HAL open science

La modélisation des aérosols organiques secondaires

Bertrand Bessagnet

To cite this version:

Bertrand Bessagnet. La modélisation des aérosols organiques secondaires. Rapport Scientifique INERIS, 2010, 2009-2010, pp.32-34. ineris-01869271

HAL Id: ineris-01869271

https://ineris.hal.science/ineris-01869271

Submitted on 6 Sep 2018

HAL is a multi-disciplinary open access archive for the deposit and dissemination of scientific research documents, whether they are published or not. The documents may come from teaching and research institutions in France or abroad, or from public or private research centers.

L'archive ouverte pluridisciplinaire **HAL**, est destinée au dépôt et à la diffusion de documents scientifiques de niveau recherche, publiés ou non, émanant des établissements d'enseignement et de recherche français ou étrangers, des laboratoires publics ou privés.

La modélisation des aérosols organiques secondaires

B. Bessagnet

Les aérosols atmosphériques – fines particules solides ou liquides en suspension dans l'atmosphère – peuvent être émis directement par l'homme (rejets industriels, échappements automobiles, combustions diverses, etc.) ou bien naturellement (feux naturels, poussières volcaniques, embruns marins, etc.) : il s'agit alors d'émissions primaires. Les aérosols peuvent également provenir de réactions chimiques en phase gazeuse (oxydation par OH, O_3, etc.) formant des espèces condensables (à faibles tensions de vapeur saturante), qui contribuent ainsi à la formation de particules : on parle alors de sources secondaires.

D'un point de vue réglementaire, on distingue les concentrations de particules de diamètre inférieur à 2.5 µm (PM 2.5) et inférieur à 10 µm (PM 10), les particules les plus fines pouvant pénétrer plus profondément dans le système respiratoire. Les particules sont composées d'une grande variété d'espèces organiques et inorganiques (carbone élémentaire, sulfates, nitrates, ammonium, sels marins, etc.).

LES AÉROSOLS ORGANIQUES

Les composés organiques directement émis par les procédés de combustion incomplète d'hydrocarbures ou issus de la combustion du bois par exemple sont appelés Aérosols Organiques Primaires (AOP). Des études récentes ont montré que ces espèces organiques pouvaient s'évaporer dès l'émission par effet de dilution de l'effluent.

D'autres espèces sont formées dans l'atmosphère par réactions d'oxydation en phase gazeuse et/ou hétérogène de composés organiques volatils (COV) émis par la végétation (isoprène, monoterpènes, etc.) et les activités humaines. Ces composés particulaires, majoritairement dans le mode granulométrique fin (inférieures à 300 nm), sont appelés Aérosols Organiques Secondaires (AOS). Les sources de composés « précurseurs » de ces particules secondaires constituent une question autant scientifique que politique. En effet, ces précurseurs peuvent provenir de l'industrie, de processus de combustion (bois), mais également de sources naturelles telles que la végétation : de nombreuses espèces d'arbres comme le chêne émettent par les stomates de leurs feuilles des terpènes dans l'atmosphère sous forme gazeuse. L'émission est d'autant plus importante que la température et le rayonnement solaire augmentent et les AOS ont la particularité de se trouver en équilibre thermodynamique entre phase gazeuse et phase particulaire. Les feux de forêt constituent également une source importante de particules organiques. Une des grandes problématiques de ces émissions réside dans la détermination de la hauteur à laquelle doivent être injectées ces émissions dans les modèles, car la dynamique du feu génère en effet une colonne d'émission qui peut varier d'une centaine de mètres à plusieurs kilomètres en fonction de l'intensité de celui-ci. Ces difficultés de modélisation dues aux émissions ont été décrites dans Menut et Bessagnet (2010) [4], article dans lequel sont recensées les principales lacunes des modèles de prévision et simulation de la qualité de l'air.

Enfin, des composés organiques issus de la décomposition des débris d'insectes, de plantes, de cires émises par les plantes peuvent se retrouver aérosolisés mais sont généralement dans la fraction « grossière » des particules (de diamètre supérieur à 2,5 µm).

Or, considérant l'enjeu très sensible de la réglementation des niveaux de concentrations de particules fines dans l'atmosphère pour les années à venir,

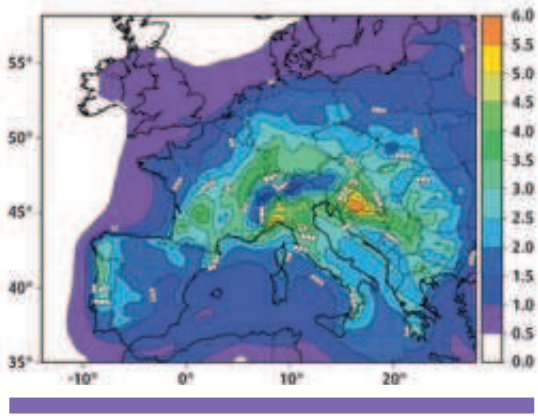

FIGURE 1
CARTOGRAPHIE DES CONCENTRATIONS MOYENNES ANNUELLES (µg/m³) EN AÉROSOLS ORGANIQUES SECONDAIRES EN 2003

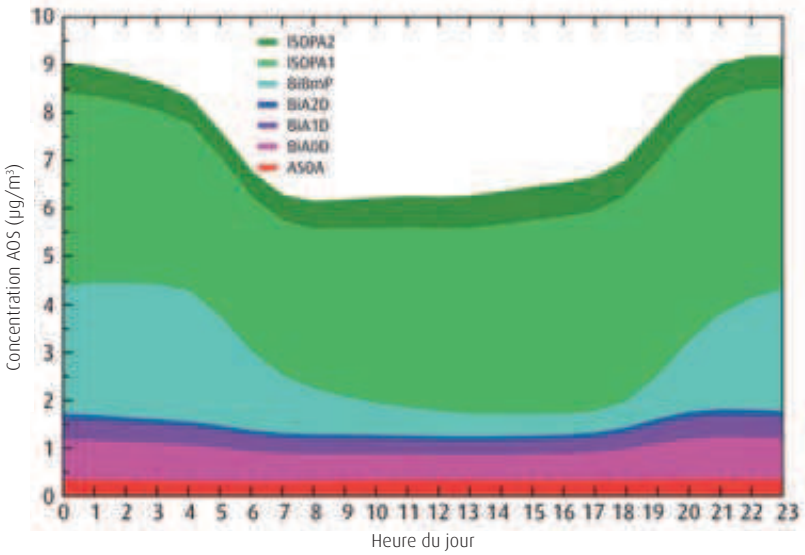

FIGURE 2
ÉVOLUTION DES CONCENTRATIONS EN AÉROSOLS ORGANIQUES SECONDAIRES DANS LA JOURNÉE PAR TYPOLOGIE D'AÉROSOL.
Les AOS ont une origine naturelle issue de l'oxydation de l'isoprène (ISOPA2, ISOPA1) des monoterpenes (BiBmP, BiA2D, BiA1D, BiA0D) et une origine anthropique (ASOA).

il est évident que la connaissance des contributions relatives des sources de précurseurs est déterminante. Notamment, il convient de distinguer la part anthropique sur laquelle une réglementation pourrait être efficiente et la part biotique sur laquelle il est rarement possible d'envisager des moyens d'actions. Cependant, la composante « organique » des aérosols est certainement l'une des plus difficiles à modéliser, à cause des nombreux processus complexes mis en jeu et des besoins en données d'entrée que la simulation génère (émissions de sources naturelles, des feux de forêts, du chauffage résidentiel au bois par exemple, et météorologie qui influence les processus photochimiques). Ainsi, l'INERIS, en charge du codéveloppement du code CHIMERE avec l'IPSL[1] depuis 2001, a lancé un programme de recherche sur l'intégration d'un module spécifique de simulation des aérosols organiques secondaires dans le code. Ces travaux s'organisent avec d'autres travaux menés par l'Institut, de nature métrologique, dédiés à la caractérisation et la mesure des aérosols organiques secondaires, notamment à l'occasion de grandes campagnes nationales telles que la campagne MEGAPOLI sur Paris.

QUELQUES RÉSULTATS RELATIFS À LA MODÉLISATION DES AÉROSOLS ORGANIQUES SECONDAIRES

Des travaux récents réalisés par l'INERIS mettent en avant le rôle important de l'isoprène dans la formation des aérosols atmosphériques en Europe (Bessagnet *et al.*, 2009) [2]. La question des émissions d'origine naturelle a été traitée en implantant dans CHIMERE un nouveau modèle d'émissions de composés organiques volatils biotiques, MEGAN, développé par une équipe américaine du NCAR[2] (Guenther *et al.* 2006) [5]. Une quinzaine de nouvelles réactions chimiques ont été introduites dans le modèle. Elles mettent en jeu l'isoprène, l'α-pinène, le β-pinène mais aussi des composés plus rarement pris en compte tels que le sabinène, le δ3-carène, le myrcène et l'ocimène. Ces composés sont amenés à réagir dans un cycle de réactions impliquant des composés organiques d'origine anthropique tels que le toluène, le benzène, le triméthylbenzène et autres alcanes et composés aromatiques. Enfin, cette mise à jour des modules d'aérosol de CHIMERE a été évaluée par comparaison avec des données d'observation issues de la campagne de mesure européenne CARBOSOL (programme européen FP6), et de campagnes et de supersites de mesures du programme onusien EMEP[3] de la Convention sur le Transport des Polluants Atmosphériques à longue Distance (CLRTAP). Ces comparaisons modèle/mesures ont montré que les modèles sous-estimaient toujours les concentrations en carbone organique en hiver. Cela concerne plus particulièrement les pays du Sud de l'Europe, où le bois est un moyen de chauffage courant. La quantification correcte de ces émissions reste toujours une question en suspens. En revanche, en été, les contributions « naturelles » calculées par le modèle CHIMERE s'avèrent correctement reproduites. De manière générale, cette étude a mis en évidence des concentrations élevées sur les zones forestières (figure 1) et donc qu'une fraction importante de ces aérosols est d'origine naturelle. Les concentrations simulées varient de 0.5 µg/m³ dans le nord de l'Europe à 4 µg/m³ dans les zones forestières (Forêt-Noire, Portugal, Massif central) en 2003. Cette étude a également mis en lumière l'importance des émissions d'isoprène en Europe comme évoqué dans de nombreuses études aux États-Unis. Ces travaux ont permis de cartographier la contribution secondaire des composés organiques particulaires. Elle varierait de 30 à 80 % en Europe, les fractions les plus élevées étant rencontrées dans les Pyrénées,

RÉFÉRENCES

[1] Bessagnet B., Seigneur C., Menut L. Impact of dry deposition of semi-volatile organic compounds on secondary organic aerosols, Atmospheric Environment, Volume 44, Issue 14, May 2010, Pages 1781-1787, ISSN 1352-2310, DOI: 10.1016/j.atmosenv.2010.01.027.

[2] Bessagnet B., Menut L., Curci G., Hodzic A., Guillaume B., Liousse C., Moukhtar S., Pun B., Seigneur C., Schulz M., 2009. Regional modeling of carbonaceous aerosols over europe e focus on secondary organic aerosols. J. Atmos. Chem. 61 (3), 175e202. doi:10.1007/s10874-009-9129-2.

[3] Hodzic A., Jimenez J. L., Madronich S., Aiken A. C., Bessagnet B., Curci G., Fast J., Lamarque J. F., Onasch T. B., Roux G., Schauer J. J., Stone E. A., Ulbrich I. M. Modeling organic aerosols during MILAGRO: importance of biogenic secondary organic aerosols, Atmos. Chem. Phys., 9, 6949-6981, doi:10.5194/acp-9-6949-2009, 2009.

[4] Menut L., Bessagnet B. Atmospheric composition forecasting in Europe, Ann. Geophys., 28, 61-74, 2010.

[5] Guenther A., Karl T., Harley P., Wiedinmyer C., Palmer PI, Geron C., 2006 Estimates of global terrestrial isoprene emissions using MEGAN, Atmos. Chem. Phys, 6, 3181-3210.

MISE EN PLACE DES SERVICES « ATMOSPHÈRE » DANS LE PROGRAMME GMES

En 2009, les programmes dédiés à la mise en place de services préopérationnels pour la surveillance de l'environnement dans le cadre du GMES (Global Monitoring for Environnent and Security) ont été lancés par la Commission européenne. L'INERIS contribue activement au projet MACC (Monitoring Atmospheric Composition and Climate) coordonné par le Centre européen de prévision météorologique à moyen terme (ECMWF). L'INERIS et Météo France, partenaires du consortium PREV'AIR, tirent largement parti de cette expérience pour coordonner au sein de MACC les actions de recherche et développement relatives à la qualité de l'air au niveau européen (échelle dite « régionale »). Ainsi ils sont responsables de la mise en place de services d'élaboration et de diffusion de prévisions à court terme et de cartographies de la qualité de l'air en Europe, ainsi que de la diffusion de produits issus de résultats de modèles, dans lesquels sont assimilées des observations de toute provenance (*in situ*, satellite). Les résultats obtenus sont des cartes de pollution, considérées comme les meilleures représentations possibles des champs de concentrations des polluants atmosphériques et des indicateurs d'impacts classiquement étudiés (moyennes annuelles, journalières, dépassements de seuil...). L'originalité de ces produits « qualité de l'air » développés dans MACC est qu'ils sont basés sur les résultats provenant de 6 modèles mis en œuvre par différentes équipes européennes. Le résultat final est un « ensemble », une moyenne correctement pondérée, des résultats de ces 6 modèles, de façon à tirer profit des qualités intrinsèques de chacun. L'expérience s'avère prometteuse, avec une amélioration sensible des prévisions produites par le système. Cela n'empêche pas chaque équipe de se concentrer sur la qualité de ses propres modèles. Au-delà de leur résolution spatiale nettement améliorée (25 km sur l'Europe au minimum pour les modèles actuels), ces derniers sont en constante évolution et leurs paramétrisations sont de plus en plus sophistiquées, pour mieux reproduire les phénomènes physicochimiques qui régissent les concentrations de polluants dans l'air. C'est dans cette logique que l'INERIS consacre un investissement important à la prise en compte de nouveaux processus de formation des aérosols dans CHIMERE.
www.gmes-atmosphere.eu

le Massif central et en Espagne, alors que l'on retrouve logiquement les plus faibles dans les pays industrialisés d'Europe de l'Est. Cependant les contributions anthropiques pourraient encore être sous-estimées en raison de certaines approximations faites dans le module chimique. Dans cette étude les émissions de feux de forêts prises en compte pourraient être améliorées, action qui va être réalisée en collaboration avec l'IPSL–(LMD[4]).

Les résultats obtenus sont cohérents avec une étude similaire menée en collaboration avec le NCAR sur Mexico où a été également mis en évidence le rôle important des émissions naturelles par la végétation sur les concentrations en particules au-dessus de cette mégacité [3].

L'utilisation du modèle CHIMERE et le développement d'un module d'aérosol secondaire en collaboration avec le CEREA[5] a montré que le cycle diurne des concentrations d'aérosol présentait une diminution marquée en journée des concentrations en AOS (figure 2) par évaporation mais aussi du fait de l'augmentation de la hauteur de couche limite[6] (Bessagnet *et al.*, 2010) [1]. Cette étude a montré l'impact important de certains paramètres météorologiques comme l'humidité relative qui accroît le dépôt des espèces secondaires pendant la nuit. En effet, les molécules d'AOS se retrouvent à la fois sous formes gazeuse et particulaire, on les appelle espèces organiques semi-volatiles. Dans les modèles, le dépôt de ces espèces en phase gazeuse est généralement négligé, or nous avons montré que l'omission de ce processus pouvait modifier sensiblement les concentrations modélisées.

La compréhension des processus de formation des composés reste cependant largement incomplète et les travaux de l'INERIS s'inscrivent dans une série d'études scientifiques qui visent à améliorer les modèles permettant de simuler et prévoir la qualité de l'air. Elles contribuent ainsi à l'évolution des systèmes opérationnels de modélisation dans lesquels est impliqué l'Institut, PREV'AIR et la chaîne de calcul CHIMERE pour les études d'appui au ministère en charge de l'Écologie.

ABSTRACT

An improved and complete secondary organic aerosols (SOA) chemistry scheme was recently implemented in the CHIMERE model. The implementation of isoprene chemistry for SOA significantly improves agreement between long series of simulated and observed particulate matter concentrations. While simulated organic carbon concentrations are clearly improved at elevated sites by adding the SOA scheme, time correlation are impaired at low level sites in Portugal, Italy and Slovakia. At several sites a clear underestimation by the CHIMERE model is noticed in wintertime possibly due to missing wood burning emissions as shown in previous modeling studies.

In Europe, the CHIMERE model gives in 2003 yearly average SOA concentrations ranging from 0.5 µg/m^3 in the Northern Europe to 4 µg/m^3 over forested regions in Spain, France, Germany and Italy. Isoprene chemistry has a strong impact on SOA formation when using current available kinetic schemes.

Dry deposition of semi-volatile organic compounds (SVOC) is not currently treated in most chemical transport models of air quality and this omission has been identified as a possible major source of uncertainty. The effect of dry deposition of SVOC on the concentration of secondary organic aerosols (SOA) is investigated in summertime with the chemical transport model CHIMERE that simulates SOA concentrations by means of molecular SOA surrogate species. Omitting dry deposition could overestimate SOA concentrations by as much as 50%. This overestimation is larger during nighttime due to higher relative humidity.

NOTES

(1) IPSL : Institut Pierre-Simon Laplace (Région parisienne, France)
(2) NCAR : The National Center for Atmospheric Research (USA)
(3) Co-operative programme for monitoring and evaluation of the long range transmission of air pollutants in Europe
(4) LMD : Laboratoire de Météorologie Dynamique (École Polytechnique, Palaiseau, France)
(5) CEREA : Centre d'Enseignement et de Recherche en Environnement Atmosphérique (Champs-sur-Marne, France)
(6) Couche limite : zone de l'atmosphère directement influencée par la surface terrestre, généralement comprise entre 50 et 2000 m