l'intensité de la température alors qu'à Dunkerque les processus dynamiques (cisaillement) sont dominants dans la détermination de  $h$ . La reproduction des processus dynamiques turbulents est cruciale afin de simuler correctement les polluants sur la zone côtière de Dunkerque.

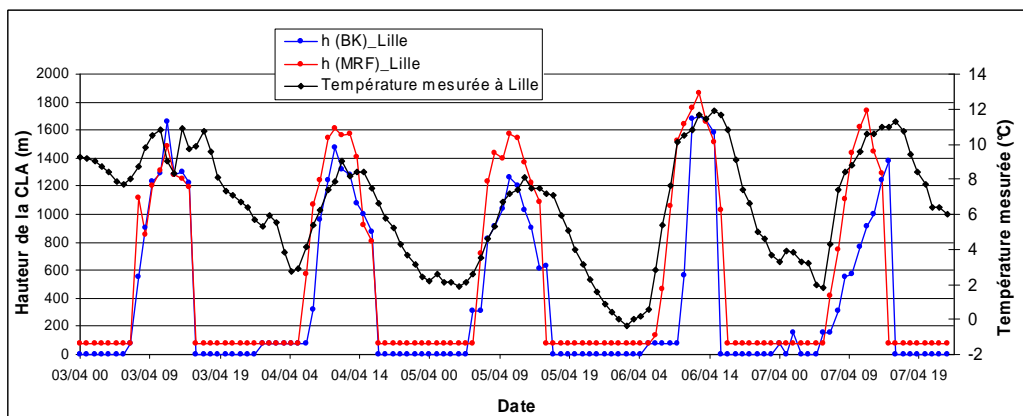
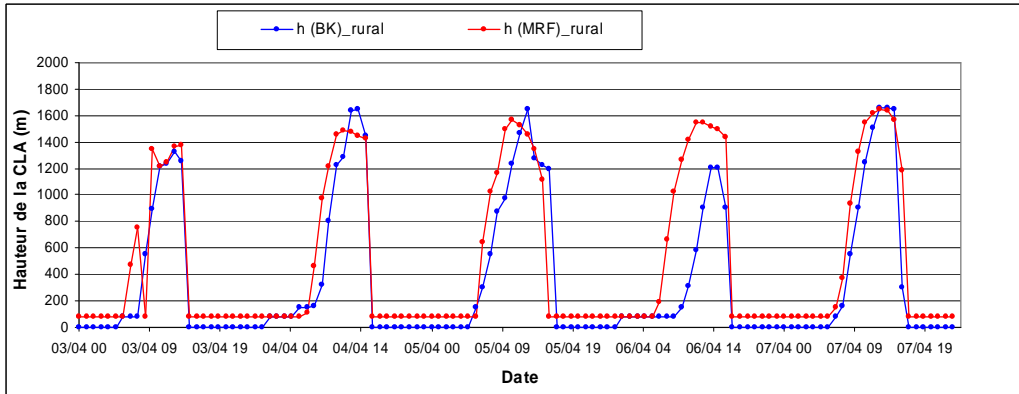


Figure 5.33 : Evolution temporelle de la température mesurée et de la hauteur de la CLA calculée selon deux types de paramétrisations (*BK* et *MRF* du modèle MM5) du 3 au 7 avril 2006 à Lille.



Pour ce qui est de l'évolution de  $h$  en zone rurale, encore une fois, les résultats utilisant  $BK$  ou  $MRF$  sont très proches. Pour cette zone, la hauteur maximale calculée est moins fluctuante qu'en zone urbaine et est égale à 1500 m en moyenne. On note que le maximum du 03/04 est inférieur de 200 m à celui de Lille.



**Figure 5.34 : Evolution temporelle de la hauteur de la CLA calculée selon deux types de paramétrisations ( $BK$  et  $MRF$  du modèle  $MM5$ ) du 03 au 07 avril 2006 en zone rurale.**

#### *Flux de Chaleur sensible*

En ce qui concerne les flux de chaleur sensible ( $F_{CS}$ ), quatre maxima sont observés : le 3 ( $100 \text{ W/m}^2$ ), le 4 ( $145 \text{ W/m}^2$ ), le 6 ( $250 \text{ W/m}^2$ ) et le 7 ( $150 \text{ W/m}^2$ ) durant la période d'étude. Les pics ont lieu en milieu de journée. Ils sont indirectement liés aux flux solaire. Lors de conditions météorologiques nuageuses, les pics sont très atténués voir absents (05/04). Les maxima calculés surestiment les données mesurées d'un facteur 2 en moyenne excepté pour le pic de mi-journée le 06/04 qui est sous-estimé de  $50 \text{ W/m}^2$  (Figure 5.35). Peu de différence est notée entre les deux paramétrisations concernant l'estimation de  $F_{CS}$  sauf pour la journée nuageuse du 05/04 durant laquelle la paramétrisation de  $MRF$  est plus proche ( $150 \text{ W/m}^2$ ) de la faible valeur mesurée ( $50 \text{ W/m}^2$ ). On note que les minima ( $-30 \text{ W/m}^2$  en moyenne) sont bien représentés.

La représentation correcte de la nature du sol est fondamentale afin de reproduire correctement le  $F_{CS}$ . Dans ce cas, la ville de Dunkerque est bien représentée comme couvert urbain par le modèle  $MM5$  (module  $TERRAIN$ ). Les données du sol utilisées par  $TERRAIN$  sont présentées dans l'Annexe C-1. On note par exemple que l'albédo est assez faible (18 %) tout comme l'humidité disponible (10 %) alors que l'émissivité à  $9 \mu\text{m}$  est estimée à 88 %. Ces valeurs sont inférieures à celles attribuées à un couvert végétal (23 % pour l'albédo et 30 % pour l'humidité disponible). Il serait intéressant dans une prochaine campagne de mesurer ces différents paramètres au niveau de la ville de Dunkerque afin de comparer ces valeurs à celles définies par le module  $TERRAIN$  de  $MM5$ .

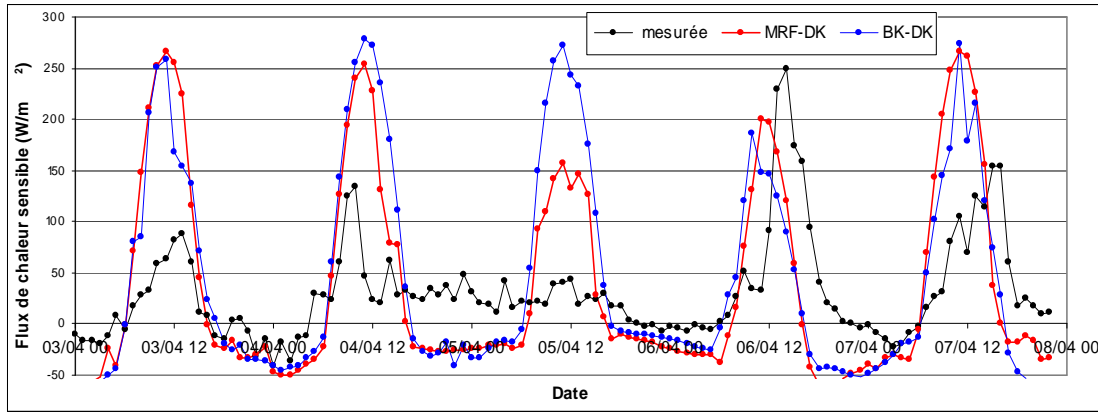


Figure 5.35 : Evolution temporelle du flux de chaleur sensible mesuré et calculé selon deux types de paramétrisations du 3 au 7 avril à Dunkerque.

Afin de vérifier si les pics de  $F_{CS}$  sont dus au flux solaire maximal ou au couvert urbain, nous avons tracé  $F_{CS}$  calculé en fonction des deux paramétrisations *BK* et *MRF* pour une zone rurale (Figure 5.36). Peu de différence est notée entre les deux paramétrisations. Nous observons qu'en zone urbaine les maxima modélisés sont inférieurs à ceux de Dunkerque de  $50 \text{ W/m}^2$ . A partir, de cet exemple, MM5 indique que 80 % du  $F_{CS}$  est dû au flux solaire maximal et 20 % au couvert urbain. Toutefois, nous ne pouvons conclure définitivement car le modèle surestime les mesures et nous ne disposons pas de mesures du flux en zone rurale.

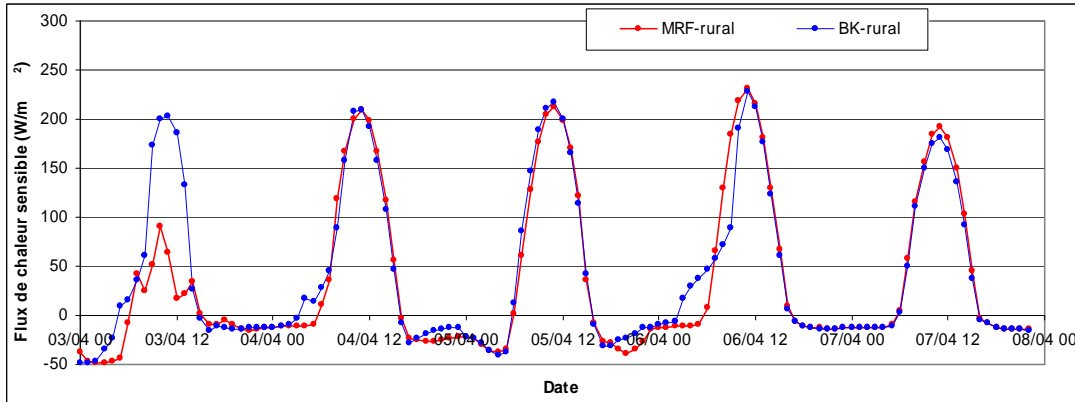


Figure 5.36 : Evolution temporelle du flux de chaleur sensible mesuré et calculé selon deux types de paramétrisations du 3 au 7 avril 2006 en zone rurale.

### Vitesse de frottement

L'évolution de la vitesse de frottement ( $U_*$ ) est assez variable au cours de la période. Quatre maxima positifs (le 03/04 à 02h UTC, 05/04 à 00h UTC, 06/04 à 12h/04 UTC et 07/04 à 14h UTC) et deux minima (le 03/04 et le 05/04 vers 22h UTC) sont observés (Figure 5.37). Les quatre pics positifs (en moyenne 1 m/s) sont directement liés à une augmentation de la vitesse du vent. Le pic du 05/04 correspond à un vent de nord-est de 12 m/s durant une période sèche anticyclonique. En revanche, les pics du 06/04 et du 07/04 sont liés à des vents du sud-ouest et au passage d'un front froid atténué pour

le second pic. D'une manière globale, peu de différences sont notées entre les deux paramétrisations. MM5 surestime de 0,2 m/s en moyenne les données mesurées. Il reproduit très correctement les pics liés aux périodes dépressionnaires par opposition au pic du 05/04 en période anticyclonique sous-estimé de 0,2 m/s. Le minimum du 05/04 en fin de journée (0 m/s) est très correctement représenté.

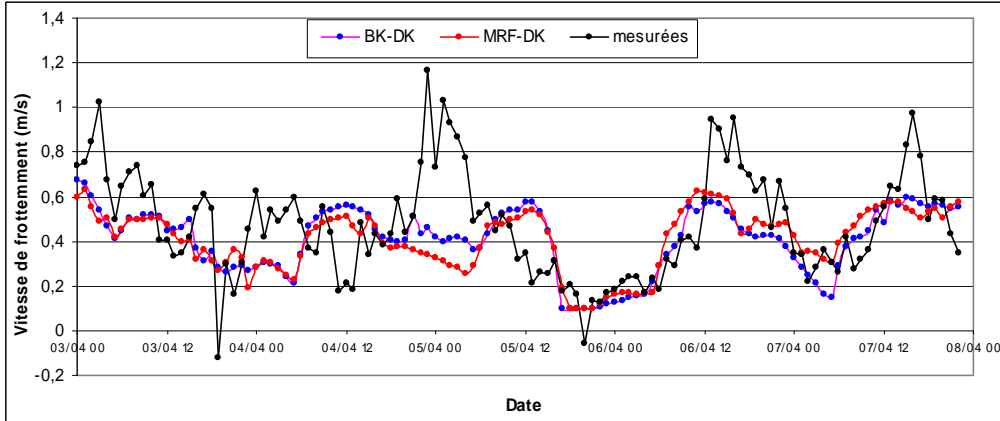


Figure 5.37 : Evolution temporelle de la vitesse de frottement mesurée et calculée selon deux types de paramétrisations du 3 au 7 avril 2006 à Dunkerque.

Tout comme pour  $h$  et  $F_{CS}$ , afin de comparer les valeurs calculées à Dunkerque à celles d'une zone non-urbanisée, nous avons tracé l'évolution de la vitesse de frottement du 03/04 au 07/08 pour une zone rurale du NPDC en fonction de  $MRF$  et  $BK$  (Figure 5.38). Nous observons que l'allure de la courbe représentant les vitesses de frottement calculées en zone rurale est assez similaire à celle de Dunkerque. Le maximum calculé le 05/04 en zone rurale (0,75 m/s) est supérieur à celui de Dunkerque (0,6 m/s) alors que l'inverse est observé pour les maxima du 06/04 et du 07/04 (0,4 m/s en zone rurale contre 0,6 à Dunkerque).

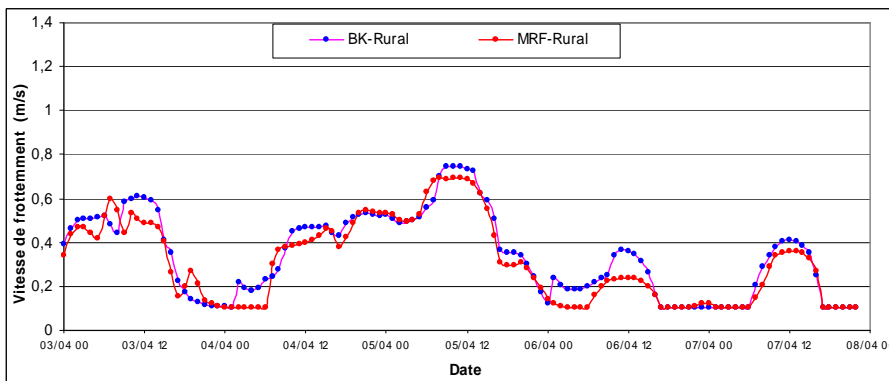
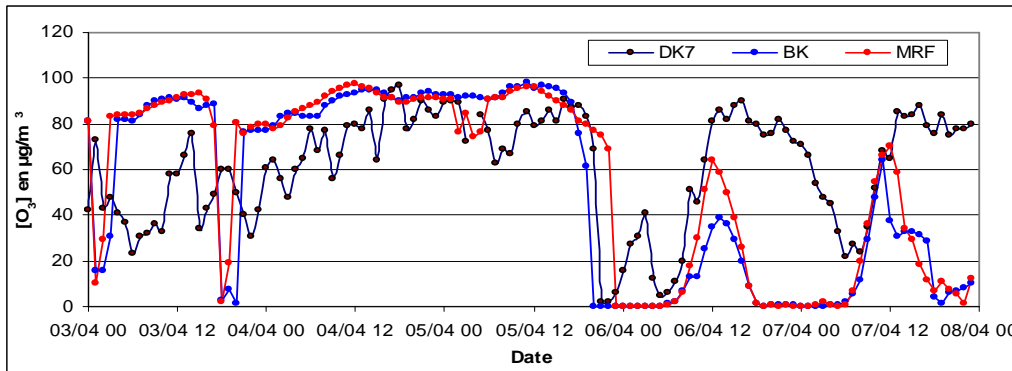


Figure 5.38 : Evolution temporelle de la vitesse de frottement calculée selon deux types de paramétrisations du 3 au 7 avril 2006 en zone rurale.

### 5.2.3. Influence des paramétrisations de la CLA sur les concentrations calculées de trois polluants troposphériques durant la période du 3 au 7 avril 2006

#### L'ozone

Au printemps, le cycle journalier de l’ozone est peu marqué comparé à celui mesuré en période estivale. Pour la période d’étude, on remarque deux fortes baisses des concentrations (06/04 et 07/04) sur la Figure 5.39. Cette baisse est attribuée au lessivage pour la journée du 07/04 (passage du front froid). Celle du 06/04 est plus délicate à justifier. La première baisse (06/04) est bien représentée alors que la seconde (07/04) est sous-estimée par MM5-CHIMERE. Deux diminutions succinctes des concentrations sont simulées le 03/04 par le système mais non confirmées au niveau des mesures. L’impact de la chimie hétérogène sur les précurseurs de l’ozone (NOx essentiellement) est privilégié afin d’expliquer les minima qui ne sont pas décrits par le système. On note que les deux paramétrisations (*MRF* et *BK*) ont peu d’influence sur les concentrations d’ozone calculées.



**Figure 5.39 : Evolution temporelle de la concentration en ozone mesurée et calculée selon deux types de paramétrisations du 3 au 7 avril 2006 pour la station DK7.**

La Figure 5.40 représente le profil vertical de concentrations en ozone modélisées en début d’après-midi au niveau de l’axe Dunkerque Lille. On remarque qu’à proximité des sources d’émissions (zone A de la Figure 5.40), les concentrations en ozone sont faibles. Les émissions en NOx sont intenses au niveau de Dunkerque (industries, transport) et la titration de l’ozone par les NOx explique les concentrations relativement basses à ce niveau. Les maxima d’ozone ( $100 \mu\text{g}/\text{m}^3$ ) sont simulés entre 700 et 1600 m au dessus de Dunkerque. Ensuite, au cours de l’après-midi deux situations sont observées : le déplacement de la masse d’air polluée à l’intérieur des terres (atteignant parfois la surface) ou la stagnation de celle-ci au dessus de Dunkerque en fonction des conditions dynamiques (vent et température).

Les zones périurbaines de la ville de Dunkerque sont propices à la production d’ozone. La localisation de la masse d’air polluée est, d’après les simulations produites en priorité en altitude au dessus de Dunkerque. Les conditions dynamiques de la zone déterminent le transport ou non de la parcelle vers la surface. Cette situation est similaire à celle rencontrée en juillet 2006 et décrite dans le chapitre 4 du manuscrit.

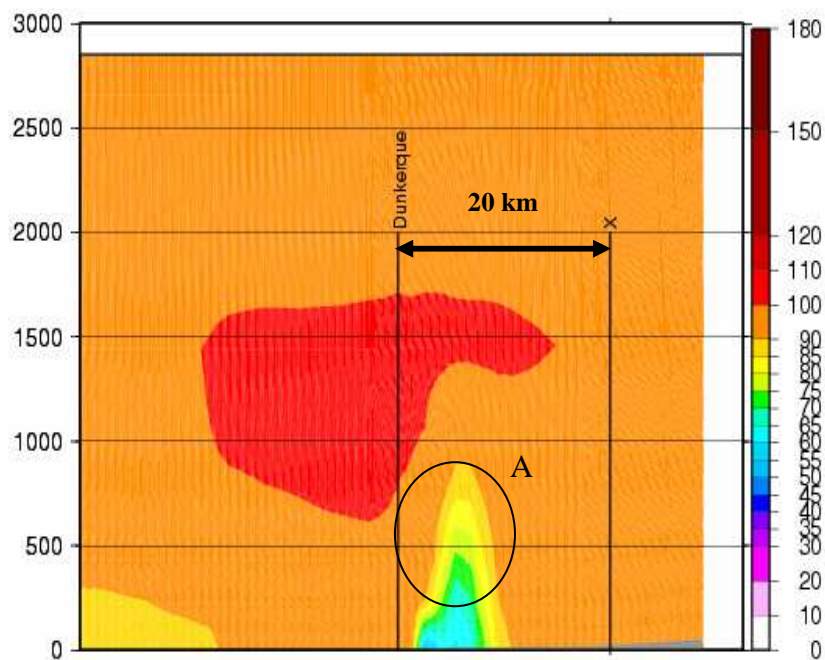


Figure 5.40 : Profil vertical des concentrations en ozone ( $\mu\text{g}/\text{m}^3$ ) modélisées pour la journée du 03/04/06 à 14h UTC.

#### *Le $\text{SO}_2$ et les $\text{PM}_{10}$*

L'étude de l'évolution temporelle de la concentration en  $\text{SO}_2$  (Figure 5.41) montre en début de matinée du 05/04, un pic intense typique d'une pollution d'origine industrielle. Les pics de  $\text{SO}_2$  au niveau de Dunkerque, sont mesurés par les stations, de préférence lorsque le flux est de secteur nord. La Figure 5.41 montre une bonne reproduction du pic de  $\text{SO}_2$  pour la journée du 05/04 par la paramétrisation *MRF* ( $\text{CC} = 0,41$ ). Il faut préciser que d'une manière globale, les pics de  $\text{SO}_2$  sur l'agglomération de Dunkerque sont fréquents, intenses mais de courtes durées. Ils sont à mettre en relation directe avec l'activité industrielle pétrochimique et sidérurgique de la zone. Leur reproduction par *CHMERE* est par conséquent particulièrement délicate lors de l'utilisation du cadastre de faible résolution *EMEP*.

De manière identique à l'évolution de la concentration du  $\text{SO}_2$  à Dunkerque, celle des  $\text{PM}_{10}$  est caractérisée par des pics intenses et de courtes durées d'origines industrielles (Figure 5.42). Les deux pics du 03/04 sont très probablement d'origine industrielle et ne sont pas reproduits par *MM5-CHIMERE*. Le nombre de pics correctement représentés est environ de 1 sur 5.

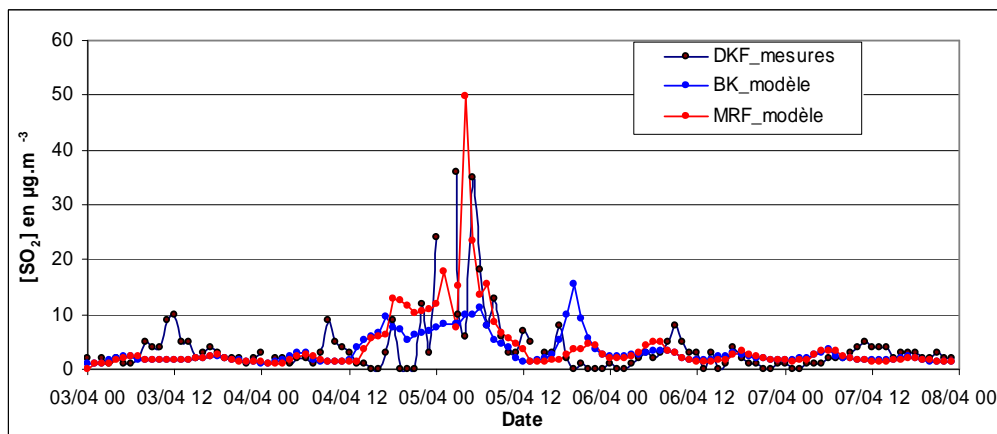


Figure 5.41 : Evolution temporelle de la concentration de  $\text{SO}_2$  mesurée et calculée selon deux types de paramétrisations du 03 au 07 avril 2006 pour la station DKF.

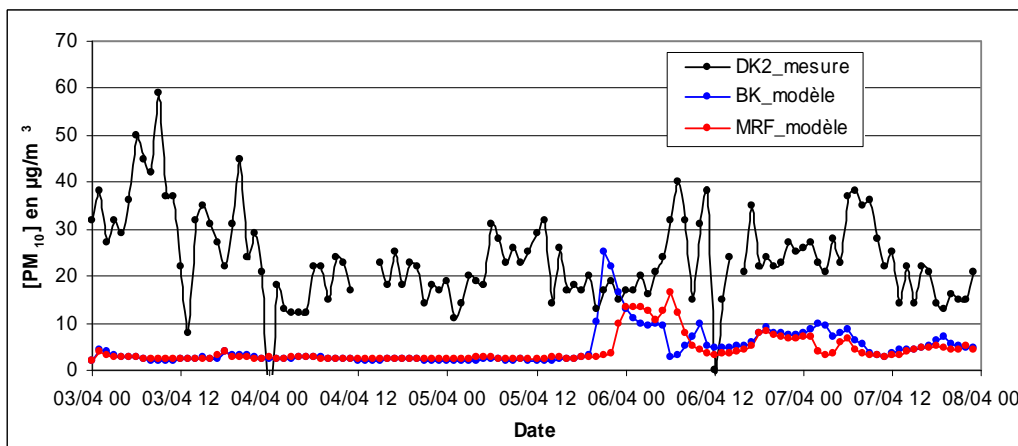


Figure 5.42 : Evolution temporelle de la concentration de  $\text{PM}_{10}$  mesurée et calculée selon deux types de paramétrisations du 3 au 7 avril 2006 pour la station DK2.

Le Tableau 5.5 représente les coefficients de corrélation entre concentrations mesurées et calculées pour différentes stations sélectionnées pour leur représentativité de la pollution du site de Dunkerque, après avoir comparé les différents profils des stations de la zone. MM5-CHIMERE reproduit assez correctement les concentrations d'ozone en zone périurbaine ( $CC = 0,55$  pour DKF et  $0,36$  pour DK9 avec *MRF*) mais difficilement en zone urbaine ( $CC = 0,30$ ). Comparé aux résultats obtenus durant la période juin-juillet 2006, le système sous-estime fortement les concentrations mesurées et ne reproduit pas les pics intenses en  $\text{PM}_{10}$  mesurés à la station DKF ( $CC = -0,01$  avec *MRF*). Peu de différences sont observées entre les deux types de paramétrisations pour la modélisation du  $\text{SO}_2$  et des  $\text{PM}_{10}$ . Encore une fois, *MRF* apparaît comme la paramétrisation la mieux adaptée à la région de Dunkerque.

**Tableau 5.5 : Coefficients de corrélation entre les concentrations pour O<sub>3</sub>, SO<sub>2</sub> et PM<sub>10</sub> mesurées et calculées durant la période du 3 au 7 avril 2006 pour différentes stations de la zone industrielle de Dunkerque en fonction de deux types de paramétrisations de la CLA (n = 120).**

Station	Polluant	CC (BK)	CC (MRF)
DK7 urbaine	O <sub>3</sub>	0.34	0.30
DKF péri-urbaine	O <sub>3</sub>	0.54	0.55
DK9 péri-urbaine	O <sub>3</sub>	0.07	0.36
DKF péri-urbaine	SO <sub>2</sub>	0.40	0.41
DKF péri-urbain	PM <sub>10</sub>	-0.13	-0.01

#### 5.2.4. Analyse des polluants atmosphériques sur la période du 1 au 15 mai 2006

La concentration d'ozone a été modélisée pour l'ensemble de la période. L'analyse de l'évolution temporelle de l'ozone modélisé et calculé pour la station urbaine DK7 de Dunkerque (Figure 5.43) montre que la version CHIMERE V200511B reproduit assez difficilement le cycle journalier de l'ozone (CC = 0,14). L'évolution de la concentration de base des PM<sub>10</sub> est correctement représentée par le système (Figure 5.44). En revanche, les pics du 05 (210 µg/m<sup>3</sup>), 09, 10 et 12/05 (environ 100 µg/m<sup>3</sup>) sont largement sous-estimés ou non représentés. Les pics de ces polluants sont corrélés avec une orientation secteur nord du vent favorisant l'advection des polluants primaires d'origine industrielle sur l'agglomération Dunkerquoise.

Nous observons que l'évolution temporelle des concentrations en PM<sub>10</sub> est composée de pics de courtes durées plus ou moins intenses. La Figure 5.45 montre que les évolutions temporelles des concentrations en PM<sub>10</sub> et en SO<sub>2</sub> sont corrélées. Les pics de SO<sub>2</sub> sont très majoritairement liés aux fumées industrielles ainsi qu'au trafic maritime (ferries notamment). En conséquence, au niveau de Dunkerque, les sources de particules et de SO<sub>2</sub> sont étroitement liées. Les émissions industrielles sont certes prises en compte au sein du cadastre EMEP mais la résolution temporelle des émissions industrielles spécifiques à Dunkerque (type panache industriel de courte durée) n'est pas décrite dans le module du système traitant des émissions au sein de CHIMERE (emiEMEP2004).

Il est important de noter que le cycle journalier de l'ozone est moins marqué que pour des stations de types périurbaines localisées dans les terres (Lille-Lesquin), ce qui le rend d'autant plus délicat à reproduire. Nous attribuons cette particularité au fait qu'un certain nombre de réactions hétérogènes ne sont pas décrites par le modèle car parfois mal identifiées. Or, la zone est tout à fait propice à ce type de chimie. On pense notamment aux réactions sur les sels de mer (NO<sub>2</sub> + NaCl) mais également sur des particules carbonées ou métalliques émises en nombre au niveau de la zone. L'ozone mais également le SO<sub>2</sub> et les NO<sub>x</sub> sont potentiellement impliqués dans ce type de réactions.

Deux axes prioritaires doivent être suivis pour la suite des travaux de modélisation appliqués à la zone de Dunkerque : la prise en compte des réactions hétérogènes spécifiques à la zone de Dunkerque mettant en jeu les aérosols marins ainsi que le renseignement des émissions liées au trafic

maritime (particules et NOx) au sein du cadastre régional. Au PC2A, une équipe travaille actuellement sur la chimie hétérogène entre sels de mer et certains polluants gazeux tel que les NOx [Aghnastios, 2008].

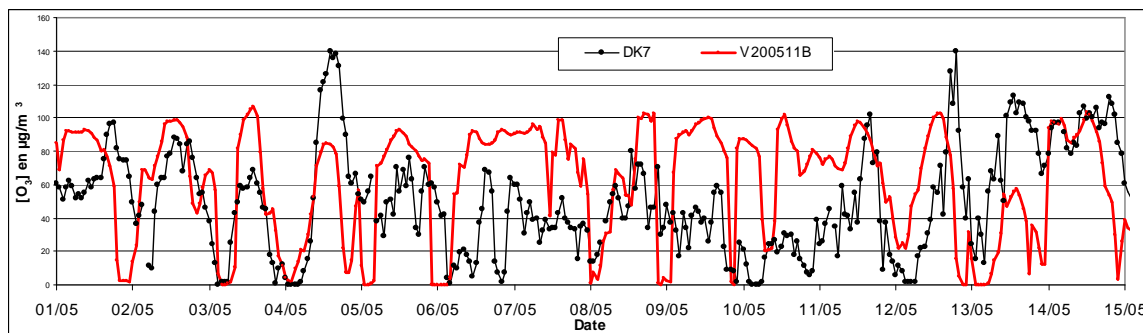


Figure 5.43 : Evolution temporelle de la concentration en  $O_3$  mesurée et calculée par CHIMERE du 1 au 14 mai 2006 à la station DK7 ( $CC = 0.14$ ) et  $n = 336$ .

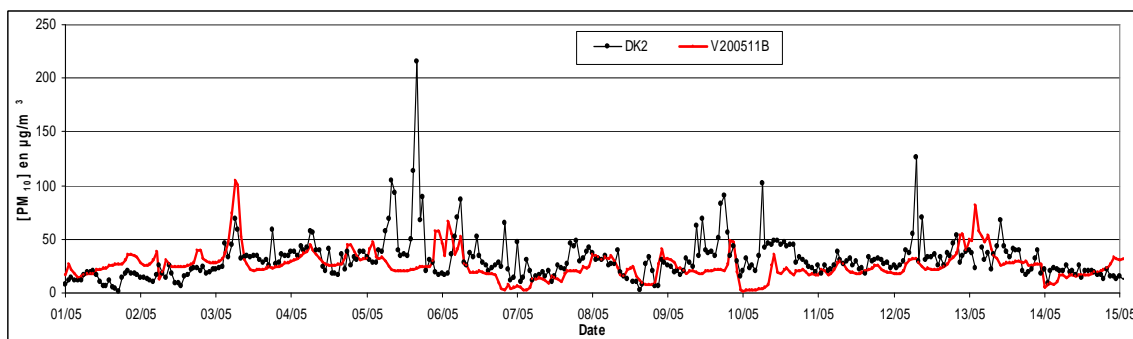


Figure 5.44 : Evolution temporelle de la concentration en  $PM_{10}$  mesurée et calculée par CHIMERE du 1 au 14 mai 2006 à la station DK2 ( $CC = 0.14$ ) et  $n = 336$ .

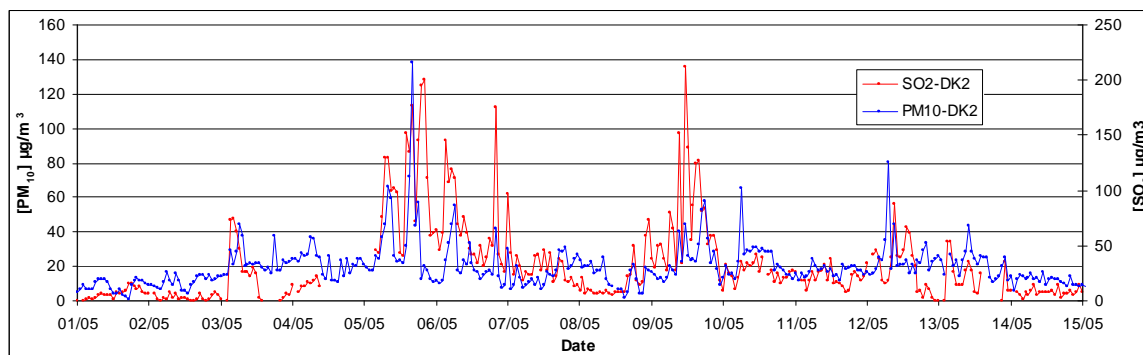


Figure 5.45 : Evolution temporelle de la concentration de  $SO_2$  et  $PM_{10}$  du 01 au 14 mai 2006 à la station DK2.

### 5.2.5. Conclusion : Etude spécifique de la zone côtière industrielle de Dunkerque

Le système MM5-CHIMERE a été testé avec deux types de paramétrisations de la CLA en mode diagnostique au niveau de la zone spécifique côtière de Dunkerque.



La capacité du système à décrire les conditions météorologiques au niveau de Dunkerque a été évaluée. L'analyse des résultats montre que le système reproduit correctement la température. Il sous-estime les maxima journaliers de la vitesse du vent et sur estime légèrement l'humidité relative.

La paramétrisation de *MRF* calcule une valeur de  $h$  supérieure de 500 m en moyenne à celle calculée avec *BK* à Dunkerque. Cette différence n'est pas observée pour Lille ou en zone rurale. Les paramètres dynamiques ( $F_{CS}$ ,  $U_*$ ) et les concentrations de polluants ( $O_3$ ,  $SO_2$  et  $PM_{10}$ ) sont peu sensibles au changement de paramétrisations de la CLA. Cependant, la paramétrisation de *MRF* semble plus adaptée aux simulations de petites échelles sur la zone de Dunkerque.

Le système MM5-CHIMERE reproduit assez difficilement le cycle journalier de l'ozone au sein d'un environnement industrialisé caractérisé par des conditions météorologiques locales spécifiques. Il reproduit correctement les concentrations de fonds en  $PM_{10}$  mais difficilement les maxima.

Le facteur principal favorisant l'augmentation de la concentration des polluants primaires sur la zone de Dunkerque est une orientation du vent au secteur nord. On remarque que la diminution des polluants primaires et secondaires est principalement liée au lessivage et aux vents de secteur autre que de direction nord.

### 5.3. Conclusion

Le système MM5-FLEXPART apparaît comme un outil déterminant mais aussi complémentaire des techniques utilisées dans le chapitre 4 (*nesting* et émissions nulles) afin de localiser l'origine d'une intense pollution particulaire sur la zone de Dunkerque. Les différentes simulations réalisées par le système MM5-FLEXPART ont montré que la modélisation de la pollution atmosphérique de la zone industrielle de Dunkerque est délicate. Afin d'améliorer la performance de MM5-CHIMERE, deux axes de travail sont suggérés : le renseignement précis (1 x 1 km de résolution), tant quantitatif que qualitatif, des émissions anthropiques (largement majoritaires) et l'introduction de réactions traitant de la chimie hétérogène propre à la zone de côtière de Dunkerque (réactions hétérogènes sur les sels de mer ou les particules métalliques). Enfin, nous avons constaté que le modèle MM5 avait des difficultés à reproduire certains paramètres dynamiques déterminants dans le calcul des concentrations de polluants au sein de la CLA. Nous suggérons le couplage de CHIMERE avec le modèle météorologique *WRF* au sein duquel la représentation du sol est plus élaborée ce qui permettra une amélioration de la performance du système au niveau de Dunkerque.

**CONCLUSION  
GENERALE ET PERSPECTIVES**



Ce travail de thèse a permis de caractériser la pollution à l'ozone et en particules, rencontrées en région NPDC, grâce à l'étude de différents épisodes au cours des années 2006 et 2007.

Au cours des travaux de recherche, deux systèmes de modélisation ont été mis en place au sein de la plateforme POQAIR du laboratoire PC2A dans le cadre du projet 2B (Axe 1, Action 1) du GIS IRENI.

Le premier système est composé du modèle météorologique MM5 et du modèle de Chimie-Transport CHIMERE. Le modèle MM5 est un modèle méso-échelle utilisé en mode non-hydrostatique. Les V200511B, V200709C et V200709D de CHIMERE ont été utilisées. Durant la thèse, un cadastre d'émissions régionales a été couplé à ce système.

Le second système est composé de MM5 et du modèle Lagrangien de diffusion de particules FLEXPART. Il peut être utilisé en mode direct ou indirect afin de déterminer, respectivement, le devenir ou l'origine d'un panache de particules.

Les domaines utilisés couvrent la région NPDC à diverses échelles : NPDC2 (10 x 10 km<sup>2</sup>), NPDC2Fin (5 x 5 km<sup>2</sup>) et NPDC2Tfin (2 x 2 km<sup>2</sup>), la région transmanche (NPDC4 : 5 x 5 km<sup>2</sup>) et les zones locales de Lille (NPDC3Lille : 1 x 1 km<sup>2</sup>) et de Dunkerque (NPDC3DK : 1 x 1 km<sup>2</sup>).

### ***Evolution des concentrations de polluants en fonction des conditions météorologiques***

La première période s'intéresse à la canicule de juin-juillet 2006. Le système MM5-CHIMERE V200511B associé au domaine NPDC2Fin (5 x 5 km<sup>2</sup>) a été utilisé. Nous avons tout d'abord étudié l'évolution des concentrations en O<sub>3</sub> et en PM<sub>10</sub> en fonction des conditions météorologiques.

A Lille, les concentrations en O<sub>3</sub> les plus fortes, sont rencontrées lors de températures élevées, des vents faibles et une atmosphère relativement sèche. Pour la température, la tendance Lilloise est également observable à Dunkerque mais de manière beaucoup moins marquée. Pour ce qui est de l'humidité et de la vitesse du vent, aucune corrélation marquée n'est observée. Dans les deux cas les vents d'est sont favorables à l'augmentation des concentrations en ozone. La pollution particulaire semble moins dépendante des conditions de température et d'humidité. Toutefois, un vent faible (de nord-ouest pour Lille et nord-est ou sud-ouest pour Dunkerque), peu favorable à la dispersion de celle-ci, engendre une augmentation des concentrations moyennes horaires mesurées dans ces deux villes.

### ***Performance du système du point de vue météorologique***

La performance du système CHIMERE-MM5 à reproduire certains paramètres dynamiques et les niveaux de concentrations des polluants a été testée au niveau de Lille et de Dunkerque.

A Lille, le modèle MM5 reproduit très correctement la température moyenne horaire et l'humidité relative au cours du mois de juillet 2006. Les températures calculées surestiment très légèrement celles mesurées alors que l'humidité relative est légèrement sous-estimée tout en étant de

bonne qualité. La vitesse du vent est correctement reproduite mais les maxima sont en général sous-estimés. Quand aux précipitations, elles sont sous-estimées (de 3 à 6 mm) et parfois non représentées ce qui peut engendrer une surestimation des données calculées des polluants lors du passage des fronts.

De manière identique, au niveau de Dunkerque, les variables température et humidité relative sont très bien représentées. On note que la simulation de la vitesse du vent est meilleure à Dunkerque. Les maxima moyens horaires (09/07 et 14/07) sont cependant sous-estimés de 5 m/s (BF = -0,21). La principale différence avec la station de Lille concerne la modélisation des précipitations qui à l'inverse sont surestimées (5 à 8 mm) à Dunkerque (BF = 1,01). Il semble que MM5 représente assez difficilement la pénétration des zones de pluies à l'intérieur des terres.

### ***Influence de la résolution de la grille et des données météorologiques***

Plusieurs paramètres ont été testés afin d'optimiser la configuration du système MM5-CHIMERE à la région NPDC.

L'influence de la résolution des domaines et des données météorologiques sur les concentrations en ozone et en PM<sub>10</sub> calculées a été testée sur le mois de juillet 2006 avec le système MM5-V200709C pour une station périurbaine et urbaine respectivement. Pour des domaines de résolutions inférieures à 5 km, les données en ozone sont sous-estimées. Pour les PM<sub>10</sub>, la performance du système augmente plus la résolution est fine. Une résolution de 5 km minimum est recommandée dans les deux cas.

Des données météorologiques de résolution inférieure à 9 km, détériorent la capacité du système à reproduire le cycle journalier de l'ozone. Une hauteur de CLA modélisée trop élevée et ne fluctuant pas correctement au cours de la journée est avancée comme explication de la mauvaise performance du système pour les fines résolutions. En revanche, pour les PM<sub>10</sub>, les résolutions les plus fines (3 et 1 km) donnent les meilleurs résultats. Une résolution de 9 km au maximum pour la modélisation de l'ozone et de 3 km minimum pour les PM<sub>10</sub> est recommandée. En pratique, l'utilisation de deux domaines distincts pour l'ozone et les PM<sub>10</sub> est conseillée.

### ***Performance du système du point de vue des polluants et influence du cadastre régional***

La performance du système MM5-FLEXPART à reproduire les concentrations en O<sub>3</sub> et PM<sub>10</sub> et les niveaux de concentrations des polluants a également été testée au niveau de Lille et de Dunkerque.

Nous avons mis en évidence, sur Lille, la bonne capacité du système à reproduire les concentrations moyennes horaires en ozone avec une tendance à sous-estimer les maxima journaliers. A Dunkerque, la performance du système est médiocre. Le système éprouve des difficultés à reproduire les concentrations en PM<sub>10</sub>. Il sous-estime largement les concentrations moyennes horaires

et les maxima journaliers en  $PM_{10}$ . L'utilisation du cadastre régional engendre une sous-estimation des concentrations moyennes horaires calculées en  $O_3$  (excepté pour les minima mieux reproduits) et en  $PM_{10}$ . Le renseignement incomplet de certains SNAP et des émissions particulières explique très probablement cette mauvaise performance. Le savoir-faire concernant l'intégration d'un cadastre régional au sein de CHIMERE pourra être appliqué à la version 2005 du cadastre régional d'AtmoNPDC.

#### ***Etude de l'origine de la pollution à l'ozone et particulaire au niveau de la région NPDC***

L'utilisation du *nesting* a permis de mettre en évidence l'importante composante régionale durant les fortes concentrations en ozone observée lors des périodes du 1 au 4, du 12 au 18 et du 25 au 26 juillet 2006. La suppression des émissions indique quant à elle un apport extérieur à la région NPDC (composante régionale) de 90 % lors des pointes d'ozones maximales et de 15 % en moyenne pour l'ensemble des concentrations en ozone et en  $PM_{10}$ . Contrairement à l'ozone, pour les  $PM_{10}$ , la valeur de la contribution locale n'est pas proportionnelle à l'intensité du pic. Ainsi d'après nos calculs, les dépassements du seuil d'information pour l'ozone ( $180 \mu\text{g}/\text{m}^3$ ) observés en région NPDC au niveau de Lille durant le mois de juillet 2006 sont la conséquence de l'advection d'ozone au niveau de la région, et non d'une production locale.

#### ***Comportement de MM5-CHIMERE au niveau local sur la zone spécifique de Dunkerque***

Le système MM5-CHIMERE a été testé avec deux types de paramétrisations de la CLA en utilisant le domaine de petite échelle NPDC3DK, au niveau de la zone spécifique côtière de Dunkerque. La capacité du système à décrire les conditions météorologiques au niveau de Dunkerque a été évaluée. L'analyse des résultats montre que le système reproduit correctement la température. Il sous-estime les maxima journaliers de vitesse du vent et surestime légèrement l'humidité relative.

On note que la paramétrisation de *MRF* calcule une valeur de  $h$  supérieure de 500 m en moyenne à celle calculée avec *BK* à Dunkerque. Cette différence n'est pas observée pour Lille ou en zone rurale. Les paramètres dynamiques ( $F_{CS}$ ,  $U_*$ ) et les concentrations de polluants ( $O_3$ ,  $SO_2$  et  $PM_{10}$ ) sont peu sensibles au changement de paramétrisation de la CLA. Cependant, la paramétrisation de *MRF* semble plus adaptée aux simulations de petites échelles sur la zone de Dunkerque. On observe également d'après MM5 que la zone de Dunkerque développe une hauteur de CLA plus fluctuante en fonction de la température qu'en zone rurale. MM5 indique également que 80 % du  $F_{CS}$  est dû au flux solaire maximal et 20 % au couvert urbain

Dans un environnement particulièrement industrialisé et aux conditions météorologiques locales spécifiques, le système MM5-CHIMERE reproduit difficilement les concentrations d'ozone dont le

cycle est moins marqué qu'à l'intérieur des terres. Il reproduit correctement les concentrations de fonds en  $PM_{10}$  mais difficilement les maxima.

Le facteur principal favorisant l'augmentation de la concentration des polluants primaires sur la zone de Dunkerque est une orientation du vent au secteur nord. On remarque que la diminution des polluants primaires et secondaires est principalement liée au lessivage et aux vents de secteur autre que de direction nord.

### ***Origine de deux évènements de pollution particulaire intenses sur l'agglomération Dunkerquoise***

L'origine de deux évènements de pollution particulaire intenses sur la région NPDC a été étudiée en utilisant le système MM5-FLEXPART. L'avantage principal du modèle FLEXPART est qu'il simule le transport et le dépôt d'une multitude de rétro-trajectoires.

L'évènement printanier dont l'origine est régionale/continentale couvre une surface très étendue. La situation météorologique est caractérisée par un flux est-ouest bien établi, des conditions sèches et une activité frontale 24 h avant le pic maximal. De plus, durant l'évènement, la répartition en taille de la phase particulaire montre une proportion en  $PM_{2,5}$  variant entre 25 et 40 % de la masse en  $PM_{10}$ . Enfin, aucune augmentation significative de la pollution en NO et  $NO_2$  n'est notée.

L'évènement hivernal ayant une origine à la fois locale et régionale est caractérisé par des conditions anticycloniques bien établies, une proportion en  $PM_{2,5}$  élevée et égale à 90 % en moyenne de la masse en  $PM_{10}$  durant le pic principal et une augmentation significative de la pollution en NO et  $NO_2$ .

### ***Perspectives de travail***

Les perspectives de travail concernant l'utilisation de la configuration actuelle des systèmes MM5-CHIMERE et MM5-FLEXPART sont prometteuses.

Actuellement MM5-CHIMERE est utilisé dans le cadre du projet de Cartographie de l'Exposition aux Risques des Populations aux Aérosols<sup>1</sup> (CERPA). Son but est de produire des données  $PM_{10}$  et  $PM_{2,5}$  afin de disposer d'une base de données permettant de constituer des indices de risque d'exposition à la pollution particulaire.

---

<sup>1</sup> <http://www.appanpc-asso.org/Etudes/Cerpa.asp>

Parallèlement, une thèse en co-tutelle entre le laboratoire « Territoires, Villes, Environnement et Société » de l'Université Lille 1 : Sciences et Technologies et le PC2A a débuté en octobre 2008 sur le thème de l'impact du changement climatique sur les concentrations en ozone et autres gaz à effet de serre au niveau de la région NPDC. Les modèles MM5 et CHIMERE sont activement mis à contribution dans ces études.

A court terme, deux axes prioritaires de travail doivent être privilégiés pour la suite des travaux de modélisation appliqués à la zone de Dunkerque : la prise en compte des réactions hétérogènes spécifiques à la zone de Dunkerque mettant en jeu des aérosols marins et des particules métalliques ainsi que le renseignement des émissions du trafic maritime (particules et NOx) au sein du cadastre régional. L'équipe travaille actuellement sur l'intégration du cadastre régional de Atmo-NPDC (mis à jour en 2005) sous une base de donnée PostgreSQL. Elle développe également un code permettant la mise à jour régulière du cadastre d'émission régionale ainsi que l'intégration des données au modèle CHIMERE. Une autre perspective de travail sera d'étendre la validation de la chaîne à la zone Belge en utilisant les données mesurées du réseau CELINE. Enfin, afin de confirmer l'origine régionale ou locale des deux événements de pollutions particulières observées en 2007, il sera intéressant d'appliquer un scénario d'émissions « nulles » à ces deux périodes.

Sur le plan technique, la mise à jour des différents modèles doit être faite régulièrement (période de 6 mois). Nous recommandons, à court terme, la mise en place du modèle météorologique WRF au sein duquel la représentation du sol est plus élaborée. En effet, MM5 est maintenant un code figé et WRF, « héritier » de MM5, est à présent le code *open source* mis à jour régulièrement.

L'équipe peut à présent profiter de l'utilisation de plusieurs modèles liés à l'étude de la pollution troposphérique. Sur le plan analytique, l'intercomparaison des systèmes de modélisation et l'utilisation de la technique de l'*ensemble* seront privilégiés afin d'optimiser la performance des modèles de Chimie-Transport. Parallèlement, l'organisation d'une campagne de mesures sur la région NPDC, combinant des appareils de mesures au sol (détecteurs classiques, SODAR et LIDAR) et la télédétection (concentration massique en PM<sub>10</sub> et PM<sub>2,5</sub>) est à envisager. Elle apporterait sans aucun doute une base de données de terrain précieuse à l'ensemble des équipes de recherches travaillant sur la thématique liée à la pollution de l'air en région NPDC.

Enfin, nous rappelons que la pollution est un problème trans-frontalier. Les recherches scientifiques actives visant à la compréhension des mécanismes la régissant doivent s'accompagner de mesures d'envergure internationale afin de réduire efficacement ses dangereux effets sur notre santé et celle des écosystèmes.





# **BIBLIOGRAPHIE**



- Aghnatiou C.** (2008). Etude d'interaction entre le dioxyde d'azote et des particules minérales d'intérêt atmosphérique. *Doctorat de l' Université des Sciences et Technologies de Lille*.
- Andersson C., Langner J. et Bergström R.** (2006). Inter-annual variation and trends in air pollution over Europe due to climate variability during 1958–2001 simulated with a regional CTM coupled to the ERA40 reanalysis. *Tellus B*.
- APPA** (2008). [www.appa.asso.fr](http://www.appa.asso.fr).
- Ashmore M., Emberson L., Karlsson P. E. et Pleijel H.** (2004). New Directions: A new generation of ozone critical levels for the protection of vegetation in Europe. *Atmospheric Environment* 38(15): 2213-2214.
- Atkinson R.** (2007). Rate constants for the atmospheric reactions of alkoxy radicals: An updated estimation method. *Atmospheric Environment* 41(38): 8468-8485.
- Atkinson R.** (2000). Atmospheric chemistry of VOCs and NOx. *Atmospheric Environment* 34(12-14): 2063-2101.
- Augustin P., Delbarre H, Lohou F, Campistron B, Puygrenier V, Cachier H, Lombardo T** (2006). Investigation of local meteorological events and their relationship with ozone and aerosols during ESCOMPTE photochemical episode. *Ann Geophys* 24: 2809-2822.
- Aumont B.** (2005). Production d'ozone troposphérique et régimes chimiques. *Cours Master Recherche "SGE" spécialité "Atmosphère et qualité de l'air", Université Paris VII*.
- Ausset P.** (2007). Apport des expériences en chambre de simulation à la connaissance des effets de la pollution atmosphérique sur les pierres du patrimoine bâti. *Pollution Atmosphérique: Effet de la pollution atmosphérique sur les matériaux*.
- Berntsen T. K., Myhre, G., Stordal, F. and Isaksen, I.S.A** (2000). Time evolution of tropospheric ozone and its radiative forcing. *Journal of Geophysical Research* 105: 8915–8930.
- Berntsen T. K., Isaksen, I.S.A., Myhre, G., Fuglestvedt, J.S., Stordal, F., Alsvik Larsen, T., Freckleton, R.S. and K.P Shine** (1997). Effects of anthropogenic emissions on tropospheric ozone and its radiative forcing. *Journal of Geophysical Research* 102(28,101-28,126).
- Bessagnet B., L. Menut, G. Aymoz, H. Chepfer et R. Vautard** (2008). Modelling dust emissions and transport within Europe: the Ukraine March 2007 event. *Journal of Geophysical Research - Atmospheres* 113(D15202, doi:10.1029/2007JD00954).
- Bessagnet B., Hodzic A., Blanchard O., Lattuati M., Le Bihan O., Marfaing H. et Rouil L.** (2005). Origin of particulate matter pollution episodes in wintertime over the Paris Basin. *Atmospheric Environment* 39(33): 6159-6174.
- Bessagnet B., Hodzic A., Vautard R., Beekmann M., Cheinet S., Honore C., Liousse C. et Rouil L.** (2004). Aerosol modeling with CHIMERE--preliminary evaluation at the continental scale. *Atmospheric Environment* 38(18): 2803-2817.
- Best P. R., Kanowski M., Stumer L. et Green D.** (1986). Convective dispersion modeling utilizing acoustic sounder information. *Atmospheric Research* 20(173-197).
- Bi X., Feng Y., Wu J., Wang Y. et Zhu T.** (2007). Source apportionment of PM10 in six cities of northern China. *Atmospheric Environment* 41(5): 903-912.

- Bian H., Han S., Tie X., Sun M. et Liu A.** (2007). Evidence of impact of aerosols on surface ozone concentration in Tianjin, China. *Atmospheric Environment* 41(22): 4672-4681.
- Birmili W.** (2008). A case of extreme particulate matter concentrations over Central Europe caused by dust emitted over the southern Ukraine. *Atmos. Chem. Phys.* 8: 997–1016.
- Blanchard D. C.** (1985). The oceanic production of atmospheric sea salt. *J. Geophys. Res* 90: 961-963.
- Blanchard M., Borrelli D., Chardon B., Chatignoux É., Declercq C., Fabre P., Host S., Jusot J.-F., Larrieu S., Lefranc A., Medina S., Pascal L., Prouvost H., Saoudi A. et Wagner V.** (2008). Programme de surveillance air et santé: Analyse des liens à court terme entre pollution atmosphérique urbaine et mortalité dans neuf villes françaises. *INVS*.
- Bou Jaoudé M., Katerji N., Mastrorilli M. et Rana G.** (2008). Analysis of the ozone effect on soybean in the Mediterranean region: II. The consequences on growth, yield and water use efficiency. *European Journal of Agronomy* 28(4): 519-525.
- Bouchou P.** (2004). Quantification et élément de paramétrisation du dépôt sec de l'ozone à l'interface sol/végétation atmosphère au-dessus de trois écosystèmes méditerranéens (programme ESCOMPTE). *Thèse, Université Paul Sabatier, Toulouse*.
- Boutahar J., Lacour, S., Mallet, V., Quelo, D., Roustan, Y., Sportisse, B** (2004). Development and validation of a fully modular platform for numerical modelling of air pollution: Polair3D. *International Journal of Environment and Pollution* 22 (1–2).
- Brost R. A., Wyngaard, J.C.** (1978). A model study of the stably stratified boundary layer. *J. Atmos. Sci.* 8(1427-1440).
- Burt S.** (2007). The dustfall of 24/25 march 2007 over southern england. *Weather* 90, doi:10.1002.
- Byun D., Ching, J** (1999). Science algorithms of the EPA Models-3 Community Multi-scale Air Quality (CMAQ) modeling system. *EPA-600/R-99/030. US EPA, US Government Printing Office, Washington, DC*. carbonaceous aerosol in Uji, Japan. *Atmospheric Environment* 36(8): 1267-1275.
- Carter W. P. L.** (1990). A detailed mechanism for the gas-phase atmospheric reactions of organic compounds. *Atmospheric Environment. Part A. General Topics* 24(3): 481-518.
- Cassadou S., Chardon B., D'helf M., Declercq C., Eilstein D., Fabre P., Filleul L., Jusot J.-F., Lefranc A., Le Tertre A., Medina S., Pascal L., Prouvost H. et Ledrans M.** (2004). Vague de chaleur de l'été 2003 : relations entre températures, pollution atmosphérique et mortalité dans neuf villes françaises.
- Chaxel E.** (2003). Sensibilité aux émissions des concentrations en polluants dans la vallée de Chamonix. *Master thesis, LEGI*.
- Chen Z., Wang X., Feng Z., Zheng F., Duan X. et Yang W.** (2008). Effects of elevated ozone on growth and yield of field-grown rice in Yangtze River Delta, China. *Journal of Environmental Sciences* 20(3): 320-325.
- Christensen J. H.** (1997). The Danish eulerian hemispheric model -- a three-dimensional air pollution model used for the arctic. *Atmospheric Environment* 31(24): 4169-4191.
- Cohan D. S., Hu Y. et Russell A. G.** (2006). Dependence of ozone sensitivity analysis on grid resolution. *Atmospheric Environment* 40(1): 126-135.

- Colella P. et Woodward P. R.** (1984). The piecewise parabolic method (PPM) for gas-dynamical simulations. *Journal of Computational Physics* 11: 38-39.
- Cousin F., Liousse C., Cachier H., Bessagnet B., Guillaume B. et Rosset R.** (2005). Aerosol modelling and validation during ESCOMPTE 2001. *Atmospheric Environment* 39(8): 1539-1550.
- Crescenti G. H.** (1998). The degradation of doppler sodar performance due to noise: a review. *Atmospheric Environment* 32(9): 1499-1509.
- Cros B., Durand P., Cachier H., Drobinski P., Fréjafon E., Kottmeier C., Perros P. E., Peuch V. H., Ponche J. L., Robin D., Saïd F., Toupance G. et Wortham H.** (2004). The ESCOMPTE program: an overview. *Atmospheric Research* 69(3-4): 241-279.
- Crutzen P. J. et Paul J.** (2004). New Directions: The growing urban heat and pollution "island" effect--impact on chemistry and climate. *Atmospheric Environment* 38(21): 3539-3540.
- Curci G., Beekmann M., Vautard R., Smiatek G., Steinbrecher R., Theloke J. et Friedrich R.** Modelling study of the impact of isoprene and terpene biogenic emissions on European ozone levels. *Atmospheric Environment* In Press, Corrected Proof.
- Delbarre H., Augustin P., Saïd F., Campistron B., Bénech B., Lohou F., Puygrenier V., Moppert C., Cousin F., Fréville P. et Fréjafon E.** (2005). Ground-based remote sensing observation of the complex behaviour of the Marseille boundary layer during ESCOMPTE. *Atmospheric Research* 74(1-4): 403-433.
- Delmas R., Mégie G. et Peuch V.-H.** (2005). Physique et chimie de l'atmosphère. *Belin*.
- Derognat C.** (1998). Elaboration d'un code chimique simplifié applicable à l'étude de la pollution photooxydante en milieu urbain et rural. *Rapport de stage de master, Université Paris 6, France*.
- Draxler R. R. et Rolph G. D.** (2003). HYSPLIT (HYbrid Single-Particle Lagrangian Integrated Trajectory) Model access via NOAA ARL READY Website (<http://www.arl.noaa.gov/ready/hysplit4.html>). *NOAA Air Resources Laboratory, Silver Spring, MD*.
- Eatough D. J., Long R. W., Modey W. K. et Eatough N. L.** (2003). Semi-volatile secondary organic aerosol in urban atmospheres: meeting a measurement challenge. *Atmospheric Environment* 37(9-10): 1277-1292.
- Eder B., Kang D., Mathur R., Yu S. et Schere K.** (2006). An operational evaluation of the Eta-CMAQ air quality forecast model. *Atmospheric Environment* 40(26): 4894-4905.
- Emanuel K. A., Zivkovi et Rothman** (1999). Development and evaluation of a convection scheme for use in climate models. *J. Atmos. Sci.*, 56, 1766-1782.
- ENVIRON** (2003). User's Guide to the Comprehensive Air Quality Model with Extensions (CAMx), ENVIRON International Corporation, 101 Rowland Way, Novato, CA 94945.
- Favez O., Cachier H., Sciare J., Alfaro S. C., El-Araby T. M., Harhash M. A. et Abdelwahab M. M.** (2008). Seasonality of major aerosol species and their transformations in Cairo megacity. *Atmospheric Environment* 42(7): 1503-1516.

- Fischer P. H., Brunekreef B. et Lebret E.** (2004). Air pollution related deaths during the 2003 heat wave in the Netherlands. *Atmospheric Environment* 38: 1083-1085.
- Forster C., Wandler U., Wotawa G., James P., Mattis I., Althausen D., Simmonds P., O'Doherty S., Kleefeld C., Jennings S. G., Schneider J., Trickl T., Kreipl S., Jager H. et Stohl A.** (2001). Transport of boreal forest fire emissions from Canada to Europe. *J. Geophys. Res* 06: 22,887-22,906.
- François S., Grondin E., Fayet S. et Ponche J. L.** (2005). The establishment of the atmospheric emission inventories of the ESCOMPTE program. *Atmospheric Research* 74(1-4): 5-35.
- Garratt J. R.** (1992). The atmospheric boundary-layer. *Cambridge University Press, Cambridge, UK*, 316 pp.
- Gego E., Steven Porter P., Hogrefe C. et Irwin J. S.** (2006). An objective comparison of CMAQ and REMSAD performances. *Atmospheric Environment* 40(26): 4920-4934.
- Gelbard F. et Seinfeld J. H.** (1980). Simulation of multicomponent aerosol dynamics. *Journal of colloid and Interface Science* 78(485-501).
- Gerasopoulos E., Kouvarakis G., Vrekoussis M., Donoussis C., Mihalopoulos N. et Kanakidou M.** (2006). Photochemical ozone production in the Eastern Mediterranean. *Atmospheric Environment* 40(17): 3057-3069.
- Gery M. W., Whitten G. Z. et J.P. Killus** (1989). A photochemical kinetics mechanism for urban and regional scale computer modeling. *Journal of Geophysical Research* 20: 12,925–12,956.
- Ginoux P., Chin, M., Tegen, I., Prospero, J. M., Holben, B., Dubovik, O., and Lin, S.-J.** (2001). Sources and distributions of dust aerosols simulated with the GOCART model. *J. Geophys. Res.*, 106:20255–20273.
- Greenwell L. L., Moreno T. et Jones T. P.** (2002). Particle-induced oxidative damage is ameliorated by pulmonary antioxidants. *Free Radical Biology & Medicine* 32: 898-905.
- Grell G., Dudhia, J., Stauffer** (1994). A description of the fifth-generation Penn State/NCAR Mesoscale model (MM5). *NCAR Technical Note NCAR/TN-398+STR, National Center for Atmospheric Research, Boulder, CO*.
- Grosjean D. et Seinfeld J.** (1989). Parameterization of the formation potential of secondary organic aerosols. *Atmos. Environ* 23(1733-1747).
- Guelle W., Balkanski, Y. J., Dibb, J. E., Schulz, M., and Dulac, F** (1998). Wet deposition in a global size-dependent aerosol transport model. 2. Influence of the scavenging scheme on Pb vertical profiles, and deposition. *J. Geophys. Res* 103(D22): 28875–28891.
- Günther A.** (1997). Seasonal and spatial variations in the natural volatile organic compound emissions. *Ecol. Appl* 7(1): 34-45.
- Gurjar B. R., Butler T. M., Lawrence M. G. et Lelieveld J.** (2008). Evaluation of emissions and air quality in megacities. *Atmospheric Environment* 42(7): 1593-1606.
- Han Z.** (2007). A regional air quality model: Evaluation and simulation of O<sub>3</sub> and relevant gaseous species in East Asia during spring 2001. *Environmental Modelling & Software* 22(9): 1328-1336.

- Han Z., Ueda H. et An J.** (2008). Evaluation and intercomparison of meteorological predictions by five MM5-PBL parameterizations in combination with three land-surface models. *Atmospheric Environment* 42(2): 233-249.
- Hanna A. et Benjey W.** (2006). Special issue on model evaluation: Evaluation of urban and regional Eulerian air quality models. *Atmospheric Environment* 40(26): 4809-4810.
- Harrison R. M. et Yin J.** (2008). Sources and processes affecting carbonaceous aerosol in central England. *Atmospheric Environment* 42(7): 1413-1423.
- Harrison R. M., Yin J., Mark D., Stedman J., Appleby R. S., Booker J. et Moorcroft S.** (2001). Studies of the coarse particle (2.5-10  $\mu\text{m}$ ) component in UK urban atmospheres. *Atmospheric Environment* 35(21): 3667-3679.
- Hauck H., Bernera A., Gomiscka B., Stopper S., Puxbauma H., Kundib M. et Preininga O.** (2004). On the equivalence of gravimetric PM data with TEOM and beta-attenuation measurements. *Aerosol Science* 35: 1135-1149.
- Hauglustaine D. A., Hourdin, F., Jourdain, L., Filiberti, M.-A., Walters, S., Lamarque, J.-F., and Holland, E. A.** (2004). Interactive chemistry in the Laboratoire de Meteorologie Dynamique general circulation model: Description and background tropospheric chemistry evaluation. *J. Geophys. Res.*,109(D04314). doi:10.1029/2003JD003,957.
- Hertstein U., Grünhage L. et Jäger H. J.** (1995). Assessment of past, present, and future impacts of ozone and carbon dioxide on crop yields. *Atmospheric Environment* 29(16): 2031-2039.
- Hess P. G., Flocke, S., Lamarque, J.-F., Barth, M.C., Madronich, S** (2000). Episodic modeling of the chemical structure of the troposphere as revealed during the spring MLOPEX 2 intensive. *Journal of Geophysical Research* 105(26809–26839).
- Hodzic A.** (2005). Modélisation des aérosols en Ile-de-France. *Doctorat de l'Ecole Polytechnique*.
- Hodzic A., Vautard R., Bessagnet B., Lattuati M. et Moreto F.** (2005). Long-term urban aerosol simulation versus routine particulate matter observations. *Atmospheric Environment* 39(32): 5851-5864.
- Hoffman M. R. et Calvert J. G.** (1985). Chemical transformation modules for eulerian acid deposition models. *EPA/600/3-85/017*.
- Höller R., Tohno S., Kasahara M. et Hitzenberger R.** (2002). Long-term characterization of
- Holton J. R.** (2004). An introduction to dynamic meteorology. *Academic Press Inc* 4th Revisited Edition: 535.
- Honoré C., Menut L., Bessagnet B., Meleux F., Rouil L., Vautard R., Poisson N., Peuch V. H. et Carlos Borrego and Eberhard R.** (2007). Chapter 3.4 PREV'AIR: A platform for air quality monitoring and forecasting. *Developments in Environmental Sciences*, Elsevier. **Volume 6:** 293-300.
- Huang M., Wang Z., He D., Xu H. et Zhou L.** (1995). Modeling studies on sulfur deposition and transport in East Asia. *Water, Air and Soil Pollution* 85: 1927-1932.
- Iriti M., Belli L., Nali C., Lorenzini G., Gerosa G. et Faoro F.** (2006). Ozone sensitivity of currant tomato (*Lycopersicon pimpinellifolium*), a potential bioindicator species. *Environmental Pollution* 141(2): 275-282.



- Jacob D. J.** (2000). Heterogeneous chemistry and tropospheric ozone. *Atmospheric Environment* 34(12-14): 2131-2159.
- Janjic Z. I.** (2004). The NCEP WRF Core. 12.7. *Extended Abstract, 20th Conference on Weather Analysis and Forecasting/16th Conference on Numerical Weather Prediction, Seattle, WA, American Meteorological Society.* (Online Extended Abstract: <http://ams.confex.com/ams/pdfpapers/70036.pdf>.)
- Jenkin M. E. et Clemitshaw K. C.** (2000). Ozone and other secondary photochemical pollutants: chemical processes governing their formation in the planetary boundary layer. *Atmospheric Environment* 34(16): 2499-2527.
- Jones A. M. et Harrison R. M.** (2006). Assessment of natural components of PM10 at UK urban and rural sites. *Atmospheric Environment* 40(40): 7733-7741.
- Klumpp A., Ansel W., Klumpp G., Vergne P., Sifakis N., Sanz M. J., Rasmussen S., Ro-Poulsen H., Ribas À., Peñuelas J., Kambezidis H., He S., Garrec J. P. et Calatayud V.** (2006). Ozone pollution and ozone biomonitoring in European cities Part II. Ozone-induced plant injury and its relationship with descriptors of ozone pollution. *Atmospheric Environment* 40(38): 7437-7448.
- Kulmala M., A., L., and Pirjola, L.** (1998). Parameterization for sulfuric acid / water nucleation rates. *J. Geophys. Res* 103(No D7): 8301–8307.
- Lafore J., Stein J., Asencio N., Bougeault P., Ducrocq V., Duron J., Fisher C., Hérelil P., Mascart P., Masson V., Pinty J. P., Redelsperger J., Richard E. et Vilà-Gueraude A.** (1998). The Meso-NH atmospheric simulation system. Part I: adiabatic formulation and control simulations. *Ann Geophys* 16(90-109).
- Lasserre F., Cautenet G., Alfaro S. C., Gomes L., Rajot J. L., Lafon S., Gaudichet A., Chatenet B., Maille M., Cachier H., Chazette P. et Zhang X. Y.** (2005). Development and validation of a simple mineral dust source inventory suitable for modelling in North Central China. *Atmospheric Environment* 39(21): 3831-3841.
- Lattuati M.** (1997). Contribution à l'étude du bilan de l'ozone troposphérique à l'interface de l'Europe et de l'Atlantique Nord : modélisation lagrangienne et mesures en altitude. *Thèse de sciences, Université Paris 6, France.*
- Legg B. J. et Raupach. M. R.** (1982). Markov-chain simulation of particle dispersion in inhomogeneous flows : the mean drift velocity induced by a gradient in Eulerian velocity variance. *Bound.- Layer Met.*, 24: 3-13.
- Liousse C., Cachier H., Guelle W., Clauquin T. et Chazette P.** (1998). Radiative impact of carbonaceous aerosols. *Journal of Aerosol Science* 29(Supplement 2): S1303-S1304.
- Loosmore G.** (2003). Evaluation and development of models for resuspension of aerosols at short times after deposition. *Atmospheric Environment* 37: 639–647.
- Louis, J.** (1979). A parametric model of vertical eddy fluxes in the atmosphere. *Boundary Layer Meteorology*, pages 187–202.
- Madronich S., McKenzie, R. E., Bjorn, L. O., and Caldwell, M. M.** (1998). Changes in biologically active ultraviolet radiation reaching the earth's surface. *J. Photochem. Photobiol. B: Biology* 46: 5-19.

- Mahrt, L.** (1999). Stratified atmospheric boundary layers. *Boundary layer Meteorology* 90: 375-396.
- Makar P. A., Gravel S., Chirkov V., Strawbridge K. B., Froude F., Arnold J. et Brook J.** (2006). Heat flux, urban properties, and regional weather. *Atmospheric Environment* 40(15): 2750-2766.
- Mao Q., Gautney L. L., Cook T. M., Jacobs M. E., Smith S. N. et Kelsoe J. J.** (2006). Numerical experiments on MM5-CMAQ sensitivity to various PBL schemes. *Atmospheric Environment* 40(17): 3092-3110.
- Marenco A., H. Gouget, P. Nédélec, and J-P. Pagès** (1994). Evidence of a long-term increase in tropospheric ozone from pic du midi data series. consequences : Positive radiative forcing. *Journal of Geophysical Research* 99.
- Martinet Y.** (2004). Conception, validation et exploitation d'un cadastre des émissions de polluants atmosphériques sur la région Nord-Pas de Calais. *Thèse de doctorat en chimie, Université de Lille 1, France.*
- McMahon T. A. et Denison P. J.** (1979). Empirical atmospheric deposition parameters. *Atmos. Environ. Health Perspect*: 571-585.
- Memmesheimer M., E. Friese, A. Ebel, H.J. Jakobs, H. Feldmann, C. Kessler and G. Piekorz** (2004). Long-term simulations of particulate matter in Europe on different scales using sequential nesting of a regional model. *International Journal of Environment and Pollution* 222: 108-13.
- Menut L., Flament C. et Pelon J.** (1999). Evidence of interaction between synoptic and local scales in the surface layer over the Paris area *Boundary-Layer Meteorology* 93: 269–286.
- Middleton P., W. R. Stockwell, and Carter W** (1990). Aggregation and analysis of volatile organic compound emissions for atmospheric modeling. *Atmospheric Environment International* 24A: 1107-1133.
- Mill N. L., Tornqvist H., Gonzalez M. C., Vink E., Robinson S. D., Soderberg S., Boon N., Donaldson K., Sandstrom T., Blomberg A. et Newby D. E.** (2007). Ischemic and thrombotic effect of dilute diesel-exhaust inhalation in men with coronary heart disease. *The New England Journal of Medicine* 357(11): 1075-1082.
- Mira-Salama D., Grüning C., Jensen N. R., Cavalli P., Putaud J. P., Larsen B. R., Raes F. et Coe H.** (2008). Source attribution of urban smog episodes caused by coal combustion. *Atmospheric Research* 88(3-4): 294-304.
- Mircea M. et Stefan S.** (1998). A theoretical study of the microphysical parameterization of the scavenging coefficient as a function of precipitation type and rate. *Atmos. Environ* 32: 2931–2938.
- Mircea M., D'Isidoro M., Maurizi A., Vitali L., Monforti F., Zanini G. et Tampieri F.** (2008). A comprehensive performance evaluation of the air quality model BOLCHEM to reproduce the ozone concentrations over Italy. *Atmospheric Environment* 42(6): 1169-1185.
- Monahan, E. C.** (1986). In *The Role of Air-Sea Exchange in Geochemical Cycling*, chapter The ocean as a source of atmospheric particles, pages 129–163. Kluwer Academic Publishers, Dordrecht, Holland.

- Monteiro A., Miranda A. I., Borrego C., Vautard R., Ferreira J. et Perez A. T.** (2007). Long-term assessment of particulate matter using CHIMERE model. *Atmospheric Environment* 41(36): 7726-7738.
- Monteiro A., Vautard R., Borrego C. et Miranda A. I.** (2005). Long-term simulations of photo oxidant pollution over Portugal using the CHIMERE model. *Atmospheric Environment* 39(17): 3089-3101.
- Moreno T., Querol X., Alastuey A., dos Santos S. G. et Gibbons W.** (2006). Controlling influences on daily fluctuations of inhalable particles and gas concentrations: Local versus regional and exotic atmospheric pollutants at Puertollano, Spain. *Atmospheric Environment* 40(17): 3207-3218.
- Myhre G., Myhre A. et Stordal F.** (2001). Historical evolution of radiative forcing of climate. *Atmospheric Environment* 35(13): 2361-2373.
- Nenes A., Pilinis, C., and Pandis, S.** (1998). ISORROPIA: A new thermodynamic model for inorganic multicomponent atmospheric aerosols. *Aquatic Geochem* 4: 123-152.
- Neuberger M., Rabczenko D. et Moshhammer H.** (2007). Extended effects of air pollution on cardiopulmonary mortality in Vienna. *Atmospheric Environment* 41(38): 8549-8556.
- Neuberger M., Schimek M. G., Horak J. F., Moshhammer H., Kundi M., Frischer T., Gomiscek B., Puxbaum H. et Hauck H.** (2004). Acute effects of particulate matter on respiratory diseases, symptoms and functions:: epidemiological results of the Austrian Project on Health Effects of Particulate Matter (AUPHEP). *Atmospheric Environment* 38(24): 3971-3981.
- Oh I.-B., Kim Y.-K., Lee H. w. et Kim C.-H.** (2006). An observational and numerical study of the effects of the late sea breeze on ozone distributions in the Busan metropolitan area, Korea. *Atmospheric Environment* 40(7): 1284-1298.
- Olszyna K. J., Bailey E. M., Simonaitis R. et Meagher J. F.** (1994). O<sub>3</sub> and NO<sub>y</sub> relationships at a rural site. *J. Geophys. Res* 99(14): 557-563.
- Orlanski I.** (1975). A rational subdivision of scales for atmospheric processes. *Bulletin of the American Meteorological Society* 56(5): 527-530.
- Pankow J. F., Seinfeld, J. H., Asher, W. E., and Erdakos, G. B** (2001). Modeling the formation of secondary organic aerosol. 1. Application of theoretical principles to measurements obtained in the a-pinene, b-pinene, sabinene, d3-carene and cyclohexene/ozone systems. *Environmental Sci. and Tech* 35: 1164-1172.
- Passant N. R.** (2002). Speciation of UK emissions of NMVOC. *AEAT/ENV/R/0545*.
- Pielke R. A.** (1984). Mesoscale Meteorological Modeling. *1st Edition, Academic Press, New York*.
- Pirovano G., Coll I., Bedogni M., Alessandrini S., Costa M. P., Gabusi V., Lasry F., Menut L. et Vautard R.** (2007). On the influence of meteorological input on photochemical modelling of a severe episode over a coastal area. *Atmospheric Environment* 41(30): 6445-6464.
- Plainiotis S.** (2006). Atmospheric dispersion modelling of particulate and gaseous pollutants affecting the trans-manche region. Thesis, University of Greenwich.

- Pont V. et Fontan J.** (2001). Comparison between weekend and weekday ozone concentration in large cities in France. *Atmospheric Environment* 35(8): 1527-1535.
- Putaud J. P.** (2003). A European aerosol phenomenology: physical and chemical characteristics of particulate matter at kerbside, urban, rural and back-ground sites in Europe. *European commission Joint Research Center report* EUR 20411EN, Ispra.
- Puustinen A., Hameri K., Pekkanen J., Kulmala M., de Hartog J., Meliefste K., ten Brink H., Kos G., Katsouyanni K., Karakatsani A., Kotronarou A., Kavouras I., Meddings C., Thomas S., Harrison R., Ayres J. G., van der Zee S. et Hoek G.** (2007). Spatial variation of particle number and mass over four European cities. *Atmospheric Environment* 41(31): 6622-6636.
- Puxbaum H., Gomiscek B., Kalina M., Bauer H., Salam A., Stopper S., Preining O. et Hauck H.** (2004). A dual site study of PM<sub>2.5</sub> and PM<sub>10</sub> aerosol chemistry in the larger region of Vienna, Austria. *Atmospheric Environment* 38(24): 3949-3958.
- Quelo D., Krysta M., Bocquet M., Isnard O., Minier Y. et Sportisse B.** (2007). Validation of the Polyphemus platform on the ETEX, Chernobyl and Algeciras cases. *Atmospheric Environment* 41(26): 5300-5315.
- Raga G. B. et Raga A. C.** (2000). On the formation of an elevated ozone peak in Mexico City. *Atmospheric Environment* 34(24): 4097-4102.
- San José R., Stohl A., Karatzas K., Bohler T., James P. et Pérez J. L.** (2005). A modelling study of an extraordinary night time ozone episode over Madrid domain. *Environmental Modelling & Software* 20(5): 587-593.
- Sarrat C., Lemonsu A., Masson V. et Guedalia D.** (2006). Impact of urban heat island on regional atmospheric pollution. *Atmospheric Environment* 40(10): 1743-1758.
- Schaap M., F. Sauter, R. Timmermans, M. Roemer, G. Velders, J. Beck and P. Builtjes** (2008). The LOTOS-EUROS model: description, validation and latest developments. *Journal of Environmental Pollution* 32 (2): 270-290.
- Schmidt H., Derognat C., Vautard R. et Beekmann M.** (2001). A comparison of simulated and observed ozone mixing ratios for the summer of 1998 in Western Europe. *Atmospheric Environment* 35(36): 6277-6297.
- Seinfeld J. H. et Pandis S. N.** (1997). Atmospheric chemistry and physics. *Wiley – Interscience, New York*.
- Senlin L., Zhenkun Y., Xiaohui C., Minghong W., Guoying S., Jiamo F. et Paul D.** (2008). The relationship between physicochemical characterization and the potential toxicity of fine particulates (PM<sub>2.5</sub>) in Shanghai atmosphere. *Atmospheric Environment* 42(31): 7205-7214.
- Shan W., Yin Y., Zhang J. et Ding Y.** (2008). Observational study of surface ozone at an urban site in East China. *Atmospheric Research* 89(3): 252-261.
- Shao L., Shi Z., Jones T., Li J., Whittaker A. et BeruBe K.** (2006). Bioreactivity of particulate matter in Beijing air: results from plasmid DNA assay. *Science of the Total Environment* 367: 261-272.
- Smolarkiewicz P. K. et Grell G. A.** (1992). A class of monotone interpolation schemes. *Journal of Computational Physics* 101: 431-440.

- Society E. I.** (1994). Generation of European Emission Data for Episodes (GENEMIS) project, EUROTRAC annual report 1993, part 5. *Technical report, EUROTRAC, Garmish-Partenkirchen, Germany.*
- Sokhi R. S., San José R., Kitwiroon N., Fragkou E., Pérez J. L. et Middleton D. R.** (2006). Prediction of ozone levels in London using the MM5-CMAQ modelling system. *Environmental Modelling & Software* 21(4): 566-576.
- Sokolik I. N. et Toon O. B.** (1999). Incorporation of the mineralogical composition into models of the radiative properties of mineral aerosol from UV to IR wavelengths. *Journal of Geophysical Research* 104 D8 (1999), pp. 9423–9444
- Srinivas C. V., Venkatesan R. et Bagavath Singh A.** (2007). Sensitivity of mesoscale simulations of land-sea breeze to boundary layer turbulence parameterization. *Atmospheric Environment* 41(12): 2534-2548.
- Stauffer D. R. et Seaman N. L.** (1994). Multiscale four-dimensional data assimilation. *Journal of Applied Meteorology* 33: 416-434.
- Stedman J. R.** (2004). The predicted number of air pollution related deaths in the UK during the August 2003 heatwave. *Atmospheric Environment* 38(8): 1087-1090.
- Stern R., Yamartino, R., Graff, A** (2006). Analyzing the response of a chemical transport model to emissions reductions utilizing various grid resolutions. *Twenty-eighth ITM on Air Pollution Modelling and its Application, Leipzig, Germany, 15–19 May 2006.*
- Steyn D. G.** (2003). Scaling the vertical structure of sea breezes revisited. *Boundary-layer meteorology* 107: 177-188.
- Stockwell W. R., Kirchner, F., Kuhn, M.** (1997). A new mechanism for regional chemistry modeling. *Journal of Geophysical Research* 102: 25847–25879.
- Stohl A.** (1998). Computation, accuracy and applications of trajectories. *Atmos. Environ.* 32(947-966).
- Stohl A. et Thomson D. J.** (1999). A density correction for Lagrangian particle dispersion models. *Bound.-Layer Met* 90: 155-167.
- Stohl A. et Trickl T.** (1999). A textbook example of long-range transport: Simultaneous observation of ozone maxima of stratospheric and North American origin in the free troposphere over Europe. *J. Geophys. Res* 104(30,445-30,462).
- Stohl A., C. Forster, S. Eckhardt, N. Spichtinger, H. Huntrieser, J. Heland, H. Schlager, S. Wilhelm, F. Arnold et Cooper O.** (2003). A backward modeling study of intercontinental pollution transport using aircraft measurements. *J. Geophys. Res* 108, 4370, doi:10.1029/2002JD002862.
- Stohl A., Hittenberger M. et Wotawa G.** (1998). Validation of the lagrangian particle dispersion model FLEXPART against large-scale tracer experiment data. *Atmospheric Environment* 32(24): 4245-4264.
- Stohl A., Williams E., Wotawa G. et Kromp-Kolb H.** (1996). A European inventory of soil nitric oxide emissions and the effect of these emissions on the photochemical formation of ozone. *Atmospheric Environment* 30(22): 3741-3755.

- Stull R. B.** (1988). An Introduction to Boundary Layer Meteorology. *Kluwer Academic Publishers, Dordrecht, the Netherlands, 666p.*
- Taketani, Kanaya Y. et Akimoto H.** (2008). Kinetics of heterogeneous reactions of HO<sub>2</sub> radical at ambient concentration levels with (NH<sub>4</sub>)<sub>2</sub>SO<sub>4</sub> and NaCl aerosol particles. *Journal of Physical Chemistry A* 112: 2370-2377.
- Talbot C., Augustin P., Leroy C., Willart V., Delbarre H. et Khomenko G.** (2007). Impact of a sea breeze on the boundary-layer dynamics and the atmospheric stratification in a coastal area of the North Sea. *Boundary-Layer Meteorology* 125: 133-154.
- Taylor K. E.** (2001). Summarizing multiple aspects of model performance in a single diagram. *J. Geophys. Res* 106 (D7): 7183-719.
- Thomson D. J.** (1987). Criteria for the selection of stochastic models of particle trajectories in turbulent flows. *J. Fluid Mech* 180: 529-556.
- Tiedtke M.** (1989). A comprehensive mass flux scheme for cumulus parameterization in largescale models. *Mon. Wea. Rev.* 117: 1779–1800.
- Tong D., Mathur R., Schere K., Kang D. et Yu S.** (2007). The use of air quality forecasts to assess impacts of air pollution on crops: Methodology and case study. *Atmospheric Environment* 41(38): 8772-8784.
- Troen I. et Mahrt L.** (1986). A simple model of the atmospheric boundary layer: Sensitivity to surface evaporation. *Bound.-Layer Meteorol* 37(129-148).
- Tsyro S.** (2002). First estimates of the effect of aerosol dynamics in the calculation of PM<sub>10</sub> and PM<sub>2.5</sub>. *EMEP report.*
- Valari M. et Menut L.** (2008). Does increase in air quality models resolution bring surface ozone concentrations closer to reality? *Journal of Atmospheric and Oceanic Technology*, DOI: 10.1175/2008JTECHA1123.1.
- Van Loon M., Vautard R., Schaap M., Bergström R., Bessagnet B., Brandt J., Builtjes P. J. H., Christensen J. H., Cuvelier C., Graff A., Jonson J. E., Krol M., Langner J., Roberts P., Rouil L., Stern R., Tarrasón L., Thunis P., Vignati E., White L. et Wind P.** (2007). Evaluation of long-term ozone simulations from seven regional air quality models and their ensemble. *Atmospheric Environment* 41(10): 2083-2097.
- Van Zelm R., Huijbregts M. A. J., den Hollander H. A., van Jaarsveld H. A., Sauter F. J., Struijs J., van Wijnen H. J. et van de Meent D.** (2008). European characterization factors for human health damage of PM<sub>10</sub> and ozone in life cycle impact assessment. *Atmospheric Environment* 42(3): 441-453.
- Vautard R., Builtjes P. H. J., Thunis P., Cuvelier C., Bedogni M., Bessagnet B., Honoré C., Moussiopoulos N., Pirovano G., Schaap M., Stern R., Tarrason L. et Wind P.** (2007). Evaluation and intercomparison of Ozone and PM<sub>10</sub> simulations by several chemistry transport models over four European cities within the CityDelta project. *Atmospheric Environment* 41(1): 173-188.

- Vautard R., Maldi M., Menut L., Beekmann M. et Colette A.** (2007). Boundary layer photochemistry simulated with a two-stream convection scheme. *Atmospheric Environment* 41(37): 8275-8287.
- Vautard R., Honore C., Beekmann M. et Rouil L.** (2005). Simulation of ozone during the August 2003 heat wave and emission control scenarios. *Atmospheric Environment* 39(16): 2957-2967.
- Vautard R., B.Bessagnet, M.Chin and L.Menut,** (2005a). On the contribution of natural Aeolian sources to particulate matter concentrations in Europe: testing hypotheses with a modelling approach, *Atm. Env.*, 39, Issue 18, 3291-3303.
- Vautard R., Martin D. , Beekmann M. , Drobinski P. , Friedrich R. , Jauberti A., Kley D. , Lattuati M. , Moral P. , Neininge B. et Theloke J.** (2003). Paris emission inventory diagnostics from ESQUIF airborne measurements and a chemistry transport model. *Journal of Geophysical Research*, Vol. 108, No. D17, 8564, doi:10.1029/2002JD002797.
- Vautard R., Beekmann M., Roux J. et Gombert D.** (2001). Validation of a hybrid forecasting system for the ozone concentrations over the Paris area. *Atmospheric Environment* 35(14): 2449-2461.
- Vecchi R., Marazzan G. et Valli G.** (2007). A study on nighttime-daytime PM10 concentration and elemental composition in relation to atmospheric dispersion in the urban area of Milan (Italy). *Atmospheric Environment* 41(10): 2136-2144.
- Velde van de R. J., W.S.Faber, V.F.Katwijk van, J.C.I.Kuylenstierna, H.J.Scholten., T.J.M Thewessen et M.Zevenbergen** (1994). The Preparation of the European Land Use Database. *National Institute of Public Health and Environmental Protection Report nr7124001001*, Bilthoven, The Netherlands.
- Verwer J.** (1994). Gauss-seidel iterations for stiff odes from chemical kinetics. *SIAM Journal of Scientific Computing* 15: 1243-1250.
- Vestreng V.** (2003). Review and revision of emission data reported to CLRTAP. EMEP Status report.
- Viana M., Querol X., Gotschi T., Alastuey A., Sunyer J., Forsberg B., Heinrich J., Norback D., Payo F., Maldonado J. A. et Kunzli N.** (2007). Source apportionment of ambient PM2.5 at five spanish centres of the european community respiratory health survey (ECRHS II). *Atmospheric Environment* 41(7): 1395-1406.
- Vivanco M. G., Palomino I., Vautard R., Bessagnet B., Martín F., Menut L. et Jiménez S.** (2009). Multi-year assessment of photochemical air quality simulation over Spain. *Environmental Modelling & Software* 24(1): 63-73.
- Vogelezang D. H. P. et Holtslag A. A. M.** (1996). Evaluation and model impacts of alternative boundary-layer height formulations. *Bound.-Layer Meteorol* 81(245-269).
- Wesely M.** (1989). Parameterization of surface resistances to gaseous dry deposition in regional scale numerical models. *Atmos. Environ* 23: 1293-1304.
- Wesely M. L. et Hicks B. B.** (1977). Some factors that affect the deposition rates of sulfur dioxide and similar gases on vegetation. *J. Air Poll. Contr. Assoc* 27: 1110-1116.
- Whitby K. T. et Cantrell B.** (1976). Fine particles. *International Conference of Environmental Sensing and Assessment, Las Vegas, NV, Institute of Electrical and Electronic Engineers.*

- WHO** (2003). Health aspects of air pollution with particulate matter, ozone and nitrogen dioxide. *Report on a WHO working group. Bonn, Germany 13–15 January 2003.*
- Wolke R., O. Knoth, O. Hellmuth, W. Schröder and E. Renner** (2004). The chemistry-transport modeling system LM–MUSCAT: description and CITYDELTA applications. In: C. Borrego and S. Incecik, Editors, *Air Pollution Modeling and its Application XVI*, Kluwer Academic/Plenum Publishers, Dordrecht/New York 427-439.
- Wotawa G. et Stohl A.** (2000). A tracer dispersion model driven by global-scale analyses and mesoscale (MM5) model output and its validation with tracer experiment data. *Proceedings of the 11th Joint Conference on the Applications of Air Pollution Meteorology together with the A&WMA. American Meteorological Society, Boston.*
- Zhang L., Brook, J., et Vet, R.** (2003). A revised parameterization for gaseous dry deposition in air-quality models. *ACPD* 3: 1777–1804.
- Zunckel M., Koosailee A., Yarwood G., Maure G., Venjonoka K., van Tienhoven A. M. et Otter L.** (2006). Modelled surface ozone over southern Africa during the Cross Border Air Pollution Impact Assessment Project. *Environmental Modelling & Software* 21(7): 911-924.





# ANNEXES



## Annexe A-1

**Annexe A-1: Temps de vie de quelques COV vis-à-vis des réactions avec OH, NO<sub>3</sub>, O<sub>3</sub> et de photolyse d'après Atkinson (2000)<sup>1</sup>.**

composés organiques	temps de vie lié à			
	OH <sup>a</sup>	NO <sub>3</sub> <sup>b</sup>	O <sub>3</sub> <sup>c</sup>	photolyse <sup>d</sup>
propane	10 jr	~7 an	>4500 an	
n-butane	4,7 jr	2,8 an	>4500 an	
n-octane	1,3 jr	240 jr		
2,2,4-triméthylpentane	3,2 jr	1,4 an		
éthène	1,4 jr	225 jr	10 jr	
propène	5,3 hr	4,9 jr	1,6 jr	
trans-2-butène	2,2 hr	1,4 hr	2,1 hr	
isoprène	1,4 hr	50 mn	1,3 jr	
α-pinène	2,6 hr	5 mn	4,6 hr	
limonène	50 mn	3 mn	2,0 hr	
benzène	9,4 jr	> 4 an	> 4,5 an	
toluène	1,9 jr	1,9 an	> 4,5 an	
m-xylène	5,9 hr	200 jr	> 4,5 an	
1,2,4-triméthylbenzene	4,3 hr	26 jr	> 4,5 an	
styrène	2,4 hr	3,7 hr	1,0 jr	
phénol	5,3 hr	9 mn		
o-crésol	3,3 hr	2 mn	65 jr	
formaldéhyde	1,2 jr	80 jr	> 4,5 an	4 hr
acétaldéhyde	8,8 hr	17 jr	> 4,5 an	6 hr
butanal	5,9 hr			
benzaldéhyde	11 hr	18 jr		
acétone	53 jr	>11 an		~60 jr
2-butanone	10 jr			~4 jr
2-pentanone	2,4 jr			
glyoxal	1,1 jr			5 hr
méthylglyoxal	9,3 hr		> 4,5 an	2 hr
2,3-butanedione	49 jr			1 hr
cis-butanedial	2,6 hr			~10 mn
cis-3-hexène-2,5-dione	2,1 hr	1,5 jr		~30 mn
cis, trans-2,4-hexadienedial	1,3 hr	8,8 jr		1,9 hr
pinonaldéhyde	2,9 hr	2,3 jr	> 2,2 an	
méthanol	12 jr	1 an		
éthanol	3,5 jr	26 jr		
2-butanol	1,3 jr	17 jr		
diméthyl ether	4,1 jr	180 jr		
diéthyl ether	11 jr	17 jr		
méthyl ter-butyl ether	3,9 jr	72 jr		
ter-butyl formate	16 jr			
méthacroléine	4,1 hr	11 jr	15 jr	~1 jr
méthylvinylcétone	6,8 hr	>385 jr	3,6 an	~2 jr
éthylacétate	6,9 jr	10 an		
6-méthyl-5-heptène-2-one	50 mn	4 mn	55 mn	
3-méthyl-2-butène-3-ol	2,1 hr	3,8 jr	1,0 hr	
méthylhydroperoxyde	2,1 jr		1,7 jr	~5 jr
éthylnitrate	66 jr			~7 jr
2-butylnitrate	13 jr			15-30 jr

a : Calculé sur la base une concentration moyenne de  $C_{OH} = 2,0 \cdot 10^6$  molécule.cm<sup>-3</sup> sur 12 hr

b : Calculé sur la base une concentration moyenne de  $C_{NO_3} = 5,0 \cdot 10^8$  molécule.cm<sup>-3</sup> sur 12 hr

c : Calculé sur la base une concentration moyenne de  $C_{O_3} = 7,0 \cdot 10^{11}$  molécule.cm<sup>-3</sup> sur 24 hr

d : Calculé pour des conditions d'ensoleillement maximum.

<sup>1</sup> **Atkinson R.** (2000). Rate constants for the atmospheric reactions of alkoxy radicals: An updated estimation method. *Atmospheric Environment* 41(38): 8468-8485.

## Annexe A-2

Annexe A-2 : Seuils de recommandation de l’OMS pour divers polluants atmosphériques<sup>1</sup>.

Type de Seuil ( $\mu\text{g}/\text{m}^3$ )	OZONE	PM10	PM2.5	NO2	SO2
Moyenne annuelle		20	10	40	
Moyenne journalière		50	25		20
Moyenne 8-heures	100				
Moyenne horaire				200	
moyenne 10 minutes					500

<sup>1</sup> Valeurs guides pour la qualité de l’air de l’OMS constituent des recommandations à l’adresse des responsables politiques qui doivent opérer des choix en matière de gestion de la qualité de l’air afin de réduire les effets sanitaires de la pollution de l’air.

## Annexe A-3

### Annexe A-3 : Seuils d'informations et d'alertes, appliqués sur le territoire Français, pour divers polluants atmosphériques.

TYPE DE SEUIL ( $\mu\text{g}/\text{m}^3$ )	DONNÉE DE BASE	POLLUANT							
		Ozone décrets 2002-213 du 15/02/02, 2003-1085 du 12/11/03 et 2007-1479 du 12/10/07	Dioxyde d'azote décret 2002-213 du 15/02/02	Oxydes d'azote décret 2002-213 du 15/02/02	Poussières (PM10) décret 2002-213 du 15/02/02 et circulaire du 12/10/07	Plomb décret 2002-213 du 15/02/02 et 2007-1479 du 12/10/07	Benzène décret 2002-213 du 15/02/02	Monoxyde de carbone décret 2002-213 du 15/02/02	Dioxyde de soufre décret 2002-213 du 15/02/02
valeurs limites	moyenne annuelle	-	40 <sup>(1)</sup>	30 <sup>(2)</sup>	40	0,5	5 <sup>(3)</sup>	-	20 <sup>(4)</sup>
	moyenne hivernale	-	-	-	-	-	-	-	20 <sup>(4)</sup>
	moyenne journalière	-	-	-	50 <sup>(5)</sup>	-	-	-	125 <sup>(6)</sup>
	moyenne 8-horaire maximale du jour	-	-	-	-	-	-	10 000	-
	moyenne horaire	-	200 <sup>(7)</sup> 200 <sup>(8)</sup>	-	-	-	-	-	350 <sup>(9)</sup>
seuils d'alerte	moyenne horaire	1 <sup>er</sup> seuil : 240 <sup>(10)</sup> 2 <sup>e</sup> seuil : 300 <sup>(10)</sup> 3 <sup>e</sup> seuil : 360	400 <sup>(10)</sup> 200 <sup>(10)</sup>	-	-	-	-	-	500 <sup>(10)</sup>
	moyenne 24-horaire	-	-	-	125	-	-	-	-
seuils de recommandation et d'information	moyenne horaire	180	200	-	-	-	-	-	300
	moyenne 24-horaire	-	-	-	80	-	-	-	-
objectifs de qualité	moyenne annuelle	-	40	-	30	0,25	2	-	50
	moyenne journalière	65 <sup>(6)</sup>	-	-	-	-	-	-	-
	moyenne 8-horaire maximale du jour	120	-	-	-	-	-	-	-
	moyenne horaire	200 <sup>(6)</sup>	-	-	-	-	-	-	-
	AOT 40	6000 <sup>(12)</sup>	-	-	-	-	-	-	-

(1) valeur applicable à compter du 01/01/2010 (marge de tolérance applicable en 2008 : 4)

(2) pour la protection de la végétation

(3) valeur applicable à compter du 01/01/2010 (marge de tolérance applicable en 2008 : 2)

(4) pour la protection des écosystèmes

(5) à ne pas dépasser plus de 35j par an (percentile 90,4 annuel)

(6) à ne pas dépasser plus de 3j par an (percentile 99,2 annuel)

(7) à ne pas dépasser plus de 175h par an (percentile 98 annuel) – valeur applicable jusqu'au 31/12/2009

(8) à ne pas dépasser plus de 18h par an (percentile 99,8 annuel) – valeur applicable à compter du 01/01/2010 (marge de tolérance applicable en 2008 : 20)

(9) à ne pas dépasser plus de 24h par an (percentile 99,7 annuel)

(10) à ne pas dépasser plus de 3h consécutives

(11) si la procédure de recommandation et d'information a été déclenchée la veille et le jour même et que les prévisions font craindre un nouveau risque de déclenchement pour le lendemain

(12) pour la protection de la végétation : calculé à partir des valeurs enregistrées sur 1 heure de mai à juillet

**valeur limite** : niveau maximal de pollution atmosphérique, fixé dans le but d'éviter, de prévenir ou de réduire les effets nocifs de la pollution pour la santé humaine et/ou l'environnement.

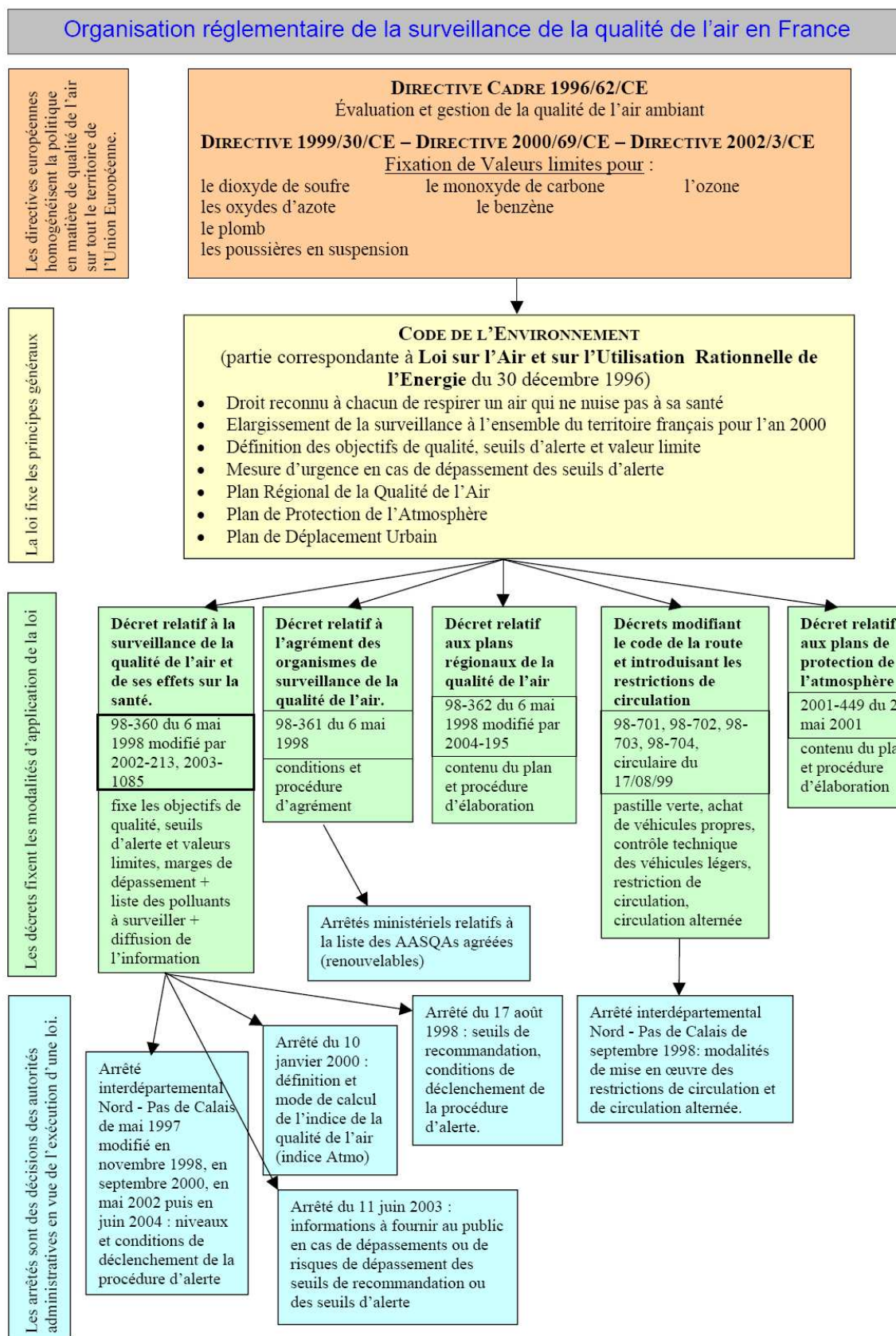
**seuil d'alerte** : niveau de pollution atmosphérique au-delà duquel une exposition de courte durée présente un risque pour la santé humaine ou de dégradation de l'environnement et à partir duquel des mesures d'urgence doivent être prises.

**seuil de recommandation et d'information** : niveau de pollution atmosphérique qui a des effets limités et transitoires sur la santé en cas d'exposition de courte durée et à partir duquel une information de la population est susceptible d'être diffusée.

**objectif de qualité** : niveau de pollution atmosphérique fixé dans le but d'éviter, de prévenir ou de réduire les effets nocifs de la pollution pour la santé humaine et/ou l'environnement, à atteindre dans une période donnée.

## Annexe A-4

### Annexe A-4: Organisation réglementaire de la qualité de l'air en France.



## Annexe A-5

**Annexe A-5: Tableaux de correspondance entre l'indice ATMO et les concentrations en SO<sub>2</sub>, NO<sub>2</sub>, O<sub>3</sub> et particules.**

DIOXYDE DE SOUFRE en microgramme par mètre cube	SOUS-INDICE
0 à 39	1
40 - 79	2
80 - 119	3
120 - 159	4
160 - 199	5
200 - 249	6
250 - 299	7
300 - 399	8
400 - 499	9
≥ 500	10

DIOXYDE D'AZOTE en microgramme par mètre cube	SOUS-INDICE
0 à 29	1
30 - 54	2
55 - 84	3
84 - 109	4
110 - 134	5
135 - 164	6
165 - 199	7
200 - 274	8
275 - 399	9
≥ 400	10

OZONE en microgramme par mètre cube	SOUS-INDICE
0 à 29	1
30 - 54	2
55 - 79	3
80 - 104	4
105 - 129	5
130 - 149	6
150 - 179	7
180 - 209	8
210 - 239	9
≥ 240	10

PARTICULES en microgramme par mètre cube	SOUS-INDICE
0 à 9	1
10 - 19	2
20 - 29	3
30 - 39	4
40 - 49	5
50 - 64	6
65 - 79	7
80 - 99	8
100 - 124	9
≥ 125	10

Quatre polluants sont pris en compte: les particules fines, le dioxyde de soufre, le dioxyde d'azote, l'ozone. Un sous-indice est calculé pour chacun des quatre polluants. Chaque sous-indice est déterminé chaque jour à partir d'une moyenne des niveaux du polluant considéré sur plusieurs stations sélectionnées pour leur représentativité. La concentration maximale journalière est utilisée sauf pour les particules où la concentration moyenne journalière est sélectionnée. Les concentrations de chacun de ces polluants sont classées sur une échelle de 1 très bon à 10 très mauvais. Le plus élevé de ces 4 sous indices donne l'indice ATMO de la journée. Des données cartographiques en temps réel peuvent compléter la diffusion de ces indices.



## Annexe A-6

### Annexe A-6 : Techniques métrologiques disponibles pour mesurer les concentrations de quatre polluants de l'atmosphère.

Polluant mesuré	Technique employée
SO <sub>2</sub>	fluorescence UV
O <sub>3</sub>	absorption UV
PM <sub>10</sub>	TEOM

L'ozone présent dans l'air ambiant possède une bande d'absorption dans l'ultraviolet (longueur d'onde de 254 nanomètres). Dans l'analyseur, l'air ambiant est d'une part exposé à une lampe UV centrée sur 254 nanomètres et d'autre part, filtré de l'ozone qu'il contient; selon la loi de Beer-Lambert, on calcule alors la concentration en ozone par différence entre la mesure de l'air sans ozone et celle de l'air contenant de l'ozone.

Le principe du TEOM est une microbalance à élément oscillant. Les particules prélevées dans l'air ambiant se déposent sur un filtre et augmentent la masse du système oscillant provoquant ainsi un ralentissement de la fréquence d'oscillation. Cette variation de fréquence est convertie en variation de masse de poussières déposées. La mesure du débit volumique permet de déterminer la concentration en microgrammes de particules par mètre cube d'air.

L'analyseur utilisé pour mesurer le dioxyde de soufre (SO<sub>2</sub>) utilise la méthode de la fluorescence ultraviolet (UV), norme NF EN 14212. Les molécules de dioxyde de soufre (SO<sub>2</sub>) sont excitées sous l'action d'un rayonnement UV intense et constant (214 nanomètres). Le dioxyde de soufre (SO<sub>2</sub>) se désexcite alors très rapidement en émettant un rayonnement UV de longueur d'onde supérieure (entre 320 et 380 nanomètres) à celle du rayonnement d'excitation. Un photomultiplicateur permet de mesurer ce rayonnement UV proportionnel à la concentration en SO<sub>2</sub> présent dans la chambre de réaction.

## **Annexe B-1**

### **Annexe B-1: Définition des différentes rubriques SNAP.**

**SNAP 1** : Combustion dans les industries de l'énergie et de la transformation de l'énergie

**SNAP 2** : Combustion hors industries (commercial, résiduel, institutionnel)

**SNAP 3** : Combustion dans l'industrie manufacturière

**SNAP 4** : Procédés de production

**SNAP 5** : Extraction et distribution de combustibles fossiles / énergie géothermique

**SNAP 6** : Utilisation de solvants et autres produit

**SNAP 7** : Transports routiers

**SNAP 8** : Autres sources mobiles et machines

**SNAP 9** : Traitement et élimination des déchets

**SNAP 10** : Agriculture et sylviculture

**SNAP 11** : Autres sources et puits

## Annexe B-2

### Annexe B-2 : Dénomination des différents secteur SECTEN

Secteurs principaux	Sous-secteurs
Extraction, transformation et distribution d'énergie	Production d'électricité Chauffage urbain Raffinage du pétrole Transformation des combustibles minéraux solides – mines Transformation des combustibles minéraux solides – sidérurgie Extraction des combustibles solides et distribution énergie Extraction des combustibles liquides et distribution énergie Extraction des combustibles gazeux et distribution énergie Extraction d'énergie et distribution autres (géothermie, ...) Transformation d'énergie autre (incinération de déchets avec récupération d'énergie)
Industrie manufacturière, traitement des déchets, construction	Chimie organique, non-organique et divers Construction Matériels de transport, industrie mécanique, électrique, etc. Agro-alimentaire Métallurgie des métaux ferreux Métallurgie des métaux non-ferreux Minéraux non-métalliques et matériaux de construction Papier, carton Traitement des déchets (hors récupération d'énergie) Autres secteurs de l'industrie et non spécifié
Résidentiel, tertiaire, commercial, institutionnel	Résidentiel Tertiaire, commercial, institutionnel
Agriculture, sylviculture et aquaculture	Culture Élevage Sylviculture Autres sources de l'agriculture (tracteurs, ...)
Transport routier	Voitures particulières diesel non catalysées Voitures particulières diesel catalysées Voitures particulières essence non catalysées Voitures particulières essence catalysées Voitures particulières GPL Véhicules utilitaires légers diesel catalysés Véhicules utilitaires légers diesel non catalysés Véhicules utilitaires légers essence catalysés Véhicules utilitaires légers essence non catalysés Poids lourds diesel Poids lourds essence Deux roues
Modes de transports autres que routier	Transport ferroviaire Transport fluvial Transport maritime national Transport aérien national
Autres secteurs ou indifférencié	Autres secteurs anthropiques
Puits	Puits de CO <sub>2</sub> – photosynthèse Puits de CH <sub>4</sub>
Emetteurs non inclus dans le total France	Trafic maritime international (soutes internationales) Transport aérien international Sources non anthropiques Autres sources hors total national

## Annexe B-3

**Annexe B-3 : Tableau de correspondance entre les secteurs SECTEN et SNAP**

Secten-annexe2.xls	<b>Secteurs et sous-secteurs SECTEN</b>	<b>CODE SNAP</b>
(*) l'astérisque indique que cette activité intervient partiellement dans le périmètre du sous-secteur		
<b>Extraction, transformation et distribution d'énergie</b>		
Production d'électricité		
	Installations de combustion (sauf 010106)	0101xx
	Équipements électriques	060507 (*)
Chauffage urbain		
		0102xx
Raffinage du pétrole		
	Installations de combustion et fours de raffinage	0103xx
	Elaboration de produits pétroliers	040101
	Craqueur catalytique - chaudière à CO	040102
	Récupération de soufre (unités Claus)	040103 (*)
	Stockage et manutention de produits pétroliers en raffinerie	040104
	Autres procédés	040105
	Station d'expédition en raffinerie	050501
	Soufflage de l'asphalte	060310
	Torchères en raffinerie de pétrole	090203
	Traitement des eaux usées dans l'industrie	091001 (*)
Transformation des combustibles minéraux solides - mines		
	Installations de combustion	0104xx
	Four à coke	010406 (*)
	Fours à coke (fuites et extinction)	040201 (*)
	Fabrication de combustibles solides défumés	040204
	Production de sulfate d'ammonium	040404 (*)
Transformation des combustibles minéraux solides - sidérurgie		
	Four à coke	010406 (*)
	Fours à coke (fuites et extinction)	040201 (*)
Extraction des combustibles fossiles solides et distribution d'énergie		
	Extraction des combustibles fossiles solides	0501xx
Extraction des combustibles liquides et distribution d'énergie		
	Extraction des combustibles fossiles liquides	0502xx
	Distribution de combustibles liquides (sauf essence)	0504xx
	Distribution essence, transport et dépôts (excepté stations service)	050502
	Stations service (y compris refoulement des réservoirs)	050503
Extraction des combustibles gazeux et distribution d'énergie		
	Installations de combustion et stations de compression	0105xx
	Extraction des combustibles fossiles gazeux	0503xx
	Réseaux de distribution de gaz	0506xx
Extraction énergie et distribution autres (géothermie, ...)		
	Géothermie	050700
	Torchères dans l'extraction de gaz et de pétrole	090206
Transformation d'énergie autre		
	Transformation des combustibles minéraux solides autres	010407
	Production d'électricité - Autres équipements (incinération de déchets domestiques avec récupération d'énergie)	010106

**Industrie manufacturière, traitement des déchets, construction**

---

Chimie organique, non-organique et divers	
Chaudières, turbines à gaz, moteurs fixes	0301xx (*)
Récupération de soufre (unités Claus)	040103 (*)
Production de silicium	040303
Production d'acide sulfurique	040401 (*)
Production d'acide nitrique	040402
Production d'ammoniac	040403
Production de nitrate d'ammonium	040405
Production de phosphate d'ammonium	040406
Production d'engrais NPK	040407
Production d'urée	040408
Production de noir de carbone	040409
Production de dioxyde de titane	040410
Production de graphite	040411
Production de carbure de calcium	040412
Production de chlore	040413
Production d'engrais phosphatés	040414
Autres productions de l'industrie chimique inorganique	040416
Procédés de l'industrie chimique organique	0405xx
Production et utilisation de carbonate de sodium	040619 (*)
Production de produits explosifs	040622
Production d'halocarbures et d'hexafluorure sulfurique	0408xx
Fabrication de produits pharmaceutiques	060306
Fabrication de peinture	060307
Fabrication d'encre	060308
Fabrication de colles	060309
Autres fabrications et mises en œuvre de produits chimiques	060314
Equipements de réfrigération et d'air conditionné, utilisant des halocarbures ou du SF <sub>6</sub>	060502 (*)
Equipements de réfrigération et d'air conditionné, utilisant des produits autres que des halocarbures ou du SF <sub>6</sub>	060503 (*)
Extincteurs d'incendie	060505 (*)
Equipements électriques	060507 (*)
Engins spéciaux - Industrie	0808xx (*)
Incinération des déchets industriels (sauf torchères)	090202 (*)
Torchères dans l'industrie chimique	090204
Traitement des eaux usées dans l'industrie	091001 (*)

---

Construction		
	Produits de recouvrement des routes (stations d'enrobage)	030313
	Matériaux asphaltés pour toiture	040610
	Recouvrement des routes par l'asphalte	040611
	Chantiers et BTP	040624
	Application de peinture - Bâtiment et construction (sauf 060107)	060103
	Application de peinture - Bois	060107 (*)
	Mise en oeuvre du polyuréthane	060303 (*)
	Application de colles et adhésifs	060405 (*)
	Extincteurs d'incendie	060505 (*)
Biens d'équipement, matériels de transport, etc.		
	Chaudières, turbines à gaz, moteurs fixes	0301xx (*)
	Galvanisation	040307 (*)
	Traitement électrolytique	040308 (*)
	Fabrication d'accumulateurs	040615
	Application de peinture - Construction de véhicules automobiles	060101
	Application de peinture - Construction de bateaux	060106
	Autres applications industrielles de peinture	060108 (*)
	Dégraissage des métaux	060201 (*)
	Fabrication de composants électroniques	060203
	Mise en oeuvre du polyuréthane	060303 (*)
	Application de colles et adhésifs	060405 (*)
	Traitement de protection du dessous des véhicules	060407
	Extincteurs d'incendie	060505 (*)
	Equipements électriques	060507 (*)
	Autres	060508 (*)
	Engins spéciaux - Industrie	0808xx (*)
	Traitement des eaux usées dans l'industrie	091001 (*)
Agro-alimentaire		
	Chaudières, turbines à gaz, moteurs fixes	0301xx (*)
	Fabrication de pain	040605
	Production de vin	040606
	Production de Bière	040607
	Production d'alcools	040608
	Manutention de céréales	040621
	Production de sucre	040625
	Production de farine	040626
	Fumage des viandes	040627
	Extraction d'huiles comestibles et non comestibles	060404
	Equipements de réfrigération et d'air conditionné, utilisant des halocarbures ou du SF <sub>6</sub>	060502 (*)
	Equipements de réfrigération et d'air conditionné, utilisant des produits autres que des halocarbures ou du SF <sub>6</sub>	060503 (*)
	Extincteurs d'incendie	060505 (*)
	Equipements électriques	060507 (*)
	Engins spéciaux - Industrie	0808xx (*)
	Traitement des eaux usées dans l'industrie	091001 (*)

Métallurgie des métaux ferreux	
Chaudières, turbines à gaz, moteurs fixes	0301xx (*)
Régénérateurs de haut fourneau	030203
Chaînes d'agglomération de minerai	030301
Fours de réchauffage pour l'acier et métaux ferreux	030302
Fonderies de fonte grise	030303
Chargement des hauts fourneaux	040202
Coulée de la fonte brute	040203
Fours creuset pour l'acier	040205
Fours à l'oxygène pour l'acier	040206
Fours électriques pour l'acier	040207
Laminoirs	040208
Chaînes d'agglomération de minerai (excepté 03.03.01)	040209
Production de ferro alliages	040302
Production de sulfate d'ammonium	040404 (*)
Prélaquage	060105
Extincteurs d'incendie	060505 (*)
Equipements électriques	060507 (*)
Engins spéciaux - Industrie	0808xx (*)
Traitement des eaux usées dans l'industrie	091001 (*)
Métallurgie des métaux non-ferreux	
Chaudières, turbines à gaz, moteurs fixes	0301xx (*)
Production de plomb de première fusion	030304
Production de zinc de première fusion	030305
Production de cuivre de première fusion	030306
Production de plomb de seconde fusion	030307
Production de zinc de seconde fusion	030308
Production de cuivre de seconde fusion	030309
Production d'aluminium de seconde fusion	030310
Production d'alumine	030322
Production de magnésium (traitement à la dolomie)	030323
Production de nickel (procédé thermique)	030324
Autres procédés énergétiques	030326 (*)
Production d'aluminium (électrolyse)	040301
Production de magnésium (excepté 03.03.23)	040304
Production de nickel (excepté 03.03.24)	040305
Autres applications industrielles de peinture	060108 (*)

Métallurgie des métaux non-ferreux (suite)		
Fabrication de métaux alliés		040306
Production d'acide sulfurique		040401 (*)
Dégraissage des métaux		060201 (*)
Extincteurs d'incendie		060505 (*)
Equipements électriques		060507 (*)
Engins spéciaux - Industrie		0808xx (*)
Traitement des eaux usées dans l'industrie		091001 (*)
<hr/>		
Minéraux non-métalliques et matériaux de construction		
Chaudières, turbines à gaz, moteurs fixes		0301xx (*)
Fours à plâtre		030204
Production de ciment		030311
Production de chaux		030312
Production de verre plat		030314
Production de verre creux		030315
Production de fibre de verre (hors liant)		030316
Autres productions de verres		030317
Production de fibres minérales (hors liant)		030318
Production de tuiles et briques		030319
Production de céramiques fines		030320
Ciment (décarbonatation)		040612
Verre (décarbonatation)		040613
Chaux (décarbonatation)		040614
Autres (y compris produits contenant de l'amiante)		040617
Production et utilisation de carbonate de sodium		040619 (*)
Exploitation de carrières		040623
Tuiles et briques (décarbonatation)		040628
Céramiques fines (décarbonatation)		040629
Enduction de fibres de verre		060401
Enduction de fibres minérales		060402
Extincteurs d'incendie		060505 (*)
Equipements électriques		060507 (*)
Engins spéciaux - Industrie		0808xx (*)
Traitement des eaux usées dans l'industrie		091001 (*)
<hr/>		
Papier, carton		
Chaudières, turbines à gaz, moteurs fixes		0301xx (*)
Papeterie (séchage)		030321
Fabrication de pâte à papier (procédé kraft)		040602
Fabrication de pâte à papier (procédé au bisulfite)		040603
Fabrication de pâte à papier (procédé mi-chimique)		040604
Papeterie (décarbonatation)		040630
Extincteurs d'incendie		060505 (*)
Equipements électriques		060507 (*)
Engins spéciaux - Industrie		0808xx (*)
Traitement des eaux usées dans l'industrie		091001 (*)



<b>Traitement des déchets</b>	
Incinération des déchets domestiques et municipaux (hors récupération d'énergie)	090201
Incinération des déchets industriels (sauf torchères)	090202 (*)
Incinération des boues résiduelles du traitement des eaux	090205
Incinération des déchets hospitaliers	090207
Incinération des huiles usagées	090208
Décharges compactées de déchets solides	090401
Décharges non-compactées de déchets solides	090402
Crémation	0909xx
Traitement des eaux usées dans le secteur résidentiel/commercial	091002
Production de compost à partir de déchets	091005
Production de biogaz	091006
Latrines	091007
Production de combustibles dérivés à partir de déchets	091008
<b>Autres secteurs de l'industrie et non spécifié</b>	
Chaudières, turbines à gaz, moteurs fixes	0301xx (*)
Autres procédés énergétiques	030326 (*)
Galvanisation	040307 (*)
Traitement électrolytique	040308 (*)
Fabrication de panneaux agglomérés	040601
Travail du bois	040620
Application de peinture - Bois	060107 (*)
Autres applications industrielles de peinture	060108 (*)
Dégraissage des métaux	060201 (*)
Autres nettoyages industriels	060204
Mise en oeuvre du polyester	060301
Mise en oeuvre du polychlorure de vinyle	060302
Mise en oeuvre du polyuréthane	060303 (*)
Mise en oeuvre de mousse de polystyrène	060304
Mise en oeuvre du caoutchouc	060305
Fabrication de supports adhésifs, films et photos	060311
Apprêtages des textiles	060312
Tannage du cuir	060313
Imprimerie	060403
Application de colles et adhésifs	060405 (*)

**Transport routier**

Voitures particulières à moteur diesel et non catalysées	
Equipements de réfrigération et d'air conditionné, utilisant des halocarbures ou du SF <sub>6</sub>	060502 (*)
Voitures particulières	0701xx (*)
Pneus et plaquettes de freins	070700 (*)
Usure des routes	070800 (*)
Voitures particulières à moteur diesel et catalysées	
Equipements de réfrigération et d'air conditionné, utilisant des halocarbures ou du SF <sub>6</sub>	060502 (*)
Voitures particulières	0701xx (*)
Pneus et plaquettes de freins	070700 (*)
Usure des routes	070800 (*)
Voitures particulières à moteur essence et non catalysées	
Equipements de réfrigération et d'air conditionné, utilisant des halocarbures ou du SF <sub>6</sub>	060502 (*)
Voitures particulières	0701xx (*)
Evaporation d'essence des véhicules	070600 (*)
Pneus et plaquettes de freins	070700 (*)
Usure des routes	070800 (*)
Voitures particulières à moteur essence et catalysées	
Equipements de réfrigération et d'air conditionné, utilisant des halocarbures ou du SF <sub>6</sub>	060502 (*)
Voitures particulières	0701xx (*)
Evaporation d'essence des véhicules	070600 (*)
Pneus et plaquettes de freins	070700 (*)
Usure des routes	070800 (*)
Voitures particulières à moteur essence et GPL	
Equipements de réfrigération et d'air conditionné, utilisant des halocarbures ou du SF <sub>6</sub>	060502 (*)
Voitures particulières	0701xx (*)
Evaporation d'essence des véhicules	070600 (*)
Pneus et plaquettes de freins	070700 (*)
Usure des routes	070800 (*)
Véhicules utilitaires légers à moteur diesel et catalysés	
Equipements de réfrigération et d'air conditionné, utilisant des halocarbures ou du SF <sub>6</sub>	060502 (*)
Véhicules utilitaires légers < 3,5 t	0702xx (*)
Pneus et plaquettes de freins	070700 (*)
Usure des routes	070800 (*)
Véhicules utilitaires légers à moteur diesel et non catalysés	
Equipements de réfrigération et d'air conditionné, utilisant des halocarbures ou du SF <sub>6</sub>	060502 (*)
Véhicules utilitaires légers < 3,5 t	0702xx (*)
Pneus et plaquettes de freins	070700 (*)
Usure des routes	070800 (*)
Véhicules utilitaires légers à moteur essence et catalysés	
Equipements de réfrigération et d'air conditionné, utilisant des halocarbures ou du SF <sub>6</sub>	060502 (*)
Véhicules utilitaires légers < 3,5 t	0702xx (*)
Evaporation d'essence des véhicules	070600 (*)
Pneus et plaquettes de freins	070700 (*)
Usure des routes	070800 (*)

<b>Véhicules utilitaires légers à moteur essence et non catalysés</b>		
Equipements de réfrigération et d'air conditionné, utilisant des halocarbures ou du SF <sub>6</sub>		060502 (*)
Véhicules utilitaires légers < 3,5 t		0702xx (*)
Evaporation d'essence des véhicules		070600 (*)
Pneus et plaquettes de freins		070700 (*)
Usure des routes		070800 (*)
<b>Poids lourds à moteur diesel</b>		
Equipements de réfrigération et d'air conditionné, utilisant des halocarbures ou du SF <sub>6</sub>		060502 (*)
Poids lourds > 3,5 t et bus		0703xx (*)
Pneus et plaquettes de freins		070700 (*)
Usure des routes		070800 (*)
<b>Poids lourds à moteur essence</b>		
Equipements de réfrigération et d'air conditionné, utilisant des halocarbures ou du SF <sub>6</sub>		060502 (*)
Poids lourds > 3,5 t et bus		0703xx (*)
Evaporation d'essence des véhicules		070600 (*)
Pneus et plaquettes de freins		070700 (*)
Usure des routes		070800 (*)
<b>Deux roues</b>		
Motocyclettes et motos < 50 cm <sup>3</sup>		070400
Motos > 50 cm <sup>3</sup>		0705xx
Evaporation d'essence des véhicules		070600 (*)
Pneus et plaquettes de freins		070700 (*)
Usure des routes		070800 (*)
<b>Modes de transports autres que routier</b>		
<b>Transport ferroviaire</b>		
Equipements de réfrigération et d'air conditionné, utilisant des halocarbures ou du SF <sub>6</sub>		060502 (*)
Trafic ferroviaire		0802xx
<b>Transport fluvial</b>		
		0803xx
<b>Transport maritime français</b>		
Equipements de réfrigération et d'air conditionné, utilisant des halocarbures ou du SF <sub>6</sub>		060502 (*)
Trafic maritime national dans la zone EMEP		080402
Pêche nationale		080403
<b>Transport aérien français</b>		
Trafic domestique (cycle d'atterrissage/décollage - < 1000 m)		080501
Trafic domestique de croisière (> 1000 m)		080503
Trafic domestique (cycle d'atterrissage/décollage - < 1000 m) - Abrasion des pneus et des freins		080505

**Autres secteurs ou indifférencié**

Autres secteurs anthropiques	
Autres applications de peinture (hors industrie)	060109
Forêt restant forêt - tempéré	113111 (*)
Forêt devenant terre cultivée - tempéré	113212 (*)
Prairie devenant terre cultivée - tempéré	113213 (*)
Forêt devenant prairie - tempéré	113312 (*)
Forêt devenant terre humide - tempéré	113412 (*)
Forêt devenant zone urbanisée - tempéré	113512 (*)
Forêt devenant autre terre - tempéré	113612 (*)

**Puits**

Puits	
Forêt restant forêt - tempéré	113111 (*)
Terre cultivée devenant forêt - tempéré	113112 (*)
Prairie devenant forêt - tempéré	113113 (*)
Terre humide devenant forêt - tempéré	113114 (*)
Zone urbanisée devenant forêt - tempéré	113115 (*)
Autre terre devenant forêt - tempéré	113116 (*)
Terre cultivée restant terre cultivée - tempéré	113211 (*)
Prairie restant prairie - tempéré	113311 (*)
Terre cultivée devenant prairie - tempéré	113313 (*)

**Emetteurs non inclus dans le total France**

Trafic maritime international (soutes internationales)	080404
Transport aérien hors contribution nationale	
Trafic international (cycle d'atterrissage/décollage - < 1000 m)	080502
Trafic international de croisière (> 1000 m)	080504
Trafic international (cycle d'atterrissage/décollage - < 1000 m)- Abrasion des pneus et des freins	080506
Autres secteurs non-anthropiques	
Forêts naturelles de feuillus	1101xx
Forêts naturelles de conifères	1102xx
Feux de forêt (pour les substances hors gaz à effet de serre)	1103xx (*)
Prairies naturelles et autres végétations	1104xx
Zones humides	1105xx
Eaux	1106xx
Animaux	1107xx
Foudre	111000
Autres sources hors total national (pour SO <sub>2</sub> , NO <sub>x</sub> , COVNM, CO)	
Forêts de feuillus exploitées	111100
Forêts de conifères exploitées	111200
Forêt restant forêt - tempéré	113111 (*)
Terre cultivée restant terre cultivée - tempéré	113211 (*)
Prairie restant prairie - tempéré	113311 (*)



## Annexe C-1

**Annexe C-1: Données de sol utilisées par le module TERRAIN d'après Grell (1994)<sup>4</sup>.**

Vegetation Integer Identification	Vegetation Description	Albedo(%)		Moisture Avail. (%)		Emissivity (% at 9 μ m)		Roughness Length (cm)		Thermal Inertia (cal cm <sup>-2</sup> k <sup>-1</sup> s <sup>-1/2</sup> )	
		Sum	Win	Sum	Win	Sum	Win	Sum	Win	Sum	Win
1	Urban	18	18	10	10	88	88	50	50	0.03	0.03
2	DryIrd Crop. Past.	17	23	30	60	92	92	15	5	0.04	0.04
3	Irrg. Crop. Past.	18	23	50	50	92	92	15	5	0.04	0.04
4	Mix. Dry/Irrg C.P.	18	23	25	50	92	92	15	5	0.04	0.04
5	Crop./Grs. Mosaic	18	23	25	40	92	92	14	5	0.04	0.04
6	Crop./Wood Mosc	16	20	35	60	93	93	20	20	0.04	0.04
7	Grassland	19	23	15	30	92	92	12	10	0.03	0.04
8	Shrubland	22	25	10	20	88	88	10	10	0.03	0.04
9	Mix Shrb./Grs.	20	24	15	25	90	90	11	10	0.03	0.04
10	Savanna	20	20	15	15	92	92	15	15	0.03	0.03
11	Decids. Broadlf.	16	17	30	60	93	93	50	50	0.04	0.05
12	Decids. Needlf.	14	15	30	60	94	93	50	50	0.04	0.05
13	Evergrn. Braodlf.	12	12	50	50	95	95	50	50	0.05	0.05
14	Evergrn. Needlf.	12	12	30	60	95	95	50	50	0.04	0.05
15	Mixed Forest	13	14	30	60	94	94	50	50	0.04	0.06
16	Water Bodies	8	8	100	100	98	98	.01	.01	0.06	0.06
17	Herb. Wetland	14	14	60	75	95	95	20	20	0.06	0.06
18	Wooded wetland	14	14	35	70	95	95	40	40	0.05	0.06
19	Bar. Sparse Veg.	25	25	2	5	85	85	10	10	0.02	0.02
20	Herb. Tundra	15	60	50	90	92	92	10	10	0.05	0.05
21	Wooden Tundra	15	50	50	90	93	93	30	30	0.05	0.05
22	Mixed Tundra	15	55	50	90	92	92	15	15	0.05	0.05
23	Bare Grnd. Tundra	25	70	2	95	85	95	.10	5	0.02	0.05
24	Snow or Ice	80	82	95	95	95	95	0.01	0.01	0.05	0.05
25	No data										

<sup>4</sup> **Grell G., Dudhia, J., Stauffer** (1994). A description of the fifth-generation Penn State/NCAR Mesoscale model (MM5). *NCAR Technical Note NCAR/TN-398+STR*, National Center for Atmospheric Research, Boulder, CO.

## Annexe C-2

### Annexe C-2: Script c-shell *mastermod*.

```
#!/bin/csh

#-----
# mastermod is a csh script which is used to drive a full MM5 V3.7.3 run
# For more details or information about the use of the script please contact:
# eterrenoire@yahoo.fr
#-----

#-----
#-----

#What do you need?

#You need to understand the basis of the MM5 system (please have a look at in MM5
PC2A user guide)

#You must have produced the TERRAIN files

#What have you got to do?

#STEP 1: set up the required dates for the run
#STEP 2: name the right paths for each module
#STEP 3: Run mastermod
#-----
#-----

#declaration variables

set startyear=2007
set startmonth=06
set startday=21
set starthour=06
set endyear=2007
set endmonth=06
set endday=25
set endhour=12
set interval=10800

#full pathname of the Global analysis files needed for PREGRID (eg: GFS for
forecast
# or FNL reanalysis for past simulation (see also the PC2A user guide)

#set chemin=/home/canneaux/program/DATA/MM5/DATAIN/regrid/2008/03/mars
set chemin=/home/canneaux/program/DATA/MM5/DATAIN/regrid/forecast/20060700au25060700

#path where REGRID can find the right TERRAIN files. One path per TERRAIN.

set chemin1=../../TERRAIN/terrainDOM12345/TERRAIN_DOMAIN1
set chemin2=../../TERRAIN/terrainDOM12345/TERRAIN_DOMAIN2
set chemin3=../../TERRAIN/terrainDOM12345/TERRAIN_DOMAIN3
set chemin4=../../TERRAIN/terrainDOM12345/TERRAIN_DOMAIN4
set chemin5=../../TERRAIN/terrainDOM12345/TERRAIN_DOMAIN5

#path where INTERPF can find the right REGRID files. One path per TERRAIN.

set chemin6=../REGRID/regridder/REGRID_DOMAIN1
set chemin7=../REGRID/regridder/REGRID_DOMAIN2
set chemin8=../REGRID/regridder/REGRID_DOMAIN3
set chemin9=../REGRID/regridder/REGRID_DOMAIN4
set chemin10=../REGRID/regridder/REGRID_DOMAIN5
```

```

#####
#####
#DO NOT modified below that line. ONLY for experimental users
#####
#####

# variables

echo startyear= $startyear
echo startmonth= $startmonth
echo startday= $startday
echo starthour= $starthour

echo endyear= $endyear
echo endmonth= $endmonth
echo endday= $endday
echo endhour= $endhour

echo chemin= $chemin
echo chemin1= $chemin1
echo chemin2= $chemin2
echo chemin3= $chemin3
echo chemin4= $chemin4
echo chemin5= $chemin5
echo chemin6= $chemin6
echo chemin7= $chemin7
echo chemin8= $chemin8
echo chemin9= $chemin9
echo chemin10=$chemin10

#####
#####

#modification in pregrid

cd ./REGRID/pregrid
pwd

#if (-f pregrid.csh) then
#rm pregrid.csh
#endif

sed "s/111/$startyear/g" pregrid_refmastermod.csh > pregrid.csh
mv pregrid.csh pregrid.csh.old
sed "s/222/$startmonth/g" pregrid.csh.old > pregrid.csh
mv pregrid.csh pregrid.csh.old
sed "s/333/$startday/g" pregrid.csh.old > pregrid.csh
mv pregrid.csh pregrid.csh.old
sed "s/444/$starthour/" pregrid.csh.old > pregrid.csh
mv pregrid.csh pregrid.csh.old
sed "s/555/$endyear/g" pregrid.csh.old > pregrid.csh
mv pregrid.csh pregrid.csh.old
sed "s/666/$endmonth/g" pregrid.csh.old > pregrid.csh
mv pregrid.csh pregrid.csh.old
sed "s/777/$endday/g" pregrid.csh.old > pregrid.csh
mv pregrid.csh pregrid.csh.old
sed "s/888/$endhour/g" pregrid.csh.old > pregrid.csh
mv pregrid.csh pregrid.csh.old

sed "s/999/$interval/g" pregrid.csh.old > pregrid.csh
mv pregrid.csh pregrid.csh.old

sed "s#etienne#$chemin#" pregrid.csh.old > pregrid.csh

echo done pregrid

```



```

chmod 755 pregrid.csh
rm pregrid.csh.old

#Lancement pregrid

echo Launching pregrid

./pregrid.csh

#####
#####

#dealing with REGRID

echo Now in REGRID module

cd ../regridder
pwd

echo Setting up REGRIDDER namelist script

if (-f namelist.input) then
rm namelist.input
endif

sed "s/111/$startyear/g" namelist.input_refmastermod > namelist.input
mv namelist.input namelist.input.old
sed "s/222/$startmonth/g" namelist.input.old > namelist.input
mv namelist.input namelist.input.old
sed "s/333/$startday/g" namelist.input.old > namelist.input
mv namelist.input namelist.input.old
sed "s/444/$starthour/g" namelist.input.old > namelist.input
mv namelist.input namelist.input.old

sed "s/555/$endyear/g" namelist.input.old > namelist.input
mv namelist.input namelist.input.old
sed "s/666/$endmonth/g" namelist.input.old > namelist.input
mv namelist.input namelist.input.old
sed "s/777/$endday/g" namelist.input.old > namelist.input
mv namelist.input namelist.input.old
sed "s/888/$endhour/g" namelist.input.old > namelist.input
mv namelist.input namelist.input.old

sed "s/999/$interval/g" namelist.input.old > namelist.input
mv namelist.input namelist.input.old

sed "s#etienne#$chemin1#" namelist.input.old > namelist.input

#Launching regridder

echo Launching regridder for terrain 1

./regridder

mv namelist.input namelist.input.old
sed "s#$chemin1#$chemin2#" namelist.input.old > namelist.input

echo Launching regridder for terrain 2

./regridder

mv namelist.input namelist.input.old
sed "s#$chemin2#$chemin3#" namelist.input.old > namelist.input

```

```

echo Lancement regridder pour terrain 3

./regridder

mv namelist.input namelist.input.old
sed "s#\$chemin3#\$chemin4#" namelist.input.old > namelist.input

echo Lancement regridder pour terrain 4

./regridder

mv namelist.input namelist.input.old
sed "s#\$chemin4#\$chemin5#" namelist.input.old > namelist.input

echo Lancement regridder pour terrain 5

./regridder

#####
#####
#####

#Dealing with INTERPF

echo Where are we now
pwd

cd ../../INTERPF

echo Now in INTERPF

echo Setting up the INTERPF namelist script

if (-f namelist.input) then
rm namelist.input
endif

sed "s/111/\$startyear/g" namelist.input_refmastermod > namelist.input
mv namelist.input namelist.input.old
sed "s/222/\$startmonth/g" namelist.input.old > namelist.input
mv namelist.input namelist.input.old
sed "s/333/\$startday/g" namelist.input.old > namelist.input
mv namelist.input namelist.input.old
sed "s/444/\$starthour/g" namelist.input.old > namelist.input
mv namelist.input namelist.input.old

sed "s/555/\$endyear/g" namelist.input.old > namelist.input
mv namelist.input namelist.input.old
sed "s/666/\$endmonth/g" namelist.input.old > namelist.input
mv namelist.input namelist.input.old
sed "s/777/\$endday/g" namelist.input.old > namelist.input
mv namelist.input namelist.input.old
sed "s/888/\$endhour/g" namelist.input.old > namelist.input
mv namelist.input namelist.input.old

sed "s/999/\$interval/g" namelist.input.old > namelist.input
mv namelist.input namelist.input.old

sed "s#etienne#\$chemin6#" namelist.input.old > namelist.input

echo Launch interpf

./interpf

mv namelist.input namelist.input.old

```

```

sed "s#\$chemin6#\$chemin7#" namelist.input.old > namelist.input

./interpf

mv namelist.input namelist.input.old
sed "s#\$chemin7#\$chemin8#" namelist.input.old > namelist.input

./interpf

mv namelist.input namelist.input.old
sed "s#\$chemin8#\$chemin9#" namelist.input.old > namelist.input

./interpf

mv namelist.input namelist.input.old
sed "s#\$chemin9#\$chemin10#" namelist.input.old > namelist.input

echo copy MMINPUT pour FDDA4D grid nudging

cp MMINPUT_DOMAIN1 MMINPUT2_DOMAIN1
cp MMINPUT_DOMAIN2 MMINPUT2_DOMAIN2

#####
#####

#Dealing with MM5

cd ../MM5/Run

echo Launching MM5

./mm5.exe

echo CONGRATULATION!          !MM5 runned correctly!

echo Now you can checked your MMOUT files and post-treat them. ENJOY!

```

## Annexe C-3

### Annexe C-3: Script terrain.deck.

```
#!/bin/csh -f
# terrain.csh
#
set echo
#
# Set this if you would like to ftp terrain data
#
#set ftpdata = true
set ftpdata = false
#
# Set the following for ftp'ing 30 sec elevation data from USGS ftp site
#
#set Where30sTer = ftp
set Where30sTer = /home/chimere/mm5/DATAIN/Terrain
#if ( $Where30sTer == ftp) then
#
# Use this if you are ftping from other places
#
# set users = Others
#
# Use this if you are ftping from MMM/NCAR
#
# set users = MMM
#else
# set users =
#endif
#
# Uncomment the following line if using the 30 - 100 cm layer soil file
#
# set BotSoil
#
# -----
# 1. Set up parameter statements
# -----
#
cat > src/parame.incl.tmp << EOF
C IIMX,JJMX are the maximum size of the domains, NSIZE = IIMX*JJMX
C PARAMETER (IIMX = 100, JJMX = 100, NSIZE = IIMX*JJMX)
EOF
cat > src/paramed.incl.tmp << EOF
C ITRH,JTRH are the maximum size of the terrain data.
C NOBT = ITRH*JTRH, here assuming
C ITRH= 270 ( 45 deg. in north-south direction, 10 min. resolution)
C JTRH= 450 ( 75 deg. in north-south direction, 10 min. resolution)
C NOTE:
C IF USING GLOBAL 30SEC ELEVATION DATASET FROM USGS, NEED TO SET
C BOTH ITRH AND JTRH BIG. TRY THE COMMENTED PARAMETER LINE FIRST.
C THIS WILL REQUIRE APPROXI 0.9 GB MEMORY ON A 32-BIT IEEE MACHINE.
C AN ESTIMATE OF THE DIMENSION SIZE CAN BE MADE FROM Data30s/rdem.out
C AFTER THE FIRST JOB FAILS. USE (XMAXLAT-XMINLAT)*120 TO ESTIMATE
C ITRH, AND (XMAXLON-XMINLON)*120 TO ESTIMATE JTRH.
C
C PARAMETER (ITRH = 2000, JTRH = 3000, NOBT = ITRH*JTRH)
C PARAMETER (ITRH = 1500, JTRH = 1800, NOBT = ITRH*JTRH)
EOF
#
# -----
# 2. Set up NAMELIST
# -----
#
if ( -e terrain.namelist ) rm terrain.namelist
```

```

cat > terrain.namelist << EOF
&MAPBG
PHIC = 50.2,          ; CENTRAL LATITUDE (minus for southern hemesphere)
XLONC = 2.37,        ; CENTRAL LONGITUDE (minus for western hemesphere)
IEXP = .T.,          ; .T. EXPANDED COARSE DOMAIN, .F. NOT EXPANDED.
                        ; USEFUL IF RUNNING RAWINS/little_r
AEXP = 360.,         ; APPROX EXPANSION (KM)
IPROJ = 'LAMCON',    ; LAMBERT-CONFORMAL MAP PROJECTION
;IPROJ = 'POLSTR',   ; POLAR STEREOGRAPHIC MAP PROJECTION
;IPROJ = 'MERCAT',   ; MERCATOR MAP PROJECTION
&END
&DOMAINS
;
MAXNES = 4,          ; NUMBER OF DOMAINS TO PROCESS
NESTIX = 32, 46, 52, 61, 43, 40, ; GRID DIMENSIONS IN Y DIRECTION
NESTJX = 36, 61, 67, 76, 58, 55, ; GRID DIMENSIONS IN X DIRECTION
DIS = 27., 9., 3., 1., 1., 1.0, ; GRID DISTANCE
NUMNC = 1, 1, 2, 3, 4, 5, ; MOTHER DOMAIN ID
NESTI = 1, 11, 18, 20, 13, 50, ; LOWER LEFT I OF NEST IN MOTHER DOMAIN
NESTJ = 1, 8, 20, 23, 15, 50, ; LOWER LEFT J OF NEST IN MOTHER
DOMAIN
RID = 1.5, 1.5, 1.5, 1.5, 2.3, 2.3, ; RADIUS OF INFLUENCE IN GRID UNITS
(IFANAL=T)
NTYPE = 3, 4, 5, 6, 5, 6, ; INPUT DATA RESOLUTION
;
; 1: 1 deg (~111 km) global terrain and landuse
; 2: 30 min (~56 km) global terrain and landuse
; 3: 10 min (~19 km) global terrain and landuse
; 4: 5 min (~9 km) global terrain and landuse
; 5: 2 min (~4 km) global terrain and landuse
; 6: 30 sec (~.9 km) global terrain and landuse
;
NSTTYP= 1, 2, 2, 2, 2, 2, ; 1 -- ONE WAY NEST, 2 -- TWO WAY
NEST
&END
&OPTN
IFTER = .TRUE.,      ; .T.-- TERRAIN, .F.-- PLOT DOMAIN MAPS ONLY
IFANAL = .F.,        ; .T.-- OBJECTIVE ANALYSIS, .F.-- INTERPOLATION
ISMTHTR = 2,         ; 1: 1-2-1 smoother, 2: two pass smoother/desmoother
IFEZFUG = .F.,       ; .T. USE NCAR GRAPHICS EZMAP WATER BODY INFO TO FUDGE THE
LAND USE
                        ; .F. USE LANDWATER MASK DATA
IFTFUG = .F.,        ; .T. DON'T DO EZFUDGE WITHIN THE USER-SPECIFIED
;                      LAT/LON BOXES, need to define namelist fudget
IFFUDG = .F.,        ; .T. POINT-BY-POINT FUDGING OF LANDUSE,
;                      need to define namelist fudge
IPRNTD = .T.,        ; PRINT OUT LAT. AND LON. ON THE MESH
IPRHTH = .T.,        ; PRINT OUT ALL PROCESSING FIELDS ON THE MESH
IPRINT = 0,          ; = 1: A LOT MORE PRINT OUTPUT IN terrain.print.out
FIN = 100., 100., 10., 10., 1., 100., ; CONTOUR INTERVAL (meter) FOR TERRAIN
HEIGHT PLOT
;TRUELAT1=91.,       ; TRUE LATITUDE 1
;TRUELAT2=91.,       ; TRUE LATITUDE 2, use this if IPROJ='LAMCON'
IFILL = .TRUE.,      ; .TRUE. --- color filled plots
LSMDATA = .TRUE.,    ; .TRUE. --- Create the data for LSM
VEGTYPE = 1,         ; LANDUSE DATA TYPE: =0: old 13 cat; =1: 24 cat USGS; =2: 16
cat SiB
VSPLIT = .TRUE.,     ; .TRUE. --- plot Vege., Soil, Vege. Frc. percentages.
IEXTRA = .FALSE.,    ; .TRUE. --- Create extra data for Pleim-Xiu LSM
&END
&FUDGE
; USE ONLY IF IFFUDG = .T., POINT-BY-POINT FUDGING OF LANDUSE,
; IFFUG FOR EACH OF THE NESTS: .F. NO FUDGING, .T. FUDGING
IFFUG = .F.,.F.,     ; FUDGE FLAGS
; NDFUG : THE NUMBER OF FUDGING POINTS FOR EACH OF NESTS
NDFUG = 0,0,
; LOCATION (I,J) AND LANDUSE VALUES FOR EACH OF THE NESTS
; NOTE: REGARDLESS OF IFFUG AND NDFUG, 200 VALUES MUST BE GIVEN FOR

```

```

;      EACH NEST, OR ELSE THE INDEXING WILL GET MESSED UP
; The example below is for two domains. Add more for domain 3 and up
;      if needed. Do not remove 0 values for domain 1 and/or 2 even
;      they are not used.
;
IFUG(1,1)= 200*0,      ; I location for fudge points in domain 1
IFUG(1,2)= 200*0,      ; I location for fudge points in domain 2
JFUG(1,1)= 200*0,      ; J location for fudge points in domain 1
JFUG(1,2)= 200*0,      ; J location for fudge points in domain 2
LNDFUG(1,1)= 200*0,    ; land-use value at fudge points for domain 1
LNDFUG(1,2)= 200*0,    ; land-use value at fudge points for domain 2
&END
&FUDGET
; USE ONLY IF IFTFUG=.T., WHICH MEANS TERRAIN WON'T DO EZFUDGE WITHIN
; THE USER-SPECIFIED LAT/LON BOXES. THIS OPTION IS USED WHEN THERE
; ARE INLAND BODIES OF WATER THAT ARE DEFINED IN THE LAND USE
; DATA SET BUT NOT IN THE EZMAP DATA SET. THIS OPTION PREVENTS
; THOSE BODIES OF WATER FROM BEING WIPED OUT BY EZFUDGE
NFUGBOX = 2           ; NUMBER OF SUBDOMAINS IN WHICH TO
;                       TURN OFF EZMAP LAND USE FUDGING
STARTLAT=45.0,44.0,    ; LATITUDES OF LOWER-LEFT CORNERS OF SUBDOMAINS
ENDLAT  =46.5,45.0,    ; LATITUDES OF UPPER-RIGHT CORNERS OF SUBDOMAINS
STARTLON=-95.0,-79.8, ; LONGITUDES OF LOWER-LEFT CORNERS OF SUBDOMAINS
ENDLON  =-92.6,-78.5, ; LONGITUDES OF UPPER-RIGHT CORNERS OF SUBDOMAINS
&END
&EZFUDGE
; USE ONLY IF IFEZFUG=.T., WHICH TURNS ON EZMAP WATER BODY FUDGING OF LANDUSE.
; USERS: FEEL FREE TO ADD ANY MORE LAKE SURFACE HEIGHTS THAT YOU'LL NEED.
; HTPS IS THE HEIGHT IN METERS AND THE INDEX OF HTPS CORRESPONDS TO THE ID
; OF THE 'PS' AREA IN THE FILE ezmap_area_ids.
;
HTPS(441) = -.001      ; Oceans -- Do NOT change this one
HTPS(550) = 183.       ; Lake Superior
HTPS(587) = 177.       ; Lakes Michigan and Huron
HTPS(618) = 176.       ; Lake St. Clair
HTPS(613) = 174.       ; Lake Erie
HTPS(645) = 75.        ; Lake Ontario
HTPS(480) = 1897.      ; Lake Tahoe
HTPS(500) = 1281.      ; Great Salt Lake
&END
EOF
#
# -----
#
#           END OF USER MODIFICATION
#
# -----
#
#   Check to see if recompilation is needed
#   Need to make here so that rdnml may be used
#
cd src
../Templates/incldiff.sh parame.incl.tmp parame.incl
../Templates/incldiff.sh paramed.incl.tmp paramed.incl
cd ..
make >& make.terrain.out
#
#   Create a namelist without comments
#
sed -f Templates/no_comment.sed terrain.namelist | grep "[A-Z,a-z]" > terlif.tmp
mv terlif.tmp terrain.namelist
#
#   Set default script variables
#
set LandUse = OLD
#
set DataType = `src/rdnml < terrain.namelist`
echo $DataType

```

```

#
if ( $DataType[4] == 1 ) set IfProcData
if ( $DataType[4] == 0 ) set ftpdata = false
if ( $DataType[5] == 1 ) set LandUse = USGS
if ( $DataType[5] == 2 ) set LandUse = SiB
if ( $DataType[3] == 1 ) set IfUsgsTopo
#
#       reset LandUse if $BotSoil is set
#       -- use bottom soil files
#
if ( $?BotSoil ) set LandUse = USGS2
#
#       link to Fortran units
#
set ForUnit = fort.
rm ${ForUnit}1* ${ForUnit}2* ${ForUnit}4*
#
if ( $LandUse == OLD )   cat Data/namelist.usgsdata >> terrain.namelist
if ( $LandUse == USGS ) cat Data/namelist.usgsdata >> terrain.namelist
if ( $LandUse == USGS2 ) cat Data/namelist.usgsdata2 >> terrain.namelist
if ( $LandUse == SiB )   cat Data/namelist.sibdata >> terrain.namelist
cat > endnml << EOF
&END
EOF
cat endnml >> terrain.namelist
rm endnml
#
ln -s terrain.namelist      ${ForUnit}15
ln -s ezids                 ${ForUnit}18
ln -s raobsta.ieee         ${ForUnit}16
# -----
#
#       Update parameter statements for vegetation dataset
#       (may require partial recompilation)
#
if ( $LandUse == SiB ) then

cp src/paramsv0.incl src/paramsv.incl.tmp
./Templates/incldiff.sh src/paramsv.incl.tmp src/paramsv.incl
cp src/vs_data0.incl src/vs_data.incl.tmp
./Templates/incldiff.sh src/vs_data.incl.tmp src/vs_data.incl
make >& make2.print.out

else if ( $LandUse == USGS ) then

cp src/paramsv1.incl src/paramsv.incl.tmp
./Templates/incldiff.sh src/paramsv.incl.tmp src/paramsv.incl
cp src/vs_data2.incl src/vs_data.incl.tmp
./Templates/incldiff.sh src/vs_data.incl.tmp src/vs_data.incl
make >& make2.print.out
endif
# -----
#
#       should I ftp the data?
#
if ( $ftpdata == true && $?BotSoil ) then
# ftp other data plus top soil data
echo 'about to start ftping'
cp Data/ftp2.csh ftp.csh
chmod +x ftp.csh
./ftp.csh >& ftp.out
# rm ftp.csh ftp.out
else
# ftp other data plus bottom soil data
echo 'about to start ftping'
cp Data/ftp.csh ftp.csh
chmod +x ftp.csh
./ftp.csh >& ftp.out

```

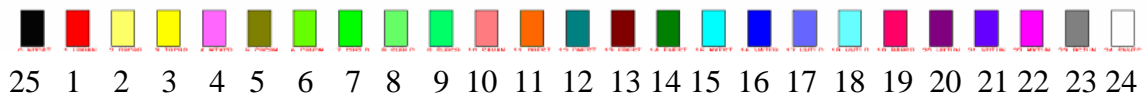
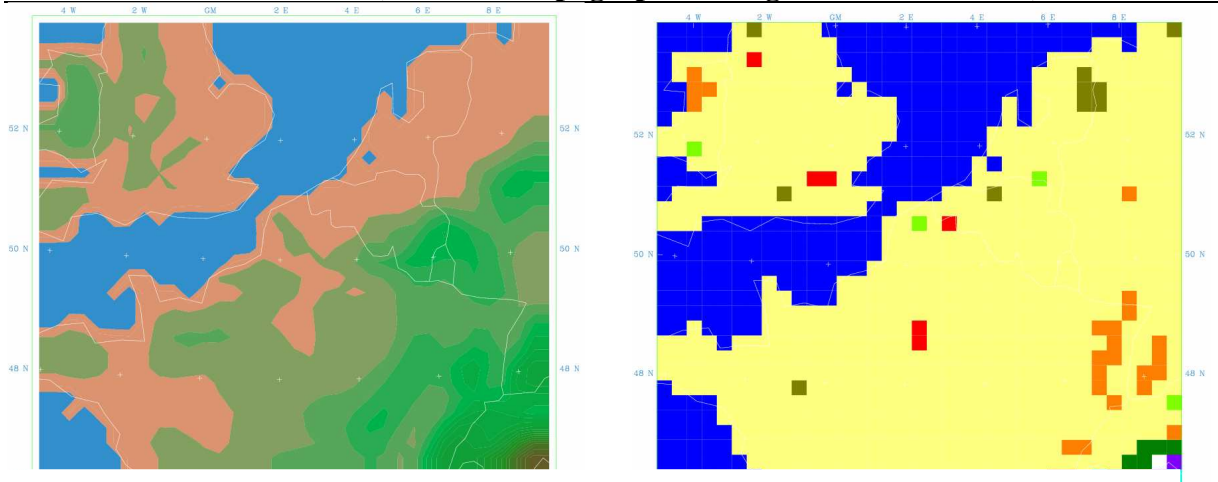
## Annexe C-4

### Annexe C-4: Topographie et occupation des sols des différents domaines MM5.

*Topographie (m)*

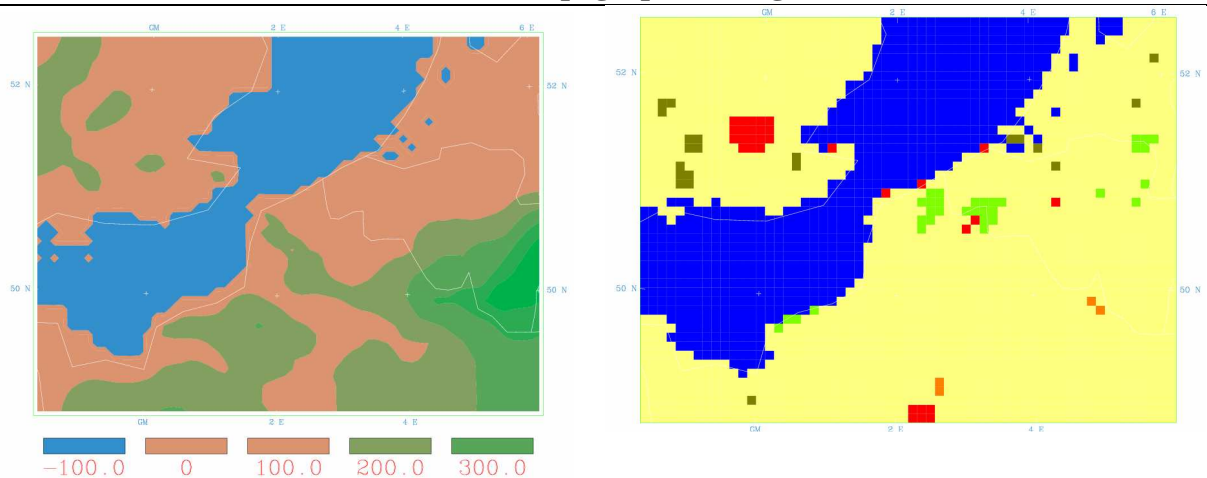
*Occupation des sols (24 classes)*

#### DOMAINE 1 (résolution topographie et végétation 19 x 19 km)



La correspondance des numéros est disponible dans l'Annexe B-2

#### DOMAINE 2 (résolution topographie et végétation 9 x 9 km)

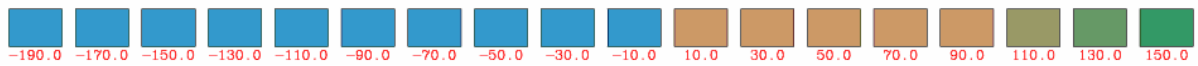
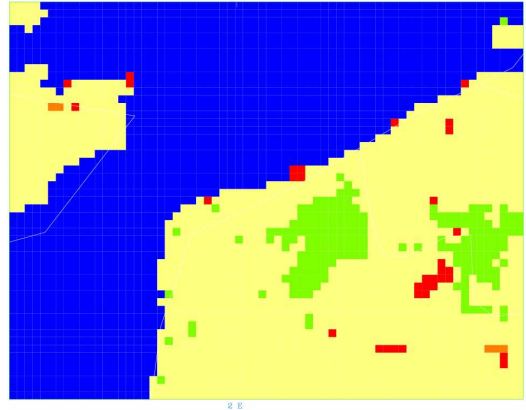
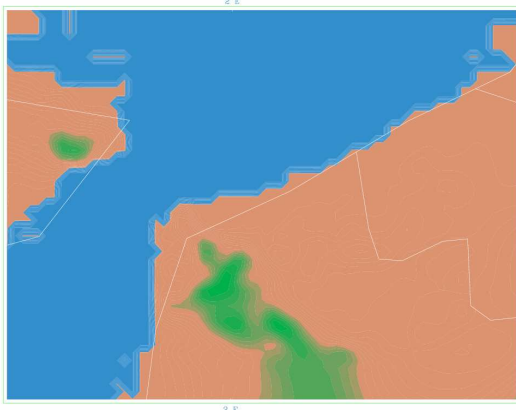




*Topographie (m)*

*Occupation des sols (24 classes)*

**DOMAINE 3 (résolution topographie et végétation 4 x 4 km)**



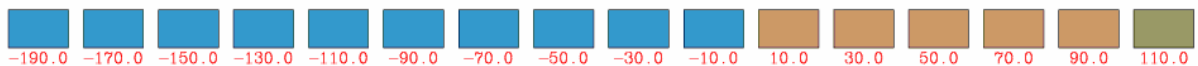
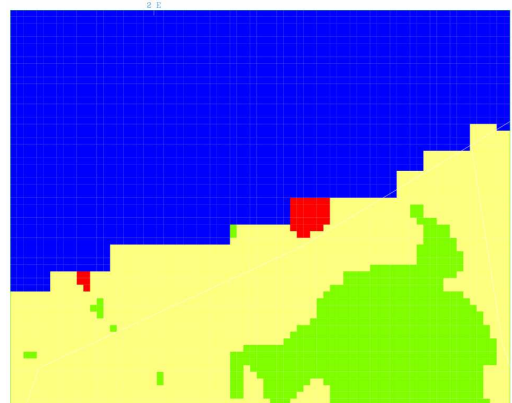
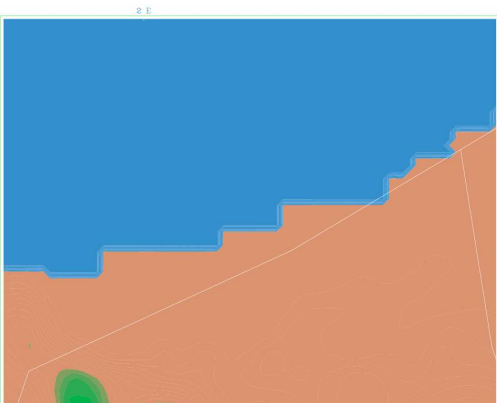
-190.0 -170.0 -150.0 -130.0 -110.0 -90.0 -70.0 -50.0 -30.0 -10.0 10.0 30.0 50.0 70.0 90.0 110.0 130.0 150.0



25 1 2 3 4 5 6 7 8 9 10 11 12 13 14 15 16 17 18 19 20 21 22 23 24

La correspondance des numéros est disponible dans l'Annexe B-2

**DOMAINE 4 (résolution topographie et végétation 0,9 x 0,9 km)**



-190.0 -170.0 -150.0 -130.0 -110.0 -90.0 -70.0 -50.0 -30.0 -10.0 10.0 30.0 50.0 70.0 90.0 110.0

## Annexe C-5

### Annexe C-5 : Variables disponibles en sortie du modèle MM5.

<i>Nom variable</i>		<i>Dimension</i>	<i>Exemple et unité</i>
<b>U</b>	vent (composante U)	3	-0.24145366 m/s
<b>V</b>	vent (composante V)	3	-11.80475903 m/s
<b>T</b>	température	3	249.81826782 K
<b>Q</b>	humidité spécifique	3	0.00017283 kg/kg
<b>CLW</b>	humidité spécifique dans les nuages		0.00000000 kg/kg
<b>RNW</b>	humidité spécifique de l'eau	3	0.00000000 kg/kg
<b>ICE</b>	glace	3	0.00000000 kg/kg
<b>SNOW</b>	neige	3	0.00000000 kg/kg
<b>GRAUPEL</b>	neige roulée	3	0.00000000 kg/kg
<b>RAD TEND</b>	pluie	3	-0.45410141 K/DAY
<b>W</b>	vent (composante W)	3	-0.02932897 m/s
<b>PP</b>	tendance pression	3	-513.46179199 Pa
<b>PSTARCRS</b>	pression de départ	2	89767.14843750 Pa
<b>GROUND T</b>	température au sol	2	281.95770264 K
<b>RAIN CON</b>	précipitation convective	2	0.00000000 cm
<b>RAIN NON</b>	précipitation non-convective	2	0.00008530 cm
<b>TERRAIN</b>	altitude	2	19.63894653 m
<b>MAPFACCR</b>	facteur d'échelle	2	0.96935081
<b>MAPFACDT</b>	facteur d'échelle	2	0.96928787
<b>CORIOLIS</b>	paramètre de Coriolis	2	0.00011267 1/s
<b>RES TEMP</b>	température du substrat	2	278.81619263 K
<b>LATITCRS</b>	latitude	2	50.622245 DEGREES
<b>LONGICRS</b>	longitude	2	2.8239858 DEGREES
<b>LAND USE</b>	catégorie du terrain	2	2.00000000 category
<b>TSEASFC</b>	température surface de la mer	2	278.83364868 K
<b>PBL HGT</b>	Hauteur de la CLA	2	699.19293213 m
<b>REGIME</b>	régime de la CLA utilisé	2	4 (sans unité)
<b>SHFLUX</b>	Flux courtes longueur d'onde (desc)	2	155.96778870 W/m <sup>2</sup>
<b>LHFLUX</b>	Flux longues longueur d'onde (desc)	2	119.85590363 W/m <sup>2</sup>
<b>UST</b>	Vitesse de friction	2	0.58271194 m/s
<b>SWDOWN</b>	Flux courtes longueurs d'ondes (asc)	2	447.88995361 W/m <sup>2</sup>
<b>LWDOWN</b>	Flux longues longueurs d'ondes (asc)	2	332.03500366 W/m <sup>2</sup>
<b>SWOUT</b>	Flux courtes longueurs d'ondes (desc)	2	366.21279907 W/m <sup>2</sup>
<b>LWOUT</b>	Flux longues longueurs d'ondes (desc)	2	226.48184204 W/m <sup>2</sup>
<b>SOIL T 1</b>	Température dans le sol à 10 cm	2	281.95770264 K
<b>SOIL T 2</b>	Température dans le sol à 20 cm	2	281.79534912 K
<b>SOIL T 3</b>	Température dans le sol à 100 cm	2	281.21002197 K
<b>SOIL T 4</b>	Température dans le sol 200 cm	2	279.55963135 K
<b>T2</b>	Température dans à 2m	2	280.09567261 K
<b>Q2</b>	Humidité spécifique	2	0.00437316 kg kg{-1}
<b>U10</b>	Vitesse du vent zonal à 10 m	2	-0.52759218 m s{-1}
<b>V10</b>	Vitesse du vent meridien à 10 m	2	-6.85335970 m s{-1}
<b>ALBD</b>	Albedo	2	14 PERCENT (%)
<b>SLMO</b>	Humidité du sol disponible	2	0.30000001 fraction
<b>SFEM</b>	Emission de la surface	2	0.94000000 fraction
<b>SFZ0</b>	Rugosité	2	50.00000000 cm
<b>THERIN</b>	Inertie thermique de la surface	2	4.0 100*cal cm <sup>-2</sup> K <sup>-1</sup> s <sup>1/2</sup>
<b>SFHC</b>	Capacité thermique du sol	2	2500000 J m <sup>-3</sup> K <sup>-1</sup>
<b>SCFX</b>	Effet de la couverture de neige	1	2.59999990 fraction
<b>SIGMAH</b>	Niveau sigma	1	0.52499998 sigma

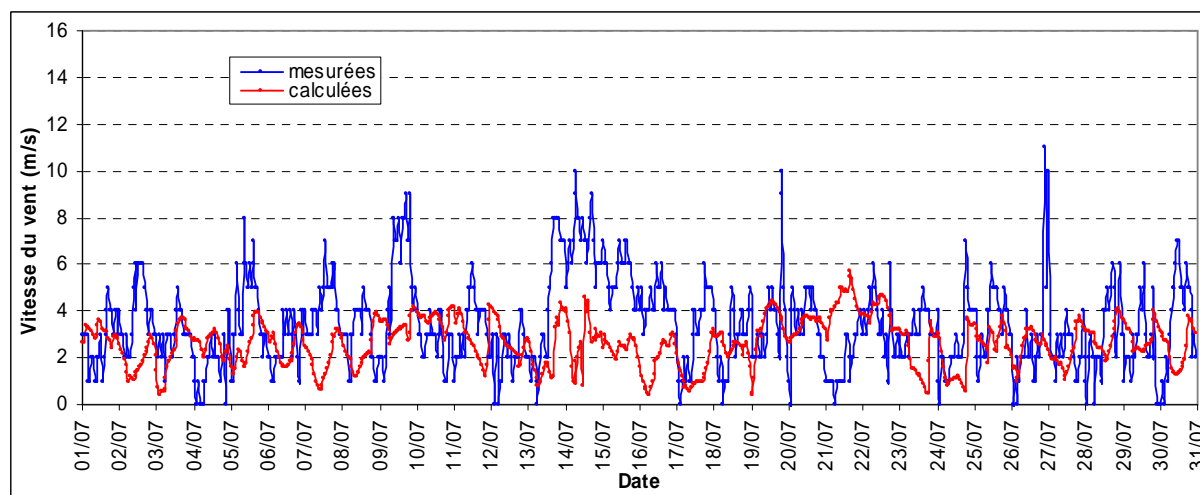
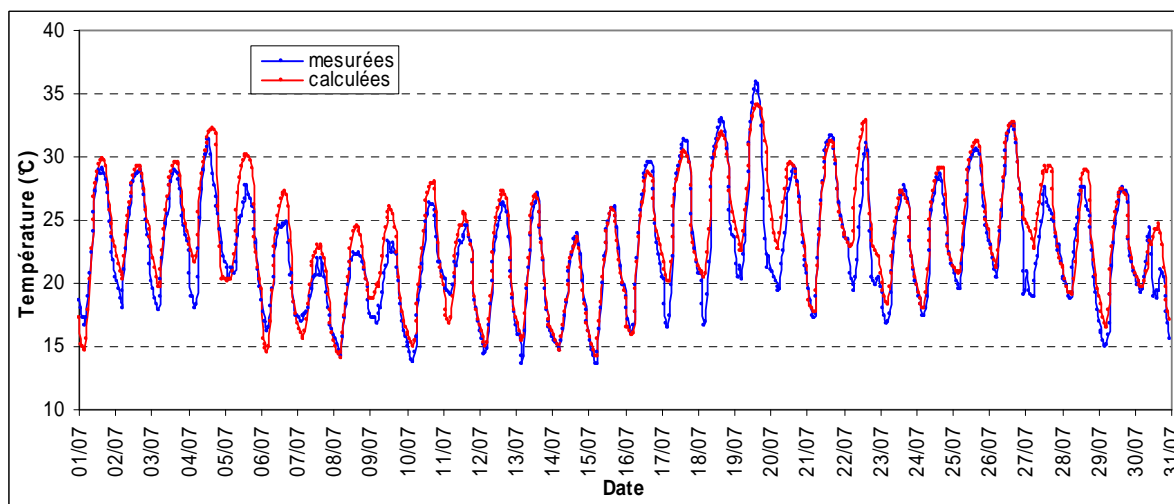
## Annexe C-6

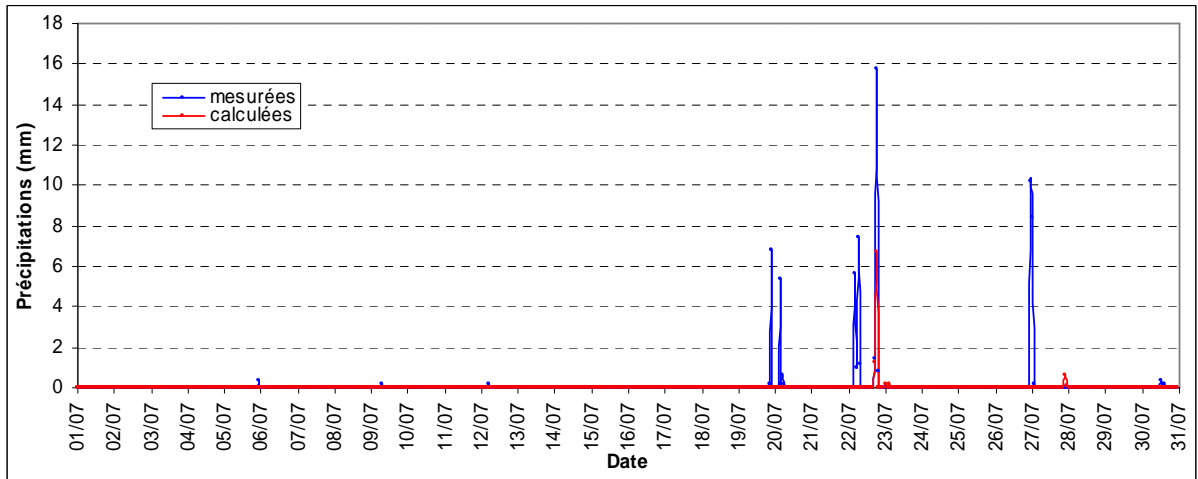
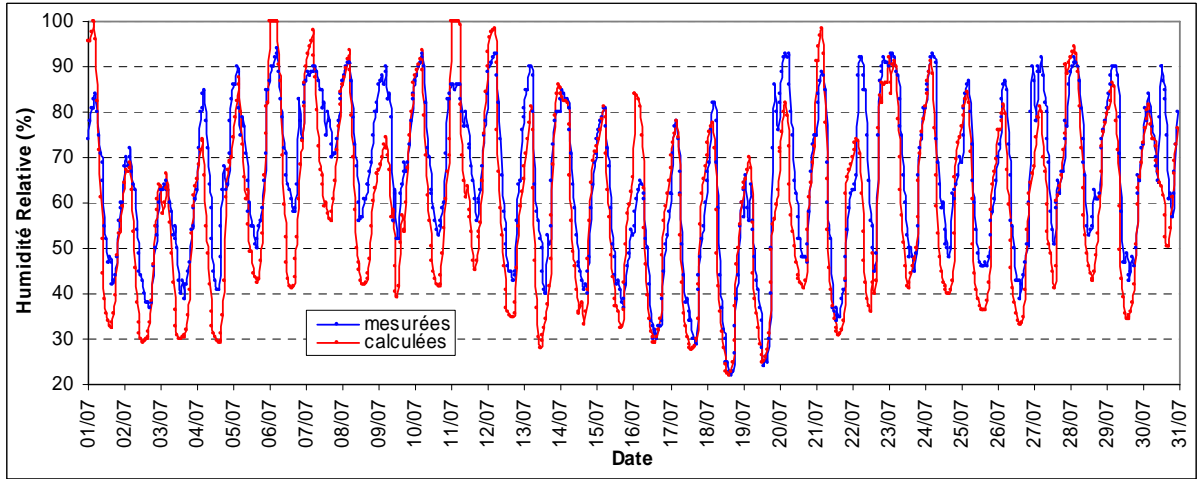
### Annexe C-6: Liste des espèces gazeuses du mécanisme MELCHIOR.

Species	Definition
<b>Inorganic compounds</b>	
O <sub>3</sub>	ozone
H <sub>2</sub> O <sub>2</sub>	hydrogen peroxide
OH	hydroxy radical
HO <sub>2</sub>	hydroperoxy radical
NO	nitric oxide
NO <sub>2</sub>	nitrogen dioxide
NO <sub>3</sub>	nitrogen trioxide
N <sub>2</sub> O <sub>5</sub>	dinitrogen pentoxide
HONO	nitrous oxide
HNO <sub>3</sub>	nitric acid
CO	carbon monoxide
SO <sub>2</sub>	sulfur dioxide
<b>Hydrocarbon species<sup>1</sup></b>	
CH <sub>4</sub>	methane
C <sub>2</sub> H <sub>6</sub>	ethane
NC <sub>4</sub> H <sub>10</sub>	n-butane
C <sub>2</sub> H <sub>4</sub>	ethene
C <sub>3</sub> H <sub>6</sub>	propene
OXYL	o-xylene
C <sub>5</sub> H <sub>8</sub>	isoprene
APINEN	α-pinene
BPINEN	β-pinene
LIMONE	limonene
TERPEN	terpenes (lumped class)
HUMULE	Humulene (lumped class)
OCIMEN	Ocimene (lumped class)
<b>Carbonyls</b>	
HCHO	formaldehyde
CH <sub>3</sub> CHO	acetaldehyde
CH <sub>3</sub> COE	methyl ethyl ketone
GLYOX	glyoxal
MGLYOX	methyl glyoxal
CH <sub>3</sub> COY	dimethyl glyoxal
MEMALD	unsaturated dicarbonyls, reacting like 4-oxo-2-pentenal
MVK	methyl vinyl ketone
MAC	methacroleine
<b>Organic nitrates</b>	
PAN	peroxyacetyl nitrate
CARNIT	nitrate carbonyl taken as α-nitrooxy acetone
ISNI	unsaturated nitrate from isoprene degradation
<b>Organic peroxides</b>	
CH <sub>3</sub> O <sub>2</sub> H	methyl hydroperoxide
PPA	peroxy acetyl acid
<b>(Per)oxy radicals</b>	
CH <sub>3</sub> O <sub>2</sub>	methyl peroxy radical
CH <sub>3</sub> COO	peroxy acetyl radical
<b>Operators<sup>2</sup></b>	
oRO <sub>2</sub>	representing peroxy radicals from OH attack to C <sub>2</sub> H <sub>5</sub> , NCHH <sub>10</sub> , C <sub>2</sub> H <sub>4</sub> , C <sub>3</sub> H <sub>6</sub> , OXYL, CH <sub>3</sub> COE, MEMALD, and MVK
oROOH	representing organic peroxides from oRO <sub>2</sub> +HO <sub>2</sub> reactions
obio	representing peroxy radicals produced by C <sub>5</sub> H <sub>8</sub> and APINEN + OH reaction
obioH	representing biogenic organic peroxides from obio+HO <sub>2</sub> and obio+obio reactions
oPAN	representing PAN homologue compounds (except PAN)
PANH	representing results from oPAN+HO <sub>2</sub> reaction
toPAN	representing results from oPAN+NO <sub>2</sub> reaction
oRN1	representing organic nitrate peroxy radicals from NO <sub>3</sub> attack to C <sub>2</sub> H <sub>4</sub> , C <sub>3</sub> H <sub>6</sub> , C <sub>5</sub> H <sub>8</sub> , APINEN, BPINEN, LIMONE, TERPEN, OCIMEN, HUMULE and OH attack to ISNI

## Annexe D-1

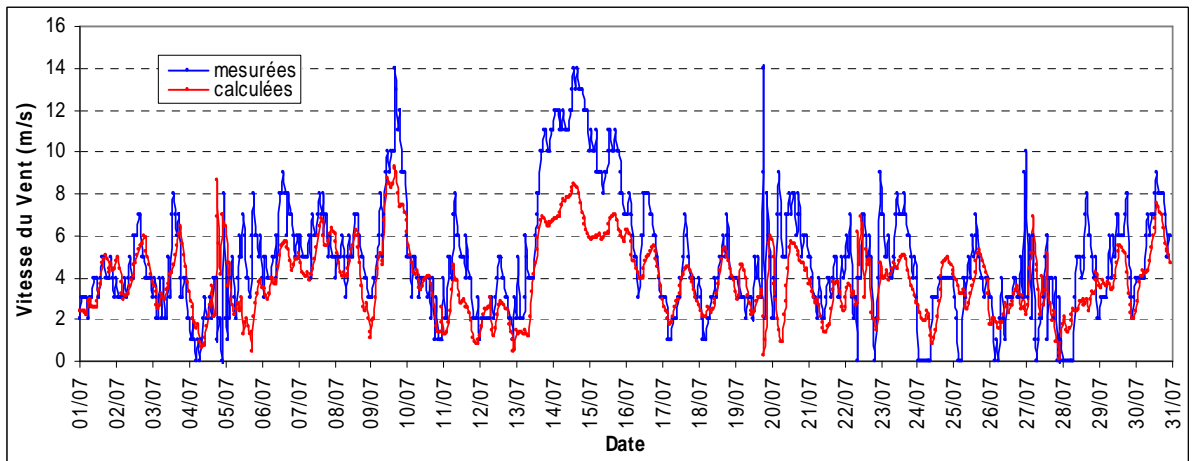
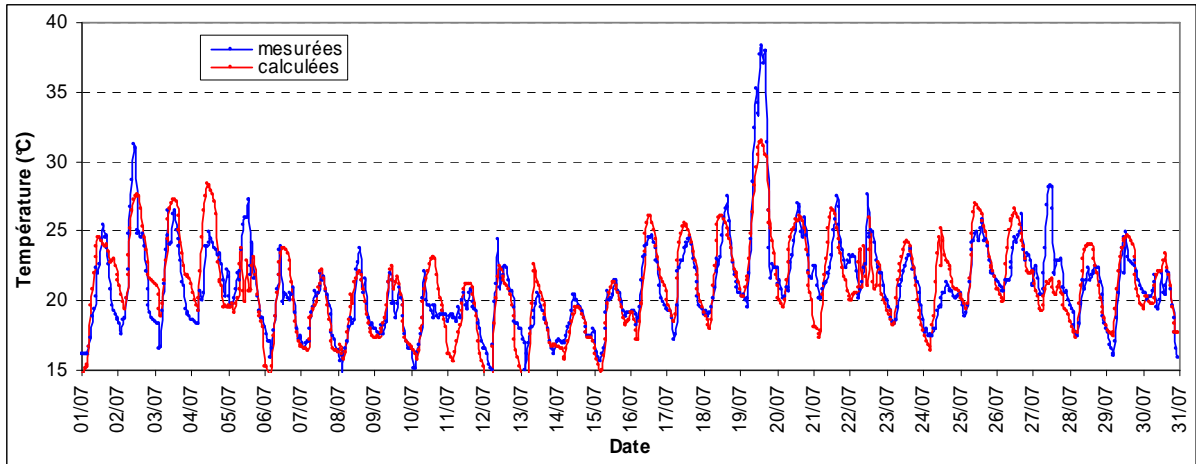
Annexe D-1 : Evolution temporelle de la température, de vitesse du vent, de l'humidité relative et des précipitations mesurées par Météo-France et calculées par MM5 au niveau de la station de Lille-Lesquin.

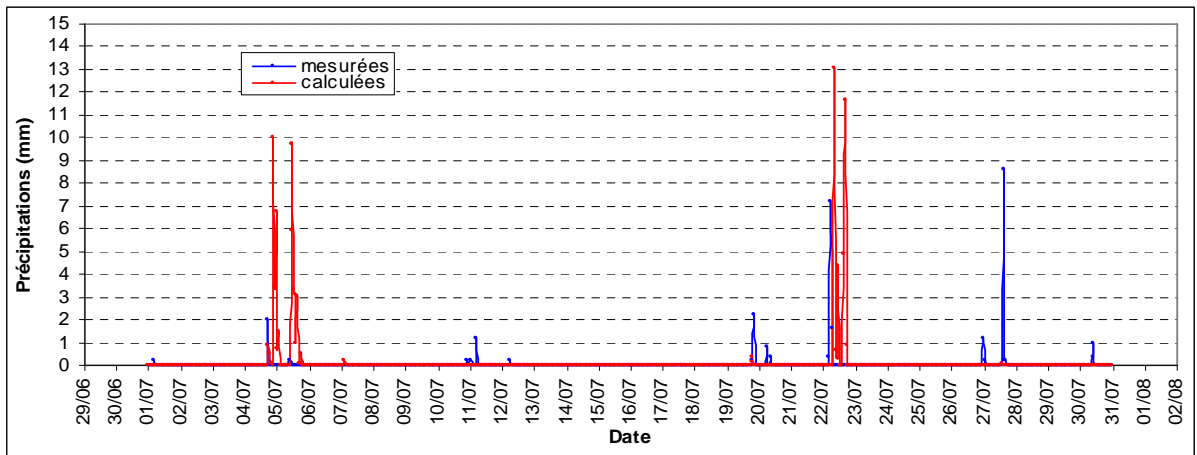
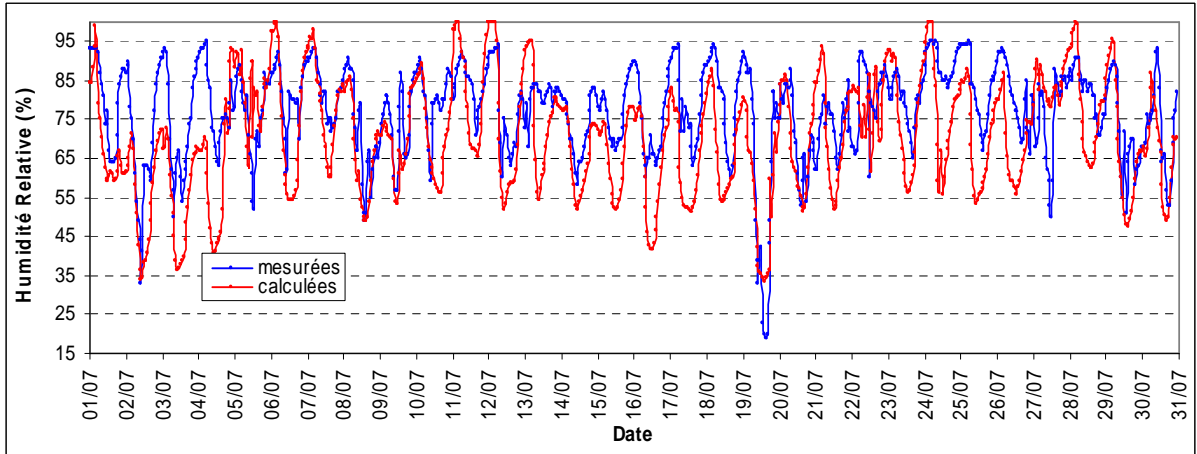




## Annexe D-2

Annexe D-2 : Evolution temporelle de la température, de la vitesse du vent, de l'humidité relative et des précipitations mesurées par Météo-France et calculées par MM5 au niveau de la station de Dunkerque.





## Annexe D-3

### Annexe D-3: Coordonnées géographiques de l'ensemble des stations du réseau de surveillance de la qualité de l'air Atmo-NPDC.

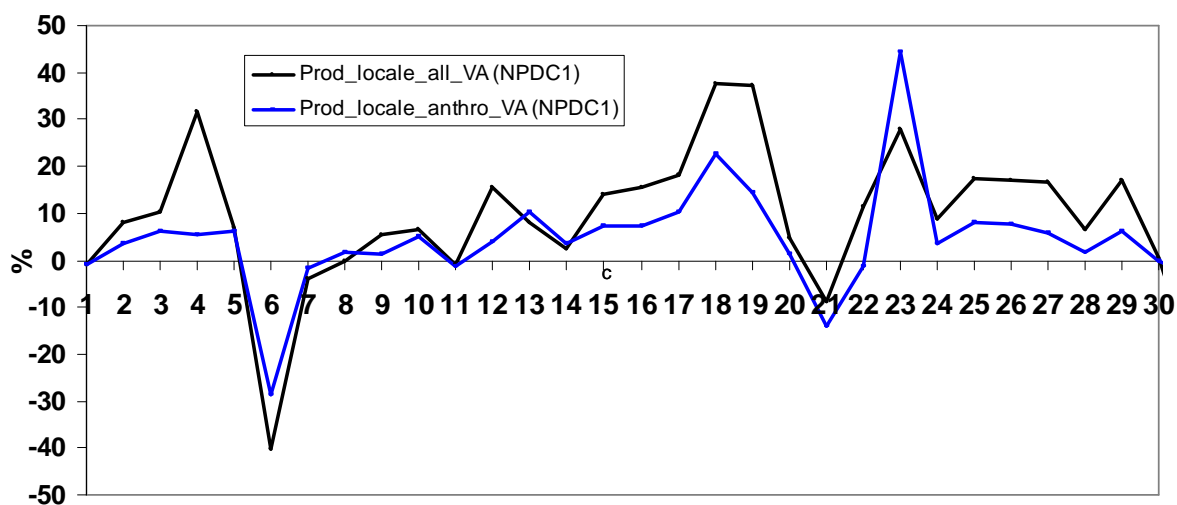
n° BDQA	NOM SITE	ancien nom	Libellé nom	code INSEE	Typologie	n°téléphone	X	Y
<b>ZONE DE SURVEILLANCE: DUNKERQUE</b>								
10 001	SM_DK1	ST_501	radioactivité Dunkerque		radioactivité			
10 002	SM_DK2	ST_502	Dunkerque Centre	59183	trafic		602 624.28	2 671 522.41
10 003	SM_DK3	ST_503	Dunkerque Port	59183	industriel		601 182.91	2 673 264.41
10 005	SM_DK5	ST_505	Fort Mardyck	59248	industriel		588 565.27	2 670 968.13
10 006	SM_DK6	ST_506	StPOL/mer Centre	59540	météo		601 203.42	2 670 854.25
10 007	SM_DK7	ST_507	St POL/mer Nord	59540	urbain		589 954.75	2 671 157.40
10 008	SM_DK8	ST_508	Coudekerque-Branche	59155	urbain		603 115.66	2 669 561.81
10 009	SM_DK9	ST_509	Petite-Synthe		péri-urbain		599 253.02	2 668 583.98
10 010	SM_DKA	ST_510	Bray-Dunes	59017	péri-urbain		613 420.66	2 675 163.53
10 011	SM_DKB	ST_511	Grande-Synthe	59271	urbain		596 959.84	2 668 696.60
10 012	SM_DKC	ST_512	Mardyck		industriel		593 990.36	2 669 619.67
10 013	SM_DKD	ST_513	Loon-Plage	59359	industriel		591 728.85	2 666 936.16
10 014	SM_DKE	ST_514	Gravelines PC	59273	péri-urbain		586 385.61	2 665 441.74
10 015	SM_DKF	ST_515	Gravelines DRIRE	59273	péri-urbain		586 355.59	2 665 305.29
10 004	SM_DK4	ST_504	Malo-les-Bains		urbain			
<b>ZONE DE SURVEILLANCE: METROPOLE CENTRE</b>								
11 005	SM_MC1	LIBERT	Lille Liberte	59350	trafic		650 745.13	2 627 216.19
11 019	SM_MC2	PASTEU	Lille Pasteur	59350	trafic		652 370.96	2 626 213.06
11 024	SM_MC4	FAIDHE	Lille Faidherbe	59350	urbain		652 629.31	2 624 734.66
11 025	SM_MC5	LAKANA	Lille Lakanal	59350	urbain		653 389.81	2 626 310.65
11 037	SM_MC6	LMC	Lille CUDL	59350	radioactivité/ météo		651 950.96	2 627 976.81
11 023	SM_MC3	MONTEB	Lille Montebello	59350	trafic			
<b>ZONE DE SURVEILLANCE: METROPOLE NORD</b>								
11 034	SM_MN1	Serres	Roubaix Serres	59512	trafic		659 430.49	2 635 018.93
11 002	SM_MN2	CHATAU	Roubaix Chateau	59512	urbain		659 355.34	2 633 218.73
11 027	SM_MN3	TRCG_B	Touroing Centre	59279	urbain		658 218.48	2 637 057.77
11 028	SM_MN3	HAZE	mesure recollée		/		/	/
11 035	SM_MN4	WQHALL	Wasquehal Jouhau	59846	observation		656 583.00	2 630 004.00
11 016	SM_MN5	CTM	Maroq CTM	59378	urbain		652 339.45	2 630 784.40
11 026	SM_MN6	CAILLO	Halluin Cailloux	59279	péri-urbain		656 985.85	2 642 436.48
11 017	SM_MN7	DALLE	Wervicq Dalle	59856	industriel		650 198.19	2 641 587.99
<b>ZONE DE SURVEILLANCE: METROPOLE EST</b>								
11 032	SM_ME1	Rameau	V d'Ascq Rameau	59009	péri-urbain		657 129.98	2 625 660.02
11 033	SM_ME2	LEQUIN	Lesquin Centre	59343	péri-urbain		655 142.58	2 621 896.12
11 015	SM_ME3	ECOLAS	Baisieux Ecoles	59044	péri-urbain		663 556.41	2 625 113.77
<b>VEILLANCE: METROPOLE SUD</b>								
11 036	SM_MS2	HAUB	Haubourdin Pomp	59288	urbain		645 560.00	2 624 270.00
11 031	SM_MS3	BASSEE	La Bassée Centre	59051	trafic		633 168.42	2 615 176.53
11 030	SM_MS4	SALOME	Salomé Ecoles	59108	péri-urbain		635 661.56	2 615 636.75
11 011	SM_MS1	CIO	Haubourdin CIO		industriel			
<b>ZONE DE SURVEILLANCE: METROPOLE OUEST</b>								
11 022	SM_MO1	BEAUYA	Armentières quai	59017	urbain		639 075.29	2 632 847.41
11 029	SM_MO2	HUGO	Lomme Hugo	59355	urbain		647 430.00	2 626 480.00
<b>ZONE DE SURVEILLANCE: DOUAI</b>								
06003	SM_DO1	THEURI	Douai Theuriet	59178	urbain		651 964.02	2 588 387.81
06091	SM_DO1	MINES	Douai Theuriet		Mesure COLLER DANS SM_DO1			
06102	SM_DO1	DOUAI	Douai Theuriet		Mesure COLLER DANS SM_DO1			
06097	SM_DO1	mines 98	Douai Theuriet		Mesure COLLER DANS SM_DO1			
06016	SM_DO2	ESQUER	Douai Esquerchin	59178	trafic		652 077.10	2 597 941.00
06005	SM_DO3	MALRO	Lambres Malraux	59329	urbain		651 682.52	2 595 923.35
06010	SM_DO4	ROLLAN	Waziers Rolland	59854	urbain		654 899.81	2 599 298.40
06008	SM_DO5	BARRAN	Guesnain Barrand	59276	péri-urbain		657 419.95	2 595 345.25
06013	SM_DO6	BACHEL	Roost W. Bachelet	59509	industriel		654 492.18	2 602 702.65
06082	SM_DO7	VITRY	Vitry Aéroport	62865	météo		647 072.00	2 593 710.60
26029	SM_DO8	29CORB	Corbehem Biblio	62240	industriel		650 589.09	2 594 080.77
26015	SM_DOA	15CORB	Corbehem Service Tec	62240			650 837.10	2 593 598.30
<b>ZONE DE SURVEILLANCE: MAUBEUGE</b>								
06007	SM_MA1	joyeu	Maubeuge Joyeuse	59392	urbain		717 127.81	2 588 300.04
06012	SM_MA2	RONSAR	Haumont Ronsart	59291	péri-urbain		711 666.03	2 585 721.12
06014	SM_MA3	DELCOU	Boussois Delcourt	59104	industriel		721 944.22	2 589 526.25
06681	SM_MA4	SALMAG	Salmagne Aéroport	59190	météo		721 640.20	2 592 115.20
<b>ZONE DE SURVEILLANCE: AVESNES</b>								
06015	SM_AV1	RENAUD	Avesnelles Renaud	59035	péri-urbain		716 131.07	2 589 297.08
<b>ZONE DE SURVEILLANCE: CAMBRAI</b>								
06009	SM_CB1	GAMBET	Cambrai Gambetta	59122	urbain		664 451.76	2 576 624.29
06017	SM_CB2	COUBER	Caudry Coubertin	59139	péri-urbain		677 848.70	2 570 403.11
<b>ZONE DE SURVEILLANCE: VALENCIENNES</b>								
06001	SM_VA1	Acacia	Valenc Acacia	59806	urbain		683 561.15	2 596 594.26
06006	SM_VA2	WALLON	Valenc Wallon	59806	trafic		684 620.67	2 597 280.24
06002	SM_VA3	BEAU	StSaulve Beaumont	59544	péri-urbain		686 655.62	2 597 570.03
06018	SM_VA4	BRASS	AulnoyV Brassens	59032	urbain		685 156.16	2 593 406.65
06004	SM_VA5	BRAKE	StAmand Bracke	59526	urbain		678 129.85	2 605 432.57
06011	SM_VA6	VILLAR	Denain Villars	59172	urbain		675 635.37	2 592 457.12
06019	SM_VA7	BARRAN	Somain Salengro	59574	industriel		686 669.09	2 596 580.28
06092	SM_VA8	PROUVY	Prouvy Aéroport	59475	météo		679 534.10	2 593 525.23
06098	SM_VAA	ACA08	Valenc Aca bis		MESURE COLLER DANS SM_VA1			
06101	SM_VA1		Valenc Aca bis		MESURE COLLER DANS SM_VA1			



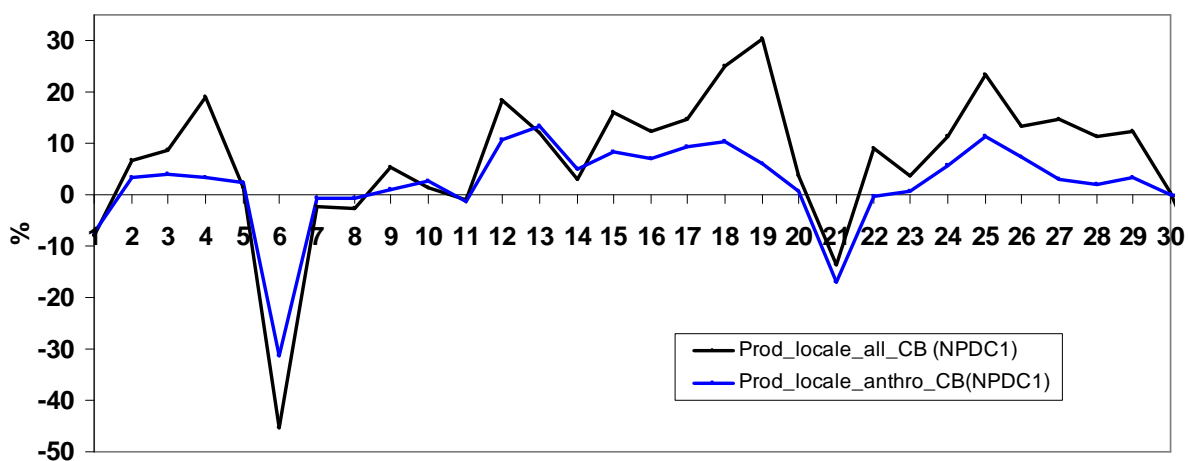
n° BDQA	NOM SITE	ancien non	Libellé station	code INSEE	Typologie	n°téléphone	X	Y
<b>ZONE DE SURVEILLANCE: CALAIS</b>								
10 021	SM_CA1	ST_521	Calais Chateaub	62193	industriel		567 165.88	2 662 641.60
10 022	SM_CA2	ST_522	Calais IUT	62193	industriel		568 029.26	2 662 052.38
10 023	SM_CA3	ST_523	Calais Lafayette	62193	trafic		566 482.72	2 661 519.75
10 024	SM_CA4	ST_524	Calais Place Armes	62193	trafic		565 631.48	2 663 020.93
10 025	SM_CA5	ST_525	Sangatte	62774	péri-urbaine		560 013.32	2 662 006.21
10 026	SM_CA6	ST_526	radioavité Calais		radioactivité			
10 020	SM_CAA	ST_520	Calais Brésil		urbain			
<b>ZONE DE SURVEILLANCE: BOULOGNE</b>								
10 031	SM_BO1	ST_531	Boulogne Centre	62160	trafic		548 436.97	2 635 598.29
10 032	SM_BO2	ST_532	Outreau	62643	péri-urbaine		546 189.27	2 633 593.13
10 033	SM_BO3	ST_533	Wimereux	62893	péri-urbaine		549 349.84	2 643 117.13
<b>ZONE DE SURVEILLANCE: BETHUNE</b>								
28 001	SM_BE1	1BETH	Béthune PC	62119	météo		620 789.53	2 613 550.24
28 028	SM_BE2	28BETH	Béthune Stade	62119	urbain		621 142.16	2 615 439.81
28 025	SM_BE3	25BETH	Béthune rue Lille	62119	trafic		622 224.37	2 614 559.35
28 014	SM_BE4	14BRUA	Bruay Ecole	62178	urbain		615 827.26	2 608 975.79
28 020	SM_BE5	20NOEU	Noeux S. sports	62617	péri-urbaine		623 099.43	2 609 953.17
28 023	SM_BE6	23WING	Wingles IME	62895	industriel		637 662.10	2 611 431.20
28 024	SM_BE7	24ESTA	Estaires C. sportif	59212	industriel		625 995.36	2 627 656.02
28 012	SM_BEA	12WING	Wingles Collège		industriel			
28 013	SM_BEB	13LILL	Lillers Foyer		industriel			
28 016	SM_BEC	16ESTA	Estaires Pompier		industriel			
28 021	SM_BED	21BETH	Béthune Michelet		trafic			
<b>ZONE DE SURVEILLANCE: LENS</b>								
28 002	SM_LE1	2LENS	Lens Service Tech	62498	urbain		635 981.28	2 604 253.55
28 017	SM_LE2	17LENS	Lens Col. Michelet	62498	trafic		634 898.16	2 603 991.77
28 006	SM_LE3	6LIEVI	Liévin Piscine	62510	urbain		631 059.24	2 602 332.72
28 010	SM_LE4	10HARN	Harnes Serres	62413	péri-urbaine		641 105.66	2 606 215.86
28 030	SM_LE5	30HENI	Hénin Cimetière	62427	péri-urbaine		644 025.52	2 603 273.89
28 019	SM_LE6	19OIGN	Oignies S. sports	62637	péri-urbaine		646 905.63	2 607 988.11
28 026	SM_LE7	26MAZI	Mazingarbe Dumas	62563	industriel		628 995.53	2 608 554.53
28 007	SM_LE8	7COUR	Courcelles Salle	62249	industriel		648 673.07	2 602 631.62
28 027	SM_LE9	27EVIN	Evin Stade	62321	industriel		649 342.83	2 604 622.46
28 004	SM_LEA	4MAZIN	Mazingarbe Centre		industriel			
28 005	SM_LEB	5MAZIN	Mazingarbe Ecole		industriel			
28 008	SM_LEC	8OSTRI	Ostricourt Lorthoi		industriel			
28 009	SM_LED	9EVIN	Evin Bénédictin		industriel			
28 011	SM_LEE	11HENI	Hénin CAHC	62427	péri-urbaine		644 622.10	2 602 887.50
<b>ZONE DE SURVEILLANCE: ARRAS</b>								
28 018	SM_AR1	18ARRA	Arras Jaurés	62041	urbain		631 714.56	2 587 157.91
28 003	SM_ARA	3ARRA	Arras pompiers	62041	urbain		631 799.80	2 589 071.20

## Annexe D-4

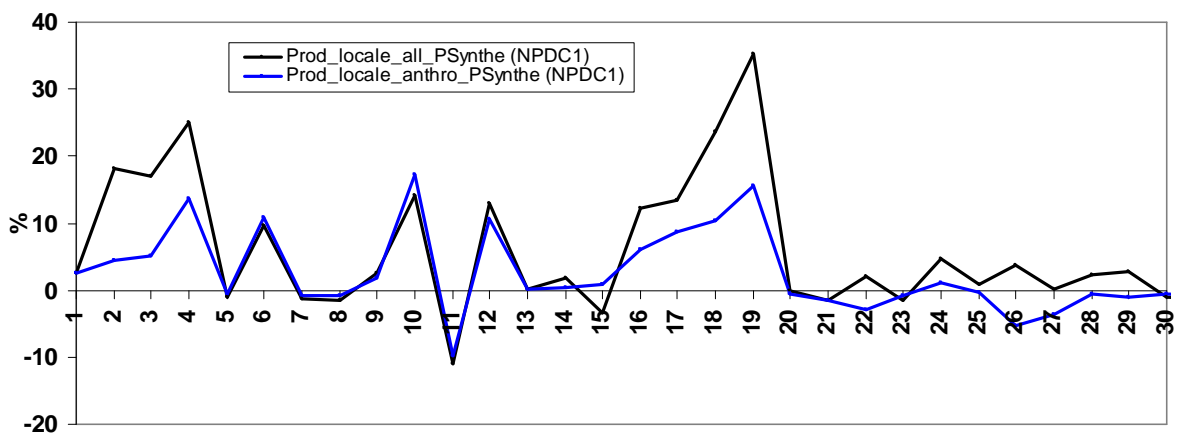
Annexe D-4: Pourcentage d'ozone lié à l'ensemble des émissions locales (courbes noires) et aux émissions anthropiques uniquement (courbes bleues) pour différentes stations de la région NPDC. Les valeurs sont calculées pour les maxima journaliers du mois de juillet 2006 ( $n = 30$ ).



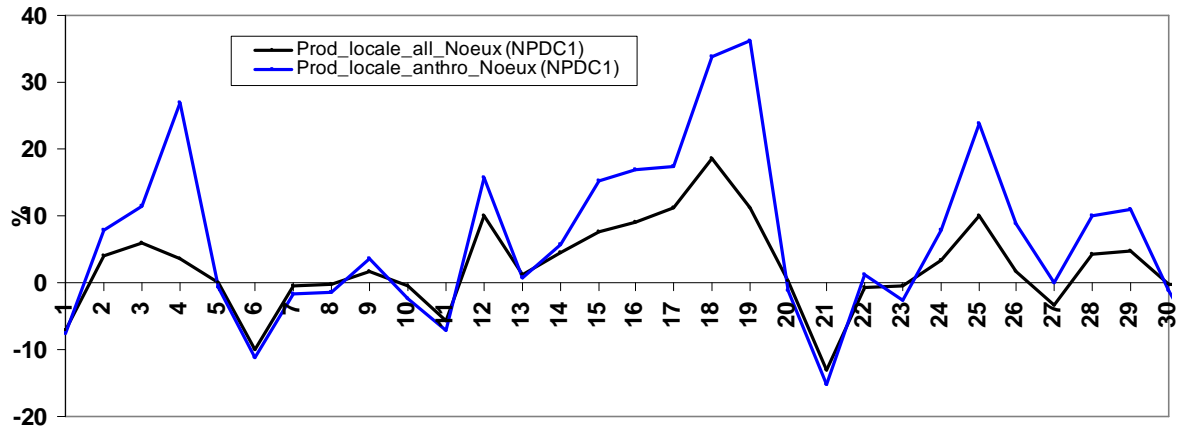
### Valenciennes (VA1)



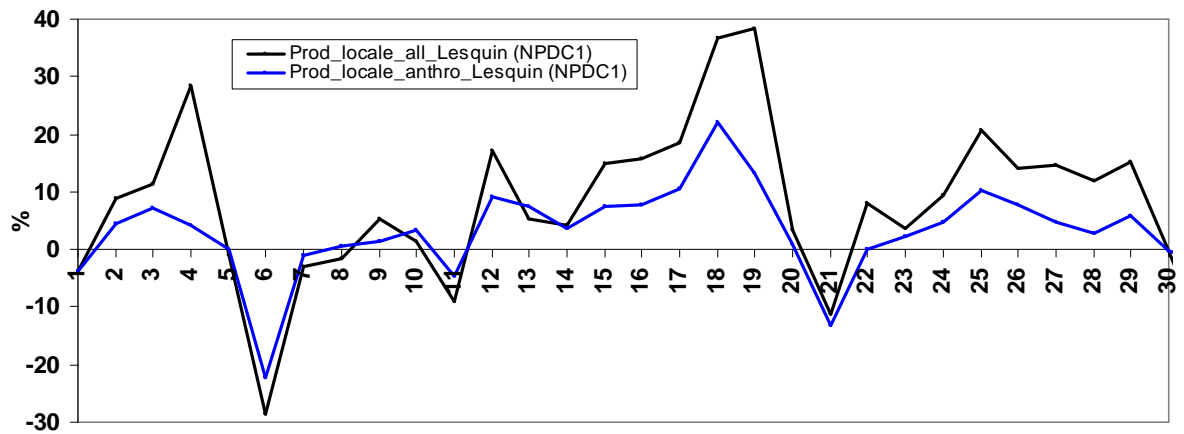
### Cambrai (CB1)



### Petite-Synthe (DK9)



**Noeux les Mines (BE5)**



**Lesquin (ME2)**

## Annexe D-5

### Annexe D-5: Bilan enseignements et publications

#### ENSEIGNEMENTS / ATER à l'Université Lille 1(Octobre 2008 –Mars 2009) :

Licence structure et propriété de la matière (S1) : 30 h TD

Licence de Chimie (S5) : 10 h TP

Licence SVTE (S1) : 73 h TP

#### COMMUNICATIONS AVEC COMITE DE LECTURE

**Terrenoire, E.**, Fèvre-Nollet V. (2009). Origin of two high PM10 concentration episodes over the Dunkerque industrial harbour, France: Case study, *Proceedings of 7<sup>th</sup> International Air Quality – Science and Application 2009 conference, Istanbul, published by the University of Hertforshire.*

**Terrenoire, E.**, Application of a regional atmospheric emission inventory to ozone and PM<sub>10</sub> modelling over the French North region: the 2006 heat wave case study, *Journal of Algorithms and Computational Technology*, acceptée.

**Terrenoire, E.**, Fèvre-Nollet V. (2007). Application of a regional atmospheric emission inventory to ozone and PM modelling over the French north region: the summer 2006 heat wave case study, *Proceedings of 29<sup>th</sup> NATO/CCMS International Technical Meeting on Air Pollution Modelling and its Application XIX*, C. Borrego and A. I. Miranda, eds.

Nollet, V., Deconinck, A., **Terrenoire, E.**, Schadkowski, C., Menut, L., Vautard, R., Santer, R., Ramon, D. (2006). PM Modelling in the French north area using the CHIMERE model : case study. *Proceeding of the 15<sup>th</sup> IUAPPA regional conference*, Book of abstracts OS6-96-97, Lille, France, 2006.

#### COMMUNICATIONS AVEC ACTES

**Terrenoire, E.**, Fèvre-Nollet V. (2009). Origin of two high PM10 concentration episodes over the Dunkerque industrial harbour, France: Case study, *Présentation orale à la 7<sup>ème</sup> International Air Quality – Science and Application 2009 conference, Istanbul.*

**Terrenoire, E.** (2007) Application of a regional atmospheric emission inventory to ozone and PM10 modelling over the French North region: the 2006 heat wave case study, *Présentation orale à la School of Computing and Mathematical Sciences Seminar*, University of Greenwich, U.K.

**Terrenoire, E.**, Fèvre-Nollet V. (2007). Application of a regional atmospheric emission inventory to ozone and PM modelling over the French north region: the summer 2006 heat wave case study, *Présentation orale à la 29<sup>ème</sup> NATO/CCMS International Technical Meeting on Air Pollution Modelling and its Application XIX.*

**Terrenoire, E.** (2007). Modélisation de la pollution atmosphérique sur la région Nord-Pas-De-Calais, *Doctoriales 2007 : Prix du meilleur poster.*

**Terrenoire, E** (2007) Modélisation de la réactivité et de la dispersion de polluants troposphériques en région Nord-Pas-de-Calais: Etudes de cas, Présentation orale aux JIQA 2007, Lille.

**Terrenoire, E.**, Nollet V, Deconinck, A., Gilson, M., Degeer, M. (2006). Modelling of the reactivity and dispersion of pollutants over the Nord-Pas-de-Calais region using the CHIMERE model. *Présentation orale à la 15<sup>ème</sup> IUAPPA regional conference*, Lille, France.

**Terrenoire, E.**, Nollet, V., Deconinck, A., Gilson, M., Degeer, M. (2006). Modelling of the reactivity and dispersion of pollutants over the Nord-Pas-de-Calais region, *Poster à la réunion commune du Groupe Français de Cinétique et Photochimie et du Groupement Français de Combustion*, ENSIC, NANCY.

**Terrenoire, E.**, Nollet, V., Deconinck, A., Gilson, M., Degeer, M. (2006). Modélisation de la réactivité et de la dispersion de polluants troposphériques en région Nord Pas de calais. *Présentation orale aux Journées Nord Européennes des Jeunes Chercheurs (JNEJC)*, MACC-USTL, Lille, France, 2006.

# Application of a Regional Atmospheric Emission Inventory to Ozone and PM Modelling over the French North Region: The summer 2006 heat wave Case Study.

E. Terrenoire and V. Fèvre-Nollet

**Abstract** This paper reports on the first application of a Nord-Pas-de-Calais regional emission inventory to the CHIMERE-MM5 modelling system. Using statistical indexes, we compare computed data to hourly observations and daily maximum of ozone and PM concentration measured with the monitoring station network data period in order to evaluate the performance of the modelling system for the selected area. This comparison is presented for a coastal location (Dunkerque: 51.03°N/2.37°E) and an inland location (Lille: 50.63°N/3.07°E) during the June July summer 2006 period. The model gives an excellent reproduction of the daily ozone cycle both for inland and coastal region but underestimates ( $20\mu\text{g}/\text{m}^3$  on average) the  $\text{O}_3$  hourly maxima over  $180\mu\text{g}/\text{m}^3$ . The model underestimates the  $\text{PM}_{10}$  measured concentration and has difficulties to reproduce hourly maxima over  $60\mu\text{g}/\text{m}^3$  for both inland and coastal stations. The system has difficulties to reproduce  $\text{O}_3$  concentration when air masses flows are continental. The poor representation of monitoring coastal station for particles makes the system validation more delicate for this area. We recommend using high resolution (3km) and grid nudging for the production meteorological data for the coastal location due to specific local dynamical conditions.

**Keywords** Atmospheric regional modelling, costal area, inland area, model evaluation,  $\text{O}_3$ ,  $\text{PM}_{10}$ , regional emission inventory.

## 1. Introduction

Photochemical models are largely used for the study of air pollution. It is a key tool for the decision maker in the development of strategies to control and reduce both photochemical and particular pollution. Examples of Chemistry Transport Models (CTMs) are the Community Multiscale Air Quality Model (CMAQ) (Byun et al., 1998), Meso-NH (Tulet et al, 1998). They are generally coupled to meteorological models such as the Fifth-Generation Pennsylvania State University/National Center for Atmospheric Research (NCAR) Mesoscale Model (MM5) (Grell et al., 1994) which provide 4D meteorological data. Meteorological data can also be calculated online with models such as the Meso-NH model. Recent evaluations of those models for their abilities to reproduce and predict the hourly photoxydant and particular tropospheric pollution have been performed over different cities: using MM5-CMAQ (San Jose et al, 2002), (Sokhi et al, 2006), (Vautard et al, 2001). We propose in this study to evaluate the capacity of the MM5-CHIMERE modelling system to reproduce the  $\text{O}_3$  and  $\text{PM}_{10}$  ground level concentration over the north region of France during the 2006 summer June-July period with a zooming over the Lille (50.63°N-3.07°E) and Dunkerque (51.03°N-2.37°E) areas being respectively an inland and a coastal location.

## 2. Tools

### 2.1. The CHIMERE model

CHIMERE runs over a range of spatial scales from the continental (1000 km) to the meso-scale scale (100 km) with resolutions varying from 1 km to 100 km. It requires meteorological data, boundary conditions, land-use information and biogenic and anthropic emissions. The model offers the option to use different gas phase mechanisms. For this study we use the MELCHIOR2 mechanism describing 44 species and 116 reactions (Derognat, 1998) following the concept of chemical operator. Due to the high PM potential emission of our

studied area (Fig.1) the aerosol option was used. Anthropogenic ground emissions are taken from the 2003 EMEP database (<http://www.emep.int>). Those data have a  $0.5 \times 0.5^\circ$  resolution. For the Nord-Pas de Calais region we used the 2004 updated regional emission inventory data (Martinet, 2004). Resolution is  $1 \text{ km}^2$ . The benefit of such emission inventories to model outputs results has been shown by Terrenoire et al., 2007. For more details on the CHIMERE description, please refer to the official CHIMERE web site: <http://euler.lmd.polytechnique.fr/chimere>

## **2.2. Meteorological input data**

The PSU/NCAR mesoscale model, known as MM5, is a non-hydrostatic, terrain following sigma-coordinate designed to simulate or predict mesoscale atmospheric circulation. More information on MM5 is given at <http://www.ncar.ucar.edu>. The MM5 model version used in this work is the 3.7.3 version. It includes classical parameterizations such as Planetary Boundary Layer (PBL), radiation, microphysics and convection. We used the FNL reanalysis data sets (every 6 hrs,  $1 \times 1$  degree resolution) downloaded from National Center for Environmental Prediction (NCEP) to provide initial and boundary conditions for MM5. The model is designed with 3 nested domains (Fig.1) and 23 vertical layers stretching from surface to 100hPa. The  $25 \times 35$  horizontal mother grid is centred over the city of Dunkerque ( $51.03^\circ \text{N}$ - $2.37^\circ \text{E}$ ). The 9 km resolution inner domain is used to provide 4D meteorological data to CHIMERE.

## **3. Methodology**

### **3.1. Domain of simulation**

The Nord Pas de Calais region is part of a North West European area which runs from South-East England to the Rhine. It has 4 million inhabitants, one of the highest density in Europe. A dense road infrastructure and a high industrial activity have yielded an alarming decrease of the air quality in this area over the last 20 years. For this case study, we present the results using domain 2 (Fig.1) with the lower left and upper right grid box centre at ( $1.0^\circ \text{E}/49.5^\circ \text{N}$ ) and ( $4.5^\circ \text{E}/51.5^\circ \text{N}$ ) respectively. For information the modelled data are extracted from the first layer which is about 40m deep.

### **3.2. Statistical indexes used**

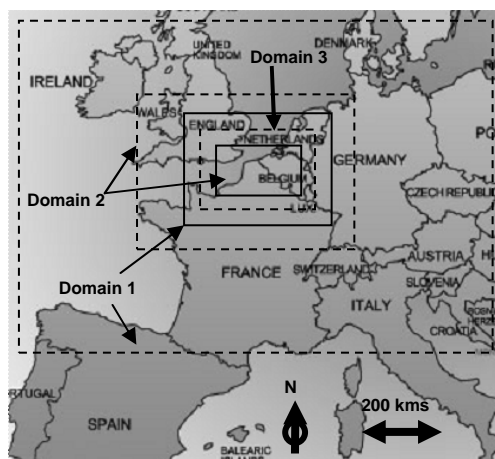
We evaluate the MM5-CHIMERE modelling system by quantifying the agreement between predicted and observed values using the following statistical indexes: the correlation coefficient (CC), the Normalized Mean Square Error (NMSE), the Index of Agreement (IA) and the fractional Bias (FB). CC, NMSE and IA provide a measure of the correlation of the predicted and measured times series of concentrations. IA varies from 0 to 1 which represents the perfect agreement between the observed and calculated values. FB represents a measure of the agreement between the mean predicted and observed concentrations. Perfect agreement between the two sets of data is reached when  $\text{NMSE}=\text{FB}=0$ .

## **4. Results and Discussion**

### **4.1. Meteorological analysis of the modelled period**

High temperatures have been recorded by Météo-France over the June-July 2006 period in France. A heat wave has affected the north of France during the last three weeks of July 2006. Monthly mean anomalies were

between 4 and 5 °C for July and make this month the second hottest one since 1950 after August 2003. The records of the Lesquin suburban station (near Lille) show three main periods with maximum daily temperature above 25°C. The Dunkerque coastal station shows similar tendencies with three main periods where maximum temperatures are above 25°C Drops in temperature (e.g.: 14 , 25 June and 05, 20 July) are generally linked, for both locations, with precipitation due to thunderstorms triggered by cold fronts penetrating inland. It is worth noting that July minimum temperatures were always above 15°C. Computed backward trajectory showed during North-Easterly flow period that air masses arriving over North of France were coming from central Europe which implies that those air masses were possibly already charged with pollutants (eg, O<sub>3</sub>).



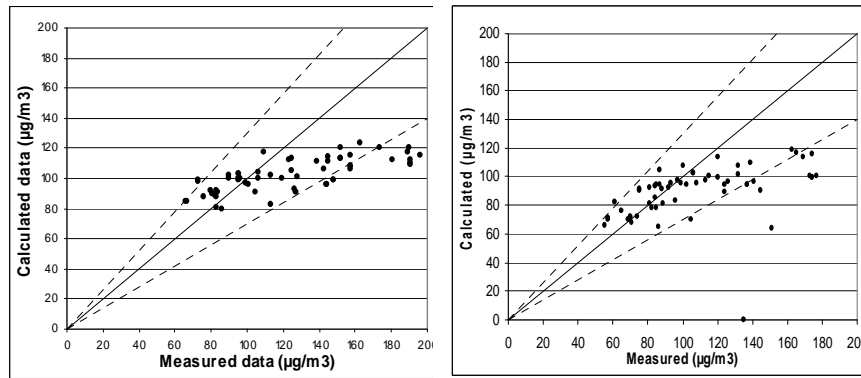
**Fig. 1** Domain architecture for the MM5-CHIMERE system used for this application. MM5 Domain 1: 25x35x23 grid cells and 81 km resolution. MM5 domain 2: 28x37x23 grids cells and 27 km resolution. MM5 domain 3: 40x55x23 grid cells and 9 km resolution. Chimere domain 1: 55x40x8 grid cells and 10km resolution. Chimere domain 2: 71x41x8 grids cells and 5 km resolution.

## 4.2. Evaluation of the MM5-CHIMERE modelling system

### 4.2.1. Comparison of hourly measured and modelled O<sub>3</sub> concentration for an inland and coastal station

Comparison of the calculated and observed hourly maxima ozone values's time series averaged over 8 inland stations around Lille shows that the model reproduced the daily O<sub>3</sub> cycle well, including minima. The model also catches well the decrease of O<sub>3</sub> concentrations due to the diminution of photochemical activity and wet deposition when cold fronts are advected over the north of France. There are 3 main periods where the model is underestimating the maxima. They correspond to high temperature periods describe. They are linked to continental North-East or Easterly flow air. The fact that those air masses are already charged with pollution (NO<sub>x</sub>, O<sub>3</sub>) could explain the underestimation of the model output. Similar results are found for the coastal location. Figure 2 shows scatter plots of observed versus modelled maximum O<sub>3</sub> concentration for an inland and coastal station. Overall, 80% of the values lie within the factor of the two dashed line. However, over 180 µg/m<sup>3</sup> for inland station and 160µg/m<sup>3</sup> for coastal station, the model is underestimating the measured values by about 50 and 80µg/m<sup>3</sup> respectively.

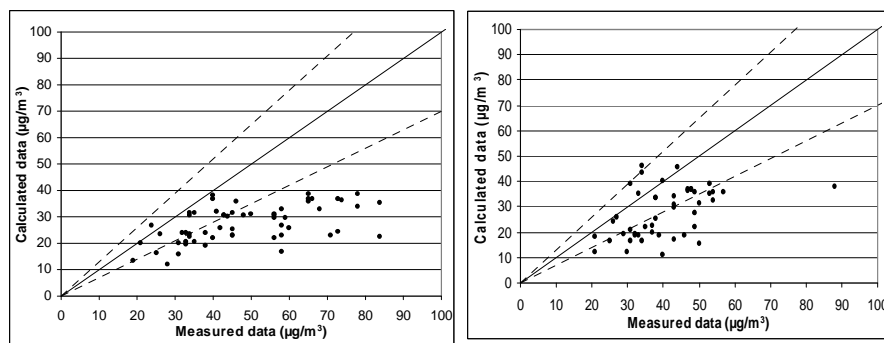




**Fig. 2** Scatter plots of observed versus daily modelled maxima O<sub>3</sub> concentration for a suburban inland station (Salomé 50.53°N/2.84°E on the left) and a suburban coastal station (Petite-Synthes 51.01°N/2.33°E on the right)

#### 4.2.2. Comparison of hourly measured and modelled PM<sub>10</sub> concentration for an inland and coastal station

Comparison of the calculated and observed hourly maxima PM<sub>10</sub> values's time series averaged over 6 inland stations around Lille shows that the model reproduces the mean tendency of the PM<sub>10</sub> measured concentration but underestimate it systematically. Difficulties concerning the reproduction of PM<sub>10</sub> peaks can be explain by the fact that PM<sub>10</sub> emission can be very localised (iron and steel factories) and that the model is averaging concentrations over 5 km grid boxes. Similar results are found for the coastal location. The measured maxima PM<sub>10</sub> concentrations are more frequent and higher than for the inland location due to the dense industrialization of the area. Most of the peaks are reproduced but underestimated except for two of them. Figure 3 shows scatter plots of observed versus modelled maximum PM<sub>10</sub> concentration for an inland and coastal station. The underestimation of PM<sub>10</sub> measured concentration is evident. For inland location the model is able to reproduce PM<sub>10</sub> concentration bellow 50µg/m<sup>3</sup> but underestimated higher measured values while for coastal location the ability for the model to predict PM<sub>10</sub> concentration is very variable in time.



**Fig. 3** Scatter plots of observed versus daily modelled maxima PM<sub>10</sub> concentration for an urban inland station (Marcq 50.67°N/3.08°E on the left) and a traffic coastal station (Calais 50.95°N/1.87°E on the right).

#### 4.3. Statistical Evaluation results

Statistical indexes are great tools to evaluate the model performance for specific location. However, it cannot be the only indicator of the model's success. The model averaged concentration over a 5km grid cell in our case. Some of the stations are too close to a local source pollutant which can explain the difficulties that have been observed for the model to predicted observed values. This is particularly true for primary pollutant and particles. Results of the statistical comparison are shown in Table 1 for O<sub>3</sub> and 2 for PM<sub>10</sub>. Coastal locations are shown in bold and CC based on maximum values are shown in bracket. The correlation coefficients are satisfactory for the inland location (0.55 on average) and very good for maxima value (0.75 on average). For coastal stations the CC is very variable (0.31 to 0.53). Suburban stations are more representative for O<sub>3</sub> value for both inland and coastal location while urban stations are for PM<sub>10</sub> concentration. The IA between modelled and measured data is about

0.7 for O<sub>3</sub> values and 0.5 for PM<sub>10</sub> values. The FB is low and often negative (on average -0.1 for O<sub>3</sub> and -0.5 for PM<sub>10</sub>) indicating the under-estimation model tendency which is stronger for PM<sub>10</sub>. NMSE is quite low (0.25) for O<sub>3</sub> and indicates the good performance of the model while they are higher for PM<sub>10</sub> (1.10).

**Table 1** Statistical indexes for O<sub>3</sub> during the June-July period

Station Name	Type	CC	NMSE	IA	FB
Lesquin	suburban	0.57 (0.78)	0.26	0.72	-0.10
Baisieux	suburban	0.55 (0.68)	0.24	0.74	-0.04
Halluin	suburban	0.56 (0.82)	0.27	0.72	-0.10
Salomé	suburban	0.65 (0.78)	0.24	0.74	-0.07
Graveline	suburban	0.45 (0.07)	0.42	0.63	0.02
Outreau	suburban	0.31 (0.72)	0.17	0.55	-0.01
Sangatte	suburban	0.38 (0.22)	0.19	0.62	0.19
Petite-Synthes	suburban	0.53 (0.45)	0.37	0.76	-0.15
Armentière	urban	0.56 (0.80)	0.26	0.70	-0.16
Tourcoing	urban	0.51 (0.77)	0.34	0.63	-0.25
Marcq	urban	0.57 (0.74)	0.26	0.70	-0.14
Lomme	urban	0.55 (0.69)	0.26	0.71	-0.12
Calais	traffic	0.42 (0.19)	0.28	0.71	-0.02

**Table 2** Statistical indexes for PM<sub>10</sub> during the June-July period

Station Name	Type	CC	NMSE	IA	FB
Salomé	suburban	0.16 (0.40)	0.90	0.53	-0.44
Graveline	suburban	0.25 (0.36)	0.85	0.46	-0.37
Outreau	suburban	0.17 (0.25)	1.18	0.58	-0.54
Sangatte	suburban	0.18 (0.40)	0.66	0.71	-0.31
Petite-Synthes	suburban	0.11 (0.04)	1.03	0.46	-0.39
Lille-Faidherbe	urban	0.30 (0.57)	1.70	0.52	-0.66
Lakanal	urban	0.24 (0.53)	0.58	0.61	-0.34
Tourcoing	urban	0.21 (0.54)	0.77	0.48	-0.41
Marcq	urban	0.28 (0.41)	0.74	0.57	-0.41
Lomme	urban	0.22 (0.39)	1.00	0.44	-0.51
St Pol Nord	urban	0.16 (0.13)	0.88	0.26	-0.43
Grande-Synthe	urban	0.05 (0.33)	1.33	0.23	-0.43
Calais	traffic	0.16 (0.16)	0.71	0.66	-0.24
Boulogne centre	traffic	0.14 (0.39)	1.58	0.46	-0.64
Dunkerque	centre traffic	0.19 (0.22)	0.78	0.57	-0.37
Fort-Mardyck	industrial	0.07 (0.10)	1.29	0.40	-0.55
Mardyck	industrial	0.16 (0.24)	1.21	0.38	-0.42

## 5. Summary Conclusion

The ability of the MM5-CHIMERE modelling system to predict air pollution concentration over an inland and coastal location of Nord-Pas de Calais region of France has been evaluated. We used the regional emission inventory for the Nord-Pas de Calais for anthropogenic emissions. The modelling system reproduces well the O<sub>3</sub> cycle for both inland and coastal region. It has difficulties in predicting high maxima when air masses flow are continental but it has correctly reproduced the influence of cold weather fronts on O<sub>3</sub> and PM<sub>10</sub> pollution. It systematically under-predicts PM<sub>10</sub> concentration for both locations. This is partially due to the lack of representation of some monitoring stations especially on the coastal area. Further work should include testing and improving PBL scheme specific to local dynamical and thermal coastal weather conditions (sea-breezes, low PBL height). Moreover, update of the emission inventory as well as the use of the nesting seems primordial. Finally, we encourage comparing the performance of the MM5-CHIMERE system over the North-Pas de Calais region with a Lagrangian Particle Dispersion model.

**Acknowledgments** The authors would like to acknowledge the Laboratoire de Meteorologie Dynamique de Palaiseau and the CHIMERE user list who provided useful comments on the use of CHIMERE. We are also grateful toward the Pennsylvania State University and the University Corporation for Atmospheric Research for providing the MM5 code. Finally, thanks to Atmo Nord-Pas de Calais for providing the hourly monitored O<sub>3</sub> and PM<sub>10</sub> data concentration.

## References

- Bessagnet B, Hodzic A, Vautard R, Beekmann M, Rouil L, Rosset R (2004) Aerosol modeling with CHIMERE-first evaluation at continental scale. *Atmospheric Environment* 38, 2803-2817.
- Byun D, Young J, Gipsen J, Godowitch J, Binkowski F, Roselle S, Benjey B, Pleim J, Ching J, Novak J, Coats C, Odman T, Hanna A, Alapaty K, Mathur R, McHenry J, Sankar U, Fine S, Xiu A, Jang C (1998) Description of the Models-3 community multiscale air quality (CMAQ) model. In: *Proceedings of the American Meteorological Society 78th Annual Meeting*, January 11–16, Phoenix, AZ.
- Derognat C (1998) Elaboration d'un code chimique simplifié applicable à l'étude de la pollution photooxydante en milieu urbain et rural. Rapport de stage de master, Université Paris 6, France.
- Grell GA, Dudhia J, Stauffer J (1994) A description of the Fifth-generation Penn State/NCAR Mesoscale Model (MM5). NCAR Tech Note TN-398, 122 pp.
- Martinet Y (2004) Conception, validation et exploitation d'un cadastre des émissions de polluants atmosphériques sur la région Nord-Pas de Calais. Thèse de doctorat en chimie, Université de Lille 1, France.
- San Jose R, Perez JL, Blanco JF, Barquín R, González RM (2002) An operational version of MM5-CMAQ modelling system over Madrid City. *Forth Symposium on the Urban Environment*, 20–24 May 2002. American Meteorology Society.
- Sokhi RS, San Jose R, Kitwiroon N, Fragkou E, Perez JL, Middleton DR (2006) Prediction of ozone levels in London using the MM5-CMAQ modelling system. *Environmental Modelling & Software* 21, 566-576.
- Terrenoire E, Nollet V, Deconinck A (2007) PM Modelling in the French north area using the CHIMERE model: case study. JIQA, Lille, France, 2007.
- Tulet P, Crassier V, Solmon F, Guedalia D, Rosset R (2003) Description of the mesoscale non-hydrostatic chemistry model and application to a transboundary pollution episode between northern France and southern England. *Journal of Geophysical Research* 108 (D1), 4021.
- Vautard R, Beekmann M, Roux J, Gombert D (2001) Validation of a deterministic forecasting system for the ozone concentrations over the Paris area, *Atmospheric Environment*, 35, 2449–2461.