Habilitation à Diriger des Recherches

Yelva Roustan

Spécialité : Sciences et techniques de l'environnement

Modélisation numérique des polluants atmosphériques Développements, analyses et applications.

Présentée et soutenue publiquement le 10 juillet 2020

Jury composé de

Matthias Beekmann Marianne Hatzopoulou Didier Hauglustaine Benjamin Loubet Céline Mari-Bontour Denis Maro LISA Université de Toronto LSCE EcoSys LA IRSN

président rapporteuse rapporteur rapporteur examinatrice examinateur

Table des matières

A	vant p	propos		5
In	trodu	iction		9
	Con	texte		9
	Plar	1		10
1	Moo	lélisatio	on des flux de dépôt	11
	1.1	Préser	ntation des outils et concepts mis en œuvre	11
		1.1.1	Du dépôt sec au flux d'échange	12
		1.1.2	Dépôt humide	14
	1.2	Évalu	ation et analyse de sensibilité des dépôts simulés	16
		1.2.1	Cas des radionucléides pour des rejets accidentels	16
		1.2.2	Cas de polluants "chroniques"	23
	1.3	Dévelo	oppement d'une nouvelle approche pour le dépôt sec en milieu urbain	27
		1.3.1	Évolution de la formulation	28
		1.3.2	Applications aux métaux et HAP	30
2	Ana	lyse de	stratégies de réduction des émissions	33
	2.1	Contri	ibution du trafic routier à la pollution en Île-de-France	33
		2.1.1	Impact des technologies de réduction des émissions	33
		2.1.2	Potentiel d'une zone à faible émission	35
	2.2	Réduc	tion multi-sectorielle des émissions	38
		2.2.1	Analyse d'un scénario de prospective énergétique	38
		2.2.2	Évaluation de tendances	40
3	Moo	lélisatio	on multiéchelle de la pollution atmosphérique	43
	3.1	Appro	oche pour les sites industriels	43
	-	3.1.1	Principe des modèles de panache-sous-maille	44
		3.1.2	Application à des panaches de raffineries	45
	3.2	Appro	oche pour le milieu urbain	50
	0.2	3.2.1	Principe du modèle de rue-sous-maille	50
		322	Première application en région Parisienne	51
		3.2.3	Analyse de sensibilité du modèle de réseau de rues	53
4	Pers	spective	2S	55
-	4.1	Modél	lisation des flux de dépôt	55
		4.1.1	Des radionucléides	55
		4.1.2	aux particules	56

4.2	Appro	oches multiéchelles	57
	4.2.1	Modèle de panache-sous-maille	57
	4.2.2	Modèle de rue-sous-maille	58
4.3	Applie	cations prospectives	58
	4.3.1	Émissions d'ammoniac de l'agriculture	59
	4.3.2	Émissions du trafic routier	59
4.4	Assim	ilation de données et autres sujets	59

Avant propos

Ce document présente une synthèse d'une partie de mes travaux de recherche autour de la modélisation numérique de la pollution atmosphérique. Si certaines références scientifiques y sont mentionées, ce rapport n'a pas vocation en l'état à constituer un document scientifique autonome. J'invite donc les lectrices et lecteurs à consulter directement les références citées pour retrouver le corpus bibliographique correspondant.

Mes travaux de recherche ont été effectués au Centre d'Enseignement et de Recherche en Environnement Atmosphérique (CEREA) depuis la soutenance de mon doctorat en 2005^{1} .

Ces travaux se sont inscrits dans les activités du CEREA qui sont structurées en trois thèmes de recherches :

- Mesure et modélisation des processus physiques dans la couche limite atmosphérique,
- Modélisation de la physico-chimie de la pollution atmosphérique (émissions, dispersion, formation et dépôts),
- Assimilation de données et modélisation inverse.

Mes recherches prennent place majoritairement sous l'étiquette thématique "Modélisation de la physico-chimie de la pollution atmosphérique". J'ai néanmoins eu le plaisir de continuer de collaborer régulièrement avec Marc Bocquet (directeur adjoint du CE-REA), qui avait assumé la co-direction de ma thèse, et nombre de ses étudiants sur des sujets touchant à l'assimilation de données et ce tout au long des quinze dernières années. Je fais le choix de n'évoquer que ponctuellement ces sujets dans ce rapport. Mon rôle a plus été ici d'accompagner l'utilisation des modèles plutôt que de piloter des recherches.

À l'issue de ma thèse, j'ai pu commencer à élargir le champ des sujets abordés dans mes recherches en m'insérant dans divers projets impulsés par Bruno Sportisse et Luc Musson-Genon (resp. premier directeur et directeur adjoint du CEREA) :

- En contribuant à des travaux portant sur le développement d'un modèle de chimie-transport pour les aérosols que j'ai par la suite appliqué, notamment à travers une participation à des projets Européens pour de premières expériences d'analyse de scénarios prospectifs;
- En accompagnant la fin de doctorat de Solen Quéguiner qui a donné lieu à la mise en place d'un modèle "multi-milieux" pour la représentation des Polluants Organiques Persistants (POPs).

Mes travaux de thèse ont par ailleurs trouvé un prolongement direct à travers le doctorat de Janusz Zyśk portant sur la modélisation de la dispersion des métaux lourds émis par

^{1.} portant sur la "Modélisation de la dispersion atmosphérique du mercure, du plomb et du cadmium à l'échelle européenne".

le secteur énergétique en Pologne et pour lequel j'ai pu participer à l'encadrement.

Suite à mon recrutement en 2009 par lÉcole Nationale des Ponts et Chaussées (ENPC) sur un poste permanent de chargé de recherche au CEREA, sous la direction de Christian Seigneur, j'ai pu poursuivre et renforcer les travaux engagés sur ces différentes thématiques. J'ai initié et participé à différentes actions visant à améliorer la prise en compte des processus de dépôt des polluants atmosphériques dans les modèles de dispersion atmosphérique :

- Les post-doctorats de Nora Duhanyan puis d'Arnaud Quérel, en collaboration avec l'Institut de Radioprotection et de Sûreté Nucléaire (IRSN) ont permis une revue exhaustive des paramètrisations des phénomènes de lessivage et des analyses de sensibilité réalisées sur les cas de rejets accidentels de radionucléides à Tchernobyl et Fukushima.
- La thèse de Vincent Loizeau a permis de poursuivre le développement du modèle multi-milieux dédié au POPs et de reconsidérer le couplage atmosphère / sol à travers les flux de dépôt et de réémission.
- La thèse de Nicolas Cherin a donné lieu au développement d'une nouvelle paramètrisation de "résistance" aérodynamique dédiée au milieu urbain. Ce modèle a par la suite été mis en œuvre dans les travaux de doctorat de Laëtitia Thouron.

Avec l'appui de Christian Seigneur, et en bénéficiant de toutes les recherches en modélisation des aérosols atmosphériques dirigées par Karine Sartelet (CEREA) et Christian Seigneur, j'ai réalisé et piloté différentes études reposant sur la mise en œuvre du modèle eulérien de chimie-transport développé au CEREA. Ces études ont notamment permis de faire des analyses prospectives de l'effet de technologies de dépollution des transports et de la création de zone à circulation restreinte sur les concentrations de différents polluants en Île-de-France. Nous avons également réalisé des investigations sur des réductions d'émissions plus globales, "académiques" avec des réductions spécifiques à certains précurseurs (postdoctorat de Laëtitia Girault) ou "réalistes" avec un scénario énergétique de l'ADEME² (postdoctorat de Nicolas Yan). Le projet Ammon, que je coordonne actuellement (postdoctorat de Palmira Messina), s'intéresse à l'impact de réduction d'émissions d'ammoniac liées à l'agriculture sur les concentrations en particules en Île-de-France. Au-delà d'une évaluation de l'impact de réduction des émissions avec un modèle à l'état de l'art, je m'attache à porter dans ces études un regard "critique" sur les modèles et la méthode mis en œuvre pour contribuer à mieux caractériser leurs incertitudes et leurs répercussions sur les simulations.

Une partie de mon activité de ces dernières années a été consacrée au développement d'approche de modélisations "multiéchelles". Elles impliquent l'utilisation couplée de différents modèles. Ces approches visent à représenter les niveaux de pollution en proximité de sources spécifiquement identifiées et à une échelle régionale dans un cadre de modélisation commun. J'ai ainsi pu participer à l'encadrement de la thèse de Valentin Raffort qui a notamment complété un modèle de "panache-sous-maille" et l'a appliqué à des raffineries. J'ai également pu collaborer avec Youngseob Kim (ingénieur de recherche au CEREA) et Christian Seigneur sur le développement initial d'un modèle de réseau de rue et son couplage avec un modèle Eulérien de chimie transport. En collaboration avec Karine Sartelet, je travaille actuellement à la poursuite du développement de cette nouvelle approche pour la modélisation de la qualité de l'air en milieu

^{2.} Agence De l'Environnement et de la Maîtrise de l'Énergie

urbain.

Tous mes travaux ont été réalisés en collaboration régulière avec de nombreux collègues, au CEREA bien sûr, mais également à l'ENPC et à la R&D d'Électricité de France (EDF R&D). Ils se sont aussi insérés dans des projets partenariaux ayant permis des échanges enrichissant avec des chercheurs et des personnels scientifiques de nombreux laboratoires et organismes tant en France qu'à l'étranger. En pratique, pour ce qui me concerne, ces recherches ont très souvent bénéficié d'un cadre de développement informatique initialement pensé par Vivien Mallet pour faciliter la modularité et la généricité des outils de modélisation développés et mis en œuvre. Mes contributions à la recherche en modélisation numérique de la pollution atmosphérique ont largement bénéficié de ce contexte collaboratif.

Introduction

Contexte

L'étude de la pollution atmosphérique a, parmi ses différents objectifs, la compréhension des cycles biogéochimiques qui gouvernent les concentrations dans l'air de différents polluants. Cette compréhension est un élément indispensable pour évaluer les nuisances associées et la pertinence des mesures envisagées pour les réduire. La modélisation numérique figure parmi les moyens scientifiques développés depuis de nombreuses années pour parfaire nos connaissances dans ce domaine. Elle consiste à résoudre de façon aussi précise que possible les équations mathématiques représentant les cycles biogéochimiques précédemment évoqués et leur dynamique, en s'appuyant sur les capacités de calcul des ordinateurs.

Dans un premier temps, les modèles sont un moyen de s'assurer que notre compréhension des processus représentés est "correcte". Cela passe essentiellement par de la comparaison des résultats issus d'une simulation à des données d'observations. Leur intérêt réside alors dans leur capacité "prédictive" espérée, consistant à fournir des informations sans pour autant avoir à effectuer de nombreuses observations éventuellement coûteuses ou simplement irréalisables.

Cette capacité des modèles peut se décliner en différents types d'utilisation dans le domaine de la pollution atmosphérique, par exemple la prévision à court terme, à l'instar de ce qui se fait en météorologie, ou encore la simulation d'événements passés pour en reconstituer l'historique.

Leur utilisation, dans le cadre d'études prospectives destinées à l'aide à la décision, est également possible. Ces études prospectives concernent généralement des mesures visant à réduire soit les émissions de polluants dans l'air soit, dans le contexte plus spécifique de la qualité de l'air, l'exposition des populations à ces polluants. Les outils utilisés pour de telles études dépassent largement le cadre de la pollution atmosphérique en tant que réalité physico-chimique. On serait en peine d'interpréter des concentrations de polluants dans l'air sans connaître, en aval, l'exposition des populations à ces concentrations ou les répercussions sur leur santé. En amont, les mesures évaluées ne visent généralement pas directement les concentrations dans l'air, mais plutôt les activités qui sont à l'origine des émissions ou de l'exposition aux polluants. Dans ce contexte, la modélisation de la qualité de l'air doit donc être perçue comme un maillon d'une chaîne d'évaluation intégrant, autant que possible, tous les aspects d'un problème complexe.

Historiquement, le développement de modèles à "grande échelle" a été pensé pour traiter des situations accidentelles de grande ampleur (p. ex. l'accident de Tchernobyl), des pollutions régionales chroniques (acidification, eutrophisation, smog photochimique, etc...) puis pour comprendre les interactions pollution - forçage climatique. À "petite échelle", les modèles sont pensés pour traiter les impacts locaux de certaines installations (site industriel, infrastructure routière) dans des scénarios de fonctionnement normal ou accidentel. Notre compréhension de la physico-chimie de la pollution atmosphérique et les besoins socio-économiques font que les modèles à grandes échelles sont de plus en plus sollicités pour descendre en résolution et, inversement, les modèles à petite échelle pour traiter des domaines de plus en plus grands.

C'est dans ce cadre que j'inscris mes travaux de recherche.

Plan

Le premier chapitre de ce document retrace mon questionnement sur la représentation des dépôts de polluants atmosphériques qui a été ma porte d'entrée dans la recherche. J'illustre cette trajectoire avec les différents sujets abordés dont la pollution aux métaux, en particulier au mercure, et les rejets accidentels de radionucléides.

Dans le deuxième chapitre, à travers l'exemple de certaines des études réalisées, j'illustre ce que l'on attend des modèles de chimie-transport dans le cadre d'analyse de stratégie de réduction des émissions. Les éléments de réponse qu'ils peuvent apporter sont utiles, mais souvent contraints par le cadre que l'on doit nécessairement se fixer pour la réalisation de telles études. La généralisation des résultats peut ainsi s'avérer problématique. De plus, le lien entre les résultats de ces modèles et l'exposition des populations n'est pas immédiat. Notamment parce que la résolution spatiale de ces outils ne permet pas de représenter la variabilité importante à fine échelle des champs de concentrations dans les zones sources.

Dans une troisième partie, j'évoque les développements récents de modèles qui permettent d'avoir une vision des écarts entre un modèle Eulérien "classique" et une approche "multiéchelle" mieux à même de capturer la variabilité en champs proche des concentrations.

Je termine ce document en exposant les perspectives de mes différents travaux telles que je les conçois actuellement.

Chapitre 1

Modélisation des flux de dépôt

Dans ce chapitre, sont rappelés dans un premier temps les concepts classiques utilisés pour représenter les flux de dépôts de polluants dans les modèles de chimie-transport. Leur application pour des simulations de rejets accidentels de radionucléides puis des simulations de pollutions chroniques sont ensuite exposées. Ce chapitre se conclut par la présentation d'un développement de modèle de dépôt sec dédié au milieu urbain et ses applications.

1.1 Présentation des outils et concepts mis en œuvre

Les travaux présentés dans ce document reposent dans leur grande majorité sur l'utilisation d'un modèle à échelle régionale adoptant une représentation Eulérienne. Ce type d'approche consiste à résoudre un système d'équations de conservations de la masse pour un certain nombre de polluants interagissant les uns avec les autres. L'impossibilité pratique à résoudre toutes les échelles de temps et d'espace des processus à prendre à compte conduit à considérer des équations portant sur des champs "moyens". Ces équations incorporent alors des paramétrisations pour les phénomènes ayant un impact significatif mais à des échelles caractéristiques spatio-temporelles plus fines que celles explicitables.

$$\frac{\partial c(\boldsymbol{x},t)}{\partial t} = -\underbrace{\nabla \cdot (\boldsymbol{u}(\boldsymbol{x},t) c(\boldsymbol{x},t))}_{\text{advection par le vent}} + \underbrace{\nabla \cdot (\boldsymbol{K}(\boldsymbol{x},t) \nabla c(\boldsymbol{x},t))}_{\text{diffusion turbulente}} - \underbrace{\lambda(\boldsymbol{x},t) c(\boldsymbol{x},t)}_{\text{lessivage par production/destruction}} + \underbrace{\tau(c(\boldsymbol{x},t),\ldots)}_{\text{source}} + \underbrace{\sigma(\boldsymbol{x},t)}_{\text{source}}$$
(1.1)

Avec

 $c(\boldsymbol{x},t)$: la concentration au lieu \boldsymbol{x} et à l'instant t (en µg.m⁻³, Bq.m⁻³, ...). $\boldsymbol{u}(\boldsymbol{x},t)$: le vent (en m.s⁻¹).

 $K(\mathbf{x},t)$: la matrice des coefficients de diffusivité turbulente (en m².s⁻¹). $\lambda(\mathbf{x},t)$: le coefficient de lessivage (en s⁻¹) qui permet de quantifier la proportion de polluants retirée de l'atmosphère par les précipitations par unité de temps. $\chi(c(\mathbf{x},t),...)$: symbolise de façon générique le terme de physico-chimie qui relie les équations du système considéré.

 $\sigma(\boldsymbol{x},t)$: le terme de source du domaine modélisé (en μ g.m⁻³.s⁻¹).

À l'équation (1.1) sont associées des conditions initiales et aux limites. Au sol la condition portant sur le terme de diffusion peut notamment s'écrire de la façon suivante :

$$(\boldsymbol{K}(\boldsymbol{x},t) \cdot \nabla c(\boldsymbol{x},t)) \cdot \boldsymbol{n} = -v_d(\boldsymbol{x},t) c(\boldsymbol{x},t)$$
(1.2)

Avec

 $v_d(\boldsymbol{x}, t)$: la vitesse de dépôt sec (en m.s⁻¹) qui permet de quantifier le flux de dépôt de l'atmosphère vers la surface.

Les paramétrisations mises en œuvre pour représenter les flux de dépôt et en pratique quantifier les coefficients λ et v_d sont évoquées plus spécifiquement dans les paragraphes suivants.

1.1.1 Du dépôt sec au flux d'échange

Le dépôt sec peut se définir comme le transfert de polluants depuis l'atmosphère vers les surfaces autrement que par les précipitations. Les phénomènes fondamentaux qui interviennent sont :

- La captation par la surface des polluants par adsorption, absorption ou réaction chimique pour les gaz, par contact et capture par inertie ou interception pour les particules.
- Diverses formes de diffusion (diffusion turbulente, diffusion moléculaire et brownienne, effets phorétiques...).
- La sédimentation qui peut être significative pour les particules atmosphériques les plus grosses (> quelques µm) et les surfaces les plus "lisses".

L'intensité de ces processus est fonction de nombreuses caractéristiques :

- de la turbulence atmosphérique, qui amène le polluant près de la surface si celleci génère un déficit local de concentration;
- des polluants, comme la solubilité et la réactivité pour les gaz, la taille et la masse volumique pour les particules;
- de la surface de dépôt : lisse ou rugueuse, orientation, surfaces non-réactives ou favorisant l'adsorption ou l'absorption, ...

Pour représenter l'ensemble de ces phénomènes, la notion de "vitesse de dépôt sec" a été introduite et souvent utilisée. Ce coefficient, v_d , relie linéairement le flux de dépôt sec, F_{sec} , à la concentration du polluant, c, à une certaine hauteur de référence z_{ref} . Celle-ci est choisie pour correspondre à la hauteur de mesure si elle est déterminée empiriquement ou à une hauteur simulée dans le cadre d'une modélisation.

$$F_{\rm sec} = v_d(z_{\rm ref}) c(z_{\rm ref}) \tag{1.3}$$

Dans les modèles de chimie-transport, la vitesse de dépôt est fréquemment évaluée par une formulation dite "résistive". Elle décompose le transfert de matière de l'atmosphère vers le sol comme un processus en plusieurs étapes successives et, selon la multiplicité des possibilités de captation par la surface, se déroulant selon plusieurs "chemins" (cf. p.ex. figure 1.1). Chacun de ces chemins est plus ou moins favorable au transfert et se traduit par une "résistance" au dépôt plus ou moins importante. La vitesse de dépôt est alors exprimée comme l'inverse de la résistance équivalente à l'ensemble des chemins représentés. Pour les substances gazeuses, il est typiquement proposé de distinguer trois étapes principales [Wesely et Hicks, 2000].

$$v_d = \frac{1}{R_a + R_b + R_c} \tag{1.4}$$

où

- La résistance "aérodynamique", R_a , prend en compte l'intensité de la turbulence atmosphérique et son effet diffusif sur les concentrations dans l'air.
- La résistance "de la couche d'écoulement quasi-laminaire", R_b , représente la diffusion dans la couche d'atmosphère à proximité de la paroie, pour laquelle la turbulence n'est plus supposée pertinente.
- La "résistance de la canopé" rend compte des différents possibilités de captation par la surface.



1/Rc = 1/Rsol + 1/Rcut + 1/(Rmes+Rsto)

FIGURE 1.1 – Étapes du dépôt sec.

Pour les substances particulaires, les formulations font intervenir la vitesse de sédimentation, v_s . Il a été relevé par Venkatram et Pleim [1999] que cela met en défaut les formulations "résistives" qui impliquent implicitement un gradient de concentration entre la hauteur de référence et la surface. La formulation suivante est alors proposée :

$$v_d = \frac{v_s}{1 - e^{(R_a + R_s)v_s}} \tag{1.5}$$

Celle-ci permet de tendre vers la vitesse de sédimentation pour les plus grosses particules et vers une formulation purement résistive pour les plus petites.

• La "résistance de surface", R_s , représente l'ensemble des processus pilotant la diffusion et la capture dans les couches d'atmosphère en proximité de la surface pour lesquelles la turbulence ne peut plus être dominante [Hicks *et al.*, 2016].

Les expressions proposées pour v_d dans les modèles de qualité de l'air reposent souvent sur une approche globale ("big leaf model") consistant à traiter la canopée comme un milieu homogène. Il est possible d'affiner cette approche en introduisant un modèle à plusieurs couches [Hicks *et al.*, 2016; Loizeau *et al.*, 2018] qui permet d'introduire une différenciation verticale dans la canopée et de traiter explicitement l'impact de l'évolution des conditions environnementales (ombrage, turbulence, ...).

L'analogie avec la loi d'Ohm et la notion de résistance équivalente impliquent un gradient de concentration. Dans les formulations précédentes, la concentration de surface des polluants est supposée inférieure à la concentration à la hauteur de référence. Elle est même généralement supposée négligeable. La surface n'est donc pas émettrice vers l'atmosphère. Pour les espèces gazeuses, si cette hypothèse s'avère trop limitante, il est possible de considérer une concentration de surface (c_s) , ou point de compensation, et d'étendre l'équation (1.3) qui devient :

$$F_{\rm sec} = v_d(z_{\rm ref}) \ (c(z_{\rm ref}) - c_s) \tag{1.6}$$

Cette extension simple n'est valable qu'en utilisant une hypothèse d'homogénéité des concentrations de surface si plusieurs compartiments (sol nu, élément de végétation, ...) sont à considérer. Il est néanmoins envisageable de différencier explicitement les surfaces [Massad *et al.*, 2010] et d'introduire un couplage plus ou moins complexe pour intégrer la détermination des concentrations correspondantes [Quéguiner *et al.*, 2010; Loizeau *et al.*, 2014]. Plus anecdotiquement, la terminologie "vitesse de dépôt" perd alors de sa pertinence et peut gagner à être remplacée par un simple "coefficient d'échange".

1.1.2 Dépôt humide

Le dépôt humide est constitué des polluants présents dans l'atmosphère qui ont été incorporés dans les hydrométéores et qui sont retirés de l'atmosphère et transférés au sol lors des précipitations ou par contact des nuages avec la surface. On peut distinguer différentes composantes, le lessivage dans le nuage, le lessivage sous le nuage et le dépôt humide dit "occulte".

Ce dernier n'apparait pas souvent explicitement traité dans les modèles de chimietransport à échelle régionale. Il peut néanmoins être représenté avec des approches similaires à celles mises en oeuvre pour le dépôt sec des particules [Katata, 2014].

Pour les deux autres composantes du dépôt humide, la physique que l'on vise à représenter varie plus ou moins fortement selon les polluants considérés.

- Pour les gaz, on considère l'absorption et l'adsorption par les hydrométéores (en suspension ou précipitants). La chimie en phase aqueuse et la diffusion dans l'eau peuvent également intervenir dans le processus de lessivage par les gouttes.
- Différents mécanismes de diffusion (moléculaire, Brownienne, turbulente, effets électriques...) induisent des flux de gaz et de particules vers les hydrométéores.
- Le rôle de noyau de condensation joué par les particules dans la formation des nuages est un processus majeur pour le lessivage dans les nuages.
- Enfin les hydrométéores en suspension peuvent eux-mêmes être collectés par ceux ayant commencé leur précipitation.

L'efficacité des différents processus de lessivage est a priori fonction de nombreuses caractéristiques de l'eau atmosphérique (quantité, distribution en taille des hydrométéores, état physique, ...), des polluants (solubilité et réactivité chimique pour les gaz, distribution en taille et composition chimique pour les particules, …). Les conditions environementales (température, turbulence, charge électrique, …) jouent également un rôle. En effet, l'intensité des mécanismes mis en oeuvre varie de plusieurs ordre de grandeur selon l'ensemble de ces caractéristiques et certains mécanismes dominent largement sur les autres en fonction des conditions.

Le dépôt humide est mathématiquement modélisé par un coefficient de lessivage, λ , qui permet de quantifier la proportion de polluants retirée de l'atmosphère. Dans un modèle de chimie-transport, les paramétrisations à mettre en œuvre doivent être pensées en fonction de la structure de représentation globale. Par exemple, le lessivage dans le nuage peut être lié à la représentation de la chimie en phase aqueuse. Si les concentrations en phase aqueuse sont explicitement suivies, les mécanismes de transfert de l'air interstitiel vers la phase aqueuse peuvent alors être représentés indépendamment de la quantification du retrait lors des précipitations. De façon analogue, Wang et al. [2011] relève que la turbulence de "grande" échelle, dont les effets sont généralement représentés par ailleurs dans le modèle, peut expliquer une partie significative des écarts importants constatés entre résultats empiriques et modèle "théoriques" pour le lessivage des particules autour du micron. Ces effets ne doivent alors pas être intégrés explicitement ou implicitement dans l'expression de λ .

En parallèle de ces considérations de structure de la représentation, la diversité des expressions proposées dans la littérature pour quantifier les coefficients pour les lessivages sous et dans le nuages est importante. Par exemple, pour le lessivage sous le nuage des particules, cette diversité s'étend de l'utilisation d'une simple valeur constante [Katata *et al.*, 2015] :

$$\lambda = 8.10^{-5} \tag{1.7}$$

à des paramétrisations complexes décrivant les différents mécanismes micro-physiques qui interviennent et explicitant notamment la dépendance vis à vis de la taille des particules [Wang *et al.*, 2010]. Un raisonnement simple sur le volume balayé par une goutte précipitante conduit à l'expression générale suivante pour le coefficient de lessivage :

$$\lambda(r) = \int_{R} \pi \ (R+r)^{2} \ (v_{t}(R) - v_{s}(r)) \ E(R,r) \ N(R) \ dR \tag{1.8}$$

Avec

r: le rayon de particule considéré (en m).

R: le rayon de goutte précipitante considéré (en m).

N(R): la distribution en taille de la population de gouttes (en $\#.m^{-3}.m^{-1}$). $v_t(R)$ et $v_s(r)$: les vitesses de chute des gouttes et des particules (en $m.s^{-1}$). E(R, r): l'efficacité de collecte ([0, 1]).

L'efficacité de collecte, E(R, r), est la probabilité pour qu'une goutte de taille R capture une particule de taille r présente à proximité de sa trajectoire de chute. Son expression permet ici de représenter la complexité de la micro-physique du phénomène de capture des particules.

Ces différences d'approche sur la représentation du lessivage peuvent traduire un comportement pragmatique face au manque de données ou à leur faible fiabilité. On retrouve néanmoins également une forte diversité de formulation à niveau de complexité équivalent [Duhanyan et Roustan, 2011]. Cette diversité trahit donc également en partie les incertitudes restantes dans notre compréhension de ces processus qui sont difficiles à isoler in-situ.

Les deux composantes du lessivage étant de nature assez différente, elles sont généralement paramétrisées séparément. Cela soulève notamment la question du diagnostic de la présence du nuage dans un modèle qui ne résoud pas a priori l'équation de conservation de l'eau atmosphérique. Certaines paramétrisations intègrent implicitement ce diagnostic dans la détermination du coefficient λ [Pudykiewicz, 1989]. Plus généralement, ont doit se poser la question des interactions entre un choix de paramétrisation, la nature des données utilisées (cumul de précipitation au sol, contenu en eau liquide ...) et la "fiabilité" de ces données.

1.2 Evaluation et analyse de sensibilité des dépôts simulés

Face à la multiplicité des choix a priori défendables de représentation des processus de dépôt dans les modèles de chimie-transport à échelle régionale, la question se pose de savoir si ce choix importe réellement. Quelle est la sensibilité des résultats de simulation d'un modèle à ces différents choix possibles? Si ce choix importe, sommes nous en mesure d'identifier des paramétrisations meilleures que les autres? Ce choix peut-il se faire indépendemment des autres choix de modélisation? Je présente dans cette partie différentes études, réalisées sur des polluants variés, mais qui ont en commun d'avoir abordé le sujet de la représentation des dépôts et de l'analyse de sensibilité du modèle.

1.2.1 Cas des radionucléides pour des rejets accidentels

Dans le cadre des collaborations pérennes du CEREA avec l'IRSN nous explorons depuis plusieurs années le rôle des processus de dépôt dans la dispersion des panaches de radionucléides. Les cas d'étude considérés sont des évènements de rejet accidentels comme ceux d'avril-mai 1986 à Tchernobyl ou de mars-avril 2011 à Fukushima. L'aspect accidentel de ces rejets implique des incertitudes importantes sur les quantités rejetées. Leur limitation dans le temps induit une forte dépendance aux conditions de dispersion du "moment" par rapport à des problématiques de pollution chroniques.

Une première analyse de sensibilité sur le cas de l'accident de Tchernobyl a été entamée dans le cadre du projet d'ingénieur en laboratoire de Camille Birman (2011) puis poursuivie et développée avec les travaux de postdoctorat de Nora Duhanyan (2009-2013). Les radionucléides considérés étaient en phase gazeuse (¹³¹I) et particulaire (¹³⁷Cs et ¹³⁴Cs). Ils sont généralement représentés comme des traceurs chimiquement inertes, l'activité (la grandeur suivie en pratique par le modèle) est par contre soumise à une décroissance uniquement fonction du radionucléide. Les formes chimiques I₂ et ICH₃ ont été retenues pour représenter l'iode gazeux. Une discrétisation en cinq classes a été utilisée pour prendre en compte le spectre de taille des particules porteuses du césium. Ces raffinements de la représentation des radionucléides permettent d'exploiter des paramétrisations des processus de dépôt plus détaillées que celles usuellement employées. Néanmoins la portée de cette amélioration est limitée par le fait que ni la chimie de l'iode, ni la dynamique des aérosols n'est représentée.

Les modèles de dépôt sec mis en œuvre ont été ceux proposés par Zhang *et al.* [2003, 2001]. Ces deux modèles adoptent les approches générales rappelées précédemment

et font donc apparaître une dépendance à la météorologie, aux propriétés physicochimique des polluants ainsi qu'aux surfaces de dépôt. Les simulations obtenues avec ces approches ont été comparées à celles réalisées avec des valeurs de vitesse de dépôt constantes, ceci correspondant à la pratique opérationnelle du modèle de crise de l'IRSN.

Diverses paramétrisations du lessivage humide ont également été considérées, à la fois pour le lessivage dans et sous les nuages : des paramétrisations simples ¹ ne variant qu'avec l'intensité de la pluie, I, et des paramétrisations reposant sur une explicitation de la microphysique [Slinn, 1977; Seinfeld et Pandis, 1998]. Ces dernières nécessitent une représentation de la distribution en taille, N(R), des gouttes de pluie (les autres formes de précipitations n'ont pas été prises en compte). Une attention particulière a été apportée à l'impact de cet aspect de la modélisation. Nous avons sélectionné des représentations monodisperses (choix d'un diamètre voulu représentatif) et polydisperses du spectre de gouttes de pluies qui avaient été identifiées comme majorante, intermédiaire et minorante pour les coefficients de lessivage [Duhanyan et Roustan, 2011].

Nous avons également intégré dans notre analyse des variations concernant d'autres aspects de la représentation comme l'origine et la résolution des champs météorologiques (réanalyses ERA-40 du Centre Européen pour les Prévisions Météorologiques à Moyen Terme et simulation du modèle "Weather Research and Forecasting" - WRF), la paramétrisation de la turbulence dans la couche limite atmosphérique et le terme source de l'accident. En considérant toutes les combinaisons possibles nous avons constitué un jeux de simulations qui ont été évaluées par comparaison aux observations de la base données REM du Joint Research Center de la commission Européenne (https://rem.jrc.ec.europa.eu/RemWeb/). Cela permet de situer la sensibilité des résultats au choix de paramétrisation pour les processus de dépôt par rapport à d'autres choix de modélisation possible. Les figures 1.2 et 1.3 proposent une vision globale des résultats pour les activités dans l'air et déposées liées au ¹³⁷Cs. Les "meilleurs" scores obtenus correspondent à ce que l'on peut attendre de ce type de modélisation sur le cas de l'accident de Chernobyl.

^{1.} paramétrisation de type $\lambda = a I^b$, a et b étant des constantes empiriques



FIGURE 1.2 – Dans chaque panneau, l'ensemble des simulations sont représentées par un point dont les coordonnées correspondent à des indicateurs statistiques globaux (corrélation de Pearson et erreur quadratique moyenne normalisée) classiquement choisis dans la littérature. La couleur attribuée à chaque point dans un panneau traduit l'option utilisée pour l'aspect de modélisation considéré dans ce panneau : p. ex. le panneau en haut à gauche fait ressortir les simulations ayant utilisé une vitesse de dépôt constante en bleu et celles ayant utilisé une vitesse de dépôt variable en rouge. Les "meilleures" simulations se situent en bas à droite des panneaux. Les scores sont calculés sur 1263 observations pour les activités dans l'air.



FIGURE 1.3 – Dans chaque panneau, l'ensemble des simulations sont représentées par un point dont les coordonnées correspondent à des indicateurs statistiques globaux (corrélation de Pearson et erreur quadratique moyenne normalisée) classiquement choisis dans la littérature. La couleur attribuée à chaque point dans un panneau traduit l'option utilisée pour l'aspect de modélisation considéré dans ce panneau : p. ex. le panneau en haut à gauche fait ressortir les simulations ayant utilisé une vitesse de dépôt constante en bleu et celles ayant utilisé une vitesse de dépôt variable en rouge. Les "meilleures" simulations se situent en bas à droite des panneaux. Les scores sont calculés sur 1478 observations pour les activités déposées.

Il ressort de façon générale de cette première étude, au-delà des moins bons scores constatés pour les dépôts totaux que pour l'activité dans l'air, qui s'expliquent ici en partie par des problèmes de représentativité spatiale, :

- Qu'il n'y a pas de simulation présentant simultanément des meilleurs scores sur les deux indicateurs statistiques utilisés. Ce constat sera renouvelé dans les études suivantes portant sur l'accident de Fukushima [Quérel *et al.*, 2015]. Cette analyse ne permet donc pas de recommander une configuration particulière.
- Le choix d'une paramétrisation ou d'une source de données n'améliore, ou ne dégrade, pas systématiquement les scores statistiques. Cela justifie a posteriori une analyse non "locale" qui considère l'ensemble des combinaisons de choix possibles.
- Les termes sources et les météorologies ségrèguent les concentrations dans l'air plus que les autres aspects de la modélisation considérés et notamment les paramétrisations des processus de dépôt.
- Les activités déposées restent très sensibles au choix de paramétrisation des processus de dépôt humide alors que la sensibilité à la paramétrisation du dépôt sec est moins marquée. Ce constat sera également renouvelé dans les études suivantes.

Sur des questions plus spécifiques nous avons également retenu que :

- Un choix de terme source qui apparaît assez systématiquement meilleur pour l'activité dans l'air ne l'est pas forcément pour l'activité déposée. Ce point est ici à relier à la thématique de la modélisation inverse et fera partie des motivations pour considérer les observations de dépôt dans ce type d'exercice [Winiarek *et al.*, 2014].
- L'utilisation d'une distribution en taille des gouttes d'eau pour l'application des paramétrisations microphysiques n'a pas conduit à des résultats sensiblement différents de ceux obtenus en utilisant un simple diamètre représentatif.

Une conclusion pratique de ces travaux a été la difficulté à exploiter la base de données d'observations de dépôt du JRC². Malheureusement l'accident de Fukushima a donné l'occasion de travailler par la suite sur des observations plus nombreuses et a priori plus robustes.

Cette première phase d'études s'est inscrite dans les travaux du projet MIDAR (programme LEFE-ASSIM de l'Institut national des sciences de l'Univers) et a donné lieu à des interactions avec les travaux de doctorat de Victor Winiarek (sous la direction de Marc Bocquet) sur le développement de méthodes de modélisation inverse. Une première modélisation inverse du terme source de l'accident de Fukushima utilisant simultanément des observations d'activité dans l'air et d'activité déposée a notamment pu être réalisée [Winiarek *et al.*, 2014]. Une des questions que cet exercice a naturellement soulevée, mais qui n'a pas pu être traitée à ce moment là, est la sensibilité du terme source inversé au choix de la paramétrisation du lessivage humide mise en œuvre.

Par la suite, les travaux réalisés dans le cadre du postdoctorat d'Arnaud Quérel (2013-2015), menés en collaboration avec Denis Quélo et Anne Mathieu à l'IRSN, nous ont permis de continuer à travailler sur la sensibilité des dépôts modélisés aux paramétrisations des coefficients de lessivage. Nous avons réalisé une première étude sur le cas de l'accident de Fukushima reposant sur la même approche que celle appliquée

^{2.} Cette base de donnée d'observation a été revisité depuis par Evangeliou et al. [2016].

précédemment [Quérel *et al.*, 2015]. Elle a été limitée au ¹³⁷Cs (sous forme particulaire) et à des observations d'activité déposée, mais une exploration plus large des paramétrisations de lessivage a été réalisée. Des modélisations sans lessivage dans le nuage ou sous le nuage ont également été considérées comme repère "négatif". Ces différents choix de paramétrisation ont de nouveau été croisés avec plusieurs termes sources. Un seul jeu de champs météorologiques issu de simulations du modèle WRF a par contre été considéré, à l'exception notable de l'intensité des précipitations qui constitue a priori une forte source d'incertitude pour les dépôts humides. La moitié des simulations ont utilisé un champs de précipitation issu de données radar ajustées sur des observations de pluviomètres [Saito *et al.*, 2015] au lieu de celui issu de la simulation WRF.

L'ensemble des simulations générées (1120) ont été comparées à des observations de dépôt cumulé dans le temps [MEXT, 2012]. Pour quantifier ces comparaisons, nous avons retenu trois indicateurs statistiques, la corrélation de Pearson, le facteur 2 et la "figure of merit in space" (FMS) calculée sur un seuil à 10 kBq m^{-2} . Il est notable que ces trois indicateurs fournissent des informations de nature assez différente. La corrélation de Pearson va renseigner sur la bonne représentation des variations spatiales, le facteur 2 sur celle de l'intensité de la contamination et la FMS sur l'identification d'une zone contaminée au-delà du seuil choisi. Ces trois indicateurs ont été sélectionnés pour représenter au mieux des préoccupations de gestion de crise.

Les indicateurs sur l'ensemble des simulations montrent une forte variabilité des scores en fonction des configurations (tableau 1.1). Cela pourrait ne pas être un problème si les meilleurs scores pour les différents indicateurs étaient obtenus pour les mêmes configurations. Ce n'est pas le cas. À titre d'illustration, la figure 1.4 montre les cartes de dépôt obtenues pour la configuration obtenant le meilleur score de FMS (59%) et la simulation obtenant la meilleure corrélation (92%). La première obtient un score de corrélation largement inférieur à la moyenne, la seconde un score de FMS inférieur à la moyenne. Plus généralement, il n'a pas été possible d'identifier de simulations ayant des scores homogènement "bons" sur l'ensemble du territoire simulé.

[Querel $et al., 2015$].								
		corrélation	facteur 2	FMS				
	moyenne	57%	36%	44%				
	écart-type	18%	7%	8%				

[34% - 92%]

min-max

[0%-60%]

[0%-59%]

TABLE 1.1 – Les indicateurs globaux (en ligne) sont établis sur l'ensemble des scores des trois différents indicateurs calculés (en colonne) pour les 1120 simulations retenues pour l'étude [Quérel *et al.*, 2015].



FIGURE 1.4 – Dépôts de ¹³⁷Cs (en kBq m⁻²) simulés par la configuration obtenant la meilleure FMS (à gauche) et la configuration obtenant la meilleure corrélation (à droite). Les observations [MEXT, 2012] sont données (au centre) à titre indicatif [Quérel *et al.*, 2015].

En plus des conclusions déjà évoquées, nous avons retenu de cette seconde phase d'analyse que :

- La représentation des deux principaux processus de lessivage apparaît nécessaire sur le cas de l'accident de Fukushima. L'absence de prise en compte de l'un d'eux conduit très majoritairement à de moins bons résultats statistiques.
- L'apport des représentations microphysiques pour le lessivage sous le nuage n'apparait pas probant avec l'ensemble des jeux de données considéré.
- L'utilisation de données de précipitation issues des observations radar ne permet pas d'améliorer systématiquement les scores statistiques.

Cette seconde phase d'analyse s'est prolongée après le recrutement d'Arnaud Quérel au sein de l'IRSN. Plusieurs questions spécifiques sur la représentation du lessivage ont ainsi pu ête abordées.

Le rôle des pluies faibles, d'intensité inférieure à 0.5 mm h^{-1} , a été investigué. Les observations de dose et d'activité dans l'air disponibles sur le site de Koriyama témoignent d'un évènement de dépôt dont l'intensité ne peut-être attribué au dépôt sec (ou occulte). C'est donc un évènement pluvieux. Il n'est pas détecté par les pluviomètres et donc non reproduit dans les données radar ajustées. L'impact des pluies faibles peut expliquer en partie pourquoi l'utilisation de ces observations n'améliore pas systématiquement les simulations.

Le diagnostic des nuages a également fait l'objet d'analyse. L'utilisation du rapport de mélange en eau nuageuse plutôt que l'humidité relative [Pudykiewicz, 1989] ou le contenu en eau liquide [Hertel *et al.*, 1995] apparaît intéressant. Le choix de cette variable entraîne une moindre sensibilité au choix arbitraire d'un seuil pour diagnostiquer la présence ou l'absence d'un nuage.

Les résultats de nos différentes études montrent que le choix du schéma de dépôt humide peut avoir un impact fort sur la carte de dépôt simulé. Les erreurs rémanentes dans les champs météorologiques et les termes source employés ne permettent pas d'identifier un schéma systématiquement meilleur que les autres pour les indicateurs considérés dans ces études. Ceci illustre la difficulté à utiliser le cas d'un accident pour évaluer la pertinence des schémas de dépôt humide.

La qualité des données disponibles dans le cadre de la gestion de futures crises

seront très probablement du même ordre que celles disponibles pour l'accident de Fukushima. Elles ne permettraient donc pas forcément de tirer pleinement parti d'un éventuel meilleur schéma de dépôt humide. Dans ce cadre, nous recommandons donc l'utilisation d'un panel de schémas qui seraient à intégrer dans une approche plus globale de modélisation d'ensemble.

1.2.2 Cas de polluants "chroniques"

Mercure

Une partie de mes recherches sur la modélisation des dépôts s'est faite dans le prolongement de mes travaux de doctorat portant sur les métaux lourds et la représentation de leur dispersion à l'échelle du continent européen. Pour ces polluants, les problématiques environnementales et sanitaires sont a priori plus liées aux flux de dépôt qu'aux concentrations dans l'atmosphère. Ils sont émis de façon continue et leur dépôt ne sont donc pas liés à une situation météorologique spécifique.

Les travaux de doctorat de Janusz Zyśk (co-tutelle Université Paris-Est - AGH Université de Cracovie) ont en partie porté sur la reprise du développement de ce modèle dédié aux métaux lourds (mercure, plomb et cadmium). Pour le mercure, une des difficultés réside dans la prise en compte de la chimie multiphasique qui partitionne la masse de mercure atmosphérique sous différentes formes. Chacune de ces formes ayant des temps de vie dans l'atmosphère bien distincts du fait de leur propriété physico-chimiques, une représentation de cette partition est nécessaire pour reproduire le comportement du mercure et en particulier ses flux de dépôts. En effet, le mercure se retrouve essentiellement sous forme gazeuse à l'état élémentaire dans l'atmosphère. Il est peu réactif et peu soluble ce qui lui confère une durée de vie de l'ordre de 1 an. Les formes oxydées gazeuses et particulaires sont beaucoup plus rapidement retirées de l'atmosphère par dépôt sec et humide. Les différentes cinétiques d'oxydo-réduction dans l'atmosphère pilotent donc en partie le stock de mercure "disponible" pour alimenter les flux de dépôt. Le schéma chimique développé pendant mon doctorat a été complété à cette occasion, notamment en incluant des réactions d'oxydation du mercure élémentaire par des composés bromés. Cependant, certains aspects de la chimie atmosphérique du mercure reste encore mal connus [Ariya et al., 2015].

Le cas d'étude ayant motivé la reprise de ces travaux, portant sur l'impact des émissions des centrales électriques à charbon en Pologne³ a donné lieu à la réalisation d'un ensemble de simulations aux échelles continentale et nationale sur l'année 2008. Nous avons pu comparer les résultats de ces simulations aux observations du réseau EMEP⁴ qui fournit des informations sur les concentrations dans l'air en mercure élémentaire et sur le mercure dissout dans les précipitations.

La comparaison aux concentrations de mercure élémentaire n'est pas très riche en enseignement, les niveaux simulés sont surtout pilotés par les conditions aux limites appliquées au bord du domaine de simulation. La comparaison aux flux de dépôt humide mensuel montre un comportement moyen satisfaisant $(0,785 \ \mu g \ m^{-2} \ mois^{-1} \ simulé$ pour 0,807 observé), mais l'ensemble des valeurs simulées est sous-dispersé (écart-type

^{3.} Certaines de ces centrales faisaient à l'époque partie du parc de centrales thermiques d'EDF.

^{4.} Programme Européen dans le cadre de la Convention sur la pollution atmosphérique transfrontière à longue distance

de 0,542 pour le valeurs simulées et de 0,856 pour les valeurs observées) avec les valeurs basses surestimées par le modèle et les valeurs fortes sous-estimées. Ce résultat s'explique en partie par les incertitudes liées aux données de précipitations qui impactent fortement les dépôts humides.



FIGURE 1.5 – Dépôts de mercure totaux simulés pour l'année 2008 (en g km⁻² an⁻¹) et diagramme de dispersion des dépôts humides mensuels (en g km⁻² mois⁻¹) d'après Zyśk *et al.* [2015].

Du fait des temps de calcul plus conséquents pour ce type de modélisation, qui explicite la chimie atmosphérique du mercure, nous n'avons pas envisagé de mettre en œuvre une analyse de sensibilité aussi "globale" que celle appliquée pour les radionucléides. Néanmoins, les différentes simulations réalisées ont mis en évidence d'importantes sensibilités des flux de dépôt humide au choix de paramétrisation pour le lessivage dans les nuages [Zyśk *et al.*, 2015, tableaux 5 et 6]. Ce processus a été regardé plus spécifiquement pour ses interactions prévisibles avec la production de formes oxydées via les réactions chimiques en phase aqueuse. Ces choix ont un impact comparable à celui de la chimie. Ces deux aspects de la modélisation, comportant des incertitudes importantes, ne peuvent être considérés séparément pour reproduire les flux de dépôt.

La linéarité du schéma chimique a permis de réaliser, par simulation successive, une analyse de la contribution des différentes "sources" : le secteur de l'énergie polonais, les autres sources anthropiques polonaises, les sources anthropiques européennes et les autres sources (anthropique mondiale, naturelle et réémissions) ont été séparées. Les résultats indiquent une prédominance de la dernière catégorie dans les dépôt totaux. Ceci s'explique par une forte contribution du mercure élémentaire au dépôt sec. Sa vitesse de dépôt est plus faible d'un ordre de grandeur que celle des formes oxydées, mais ses concentrations sont quant à elles supérieures d'un ou deux ordre de grandeur [Sprovieri *et al.*, 2010].

Il est à noter que pour ces travaux aucun couplage n'a été mis en œuvre entre l'atmosphère et le sol. Les vitesses de dépôt sont calculées selon le cadre théorique présenté au paragraphe 1.1.1 en appliquant les modèles de Zhang *et al.* [2001] et Zhang *et al.* [2009]. Les flux de réémissions donnés en entrée du modèle de chimie-transport sont ceux évalués et utilisés par le MSC-E pour ses travaux dans le cadre de la convention sur la pollution transfrontalière à longue distance et en particulier des activités du programme EMEP (http://www.msceast.org/).

Polluants Organiques Persistants

L'accompagnement des doctorats de Solen Quéguiner et Vincent Loizeau, en collaboration avec Luc Musson-Genon et Philippe Ciffroy (EDF R&D, LNHE⁵), a permis d'étendre la question des flux de dépôt à la représentation de flux d'échanges entre l'atmosphère et la surface. Ces travaux ont porté sur le développement et l'analyse d'un modèle "multi-milieux" pour représenter les concentrations dans l'atmosphère, dans les sols, la végétation et l'eau, à l'échelle continentale Européenne [Quéguiner *et al.*, 2010]. Le modèle résoud simultanément des équations de conservation pour les différents milieux et permet ainsi une évaluation plus cohérente des flux de réémissions vers l'atmosphère. Les transferts "horizontaux" sont néanmoins limités à l'atmosphère et le modèle néglige ainsi une part des processus qui peuvent conduire à la migration de ces substances (courants marins, écoulement fluvial, nappes phréatiques, etc...).

Diverses substances ont été considérées dans ces travaux : le benzo[a]pyrène (B[a]P, résidu de combustion), l'hexachlorobenzène (HCB, fongicide), un polychlorobiphényle (PCB28, isolant électrique peu inflammable) et le lindane (γ -HCH, pesticide). Bien que tous persistants, ces polluants ont des propriétés physico-chimiques assez différentes dans l'air et dans les sols. Ils permettent donc d'analyser des comportements biogéo-chimiques distincts. Les divers mécanismes chimiques et biologiques de dégradation de ces espèces ne sont pas tous bien identifiés et représentés simplement par des termes de dégradations linéaires. Leur partitionnement entre les phases gazeuse et particulaire est traité en supposant un équilibre entre celles-ci.

Les comparaisons aux observations des résultats de simulation de concentration dans l'air et dans les précipitations pour l'année 2001 (thèse de Solen Quéguiner) et de concentration dans l'air pour l'année 2010 (thèse de Vincent Loizeau) ont montré des résultats contrastés selon les sites et les polluants. À titre d'exemple, pour le B[a]P, les valeurs moyennes simulées dans l'air sont cohérentes avec les valeurs observées (resp. 200 et 180 pg m⁻³ en 2001, 96 et 65 pg m^{-3} en 2010) pour les deux années, avec des corrélations globales entre observation et simulation de 65% en 2001 et de 43% en 2010. Certaines stations montrent cependant de forts écarts aux mesures qui peuvent s'expliquer en partie par des problèmes de représentativité spatiale. En effet ces simulations sont réalisées avec des résolutions assez grossières ($1,125^{\circ} \times 1,125^{\circ}$ pour l'année 2001 et $0,5^{\circ} \times 0,5^{\circ}$ pour 2010) alors que certains sites sont, au vue de leur localisation, très probablement influencés par des panaches urbains. Mais les autres raisons possibles de ces écarts aux mesures sont nombreuses, notamment les incertitudes importantes sur les inventaires d'émissions.

Les travaux de thèse de Vincent Loizeau ont permis de développer plus en avant le modèle de sol, en introduisant notamment une discrétisation selon la verticale permettant de reproduire des profils observés de contamination. Une analyse de sensibilité des flux de réémissions aux paramètres du modèle de sol a confirmé l'intérêt d'un tel raffinement [Loizeau *et al.*, 2014]. Elle a également mis en avant l'importance des coefficients de partition (eau, air, matière organique) pour une période de contamination (concentration atmosphérique fixée) et des constantes de dégradation pour une période de remédiation (concentration atmosphérique nulle).

Cette nouvelle version du modèle de sol a également été couplée au modèle atmosphérique dans le cadre d'un modèle multi-milieux et une analyse des flux d'échanges

^{5.} Laboratoire national d'hydraulique et environnement

à l'échelle européenne a été réalisée. La figure 1.6 illustre l'importance relative des différents processus de dépôt en regard des flux d'échanges gazeux (réémissions moins dépôt). Seul le B[a]P présente un flux de dépôt gazeux, les autres composés donnent lieu à des réémissions. Ces réémissions restent en moyenne inférieures à l'ensemble des dépôts, excepté pour le γ -HCH en période estivale.



FIGURE 1.6 – Évolution au cours de l'année 2010 des flux moyens sur le domaine de simulation pour les différentes substances considérées (en $g \text{ km}^{-2} \text{ s}^{-1}$). Les courbes bleues en trait plein correspondent à des réémissions de la surface vers l'atmosphère, toutes les autres correspondent à des dépôt (thèse de Vincent Loizeau, p. 144).

Par manque d'observations l'évaluation de la représentativité quantitative de ce type de modélisation reste limitée. Les différentes analyses réalisées ont néanmoins mis en évidence un comportement qualitatif correspondant aux attendus pour les polluants représentés (migration des zones chaudes vers les zones froides notamment) et attesté l'intérêt d'approches couplées avec des modèles de sol à plusieurs couches pour les POPs volatils (cf. figure 1.7).

Section 1.3 – Développement d'une nouvelle approche pour le dépôt sec en milieu urbain



FIGURE 1.7 – Évolution au cours de l'année 2010 des concentrations atmosphérique moyennes sur le domaine de simulation pour les différentes substances considérées, en l'absence de réémissions (courbes vertes), avec un modèle de sol à une couche (courbes rouges) et à 20 couches (courbes bleues) (thèse de Vincent Loizeau, p. 138).

1.3 Développement d'une nouvelle approche pour le dépôt sec en milieu urbain

L'évaluation des flux de dépôts est également pertinent à des échelles plus locales, notamment pour quantifier la contribution des apports atmosphériques à la contamination des eaux en milieu urbain. Nous avons pu aborder ce sujet dans le cadre de collaborations s'inscrivant dans le programme de l'Observatoire des Polluants URbains (OPUR) piloté par Ghassan Chebbo et Marie-Christine GROMAIRE (ENPC, LEESU⁶), et concrétisée à travers les projets de l'Agence Nationale de la Recherche (ANR) INOGEV et Trafipollu.

Le projet INOGEV, coordonné par Véronique Ruban (IFSTTAR⁷), fidèle à son titre⁸, avait pour but de contribuer à l'étude et la maîtrise des pollutions des eaux pluviales en milieux urbain. L'objectif de notre contribution était de quantifier des flux de micropolluants provenants de l'atmosphère dans un bassin versant urbain et d'identifier l'origine locale, nationale ou transfrontière de ces dépôts.

Le projet TRAFIPOLLU⁹, coordonné par Ludovic Leclercq (IFSTTAR), visait le développement d'outils de modélisation permettant de suivre les polluants générés par le trafic routier en milieu urbain des émissions jusqu'à la pollution des sols.

Les travaux de doctorat de Nicolas Chérin ont permis de développer une nouvelle

^{6.} Laboratoire Eau Environnement et Systèmes Urbains

^{7.} L'Institut français des sciences et technologies des transports, de l'aménagement et des réseaux

^{8.} Innovation pour une gestion durable de l'eau en ville : Connaissance et maîtrise de la pollution des eaux pluviales urbaines

^{9.} Modélisation multiéchelle de la pollution due au trafic dans un environnement urbain

paramétrisation pour les vitesses de dépôt sec en milieu urbain qui est présentée dans le paragraphe ci-dessous. Ce modèle a été appliqué par la suite pour évaluer les concentrations et les dépôts de polluants particulaires (métaux et HAP) pour différentes villes en France dans les travaux de doctorat de Nicolas Chérin et de Laëtitia Thouron.

1.3.1 Évolution de la formulation

Depuis quelques années, un certain nombre de modèles de canopée urbaine ont été développés afin de représenter l'influence des éléments du bâti sur les forces de traînée, les flux de chaleur et le bilan radiatif. Les modèles de canopée urbaine sont basés sur une géométrie relativement simple, mais appropriée, pour représenter les principales caractéristiques dynamiques et thermiques du milieu urbain. Nous avons étendu ce type d'approche au dépôt des polluants en exploitant le concept de "rue-canyon". L'objectif a été de dériver une nouvelle paramétrisation de la résistance aérodynamique (R_a) , qui quantifie le rôle du transfert turbulent entre l'atmosphère et la surface, adaptée au milieu urbain. Un intérêt de cette nouvelle paramétrisation du transfert turbulent réside dans le fait qu'elle permet d'expliciter différentes surface de dépôt (toit, mur, chaussée) pouvant présenter des caractéristiques locales vis à vis des processus de capture sensiblement différentes.

La dérivation classique de l'expression de la résistance aérodynamique pour des surfaces fortement hétérogènes (comportant une multitude d'obstacles de taille importante) s'appuie sur le cadre théorique de la "couche à flux constant" introduite en météorologie pour les flux de quantité de mouvement, de chaleur et de vapeur d'eau.

L'utilisation d'un profil vertical de vent moyen, u(z), qui est logarithmique

$$u(z) = \frac{u_*}{\kappa} \ln\left(\frac{z-d}{z_0}\right) \tag{1.9}$$

et d'une longueur de mélange, l_m , proportionnelle à la distance à la paroi

$$l_m = \kappa z \tag{1.10}$$

conduit à :

$$R_a(z) = \frac{1}{\kappa \ u_*} \ln\left(\frac{z-d}{z_0}\right) \tag{1.11}$$

où

- z_0 et d sont respectivement les hauteurs de rugosité dynamique et de déplacement (en m), des paramètres liés à la surface considérée et à ses aspérités (typiquement les bâtiments pour le milieu urbain).
- κ est la constante de von Kármán (~0,4) qui dimensionne la longueur de mélange de l'écoulement turbulent.
- u_* la vitesse de friction (en m s⁻¹) qui est déterminée par le vent moyen et les hauteurs de rugosité dynamique et de déplacement.

Dans ce cadre théorique, le vent moyen horizontal et la résistance aérodynamique s'annulent à la hauteur $z_0 + d$, qui est de l'ordre de grandeur des bâtiments. Ce simple constat rappelle que cette formulation considère la surface, même fortement hétérogène, comme une zone homogène. Elle n'a pas vocation à expliciter le transfert turbulent en proximité des obstacles qui génèrent la sous-couche rugueuse de l'écoulement. Le principe de la paramétrisation proposée dans Cherin *et al.* [2015] est de repousser la zone considérée comme homogène jusqu'à la proximité des paroies. Pour ce faire, on s'appuie sur l'utilisation de profils verticaux de vent dans la canopée, u(z), de forme exponentielle, proposés par Lemonsu *et al.* [2004] :

$$u(z) = \xi u(h) \exp\left(\beta \left(\frac{z}{h} - 1\right)\right)$$
(1.12)

et d'une longueur de mélange, l_m , ici exprimée comme la moyenne harmonique de la longueur de mélange de Prandtl et d'une longueur de mélange représentative de l'effet local des bâtiments, l_c , telle que proposée par Coceal et Belcher [2004] :

$$\frac{1}{l_m} = \frac{1}{\kappa z} + \frac{1}{l_c} \tag{1.13}$$

où

- h est la hauteur moyenne des bâtiments (en m) dans la zone considérée.
- ξ et β sont des coefficients dépendants des hauteurs et largeurs moyennes des rue-canyons considérées.
- l_c est exprimée de manière à assurer la continuité entre le régime "rugueux" classique au-dessus de la canopée et la nouvelle paramétrisation dans la canopée. Elle dépend de h et d.

On peut alors distinguer plusieurs chemins de dépôts pour les toits, les murs et le fond de la rue (cf. figure 1.8).





Cette nouvelle paramétrisation de la résistance aérodynamiqe est a priori applicable aussi bien aux polluants gazeux que particulaires. L'absence de campagne de mesures spécifiquement dédiée à cette partie du processus de dépôt sec n'a pas permis jusqu'à présent une évaluation directe. La comparaison aux résultats de l'approche classique montre que les flux globaux restent du même ordre de grandeur. La formulation explicite la distinction entre les différentes surfaces de dépôt et peut virtuellement être étendue dans le cadre d'un modèle multi-milieux urbain. Néanmoins, elle suppose également implicitement l'absence de sources dans l'espace du canyon ce qui restreint en partie sa pertinence pour des applications concernant des source de pollutions locales, comme le trafic routier. Un cadre de modélisation multiéchelle (cf. chapitre 3) apparaît plus pertinent dans ce cas.

1.3.2 Applications aux métaux et HAP

Le projet INOGEV a permis de travailler sur plusieurs villes en France : Nantes, Paris et Lyon. Dans ce cadre, des simulations ont été réalisées à plusieurs échelles, de continentales à régionales, pour évaluer les flux de dépôt de plomb et de cadmium dans ces villes. Ces métaux sont essentiellement portés par la phase particulaire atmosphérique et associés pour la modélisation à différents diamètres représentatifs. La dynamique des aérosols n'est cependant pas prise en compte dans ces simulations.

La comparaison des résultats de simulation à l'échelle européenne à des observations mensuelles du réseau EMEP sur une période de 13 mois (septembre 2010 à septembre 2011) indique une sous-estimation des concentrations dans l'air pour les deux métaux (38% pour le Cd et 35% pour le plomb) et une sous-estimation plus forte pour les dépôts humides (70% pour le Cd et 56% pour le plomb). Les écarts entre modèle et mesures sur les précipitations ne semblent pas pouvoir justifier à eux seuls de telles différences sur les flux humides. Le même constat est réalisé sur la ville de Nantes qui présente des niveaux de concentrations et de flux de dépôt humides observés¹⁰ comparables à ceux des sites du réseau EMEP. À nouveau plusieurs facteurs peuvent générer ce biais, dont une sous-estimation des émissions et/ou une surestimation des dépôts secs. Nous n'avons pu affiner le diagnostic sur la base des observations disponibles.

La linéarité des concentrations et des flux de dépôt par rapport aux émissions a été mise à profit pour évaluer les contributions des émissions régionales, nationales et européennes. Les résultats de cette analyse ont montré que les dépôts simulés sont dominés par la contribution "locale" (imputable aux émissions comprises dans une zone d'environ $50 \text{ km} \times 50 \text{ km}$ autour des villes considérées) à 60% pour le Cd et à 80% pour le plomb. Les dépôts sec et humide sont comparables en amplitude, mais la contribution des sources distantes dans les flux humides est plus importante que dans les flux secs. Ce caractère est plus marqué pour les dépôts humides de Cd, pour lesquels la contribution des sources distantes est supérieure à 30%. Ce résultat de simulation est cohérent avec les poids relatifs de la France et des pays limitrophes dans les inventaires continentaux pour le plomb et le cadmium. La France émet moins de ces polluants par rapport à ces pays et/ou de façon plus diffuse. Ceci explique également la faible contribution "nationale" (correspondant ici aux émissions en France au-delà de 50 km) par rapport à la contribution européenne que met en évidence la figure 1.9.

Le projet TRAFIPOLLU s'est concentré sur une zone urbaine dans l'Est de la région Parisienne, à Le Perreux-sur-Marne. Des simulations ont été réalisées à plusieurs échelles, de continentales à régionales, pour évaluer les flux de dépôt de zinc (Zn), cuivre (Cu) et de différents HAP, le B[a]P, le benzo[b]fluoranthène (B[b]F) et

^{10.} Campagnes d'observation réalisées dans le cadre du projet INOGEV par l'IFSTTAR

Section 1.3 – Développement d'une nouvelle approche pour le dépôt sec en milieu urbain



FIGURE 1.9 – Évolution des flux de dépôts mensuels de Pb à Nantes.

l'indéno[1,2,3-cd]pyrène (IP). Ces polluants sont également essentiellement portés par la phase particulaire. Ils se distinguent néanmoins par leur répartition dans la distribution en taille des particules atmosphériques. Les HAP sont essentiellement des résidus de combustion associés aux particules les plus fines. Le Cu est lui majoritairement émis par l'abrasion des plaquettes de frein et par conséquent surtout présent dans des particules au-delà du µm. Le Zn occupe une place intermédiaire en étant plus homogènement réparti sur le spectre de taille. Ces travaux ont donné l'occasion d'analyser l'impact de la distribution en taille sur les flux de dépôt pour les surfaces différentiables à travers la nouvelle paramétrisation de résistance aérodynamique [Thouron *et al.*, 2017]. Comme précédemment, les simulations ont été réalisées sans prendre en compte la dynamique des aérosols.

En détaillant les vitesses moyennes de dépôt sec en fonction des surfaces urbaines et des classes de taille, on retrouve l'évolution, en fonction de la taille des particules, de l'importance des processus microphysiques et leur combinaison selon les différents chemins explicités par la paramétrisation.

Pour les particules les plus fines, l'efficacité de la diffusion brownienne entraîne une faible résistance de surface. Les vitesses de dépôt sont par conséquent surtout sensibles aux résistances aérodynamiques. Cela explique un dépôt majoritairement sur les toits, favorisé par un moindre parcours qui implique une résistance aérodynamique plus faible que pour les autres surfaces. Les différences entre les murs et les routes s'expliquent par les écarts de rugosité locale. Elles sont plus importantes pour la route, ce qui induit des résistances aérodynamique (et de surface) plus faibles que pour les murs.

Les vitesses de dépôt sont homogènes entre les surfaces urbaines pour des tailles de particules comprises entre 0,15 et 2,5 µm. Pour cette gamme de taille, la diffusion brownienne est limitée. La vitesse est donc surtout sensible aux résistances de surface et plus particulièrement aux processus d'interception et d'impaction qui n'apparaissent pas différenciants pour les différentes surfaces.

Lorsque les particules sont plus grossières, celles-ci sont davantage sujettes à la sédimentation et donc à un processus gravitationnel vertical qui influence le dépôt sur les toits et sur la route, et beaucoup moins le dépôt sur les murs.

TABLE 1.2 – Vitesse de dépôt moyennes en fonction des surfaces urbaines [Thouron *et al.*, 2017, tableau 3].

classe de taille	vitesse de dépôt $(m s^{-1})$				
$({\rm diam} \grave{\rm e} {\rm tre} \ {\rm en} \ \mu {\rm m})$	Toits	Routes	Murs		
0,01 - 0,04	$3,\!4 \times 10^{-3}$	$7,7{ imes}10^{-4}$	$4,6 \times 10^{-4}$		
$0,\!04-0,\!15$	$1,\!1\! imes\!10^{-3}$	$6,0{ imes}10^{-4}$	$4,2 \times 10^{-4}$		
$0,\!15-0,\!625$	$3,\!8{ imes}10^{-4}$	$3,9{\times}10^{-4}$	$3,2 \times 10^{-4}$		
$0,\!625-2,\!5$	$1,8 \times 10^{-4}$	$2,5 \times 10^{-4}$	$1,9{ imes}10^{-4}$		
2,5-10	$7,\!1\! imes\!10^{-4}$	$8,1 \times 10^{-4}$	$8,7{ imes}10^{-5}$		
10 - 40	$1{,}1{\times}10^{-2}$	$8,\!7{ imes}10^{-3}$	$3{,}4{\times}10^{-4}$		

Les résultats de simulation montrent que les dépôts secs sur les routes ou les murs sont significatifs dans les zones ouvertes. Dans les zones denses, ils sont moins importants que ceux au niveau des toits. Ce résultat est à questionner au regard du problème de "dilution numérique" des émissions inhérent à l'utilisation d'un modèle eulérien. Dans le cas d'une considération des sources à l'échelle de la rue, les rues-canyons sont au contraire sujettes au confinement et à l'accumulation des polluants, donc à des flux de dépôt plus importants. On touche ici la limite évoquée précédemment de la paramétrisation proposée qui est surtout pertinente pour des pollutions par des sources extérieures à la canopée urbaine considérée (ou des rues peu circulées). Cette limite sur l'évaluation des flux de dépôts est une des motivations incitant à travailler sur des représentations multiéchelle (cf. chapitre 3.2).

Chapitre 2

Analyse de stratégies de réduction des émissions

Une des applications traditionnellement attendues des modèles de qualité de l'air est leur mise en œuvre dans le cadre d'études prospectives. Je présente dans ce chapitre différents travaux concernant l'évaluation de stratégies de réduction des émissions de polluants et/ou de précurseurs auxquels j'ai participé. Ces études ont reposé en pratique sur l'exploitation du modèle eulérien de chimie-transport de la plateforme Polyphemus dans sa version "multiphasique" permettant de représenter les polluants gazeux et particulaires "classiques" [Mallet *et al.*, 2007; Sartelet *et al.*, 2007; Roustan *et al.*, 2010].

2.1 Contribution du trafic routier à la pollution en Ile-de-France

Le trafic routier constitue l'une des sources anthropiques majeures pour de nombreux polluants, en particulier les NOx et les particules. Son impact est particulièrement visible en milieu urbain dense et, depuis plusieurs décennies, les pouvoir publics élaborent des normes pour contraindre ces émissions. Si leur efficacité a priori peut-être évaluée par modélisation en se basant sur des projections, leur efficacité a posteriori reste à vérifier à travers notamment les données des réseaux de surveillance de la qualité de l'air.

En Île-de-France, l'analyse de l'évolution, entre 1996 et 2009, des concentrations mesurées par Airparif d'oxydes d'azote, NO_x et NO_2 , montrait une diminution des premières, mais une stagnation des secondes. Une première analyse sur le rôle des émissions du trafic routier dans la pollution atmosphérique a été initiée dans le cadre du projet d'ingénieur en laboratoire de Marie Pausader au CEREA. L'objectif était d'investiguer les causes de ce comportement différencié. Cette étude, décrite dans Roustan *et al.* [2011a], a succité l'intérêt de l'ADEME qui a par la suite solicité le CEREA pour mener une analyse de l'impact d'une zone à faible émission ¹ en Île-de-France (cf. paragraphe 2.1.2).

2.1.1 Impact des technologies de réduction des émissions

L'objectif de la première étude évoquée ci-dessus était d'apporter des éléments de réponse sur le rôle respectif de déterminants qui pilotent les concentrations de NO_2 : les

^{1.} Ce type d'action était alors appelé ZAPA, pour zone d'action prioritaire pour l'air.

émissions de NO_x , leur spéciation à l'émission et la chimie atmosphérique. La baisse des émissions de NO_x en milieu urbain dense conduit généralement à une augmentation des concentrations en ozone (O₃). La formation de NO₂ secondaire reste néanmoins limitée par ces dernières. Cela induit une production secondaire en augmentation. Simultanément la répartition des NO_x à l'émission entre NO et NO_2 est influencée en faveur du NO_2 par différentes technologies mises en œuvre sur les véhicules pour réduire les émissions à l'échappement [Kousoulidou *et al.*, 2008, notamment les filtres à particules].

Les simulations pour cette étude ont été réalisées à l'échelle régionale sur l'Île-de-France avec une résolution de 5 km×5 km. Elles ont reposé sur un cadastre d'émission réalisé par Airparif² pour l'année 2000 (cadastre Airparif 2000, v.2004). Les émissions du trafic étaient détaillées par classe de véhicules et type de carburant. Cela a permis de réaliser deux séries de projections sur différentes années, de 2005 à 2020 : l'une intègrant l'évolution des spéciations en s'appuyant sur les projections proposées par Kousoulidou *et al.* [2008] ; l'autre conservant la spéciation de référence de l'année 2000. Ces deux séries de scénario présentaient donc une tendance commune pour les émissions de NO_x qui était également celle du NO₂ dans la deuxième. L'évolution de la spéciation pour le NO₂ étant plus rapide que la décroissance des émissions de NO_x, la série de référence exhibait un pic d'émissions de NO₂ pour l'année 2010. L'ensemble des autres données d'entrée ont été maintenues constantes.

Le rôle de la chimie a pu être évalué de façon indirecte (et partielle) en comparant les résultats de simulations utilisant ces deux séries de scénarios. L'évolution de la spéciation conduit à un accroissement des concentrations de NO₂ dans le centre de la région Parisienne (~ Paris et la petite couronne), mais pas dans le reste de l'Île-de-France pour l'année 2010. La comparaison au scénario sans évolution de la spéciation montre que la chimie atmosphérique seule ne suffit pas à générer un pic, ni même une stagnation, des concentrations de NO₂. Dans les deux cas, la baisse globale des NO_x finit par entraîner des diminutions significatives des concentrations de NO₂ au-delà de 2010.



FIGURE 2.1 – Évolution de la moyenne annuelle des concentrations maximales journalières de NO₂ (en μ g m⁻³) entre 2010 et 2005 (gauche) et 2020 et 2005 (droite), Roustan *et al.* [2011a].

Les concentrations de particules et d'ozone ont également été considérées dans cette

^{2.} l'Association Agréée de Surveillance de la Qualité de l'Air pour la région Île-de-France

étude. Pour les particules, la baisse des concentrations est sensible, mais reste bien inférieure à la baisse relative des émissions. Ce résultat est cohérent avec la forte proportion de particules secondaires et la contribution importante des conditions aux limites sur un domaine régional. Pour l'ozone, comme attendu suite à de fortes réductions des émissions de NO_x et des baisses plus restreintes des émissions de COVNM³, les concentrations augmentent dans le centre de la zone urbaine. Cette hausse conduit à des niveaux potentiellement dommageables dans la ceinture entre les départements de la petite couronne et les quatre départements de la grande couronne.

TABLE 2.1 – Évolution d'indicateurs réglementaires pour les concentrations d'O₃, de NO₂, de PM_{2.5} et de PM₁₀. Les valeurs citées correspondent au maximum constaté sur l'ensemble des stations d'observation ayant servi à l'évaluation de la simulation de référence Roustan *et al.* [2011a].

	indicateur	valeur	2005	2010	2020	
		$(\text{en } \mu \text{g } \text{m}^{-3})$	$n \mu g m^{-3}$) 2000			
O_3	26^e plus haute concentration sur 8h	120	108	109(+1%)	110(+2%)	
NO_2	concentration annuelle	40	39,5	39,7(+0,5%)	29,7(-25%)	
	19^e plus haute concen-	200	107	131(+22%)	101(-5%)	
	tration horaire					
$\mathrm{PM}_{2.5}$	concentration annuelle	20	$22,\!8$	21,3(-7%)	19,4(-15%)	
PM_{10}	concentration annuelle	30	26,7	25,1(-6%)	23,2(-13%)	
	36^e plus haute concen-	50	$41,\!3$	39,2(-5%)	37,1(-10%)	
	tration journalière					

Les résultats de cette étude sont à considérer en gardant à l'esprit l'absence de modifications des émissions, pour les autres secteurs anthropiques, et en dehors de la région Île-de-France. Les relations entre émissions et concentrations étant non-linéaire le choix de ne pas avoir fait évoluer ces autres émissions limite la valeur "prospective" globale de l'étude, en particulier pour l'ozone et les particules. Le but était bien ici d'évaluer l'importance relative des deux mécanismes identifiés a priori comme pouvant concourir à une stagnation des concentrations de NO₂.

2.1.2 Potentiel d'une zone à faible émission

Les lacunes de l'analyse précédente ont pu être en partie paliées dans le cadre d'une analyse de l'impact d'une "ZAPA" sur l'Île-de-France réalisée pour l'ADEME [Roustan *et al.*, 2011b]. Le non respect en Île-de-France de la valeur limite dans l'air ambiant pour les concentrations annuelles de NO₂ fixée par la directive européenne 2008/50/CE incitait à explorer et quantifier l'effet de mesures additionnelles, telle qu'une ZAPA, prévues pour réduire les émissions du trafic automobile dans l'agglomération parisienne. La zone envisagée correspondait à l'intérieur du prérimètre de l'A86.

Cette deuxième étude, réalisée avec Christian Seigneur et Karine Sartelet, a repris une partie du cadre défini précédemment, mais les émissions des autres secteurs

^{3.} Composés organiques volatils non méthaniques

anthropiques en Ile-de-France ont été projetés sur la base de travaux du CITEPA⁴ [Allemand *et al.*, 2011]. Un scénario "au fil de l'eau" est ainsi constitué et comparé à différentes stratégies de mise en place de la zone à circulation restreinte qui s'imposerait à différentes catégories de véhicules :

- ZAPA1 : exclusion des poids lourds (PL) mis en circulation avant le 30/09/2001.
- ZAPA2 : exclusion des mêmes PL ainsi que des véhicules utilitaires légers (VUL) mis en circulation avant le 30/09/1997.
- ZAPA3 : exclusion des mêmes PL et VUL ainsi que des véhicules particuliers essence mis en circulation avant le 31/12/1996.

Les résultats ont été présentés pour une année de référence, 2010, et deux années futures, 2015 et 2020.

TABLE 2.2 – Évolution et répartition des émissions de NO_x et de NO_2 (en kt eq. NO_2 an⁻¹) pour le scénario "au fil de l'eau" et les différents scénarios ZAPA [Roustan *et al.*, 2011b, tableau 2].

		-							
	2010		2015			2020			
	Ref.	Ref.	ZAPA1	ZAPA2	ZAPA3	Ref.	ZAPA1	ZAPA2	ZAPA3
$\overline{\mathrm{NO}_x}$	72,3	61,6	$57,\!9$	$57,\! 6$	$57,\!6$	50,7	45,8	45,8	45,8
trafic	41,9	32,0	$_{30,2}$	29,9	$29,\!9$	21,7	21,1	21,0	$21,\!0$
autre	$_{30,5}$	29,5	27,7	27,7	27,7	29,0	$24,\!8$	24,8	$24,\!8$
NO_2	$13,\!5$	$13,\!8$	$13,\!5$	$13,\!5$	$13,\! 6$	$11,\!5$	$11,\!0$	$11,\!0$	$11,\!0$
trafic	10,7	11,1	$10,\!9$	11,0	$11,\!0$	8,81	8,74	8,74	8,75
autre	$2,\!81$	2,71	2,55	2,55	2,55	$2,\!67$	$2,\!28$	$2,\!28$	2,28



FIGURE 2.2 – Évolution et répartition par type de véhicules des émissions de NO_x et de NO_2 (en kt eq. NO_2 an⁻¹) pour le trafic routier dans le cadre du scénario "fil de l'eau" [Roustan *et al.*, 2011b].

Comme dans la première étude, l'évolution de la spéciation des NO_x à l'émission conduit a un pic d'émissions de NO_2 sur l'Île-de-France malgré la baisse globale des émissions de NO_x . Les émissions de NO_2 sont largement dominées par les véhicules diesel (cf. figure 2.2). Ce pic est peu atténué par les mesures de restriction de circulation qui s'appliquent à l'intérieur du périmètre de l'A86 (cf. tableau 2.2). Il est

^{4.} Centre Interprofessionnel Technique d'Études de la Pollution Atmosphérique

intéressant de noter que les deuxième et troisième scénarios envisagés, visant des véhicules anciens, mais remplacés en partie par des véhicules diesel récents, apparaîssent légèrement contre-productifs.

Malgré l'augmentation des émissions de NO_2 dans le domaine simulé entre 2010 et 2015, les simulations régionales montrent une baisse globale des concentrations annuelles moyennes. La réduction des émission de NO_x induit une baisse de la production de NO_2 secondaire plus forte que l'augmentation du NO_2 primaire. Par contre le nombre de pics au-delà du seuil de 200 µg m⁻³ apparaît à certains endroits en augmentation.

Dans le cadre de cette étude nous avons également mis en œuvre une paramétrisation empirique proposée par Hueglin *et al.* [2010] permettant d'évaluer l'évolution des concentrations en proximité du trafic. Cette paramétrisation décompose les concentrations en proximité du trafic en trois contributions : une du fond, une locale primaire et une locale secondaire. Elle repose sur l'utilisation conjointe d'observation de stations en proximité du trafic et de stations représentatives du fond urbain.

$$[NO_2]_{prox.} = [NO_2]_{fond} + [NO_2]_{loc., prim.} + [NO_2]_{loc., sec.}$$
(2.1)

Avec

- $[NO_2]_{prox.}$ et $[NO_2]_{fond}$ provenant directement des sites d'observations du réseau d'Airparif.
- [NO₂]_{loc., sec.} est déduit des concentrations de fond d'ozone sous l'hypothèse de concentrations d'ozone de proximité négligeables et que l'ozone est le réactif limitant pour la production de NO₂.
- [NO₂]_{loc., prim.} est alors obtenu à partir de la différence entre [NO_x]_{prox.} et [NO_x]_{fond} et d'une régression linéaire permettant de faire ressortir un coefficient de spéciation à l'émission.

Cette paramétrisation, appliquée sur les années 2005 et 2010 pour des jeux de données d'observation "complets", a permis d'évaluer la spéciation à l'émission sur une base indépendante des données de Kousoulidou *et al.* [2008]. Ces estimations ont également été comparées à celles réalisées par Airparif dans le cadre d'autres travaux. L'ensemble apparaît cohérent pour les années 2005 et 2010. Pour l'année 2020, le ratio évalué par Airparif (0,388) est un peu plus élevé que celui dérivé des projections de Kousoulidou *et al.* [2008] (0,307). L'évolution de ce ratio ralenti la décroissance des concentrations de NO₂, en particulier pour les valeurs de pic.

Les résultats de cette étude indiquaient que la mise en place des mesures de type zone à faible émission pourrait avoir un effet visible sur les concentrations de NO_2 entre 2010 et 2015, d'amplitude comparable a l'effet attendu dans le cadre d'un scénario "au fil de l'eau", essentiellement lié au renouvellement du parc roulant. Cet effet resterait visible en 2020 mais s'amenuiserait si les conditions d'accès à la ZAPA n'évoluent pas.

L'évolution des concentrations de NO_2 induite par la mise en place de ces mesures ne semblait cependant pas suffire à atteindre les objectifs de qualité de l'air du NO_2 pour les sites les plus exposés au trafic. Éviter l'utilisation de filtres à particules catalysés en extrémité de chaîne de traitement des gaz d'échappement conduirait à améliorer notablement la situation pour le NO_2 .

La mise en œuvre de la paraméterisation pour évaluer les concentrations en proximité du trafic dans cette étude a constitué une première tentative simple d'affiner la représentativité spatiale d'une modélisation "régionale", mais sa dépendance à des observations limite a priori sa porté spatiale.

2.2 Réduction multi-sectorielle des émissions

Les études présentées précédemment étaient centrées sur le NO_2 en Île-de-France et se sont focalisées sur l'impact des émissions du trafic. Dans les paragraphes qui suivent j'évoque deux études portant sur des réductions plus "globales" des émissions. La première a été réalisée pour l'ADEME également, en collaboration avec Isabelle Coll (LISA), dans le cadre de l'exercice de prospective énergétique "Vision 2030 - 2050". Cette étude a profité de contributions d'Arthur Elessa, Aurélie Quémener et Guillaume Siour au LISA et de Sylvain Doré et Nicolas Yan au CEREA. La seconde correspond à la participation à une phase des intercomparaisons Eurodelta coordonnée par Augustin Colette (INERIS) qui a impliqué la participation de plusieurs équipes européennes de modélisateurs.

2.2.1 Analyse d'un scénario de prospective énergétique

La conception du scénario de prospective énergétique de l'ADEME répondait à des objectifs de réduction de la dépendance énergétique de la France et de réduction des émissions de gaz à effet de serre. L'ADEME a jugé important de vérifier qu'il était également en adéquation avec les objectifs de qualité de l'air [Roustan et Coll, 2015].

Pour évaluer et analyser l'impact de ce scénario trois jeux de données d'émissions ont été considérés :

- Le premier correspondait à une année récente (2009) qui permettait d'évaluer l'implémentation des deux modèles considérés pour l'étude à travers une comparaison aux observations disponibles et de servir de référence "temps présent" pour l'analyse du scénario.
- Le deuxième jeu se basait sur des données d'émissions projetées pour l'année 2030 selon un scénario "fil de l'eau" (scénario "Avec Mesure Existante" - AME du CITEPA). Ce jeu servait de référence "temps futur".
- Le troisième jeu exploitait des données d'émissions projetées pour l'année 2030 selon le scénario énergétique "Vision 2030 - 2050" de l'ADEME.

Suite à la représentation des mesures du scénario de l'ADEME en termes de réduction des émissions de polluants atmosphériques pour la France⁵, nous avons déterminé des cadastres "projetés" pour la France et trois régions urbaines (Nantes, Paris et Strasbourg) en exploitant ceux mis à disposition par Air Pays de la Loire, Airparif, l'ASPA⁶ et le cadastre européen élaboré dans le cadre du programme EMEP.

Cette projection a été réalisée en trois étapes :

- À partir des inventaires nationaux du CITEPA, un ratio d'évolution entre les émissions futures et les émissions présentes (2008 ou 2009) est déterminé pour chaque secteur d'activité de la nomenclature utilisée par le CITEPA.
- Les nomenclatures des différents cadastres et des inventaires n'étant pas complètement identiques, une transposition est réalisée pour allouer au mieux un

^{5.} Travaux réalisés en parallèle par le CITEPA.

^{6.} Association Agréées de Surveillance de la Qualité de l'Air devenue ATMO Grand Est

ratio d'évolution correspondant aux secteurs d'activités des nomenclatures des cadastres.

 Enfin les ratios d'évolution sont appliqués aux données d'émissions des cadastres du jeu de référence "temps présent" pour générer les cadastres futurs.

Cette méthode de projection des cadastres fait l'hypothèse implicite que la trame spatiale pour un secteur d'activité donné n'est pas modifiée entre le temps présent et les scénarios futurs. De plus, les ratios appliqués traduisent des évolutions projetées à l'échelle nationale et peuvent différer de ratios qui auraient été dérivés d'inventaires intégrant les éventuelles spécificités régionales pour un secteur d'activité donné. Néanmoins, le fait que ces ratios soient évalués par secteur d'activité permet de prendre en compte une partie des spécificités régionales qui se traduisent à travers des différences dans les contributions relatives de chaque secteur aux émissions totales. Ainsi l'évolution des émissions dans chaque région diffère de l'évolution des émissions à l'échelle nationale.

Deux modèles de qualité de l'air (Chimère et Polyphemus) ont été mis en œuvre pour évaluer l'impact sur la qualité de l'air à l'horizon 2030 de l'ensemble des mesures proposées dans ce scénario prospectif. Des simulations des niveaux de concentration atmosphérique ont pu être réalisées à différentes échelles (cf. figure 2.3).



FIGURE 2.3 – Évolution de la moyenne annuelle des concentrations de NO_2 (en $\mu g m^{-3}$) entre 2010 et 2030 selon le scénario énergétique de l'ADEME pour l'ensemble des domaines de simulation considérés.

Les résultats pour le NO_2 indiquent un bon comportement du scénario "Vision 2030" de l'ADEME par rapport au scénario "fil de l'eau" établit par le CITEPA pour l'horizon 2030. L'apport des mesures du scénario de l'ADEME sur les niveaux de particules et d'ozone est nettement moins prononcé. Néanmoins, les concentrations évaluées continuent à ne pas respecter les critères actuels de qualité de l'air pour le NO_2 à Paris et l'ozone à Paris et Strasbourg.

Au-delà de l'analyse de l'impact du scénario, la comparaison des réponses au changement d'émission des deux modèles mis en œuvre permet d'apporter des éléments d'appréciation sur la robustesse des simulations. Ils ont été comparés à des sites d'observation sur la région Île-de-France pour une période hivernale. La figure 2.4 montre un histogramme des différences sur les réponses ⁷ en fonction des niveaux de pollution observés. Les deux modèles présentent des résultats similaires en moyenne, avec des réponses un peu plus fortes pour les simulations réalisées avec Chimère $(0.8 \pm 8.5 \,\mu g \,m^{-3}$ pour le NO₂).



FIGURE 2.4 – Écart (en $\mu g m^{-3}$) entre les réponses des modèles aux variations des émissions sur une période de deux mois en hiver.

Cette même comparaison réalisée à niveau de référence simulé équivalent, plutôt qu'à niveau observé, indique que les différences de réponse sont en bonne partie imputables à des différences d'évaluation de la situation de référence. L'estimation des impacts apparaît donc cohérente entre les deux modèles pour une concentration initiale donnée.

Cette étude, comparée aux précédentes, a eu le mérite de porter sur un scénario "complet" en terme de secteur d'émissions anthropiques. Il permet donc d'intégrer les interactions entre des mesures qui concernent différents secteurs. Néanmoins la projection du cadastre n'a pas pris en compte de réduction des émissions dans les autres pays Européens, ni d'évolution des concentrations aux limites pour le domaine continental. Les interactions avec l'évolution de ces forçages ne sont donc pas représentées.

2.2.2 Évaluation de tendances

À travers les travaux de thèse de Valentin Raffort, le CEREA a pu participer à l'exercice d'analyse de tendances et d'intercomparaison de modèles "EURODELTA-Trends". Celui-ci ne correspond pas à proprement parler à une étude prospective mais il constitue un effort d'évaluation qui correspond à ce que l'on attend des modèles dans ce type d'application. Cette expérimentation, dont le cadre est décrit en détail dans Colette *et al.* [2017], a été pensée pour analyser les déterminants de la pollution atmosphérique et de son évolution de 1990 à 2010 à l'échelle européenne. L'objectif premier étant d'évaluer l'efficacité des mesures d'abattement des émissions sur la qualité de l'air à l'échelle européenne.

La base de données constituée pour alimenter les modèles participant à cette intercomparaison repose sur :

^{7.} Ce sont donc des différences de différences !

- De champs météorologiques issus des travaux du programme EURO-CORDEX⁸.
- De cadastres d'émissions anthropiques issus des travaux du projet ECLIPSE⁹ respatialisé à une échelle plus fine.
- De conditions aux limites alimentées par des observations et temporalisées selon différentes méthodes ad hoc.

Le domaine de simulation commun couvre l'Europe avec une résolution spatiale de l'ordre de $25 \text{ km} \times 25 \text{ km}$. Les simulations utilisant des forçages cohérents avec une année donnée, se sont accompagnées de simulations réalisées à forçage constant, pour en isoler l'impact. Ces simulations complémentaires ont permis une évaluation différenciée du rôle de la météorologie, des émissions et des conditions aux limites dans les tendances simulées.



FIGURE 2.5 – Exemple de concentrations en $PM_{2.5}$ (en $\mu g m^{-3}$) sur le domaine de simulation EuroDelta, à gauche. Comparaison des tendances relatives (en $\% an^{-1}$) sur les émissions des principaux précurseurs et des médianes des flux de dépôt humides observés et simulés [Theobald *et al.*, 2019, figure 14], à droite.

À l'heure actuelle, ce projet a donné lieu a des analyses publiées concernant notamment les tendances pour l'ozone [Otero *et al.*, 2018], les composés de la phase particulaire secondaire [Ciarelli *et al.*, 2019] et les flux de dépôt humides de composés soufrés et azotés [Theobald *et al.*, 2019].

Je propose ici une courte synthèse des résultats de cette dernière analyse, principalement portée par Mark Theobald, en écho aux travaux sur les flux de dépôt présentés précédemment. Les résultats de six modèles ont pu être exploités pour analyser les tendances simulées sur les dépôts humides d'azote oxydé ("WNOx"), d'azote réduit ("WNHx") et de soufre oxydé ("WSOx").

L'ensemble des modèles considérés encadrent les dépôts annuels observés d'azote oxidé et de soufre oxidé avec un biais inférieur à 40%. La plupart des modèles sousestiment les dépôts d'azote réduit, ce qui semble pouvoir expliquer une sur-estimation des concentrations simulées. Les tendances décroissantes majoritairement observées sur "WNOx" et "WSOx" et leurs amplitudes relatives sur les deux décades sont plutôt bien

^{8.} https://www.euro-cordex.net/

^{9.} https://www.iiasa.ac.at/web/home/research/researchPrograms/air/ECLIPSEv5.html

encadrées par l'ensemble des modèles. Pour "WNHx" ces tendances décroissantes sont sous-estimées, voire des tendances croissantes sont simulées (cf. figure 2.5).

L'estimation des contributions des trois principaux forçages (émissions, conditions aux limites et météorologie) met en avant le rôle de l'évolution des émissions dans les tendances simulées. Les sur et sous-estimations des tendances apparaissent liées au sur et sous-estimation des valeurs annuelles. Les tendances relatives simulées sont plus proches des tendances relatives observées.

Dans cette étude, il a été possible d'évaluer les simulations réalisées au regard des observations de dépôt humide. Un travail analogue n'a pas pu être fait pour les dépôts secs en l'absence d'un réseau d'observations aussi simplement exploitable. Néanmoins, les simulations de dépôt sec ont pu être comparées les unes aux autres. Il en ressort qu'ils sont simulés avec des amplitudes en moyenne annuelle du même ordre de grandeur que celles des dépôts humides. Ils représentent donc une source d'incertitude potentiellement importante pour l'évaluation des flux de dépôt totaux.

Les incertitudes dans la représentation des processus de lessivages sont supposées être responsables d'une part importante des écarts entre les différents modèles et des écarts aux observations. Cependant aucune analyse détaillée du rôle des paramétrisations de ces processus n'a encore été réalisée sur cet exercice.

Chapitre 3

Modélisation multiéchelle de la pollution atmosphérique

À l'heure actuelle les modèles eulériens de chimie-transport ne sont pas mis en œuvre pour des résolutions inférieures au km. Cela induit une forte dilution numérique des sources peu étendues et une inaptitude à représenter les variations de concentrations à leur "proximité". Affiner la compréhension de l'évolution des concentrations de polluants dans les quelques centaines de mètres suivant l'émission, et potentiellement l'évaluation de l'exposition des populations, nécessite donc d'adopter une approche différente. Les modélisations multiéchelles que nous développons constituent une façon d'aborder le problème en conservant des contraintes de temps de calcul proches de celles des modèles eulériens de chimie-transport.

Dans la première partie de ce chapitre, je présente des travaux réalisés dans le cadre de la thèse, puis du postdoctorat de Valentin Raffort autour de la poursuite du développement d'un modèle dit de "panache-sous-maille" qui combine un modèle eulérien régional et un modèle local à bouffées gaussiennes. Dans la seconde, je présente le développement initial d'une approche de modèle de "rue-sous-maille" qui reprend la philosophie générale de l'approche précédente, mais la décline avec le concept de modèle de "rue-canyon".

3.1 Approche pour les sites industriels

Le modèle de panache-sous-maille de la plateforme Polyphemus a été initialement implémenté par Irène Korsakissok (thèse réalisée au CEREA sous la direction de Bruno Sportisse et Vivien Mallet) pour représenter des polluants gazeux et des traceurs. Le développement plus poussé du modèle pour les polluants en phase particulaire a été réalisé par Youngseob Kim dans le cadre d'une collaboration avec Olivier Duclaux (Total Raffinage Chimie) initiée par Christian Seigneur. La seconde partie de la thèse de Valentin Raffort a été consacrée à la poursuite du développement du modèle et à son application pour évaluer l'impact de raffineries.

3.1.1 Principe des modèles de panache-sous-maille

Cette approche consiste à résoudre, simultanément et en interaction, les équations de conservation de la masse :

- eulériennes (1.1), qui assurent le suivi des concentrations de fond,
- gaussiennes, qui assurent le suivi des concentrations dans le panache des sources plus spécifiquement considérées.



FIGURE 3.1 – Illustration de l'approche de "panache-sous-maille".

Dans le cadre d'un modèle à bouffées gaussiennes, le panache est représenté comme un ensemble de N bouffées :

$$c_{i}^{t}\left(\boldsymbol{x}\right) = \sum_{b=1}^{N} \frac{Q_{i}^{b}}{\left(2\pi \left(^{3/2} \sigma_{x}^{b} \sigma_{y}^{b} \sigma_{z}^{b}\right) \exp\left(-\frac{\left(x - x_{c}^{b}\right)^{2}}{2\sigma_{x}^{b^{2}}}\right) \exp\left(-\frac{\left(y - y_{c}^{b}\right)^{2}}{2\sigma_{y}^{b^{2}}}\right) \exp\left(-\frac{\left(z - z_{c}^{b}\right)^{2}}{2\sigma_{z}^{b^{2}}}\right) \exp\left(-\frac{\left(x - z_{c}^{b}\right)^{2$$

Avec

- $c_i^t(\boldsymbol{x})$: la concentration de l'espèce *i*, au lieu $\boldsymbol{x} = (x, y, z)$ et au pas de temps *t* (en µg.m⁻³, Bq.m⁻³, ...). La "solution" reste continue en espace comme pour le modèle de panache gaussien, mais est discrète en temps.
- Q_i^b : la quantité de polluant i (en µg, Bq, ...) initialement associée à la bouffée b lors de son émission.
- x_c^b, y_c^b, z_c^b : les coordonnées du centre de la bouffée *b* au pas de temps *t*. Chaque bouffée est advectée indépendamment selon sa position au pas de temps précédent.
- $\sigma_x^b, \sigma_y^b, \sigma_z^b$: les écarts types (en m), représentant la diffusion turbulente, sont évalués par des paramétrisations empiriques.

Les interactions se font au fur et à mesure de la dispersion des panaches / bouffées. Le modèle eulérien fournit les concentrations de fond nécessaires et les données environnementales (module et direction du vent, température, etc...) à la représentation de la physico-chimie des polluants dans les panaches. Lorsque une bouffée atteint une taille comparable à celle des mailles du modèle eulérien, ses concentrations sont alors transférées à ce dernier pour continuer le suivi.

L'approche permet donc d'éviter la dilution numérique du modèle eulérien tout en appliquant une chimie "complète" et spécifique aux concentrations dans le panache (le régime chimique peut y être notablement différent de celui du fond). Il est à noter cependant que les applications nécessitant une représentation de la chimie se font ici en considérant une concentration homogène dans le volume de la bouffée¹.

3.1.2 Application à des panaches de raffineries

Différentes applications ont été réalisées sur les sites des raffineries de Grandpuits (Île-de-France) et de la Mède (Provence-Alpes-Côte d'Azur). Elles ont permis l'évaluation du modèle par comparaison à des observations des réseaux régionaux des AASQA² Airparif et AtmoSud, mais également à des observations pour des campagnes spécifiques réalisées en proximité des sites.

Analyse de panaches à Grandpuits

Sur le cas de Grandpuits, des simulations ont été effectuées sur trois domaines de simulation imbriqués. Le domaine final d'étude, à l'échelle de l'Île-de-France, est résolu à $0,02^{\circ}$ (~4 km²). La modélisation couvre la période du 1^{er} au 28 avril 2013, avec 7 jours de "spin-up" pour initialiser la simulation. Les champs météorologiques sont issus d'une simulation effectuée avec le modèle WRF. Les cadastres d'émissions d'Airparif pour l'Île-de-France (~1 km², année 2012) et de l'EMEP (~50 km², année 2012) sont utilisés sur les différents domaines. Les émissions pour la raffinerie de Grandpuits sont dérivées de mesures de flux de SO₂, NO_x et PM réalisées aux cheminées pendant la campagne d'observation spécifique. Elles sont complétées par des émissions fugitives de composés organiques volatils (COV). Il est à noter qu'une usine de production d'engrais de la société GPN jouxte la raffinerie de Grandpuits. Les simulations traitent les deux sites industriels avec le modèle de panache-sous-maille.

Ce cadre de simulation a été notamment exploité pour développer la prise en compte de l'eau, potentiellement sous forme liquide, dans les panaches émis. Un terme pour la masse d'eau émise est donc considéré et l'humidité est transportée par les bouffées gaussiennes :

$$q_i = q_{\text{fond}} + Q_{\text{eau}} \frac{\Delta t}{V_i \rho_{\text{air}}}$$
(3.2)

Avec

- q_i , q_{fond} : les humidités spécifiques (en kg kg⁻¹) associées à la bouffée i et au fond ambient (donnée fournie par le modèle météorologique).
- Q_{eau} : le taux d'émission (en kg s⁻¹) d'eau liquide associée à l'émissaire considéré.
- Δt : le pas de temps (en s) entre l'émission de deux bouffées.
- V_i : le volume de la bouffée i.
- ρ_{air} : la masse volumique de l'air.

Différents tests ont été réalisés avec cette prise en compte de l'humidité, pour des taux d'émission d'eau équivalents à 20% et 80% de la masse émise en sortie de cheminée. Le premier taux correspondant aux observations sur le site de Grandpuits et le deuxième est représentatif des émissions suite à l'utilisation d'un laveur de fumée. Sur l'ensemble de ces tests, les conditions n'ont pas conduit au maintien d'eau liquide. L'humidité spécifique des bouffées, diagnostiquée par l'équation (3.2), est restée inférieure à

^{1.} Cette hypothèse simplificatrice induit notamment la détermination d'un volume représentatif de la bouffée $(V_i = 8\pi^{3/2}\sigma_x^i\sigma_y^i\sigma_z^i)$.

^{2.} Association Agréée de Surveillance de la Qualité de l'Air

l'humidité spécifique de saturation. Cependant, ce surplus d'eau accélère la formation du sulfate, de l'ammonium et du nitrate (cf. figure 3.2). La dynamique de formation des aérosols inorganiques secondaires (AIS) est modifiée notablement sur quelques minutes. Les évaluations de ces simulations ont permis de vérifier qu'elles respectaient les critères



FIGURE 3.2 – Évolution des masses (en kg) de sulfate, ammonium et nitrate présentes dans la bouffée en surplus du fond en fonction du taux d'émission d'eau (thèse de Valentin Raffort, p 78-79). Pour ces simulations $\Delta t = 60$ s.

proposés dans la littérature pour les polluants observés à l'échelle régionale (NO₂, O₃, PM_{2.5}, PM₁₀) à l'exception des concentrations en PM₁₀ qui sont apparues assez fortement sous-estimées (12,2 µg m⁻³ simulés en moyenne pour 28,8 µg m⁻³ observés). Cette sous-estimation est également constatée sur les quatre sites de la campagne spécifique.

Les observations de composition chimique indiquent qu'elle est explicable par un manque en poussière minérale. En effet les concentrations en composés inorganiques secondaires et en composés organiques se comparent mieux aux observations (5,8 μ g m⁻³ simulés en moyenne pour 7,0 μ g m⁻³ observés, cf. figure 3.3).

Le modèle a par la suite été utilisé pour évaluer la "contribution" de la raffinerie aux concentrations en comparant une simulation de référence avec une simulation réalisée sans les émissions de la raffinerie ou des deux sites industriels. Une simulation réalisée avec le modèle ADMS (v4.2), ne permettant pas une prise en compte "complète" de la chimie dans les panaches, a également été considérée. Ce modèle est une référence opérationnelle largement utilisée pour les études d'impact de sites industriels. Les résultats sont présentés dans le tableau 3.1.

TABLE 3.1 – Évaluation des contributions de la raffinerie seule (GPS) et de la raffinerie avec l'usine GPN aux concentrations en PM_{10} . La simulation "GPS + GPN" donne les contributions dues à la raffinerie et au site GPN, les simulations GPS et GPN donnent les contributions de la raffinerie seule. Les contributions sont données en concentrations massiques (µg.m⁻³) et en pourcentage de la concentration en PM_{10} modélisée (thèse de Valentin Raffort, p 93).

Simulation	Grandpuits	Bagneaux	Quiers	Tesnieres
ADMS	0,032~(0,2%)	0 (0%)	0,01~(0,5%)	0,004~(0,1%)
GPS + GPN	$0,\!81~(3,\!5\%)$	0,58~(2,9%)	$0,\!85~(5,\!5\%)$	0.45~(2,2%)
GPS	$0,\!12~(0,\!5\%)$	0,056~(0,3%)	$0,\!18~(0,\!98\%)$	0,022~(0,1%)

Au-delà de l'impact moyen limité des émissions des deux sites industriels aux stations d'observations, il apparaît que la prise en compte de la chimie dans le panache



FIGURE 3.3 – Comparaison des concentrations simulées et observées (en $\mu g m^{-3}$) aux quatre sites de la campagne réalisée autour de la raffinerie de Grandpuits en avril 2013. Évaluation de la contribution, de la raffinerie seule et de la raffinerie et du site GPN ensemble, aux concentrations en sulfate, nitrate, ammonium, BC et OM. La contribution des deux sites industriels est indiquée en vert, et la contribution de la raffinerie seule en bleu clair. (thèse de Valentin Raffort, p 92).

modifie sensiblement l'évaluation des contributions. Il est également à noter qu'une partie du signal des contributions résulte de l'interaction des panaches des deux sites.

Raffinerie de la Mède

Sur le site de la raffinerie TOTAL de La Mède, nous avons pu participer au projet TEMMAS³ coordonné par Pierre-Yves Foucher [ONERA⁴, Foucher *et al.*, 2017]. Ce projet a donné lieu à deux campagnes de mesures, une à l'été 2015, l'autre à l'hiver 2016. Je présente ici une synthèse des analyses, menées dans la thèse et le posdoctorat de Valentin Raffort, sur les résultats de la première campagne qui a couvert les deux premières semaines du mois de septembre 2015. Elle a permis de mettre en œuvre différentes techniques de mesures, in-situ et par télédétection.

Pour reproduire les concentrations en polluants de ces périodes, les simulations ont porté sur quatre domaines imbriqués où le domaine final d'étude couvrant les Bouchesdu-Rhône avec une résolution de $0,01^{\circ}$ ($\sim 1 \text{ km}^2$). Les champs météorologiques sont issus d'une simulation effectuée avec le modèle WRF. Le cadastre d'émissions d'AtmoSud pour l'année 2013, à résolution kilométrique, est utilisé pour le domaine des Bouchesdu-Rhône. Au-delà, les émissions sont issues du cadastre EMEP pour l'année 2014, à 50 km de résolution. Les émissions de la raffinerie sont calculées à partir de mesures réalisées aux émissaires sous forme de flux journaliers de SO₂, de NO_x et de poussières. Pour analyser l'apport du modèle de panache-sous-maille et la contribution de la raffinerie, trois simulations sont considérées :

- La première prend en compte les émissions de la raffinerie avec le traitement sous-maille ("PinG").
- La seconde prend en compte les émissions de la raffinerie dans le cadre eulérien classique ("Euler").
- La troisième ne prend pas en compte les émissions de la raffinerie.

Comme pour l'étude sur la raffinerie de Grandpuits, ces simulations ont pu être évaluées par rapport aux observations du réseau régional, piloté ici par AtmoSud. Les simulations "Euler" et "PinG" se distinguent peu pour l'O₃, le NO₂ et les particules. La différence est par contre notable pour le SO₂ pour lequel la raffinerie représente une source significative dans le domaine. La capacité du modèle à reproduire les observations des panaches en proximité de la raffinerie a été largement investiguée grâce aux multiples instruments mis en œuvre spécifiquement pour les campagnes du projet TEMMAS [Foucher *et al.*, 2017], notamment au site dit "STNA", se situant à quelques centaines de mètres au sud-ouest de la raffinerie. Il a été en particulier possible de comparer les concentrations en masse, en nombre et la composition chimique d'une partie des particules fine et le nombre de particules fines à grossières.

Ces résultats ont mis en évidence l'incapacité du modèle eulérien à reproduire certains des pics de concentration observés attribués à la raffinerie. Le modèle de panache sous maille produit ces pics avec une estimation satisfaisante des concentrations en masse et de la composition chimique. Néanmoins, les incertitudes sur la spéciation à l'émission des particules semblent pouvoir justifier des écarts notables (qui se compensent) entre la phase organique et le carbone-suie.

Les résultats de simulations ont également été comparés, dans le cadre d'une analyse croisée, à des mesures effectuées en sortie de cheminée selon une méthodologie permettant de capturer la matière particulaire condensable et à une estimation des

^{3.} Télédétection, Mesures in-situ et Modélisation des polluants atmosphériques industriels. Ce projet a été financé dans le cadre des programmes CORTEA de l'ADEME.

^{4.} Office National d'Études et de Recherches Aérospatiales



FIGURE 3.4 – Comparaison des concentrations simulées et observées (en $\mu g m^{-3}$ et en part relative) au site STNA. Les mesures sont issues de l'AMS de la plateforme Massalya du Laboratoire de Chimie de l'Environnement (thèse de Valentin Raffort, p 113-118).

concentrations par imagerie hyperspectrale corrigée par un modèle de dispersion à fine échelle. Les trois méthodes ont fourni des évaluations convergentes en proximité d'un émissaire (~ 20 à 40 m) [Foucher *et al.*, 2019].

La figure 3.5 montre les distributions spatiales de la contribution de la raffinerie aux concentrations en $PM_{2.5}$ telles qu'évaluées par le modèle de panache-sous-maille et le modèle eulérien. Elles apparaîssent notablement différentes malgré la relativement haute résolution spatiale du modèle eulérien (~1 km). Néanmoins, toutes les analyses réalisées ont mis en évidence la forte sensibilité des simulations de panaches aux données météorologiques et notamment à la direction du vent, éventuellement en interaction avec la question du soulèvement des panaches. Sur les différentes applications, les erreurs sur



FIGURE 3.5 – Contribution moyenne des émissions de la raffinerie aux concentrations en PM_{2.5} (en μ g m⁻³) telle qu'évaluée par le modèle de panache-sous-maille (gauche) et le modèle eulérien classique (droite).

la direction du vent peuvent générer des biais importants au vu de la faible extension des panaches simulés. Il en ressort que la capacité d'une approche de panache-sousmaille à apporter une information spatiale plus pertinente en terme d'exposition reste intimement liée à la possibilité de lui fournir des champs météorologiques fiables. Il est probable que le cadre eulérien soit moins sensible à ces erreurs.

3.2 Approche pour le milieu urbain

Le cadre du projet ANR Trafipollu a également permis le développement initial d'un modèle multiéchelle pour la représentation des milieux urbains denses. Ce modèle est présenté dans Kim *et al.* [2018]. Comme pour l'approche du modèle de panachesous-maille, la philosophie est de combiner un modèle local qui permet de contrôler la dilution numérique inhérente au cadre eulérien et un modèle régional qui permet d'intégrer les interactions chimiques avec le fond à travers un couplage dynamique.

3.2.1 Principe du modèle de rue-sous-maille

Le modèle local est ici un modèle de réseau de rues basé sur les paramétrisations développées pour la canopée urbaine du modèle SIRANE [Soulhac *et al.*, 2011]. L'objectif est de représenter les concentrations en proximité du trafic dans un environnement où la dispersion est contrainte par le bâti. Le milieu urbain est représenté comme un ensemble de rues et d'intersections de rues (figure 3.6). Le volume des segments de rues, défini par une longueur, une largeur moyenne et une hauteur de bâti moyenne, constitue l'élément de discrétisation spatial du modèle local. Les concentrations, les émissions et la plupart des conditions environnementales y sont considérées comme homogènes.

Pour chaque segment de rue "s", un système d'équations de conservation est résolu pour déterminer l'évolution temporelle de l'ensemble des polluants suivis :

$$\frac{\partial c_i^s}{\partial t} = Q_{\text{inflow}} - Q_{\text{outflow}} + Q_{\text{vert}} + Q_{\text{chem}} - Q_{\text{dep}} + Q_i \tag{3.3}$$

Avec

• c_i^s : la concentration de l'espèce *i* dans la rue *s* (en µg.m⁻³, Bq.m⁻³, ...).



FIGURE 3.6 – Élément constitutifs du modèle de réseau de rues et processus représentés.

- Q_{inflow} , $Q_{outflow}$: les flux advectifs depuis et vers les intersections définissant le segment de rue s. Le vent moyen dans chaque rue est déterminé à partir de profils verticaux de vent dans la canopé [Lemonsu *et al.*, 2004; Soulhac *et al.*, 2008].
- Q_{vert} : le flux d'échange turbulent entre la rue et l'atmosphère au-dessus de la canopée urbaine représenté à l'aide des paramétrisations proposées par Schulte *et al.* [2015] ou Salizzoni *et al.* [2009]. Ce terme pilote une partie importante de l'interaction entre le modèle eulérien et le modèle de réseau de rues dans le cadre du modèle de rue-sous-maille.
- Q_{chem} : la résultante des flux de production / destruction chimique.
- Q_{dep} : les pertes par dépôt sec et humide.
- Q_i : le flux d'émission associé au volume de la rue pour l'espèce i.

Les concentrations aux intersections ne sont pas explicitement résolues par le modèle. Cependant, les différents flux d'air arrivant et partant dans les rues de l'intersection sont pilotés, indépendamment les uns des autres, par les caractéristiques morphologiques de ces rues, le module et la direction du vent au-dessus de chacune. Un flux d'échange vertical de polluants est alors possible en lien avec l'ajustement lié à la conservation de la masse de l'écoulement au niveau de l'intersection. Cela constitue un deuxième point d'interaction entre le modèle de réseau de rues et le modèle eulérien dans le cadre de l'approche multiéchelle.

3.2.2 Première application en région Parisienne

Dans le cadre du projet Trafipollu, trois différentes simulations ont été réalisées, couvrant la période du 24 mars au 14 juin 2014, sur un quartier de la commune de Le Perreux sur Marne (dans l'Est de l'agglomération parisienne), pour analyser l'apport de l'approche multiéchelle.

- La première repose sur l'utilisation d'une approche eulérienne classique ("Polair") à une résolution kilométrique. Les émissions du trafic sont "numériquement diluées" dans la première couche du modèle.
- La seconde exploite le modèle de réseau de rues ("MUNICH") utilisé seul. Les échanges avec le fond sont déterminés sur la base de concentrations observées par des stations fixes d'Airparif située à "proximité".
- La troisième correspond à l'application de l'approche multiéchelle ("SinG") qui fait interagir dynamiquement les deux modèles. Les émissions du trafic sont introduites par le modèle de réseau de rues, les autres par le modèle eulérien.

Ces différentes simulations sont alimentées par un cadastre d'émissions du trafic

élaboré dans le cadre du projet. Le cadastre kilométrique d'Airparif en Ile-de-France a été utilisé pour les autres secteurs pour alimenter les simulations "Polair" et "SinG". Les conditions aux bords sont déterminées sur la base d'une imbrication de domaines. Les données météorologiques sont issues d'une simulation du modèle météorologique WRF.

Les différentes simulations ont pu être comparées aux données d'une campagne d'observations menée sur le boulevard Alsace-Lorraine de la commune de Le Perreux sur Marne (cf. figure 3.7). Si aucun des modèles ne donne des résultats complètement satisfaisants sur les concentrations de NO_x , l'approche multimilieux se révèle plus performante que le modèle eulérien classique (cf. tableau 3.2) ou le modèle de réseau de rues pour représenter les concentrations en proximité du trafic. Les différents tests de sensibilité réalisés dans ce travail ont mis en avant le rôle important des flux turbulents d'échange avec le fond ambient.



FIGURE 3.7 – Comparaison des concentrations journalières simulées de NO_2 aux observations de la campagne Trafipollu sur le boulevard Alsace-Lorraine [Kim *et al.*, 2018].

TABLE 3.2 – Comparaison des concentrations horaires simulées de NO₂ et de NO_x aux observations de la campagne Trafipollu sur le boulevard Alsace-Lorraine [Kim *et al.*, 2018, extrait du tableau 1].

/	1					
	NO ₂			NO_x		
	SinG	MUNICH	Polair3D	SinG	MUNICH	Polair3D
Obs. $(\mu g m^{-3})$		$52,\!6$			148,5	
Sim. $(\mu g m^{-3})$	60,2	38,1	$30,\!8$	$76,\!8$	$50,\!3$	$37,\!4$
$\sqrt{\text{NMSE}}^*$	0,40	0,47	0,71	0,86	1,22	1,68
$FAC2^*$	0,90	0,77	$0,\!53$	$0,\!53$	$0,\!22$	$0,\!15$
\mathbf{R}^{*}	$0,\!64$	$0,\!67$	0,51	$0,\!64$	$0,\!64$	$0,\!54$

* NMSE (erreur quadratique moyenne normalisée), FAC2 (Facteur 2), R (corrélation temporelle).

La zone traitée avec le modèle de rue-sous-maille était trop limitée pour évaluer "objectivement" son éventuel apport pour la simulation des concentrations de fond urbain. Les concentrations des simulations "SinG" et "Polair" ne se distinguent pas aux sites d'observation les plus proches (ceux utilisés pour alimenter la simulation "MUNI- CH"). Néanmoins, en moyenne sur la période de simulation, les différences maximales entre les simulations "SinG" et "Polair" sont comparables pour les NO_x aux écarts entre simulation et observation aux sites d'observation les plus proches.

3.2.3 Analyse de sensibilité du modèle de réseau de rues

À la suite de cette implémentation initiale du modèle de rue-sous-maille nous poursuivons son développement et son évaluation. La première version publiée du modèle de réseau de rues a reposé sur une méthode numérique de séparation d'opérateurs et une hypothèse de stationnarité pour simuler le transport. Ce choix de résolution numérique posait la question d'une forme de dilution numérique rémanente (les émissions attribuées à une rue impactent "instantanément" toutes les rues du réseau considéré) pouvant contribuer à la sous-estimation des concentrations de NO_x constatée dans le cadre de la campagne du projet Trafipollu. Il s'est avéré de plus insuffisamment robuste pour la prise en compte de la chimie atmosphérique. Au cours de l'année 2019 nous avons pu réaliser dans le cadre des stages de master de Farouk Lemmouchi (co-supervisé avec Karine Sartelet) et d'ingénieur de Mofan Zhang (co-supervisé avec Arièle Defossez, CEREA) des analyses de sensibilité supplémentaires du modèle MUNICH.

Le développement d'une approche dynamique pour représenter le transport a été réalisé dans le cadre des travaux de doctorat de Lya Lugon sous la direction de Karine Sartelet. Le stage de Mofan Zhang a permis de compléter les tests numériques réalisés à l'occasion de l'implémentation de la résolution dynamique du transport dans MUNICH. Il a notamment mis en évidence la plus grande robustesse d'un solveur numérique appliquant la méthode de Rosenbrock par rapport à la méthode explicite des trapèzes initialement introduite (figure 3.8).



FIGURE 3.8 – Comparaison des concentrations de NO_x pour différents choix de solveur numérique, méthode explicite des trapèzes (gauche) et méthode de Rosenbrock (droite) contrôlé par un algorithme de pas de temps adaptatif pour différentes valeurs de pas de temps minimum d'intégration.

Le stage de master de Farouk Lemmouchi s'est inscrit dans un début de collaboration avec Christophe Chaillou, André Nicolle et Caroline Norsic (Aramco Overseas). Il a consisté notamment à analyser, sur le cas d'une rue isolée, l'influence relative des principaux forçages intervenant dans la détermination des concentrations : les émissions dans la rue, les concentrations ambiantes, les conditions météorologiques (notamment la



direction du vent par rapport à la rue, figure 3.9) et les caractéristiques morphologiques de la rue-canyon.

FIGURE 3.9 – Comparaison des concentrations horaires de NO_2 pour différentes directions de vent par rapport à l'axe de la rue et différentes rues caractérisées par leur aspect de forme hauteur / largeur (master de Farouk Lemmouchi).

Chapitre 4

Perspectives

Dans les paragraphes ci-dessous je présente un certains nombre de travaux qui ont démarré récemment. Ils constituent, de fait, mes perspectives à court terme. J'introduis également des sujets de recherche qui me semblent pertinents et dans le prolongement, à plus ou moins brève échéance, des travaux auxquels j'ai pu contribuer jusqu'à présent.

4.1 Modélisation des flux de dépôt

4.1.1 Des radionucléides...

Les travaux sur la modélisation des flux de dépôts de radionucléides à l'échelle régionale, ont mis en évidence un fort niveau d'incertitudes restantes dans la représentation des processus de retrait de ces polluants. Les différentes études menées n'ont pas permis d'identifier des paramétrisations robustes pour l'évaluation des flux de dépôts. Leur classement, à travers des comparaisons à des observations, reste dépendant de l'indicateur statistique utilisé. En pratique, les paramétrisations micro-physiques "classiques" de ces processus ne s'avèrent pas forcément capables d'apporter une information significativement meilleure que des approches basées sur des paramétrisations empiriques simples.

Les cadres d'application considérés pour les radionucléides, correspondant à des évènements accidentels, sont très éloignés de situations contrôlées en laboratoire. Ils sont ainsi peu propices à isoler les incertitudes liées à ces processus par rapport aux autres forçages :

- Les termes sources sont mal connus, et le plus souvent affinés à partir de modélisation inverse. Les termes sources reconstruits embarquent donc implicitement une partie des erreurs de la modélisation.
- Les situations accidentelles présentent une forte sensibilité aux conditions météorologiques globales, et en particulier à des champs spécifiques comme les précipitations qui restent fortement incertains.

Ce cadre correspond néanmoins aux conditions d'application de la modélisation pour la gestion de crise. Une approche pragmatique, reposant sur de la modélisation d'ensemble, peut permettre d'enrichir utilement l'information apportée en l'état par la modélisation en représentant une partie des incertitudes. Au-delà, nous identifions tout de même l'intérêt potentiel d'une "bonne" paramétrisation du lessivage pour réduire les sources d'incertitudes dans la représentation de la dispersion des panaches de rejets accidentels.

Il apparaît donc souhaitable de poursuivre les efforts de recherche pour améliorer la modélisation de ces processus.

4.1.2 ... aux particules

Un aspect laissé en suspens dans nos travaux est l'amélioration de la représentation des formes physico-chimiques des radionucléides étudiés tels que l'iode, le césium... Par exemple la chimie de l'iode, qui pilote la répartition entre les différentes formes gazeuses et la phase particulaire, n'est pas prise en compte. Or ces différentes formes ne présentent pas les mêmes caractéristiques vis à vis des processus de dépôt. Le césium est également associé à la phase particulaire, mais les classes de taille de particules porteuses sont généralement fixées et la représentativité de ce choix au fur et à mesure du transport d'un panache est peu questionnée. Or, la distribution en taille des particules apparaît comme un paramètre sensible pour la détermination des dépôts. Cette distribution en taille est pilotée par les processus de dépôt eux-mêmes, mais également par les processus physico-chimiques de la phase particulaire atmosphérique (condensation, coagulation, etc...). L'absence de prise en compte de ces processus peut expliquer en partie le peu d'intérêt apparent de la mise en œuvre des paramétrisations micro-physiques.

C'est donc un sujet que je souhaite creuser dans les années à venir en m'appuyant notamment sur le modèle d'aérosol développé par Karine Sartelet et Florian Couvidat (INERIS¹). Le premier objectif sera d'identifier le rôle respectif, et les interactions, des différents processus représentés dans la détermination de la distribution en taille des radionucléides à l'échelle d'un évènement de dispersion. La pertinence potentielle des paramétrisations micro-physiques sera réévaluée en fonction des résultats de cette analyse.

Les comparaisons réalisées dans le cadre de l'exercice EuroDelta ont montré que, pour les pollutions chroniques les incertitudes dans les flux de dépôt simulés restent également fortes. Ici, en regard des échelles de temps (mois à années) et d'espace (pollution de fond) considérées, on peut s'attendre à une sensibilité moins forte aux conditions météorologiques. Bien qu'assurément améliorables, les cadastres d'émissions apparaissent également moins incertains que pour les cas de rejets accidentels. Par contre, pour la plupart des polluants d'intérêt pour les dépôts dans ce cadre de la pollution transfrontière, comme pour le mercure, des interactions ont lieu avec la chimie multiphasique de l'atmosphère. Au vu des temps de calcul conséquents que cela engendre, la question de la sensibilité des flux de dépôt simulés à la paramétrisation mise en œuvre ne pourra être abordée de la même manière que celle appliquée pour les radionucléides. Je prévois néanmoins d'avancer sur ce sujet en profitant de l'expérience acquise sur les radionucléides et de la base de données constituée pour l'exercice EuroDelta. La question précédemment évoquée de l'intérêt des paramétrisations micro-physiques faisant intervenir la taille des particules est également pertinente ici. Elle pourra de même être raccordée à la thématique de la représentation des concentrations en nombre abordée dans les recherches de Karine Sartelet.

La thèse de Jerry Jose, démarrée en octobre 2019 sous la direction de Daniel Schertzer (ENPC, HM&Co), et pour laquelle je participe avec Auguste Gires (HM&Co)

^{1.} Institut National de l'Environnement industriel et des RISques

à la supervision, donnera l'occasion de re-travailler sur les paramétrisations du lessivage par les précipitations. L'objectif global de ce projet doctoral est de comparer les caractéristiques des situations simulées dans la chambre climatique Sense-City (https://sense-city.ifsttar.fr/) aux situations in-situ correspondantes. Un ensemble d'expérimentations sont prévues en collaboration avec Anne Ruas (IFSTTAR), notamment autour des précipitations, pour caractériser les capacités et les limites de la chambre climatique à reproduire des conditions in-situ. Du point de vue du lessivage, l'intérêt de cette chambre climatique est qu'elle n'est pas soumise aux déplacements de masse d'air qui rendent l'observation in-situ du processus de lessivage complexe. Ces travaux seront à rapprocher de ceux menés, notamment à l'IRSN, dans des conditions de laboratoires plus contrôlées.

Le stage de master d'Ousseynou Gaye, réalisé en 2019 dans le cadre du projet Dynaplast (projet "exploratoire" de l'I-Site FUTURE coordonné par Bruno Tassin, LEESU) a permis de mener des travaux préliminaires sur la modélisation des flux de dépôt atmosphérique des fibres plastiques. Ces polluants, qui sont identifiés comme problématiques pour les milieux aquatiques, semblent pouvoir en partie transiter par l'atmosphère. Certains aspects de la physique de la dispersion atmosphérique, et notamment la diffusion dans un écoulement turbulent de particules tubulaires et flexibles, ne sont que très peu abordés dans la littérature scientifique. Ces questions pourraient l'être dans le cadre d'un projet de plus grande envergure, permettant une mise en œuvre d'expérimentation et le développement de paramétrisations spécifiques.

4.2 Approches multiéchelles

Les travaux réalisés autour du développement d'approches multiéchelles ont montré la capacité de ces dernières à reproduire de façon plutôt satisfaisante la variabilité des concentrations en proximité des sources. Néanmoins si la mise en pratique du concept de panache-sous-maille est relativement ancienne, celle du modèle de rue-sous-maille est de fait beaucoup plus préliminaire. Cela justifie des perspectives différenciées.

4.2.1 Modèle de panache-sous-maille

Une partie de l'intérêt des travaux autour du modèle de panache-sous-maille, réalisés ces dernières années au CEREA, repose sur la mise en œuvre dans ce cadre de représentation d'un modèle d'aérosol performant. La collaboration avec Total Raffinage Chimie, qui permet notamment d'alimenter les applications en campagne d'observations, va se poursuivre dans les années à venir. Les objectifs identifiés sont la poursuite des évaluations du modèle sur les données existantes du projet TEMMAS et sur d'autres sites industriels. Il est par ailleurs envisagé de l'étendre à la représentation du potentiel oxydant des particules atmosphériques. Cela impliquerait notamment une prise en compte explicite des métaux. Celle-ci peut s'envisager de façon plus ou moins couplée avec la phase particulaire de l'aérosol atmosphérique. Il est également possible qu'une prise en compte plus explicite de la spéciation des composés organiques soit nécessaire.

Le projet PAREA (projet financé par l'ADEME à travers le programme CORTEA), coordonné par Stéphane Sauvage (IMT Lille Douais) va permettre d'étudier l'évolution des panaches de navires en zone portuaire. Les campagnes d'observation prévues à Marseille dans ce cadre permettront d'analyser différents polluants particulaires dont les métaux et certains composés organiques secondaires ainsi que le nombre de particules. Nous allons réaliser des simulations avec le modèle de panache sous maille pour évaluer les concentrations en masse et en nombre liées aux émissions des navires. Ce projet donnera donc l'occasion de poursuivre les travaux d'évaluation de cette approche sur un cas différent d'un site industriel.

Comme évoqué précédemment, le modèle de panache-sous-maille a permis une analyse affinée de l'évolution des concentrations en particules en proximité d'une source industrielle. Ces travaux ont cependant mis en évidence la forte sensibilité aux incertitudes météorologiques. Dans une perspective d'évaluation de l'exposition des populations, pour des simulations de long terme, il serait intéressant de réaliser une analyse quantitative des incertitudes associées à la météorologie notamment pour les mettre en regard des gains obtenus en représentativité spatiale.

4.2.2 Modèle de rue-sous-maille

La thèse de Thibaud Sarica, débutée en décembre 2019 sous la direction de Karine Sartelet, pour laquelle je participe à l'encadrement, va permettre de poursuivre le développement et l'exploitation du modèle de rue-sous-maille. Elle se déroule dans le cadre d'une collaboration avec une équipe de recherche de la filiale européenne de la société Aramco. L'objectif principal de cette thèse est d'évaluer, à l'échelle d'une grande agglomération, l'impact d'une flotte de véhicules à très faibles émissions sur les concentrations de divers polluants, notamment les particules. Ces travaux donneront l'occasion de poursuive le développement de l'approche de modélisation multiéchelle pour le milieu urbain. En plus d'une participation à l'extension du modèle au traitement d'une chimie multiphasique, la remise en cause de l'hypothèse d'homogénéité des concentrations dans un tronçon de rue sera abordée en s'inspirant notamment des formulations mises en œuvre dans le modèle OSPM [Berkowicz, 2000].

Des travaux complémentaires d'évaluation de cette nouvelle approche seront bien sûr souhaitables. Il apparait opportun de pouvoir bénéficier pour cela des nombreux développements actuels en terme de métrologie qui visent notamment à fournir une couverture plus dense de l'espace urbain. Des interactions sont à poursuivre avec le projet MAQGA², du programme ANR "Make Our Planet Great Again", porté par Ramachandran Subramanian (Carnegie Mellon University) et accueilli au LISA dans le cadre des collaborations au sein de l'OSU EFLUVE.

4.3 Applications prospectives

L'utilisation des modèles dans un cadre prospectif reste un des objectifs majeur de leur développement. Je prévois donc ainsi de poursuivre la mise en œuvre de modélisation à cette fin. Au-delà de la démonstration de faisabilité et du retour d'expérience concret, l'intérêt est ici d'analyser les mécanismes de synergie ou d'antagonisme dans les stratégies de réduction des émissions. Ce sera également utile pour alimenter les réflexions sur nos prochains développements de modèle.

^{2.} Make Air Quality Great Again

4.3.1 Émissions d'ammoniac de l'agriculture

Le projet Ammon que je coordonne actuellement (programme PRIMEQUAL, "Agriculture et Qualité de l'air") vise à améliorer notre compréhension du rôle de l'ammoniac (NH₃) dans l'exposition des populations aux particules atmosphériques en Île-de-France. Les émissions de ce gaz sont très majoritairement imputables aux activités agricoles. L'ammoniac peut notablement contribuer à la phase particulaire, sous forme d'ammonium, pour former notamment du nitrate d'ammonium. Les analyses réalisées exploitent différents modèles couramment utilisés en France. Ils sont mis en œuvre pour évaluer l'efficacité de stratégies d'abattement des émissions. Une des questions abordées est l'évaluation de la sensibilité de cette réponse aux hypothèses d'équilibre, pour la partition des espèces inorganiques, et de mélange interne qui sont habituellement employées pour limiter les temps de calcul. Les premiers résultats montrent notamment une forte différence dans la façon dont le modèle reproduit la partition ammoniac / ammonium. Cela impacte fortement l'amplitude de la réponse à une réduction des émissions.

Les bases de données d'observation in-situ pour l'ammoniac et l'ammonium étant peu conséquentes pour le territoire national, et en particulier pour l'Île-de-France, des contacts sont pris avec Pascale Chelin (LISA) qui pilote l'observatoire OASIS³ pour renforcer l'évaluation des modèles sur l'Île-de-France avec des observations par télédétection fournissant une information intégrée sur la colonne d'atmosphère.

4.3.2 Émissions du trafic routier

Des contacts sont également en cours avec différents laboratoires dans la sphère du réseau scientifique et technique du ministère de l'environnement (LICIT⁴, et LVMT⁵ notamment) pour poursuivre la mise en œuvre de couplages entre modèle de trafic routier et modèle de dispersion atmosphérique. Ce sujet est dans la continuité de notre participation au projet ANR Trafipollu. L'objectif est ici d'améliorer les méthodes d'évaluation des mesures de réorganisation du trafic routier (p. ex. zone à faible émission, système d'aide à la navigation, ...) ou la représentation de l'exposition des populations.

4.4 Assimilation de données et autres sujets...

Comme annoncé, je n'ai pas évoqué dans ce document une partie des travaux auxquels j'ai pu contribuer autour de l'assimilation de données. Je prévois néanmoins de continuer à collaborer avec Marc Bocquet et Alban Farchi (CEREA) sur ces thématiques. Le projet ANR ARGONAUT qui vient de démarrer sous la coordination de Gaëlle Dufour (LISA), a pour but d'affiner la connaissance des flux d'émissions anthropiques à l'échelle nationale. Nous prévoyons pour cela la mise en place de différentes expériences de modélisation inverse exploitant des données satellitaires. Ce projet nous donnera notamment l'occasion de travailler sur une meilleure prise en compte de l'erreur de modélisation dans ce type d'exercice.

Le sujet de la représentation de l'erreur de modélisation est également abordé dans les travaux de thèse de Joffrey Dumont-Le-Brazidec (sous la direction de Marc Bocquet) menée en collaboration avec l'IRSN sur un cas de rejet accidentel de ruthénium.

^{3.} Observations Atmosphériques par Spectroscopie Infrarouge Solaire

^{4.} Laboratoire Ingénierie, CIrculation, Transports

^{5.} Laboratoire Ville Mobilité Transport

J'accompagne depuis un an le postdoctorat de Mouhamet Diallo en collaboration avec Éric Dupont (CEREA). Ces travaux se déroulent dans le cadre d'un projet ANR - FEM⁶ et visent en premier objectif le développement de méthodologies plus robustes pour la caractérisation du potentiel éolien en zone côtière. Si cet objectif n'a pas de lien évident avec mes sujets de recherche au premier abord, ces travaux impliquent néanmoins des considérations sur la représentation des profils verticaux de vent dans la couche limite marine. En celà, ils pourront contribuer ultérieurement à améliorer à la fois la représentation des flux d'émission de sels de mer (problématique pertinente pour l'étude de la phase particulaire en zone portuaire, et plus largement maritime) et des flux de dépôt sec en zone maritime.

^{6.} France Énergie Marine

Bibliographie

- ALLEMAND, N., ANDRÉ, J.-M., CHANG, J.-P., DEFLORENNE, E., GUEGUEN, C., JABOT, J., JOYA, R., MATHIAS, É., et PROUTEAU, É., (2011). Optinec 4 – scénarii prospectifs climat – air – énergie, Évolution des émissions de polluants en france, horizons 2020 et 2030. Rapport technique, CITEPA.
- ARIYA, P., AMYOT, M., DASTOOR, A., DEEDS, D., FEINBERG, A., KOS, G., POU-LAIN, A., RYJKOV, A., SEMENIUK, K., SUBIR, M. et TOYOTA, K. (2015). Mercury physicochemical and biogeochemical transformation in the atmosphere and at atmospheric interfaces : a review and future directions. *Chemical Reviews*, 115:3760–3802. doi :10.1021/cr500667e.
- BERKOWICZ, R. (2000). OSPM A parameterised street pollution model. *Environmen*tal Monitoring and Assessment, 65:323–331.
- CHERIN, N., ROUSTAN, Y., MUSSON-GENON, L. et SEIGNEUR, C. (2015). Modelling atmospheric dry deposition in urban areas using an urban canopy approach. *Geoscientific Model Development*, 8(3):893–910.
- CIARELLI, G., THEOBALD, M. R., VIVANCO, M. G., BEEKMANN, M., AAS, W., AN-DERSSON, C., BERGSTRÖM, R., MANDERS-GROOT, A., COUVIDAT, F., MIRCEA, M., TSYRO, S., FAGERLI, H., MAR, K., RAFFORT, V., ROUSTAN, Y., PAY, M.-T., SCHAAP, M., KRANENBURG, R., ADANI, M., BRIGANTI, G., CAPPELLETTI, A., D'ISI-DORO, M., CUVELIER, C., CHOLAKIAN, A., BESSAGNET, B., WIND, P. et COLETTE, A. (2019). Trends of inorganic and organic aerosols and precursor gases in europe : insights from the EURODELTA multi-model experiment over the 1990–2010 period. *Geoscientific Model Development*, 12(12):4923–4954.
- COCEAL, O. et BELCHER, S. E. (2004). A canopy model of mean winds through urban areas. *Quart. J. Roy. Meteor. Soc.*, 130:1349–1372.
- COLETTE, A., ANDERSSON, C., MANDERS, A., MAR, K., MIRCEA, M., PAY, M.-T., RAFFORT, V., TSYRO, S., CUVELIER, C., ADANI, M., BESSAGNET, B., BERGSTRÖM, R., BRIGANTI, G., BUTLER, T., CAPPELLETTI, A., COUVIDAT, F., D'ISIDORO, M., DOUMBIA, T., FAGERLI, H., GRANIER, C., HEYES, C., KLIMONT, Z., OJHA, N., OTERO, N., SCHAAP, M., SINDELAROVA, K., STEGEHUIS, A. I., ROUSTAN, Y., VAU-TARD, R., van MEIJGAARD, E., VIVANCO, M. G. et WIND, P. (2017). Eurodeltatrends, a multi-model experiment of air quality hindcast in europe over 1990–2010. *Geoscientific Model Development*, 10(9):3255–3276.
- DUHANYAN, N. et ROUSTAN, Y. (2011). Below-cloud scavenging by rain of atmospheric gases and particulates. *Atmos. Env.*, 45(39):7201 7217.

- EVANGELIOU, N., HAMBURGER, T., TALERKO, N., ZIBTSEV, S., BONDAR, Y., STOHL, A., BALKANSKI, Y., MOUSSEAU, T. et MØLLER, A. (2016). Reconstructing the Chernobyl Nuclear Power Plant (CNPP) accident 30 years after. A unique database of air concentration and deposition measurements over Europe. *Environmental Pollution*, 216:408–418.
- FOUCHER, P., DÉLIOT, P., POUTIER, L., DUCLAUX, O., RAFFORT, V., ROUSTAN, Y., TEMIME-ROUSSEL, B., DURAND, A. et WORTHAM, H. (2019). Aerosol plume characterization from multitemporal hyperspectral analysis. *IEEE Journal of Selected Topics in Applied Earth Observations and Remote Sensing*, pages 2429–2438.
- FOUCHER, P.-Y., ARMENGAUD, A., COURTIER, G., DELIOT, P., DUCLAUX, O., DURAND, A., FRACES, M., HUET, T., JUERY, C., LAPEYRIE, S., LEGORGEU, C., LEON, J.-F., MARTY, F., PIGA, D., RAFFORT, V., ROUS-TAN, Y., SARRAT, C., TEMIME-ROUSSEL, B. et WORTHAM, H. (2017). Télédétection, mesures in-situ et modélisation des polluants atmosphériques industriels. Application au cas d'une raffinerie industrielle. Rapport technique, ADEME. https://www.ademe.fr/sites/default/files/assets/documents/temmas_raffinerie_2009-2017_rapport.pdf.
- HERTEL, O., CHRISTENSEN, J. H., RUNGE, E. H., ASMAN, W. A. H., BERKOWICZ, R. et F., H. M. (1995). Development and testing of a new variable scale air pollution model ACDEP. Atmos. Env., 29:1267–1290. doi :10.1016/1352-2310(95)00067-9.
- HICKS, B. B., SAYLOR, R. D. et BAKER, B. D. (2016). Dry deposition of particles to canopies a look back and the road forward. *Journal of Geophysical Research : Atmospheres*, 121.
- HUEGLIN, C., BRUNNER, J. et BUCHMANN, B. (2010). Long-term trend of direct NO₂ emissions from urban road traffic in Zurich, Switzerland. In 18th International Symposium Transport and Air Pollution, pages 140–144. Empa.
- KATATA, G. (2014). Fogwater deposition modeling for terrestrial ecosystems : A review of developments and measurements. *Journal of Geophysical Research : Atmospheres*, 119.
- KATATA, G., CHINO, M., KOBAYASHI, T., TERADA, H., OTA, M., NAGAI, H., KAJINO, M., DRAXLER, R., HORT, M. C., MALO, A., TORII, T. et SANADA, Y. (2015). Detailed source term estimation of the atmospheric release for the fukushima daiichi nuclear power station accident by coupling simulations of an atmospheric dispersion model with an improved deposition scheme and oceanic dispersion model. *Atmos. Chem. Phys.*, 15.
- KIM, Y., WU, Y., SEIGNEUR, C. et ROUSTAN, Y. (2018). Multi-scale modeling of urban air pollution : development and application of a street-in-grid model (v1.0) by coupling MUNICH (v1.0) and Polair3D (v1.8.1). *Geoscientific Model Development*, 11(2):611–629.
- KOUSOULIDOU, M., NTZIACHRISTOS, L., MELLIOS, G. et SAMARAS, Z. (2008). Roadtransport emissions projections to 2020 in european urban environments. Atmos. Env., 42:7465–7475.

- LEMONSU, A., GRIMMOND, C. S. B. et MASSON, V. (2004). Modeling the surface energy balance of the core of an old Mediterranean city : Marseille. *J. Applied Meteor.*, 43:312–327.
- LOIZEAU, V., CIFFROY, P., ROUSTAN, Y. et MUSSON-GENON, L. (2014). Identification of sensitive parameters in the modeling of svoc reemission processes from soil to atmosphere. *Science of The Total Environment*, 493:419 – 431.
- LOIZEAU, V., ROUSTAN, Y., DUHANYAN, N., MUSSON-GENON, L. et CIFFROY, P. (2018). Modelling the Fate of Chemicals in the Atmosphere, pages 101–125. Springer International Publishing, Cham.
- MALLET, V., QUÉLO, D., SPORTISSE, B., Ahmed de BIASI, M., DEBRY, E., KORSA-KISSOK, I., WU, L., ROUSTAN, Y., SARTELET, K., TOMBETTE, M. et FOUDHIL, H. (2007). Technical note : The air quality modeling system polyphemus. *Atmospheric Chemistry and Physics*, 7(20):5479–5487.
- MASSAD, R.-S., NEMITZ, E. et SUTTON, M. (2010). Review and parameterisation of bi-directional ammonia exchange between vegetation and the atmosphere. *Atmos. Chem. Phys.*, 10.
- MEXT (2012). Results of the fifth airborne monitoring survey and airborne monitoring survey outside 80 km from the Fukushima Dai-ichi NPP. Rapport technique, Ministry of Education, Culture, Sports, Science and Technology of Japan. http://radioactivity.nsr.go.jp/en/contents/6000/5790/24/203_0928_14e.pdf.
- OTERO, N., SILLMANN, J., MAR, K. A., RUST, H. W., SOLBERG, S., ANDERSSON, C., ENGARDT, M., BERGSTRÖM, R., BESSAGNET, B., COLETTE, A., COUVIDAT, F., CUVELIER, C., TSYRO, S., FAGERLI, H., SCHAAP, M., MANDERS, A., MIRCEA, M., BRIGANTI, G., CAPPELLETTI, A., ADANI, M., D'ISIDORO, M., PAY, M.-T., THEO-BALD, M., VIVANCO, M. G., WIND, P., OJHA, N., RAFFORT, V. et BUTLER, T. (2018). A multi-model comparison of meteorological drivers of surface ozone over europe. Atmos. Chem. Phys., 18(16):12269–12288.
- PUDYKIEWICZ, J. (1989). Simulation of the chernobyl dispersion with a 3-d hemispheric tracer model. *Tellus*, 41B:391–412.
- QUÉGUINER, S., MUSSON-GENON, L., ROUSTAN, Y. et CIFFROY, P. (2010). Contribution of atmospheric emissions to the contamination of leaf vegetables by persistent organic pollutants (pops) : Application to southeastern france. Atmos. Env., 44(7):958 – 967.
- QUÉREL, A., ROUSTAN, Y., QUÉLO, D. et BENOIT, J.-P. (2015). Hints to discriminate the choice of wet deposition models applied to an accidental radioactive release. *International Journal of Environment and Pollution*, 58:268 – 279.
- ROUSTAN, Y. et COLL, I. (2015). évaluation des impacts sur la qualité de l'air d'actions et de mesures orientées "villes et territoires durables". Rapport technique, ADEME. https://www.ademe.fr/sites/default/files/assets/documents/evaluationimpacts-sur-qualite-air-dactions-villes-territoires-durables-2015.pdf.

- ROUSTAN, Y., PAUSADER, M. et SEIGNEUR, C. (2011a). Estimating the effect of onroad vehicle emission controls on future air quality in paris, france. *Atmos. Env.*, 45(37):6828 – 6836.
- ROUSTAN, Y., SARTELET, K., TOMBETTE, M., DEBRY, E. et SPORTISSE, B. (2010). Simulation of aerosols and gas-phase species over europe with the polyphemus system. part ii : Model sensitivity analysis for 2001. *Atmos. Env.*, 44(34):4219 – 4229.
- ROUSTAN, Y., SEIGNEUR, C. et SARTELET, K. (2011b). Impact des mesures d'amélioration de la qualité de l'air sur les concentrations de dioxyde d'azote (NO₂) en île-de-France. Rapport technique, ADEME.
- SAITO, K., SHIMBORI, T. et R., D. (2015). JMA's regional atmospheric transport model calculations for the WMO technical task team on meteorological analyses for Fukushima daiichi nuclear power plant accident. J. Environmental Radioactivity, 139:185–199.
- SALIZZONI, P., SOULHAC, L. et MEJEAN, P. (2009). Street canyon ventilation and atmospheric turbulence. *Atmos. Env.*, 43(32):5056–5067.
- SARTELET, K., DEBRY, E., FAHEY, K., ROUSTAN, Y., TOMBETTE, M. et SPORTISSE, B. (2007). Simulation of aerosols and gas-phase species over europe with the polyphemus system : Part i—model-to-data comparison for 2001. *Atmos. Env.*, 41(29):6116 6131.
- SCHULTE, N., SI, T. et AKULA, V. (2015). The ratio of effective building height to street width governs dispersion of local vehicle emissions. *Atmos. Env.*, 112:54 63.
- SEINFELD, J. H. et PANDIS, S. N. (1998). Atmospheric chemistry and physics. Wiley-Interscience.
- SLINN, W. G. N. (1977). Some approximations for the wet and dry removal of particles and gases from the atmosphere. *Water, Air, and Soil Pollution*, 7:513–543.
- SOULHAC, L., PERKINS, R. J. et SALIZZONI, P. (2008). Flow in a street canyon for any external wind direction. *Boundary-Layer Meteor.*, 126(3):365–388.
- SOULHAC, L., SALIZZONI, P., CIERCO, F.-X. et PERKINS, R. (2011). The model sirane for atmospheric urban pollutant dispersion; part I, presentation of the model. *Atmos. Env.*, 45(39):7379 7395.
- SPROVIERI, F., PIRRONE, N., EBINGHAUS, R., KOCK, H. et DOMMERGUE, A. (2010). A review of worldwide atmospheric mercury measurements. *Atmos. Chem. Phys.*, 10:8245–8265. doi :10.5194/acp-10-8245-2010.
- THEOBALD, M. R., VIVANCO, M. G., AAS, W., ANDERSSON, C., CIARELLI, G., COUVI-DAT, F., CUVELIER, K., MANDERS, A., MIRCEA, M., PAY, M.-T., TSYRO, S., ADANI, M., BERGSTRÖM, R., BESSAGNET, B., BRIGANTI, G., CAPPELLETTI, A., D'ISIDORO, M., FAGERLI, H., MAR, K., OTERO, N., RAFFORT, V., ROUSTAN, Y., SCHAAP, M., WIND, P. et COLETTE, A. (2019). An evaluation of european nitrogen and sulfur wet deposition and their trends estimated by six chemistry transport models for the period 1990–2010. Atmospheric Chemistry and Physics, 19(1):379–405.

- THOURON, L., SEIGNEUR, C., KIM, Y., LEGORGEU, C., ROUSTAN, Y. et BRUGE, B. (2017). Simulation of trace metals and pah atmospheric pollution over greater paris : Concentrations and deposition on urban surfaces. *Atmos. Env.*, 167:360 376.
- VENKATRAM, A. et PLEIM, J. (1999). The electrical analogy does not apply to modeling dry deposition of particles. *Atmos. Env.*, 33:3,075–3,076.
- WANG, X., ZHANG, L. et MORAN, M. D. (2010). Uncertainty assessment of current size-resolved parameterizations for below-cloud particle scavenging by rain. *Atmos. Chem. Phys.*, 10.
- WANG, X., ZHANG, L. et MORAN, M. D. (2011). On the discrepancies between theoretical and measured below-cloud particle scavenging coefficients for rain – a numerical investigation using a detailed one-dimensional cloud microphysics model. Atmos. Chem. Phys., 11.
- WESELY, M. L. et HICKS, B. B. (2000). A review of the current status of knowledge on dry deposition. *Atmos. Env.*, 34:2,261–2,281.
- WINIAREK, V., BOCQUET, M., DUHANYAN, N., ROUSTAN, Y., SAUNIER, O. et MA-THIEU, A. (2014). Estimation of the caesium-137 source term from the fukushima daiichi nuclear power plant using a consistent joint assimilation of air concentration and deposition observations. *Atmos. Env.*, 82:268 – 279.
- ZHANG, L., BROOK, J. et VET, R. (2003). A revised parameterization for gaseous dry deposition in air-quality models. *Atmos. Chem. Phys.*, 3.
- ZHANG, L., GONG, S., PADRO, J. et BARRIE, L. (2001). A size-segregated particle dry deposition scheme for an atmospheric aerosol module. *Atmos. Env.*, 35:549–560.
- ZHANG, L., WRIGHT, L. et BLANCHARD, P. (2009). A review of current knowledge concerning dry deposition of atmospheric mercury. *Atmos. Env.*, 43:5853–5864.
- ZYŚK, J., ROUSTAN, Y. et WYRWA, A. (2015). Modelling of the atmospheric dispersion of mercury emitted from the power sector in poland. *Atmos. Env.*, 112:246 256.