Synthèse des acquis sur les processus physico-chimiques

Laurent MENUT
Institut Pierre Simon Laplace
Laboratoire de Météorologie Dynamique, Palaiseau
[menut@lmd.polytechnique.fr]

Ce document reprend les principaux résultats présentés le 31 Mars 2006 au colloque de restitution ESCOMPTE à Avignon. Il s'agit ici de dresser un bilan de ce que la campagne ESCOMPTE a permis de mieux comprendre concernant les processus physico-chimiques amenant à des pics de pollution. La plupart de ces résultats ont été publiés par l'ensemble des participants de la campagne dans des revues de rang A, les références sont reprises en fin de document.

Introduction:

L'étude de la pollution atmosphérique n'est pas nouvelle et on relève déjà de nombreuses études visant à mieux comprendre les interactions complexes entre dynamique et chimie atmosphérique pouvant conduire à des concentrations trop élevées de polluants au sein de la troposphère. Alors que la situation de la région d'étude d'ESCOMPTE combine un ensemble d'environnements complexes, il est à noter que différentes études de même type avaient été conduites les années précédentes en Europe et que l'on peut rappeler brièvement afin de mieux cerner les besoins liés à la mise en oeuvre d'ESCOMPTE.

L'étude de la pollution photo-oxydante (ozone, oxydes d'azotes, composés organiques volatils) dans des régions fortement urbanisées a fait l'objet de campagnes de mesures dédiées. On relève récemment la campagne BERLIOZ (1998) à Berlin et la campagne ESQUIF (1998-2000) à Paris. Pour ces deux expériences, on relève quelques caractéristiques communes: des villes Européennes de plus de dix millions d'habitants, en terrain à relief relativement faible et éloignées de la mer. Toujours pour une grande cité, la campagne PIPAPO-LOOP à Milan (1998) a ajouté la dimension de proximité de sites très industrialisés au problème. Enfin, on note aussi la campagne POVA, à Chamonix (2002-2003) qui a montré toute la difficulté de l'étude de la pollution en milieu montagneux.

Ainsi, la localisation et typologie de ces différents sites ont été riches en enseignement sur l'impact de leurs caractéristiques sur la dynamique, les types d'émissions surfaciques et la chimie atmosphérique résultante. Cela a permis notamment, en séparant les contributions relief/industries/mer, de progresser sur leur mesure, modélisation et donc compréhension.

La campagne ESCOMPTE a fait suite en région de Fos-Berre et Marseille durant les étés 2000 et 2001. Le site a principalement été choisi après un bilan simple: la région est l'une des plus polluées en Europe. Elle est aussi une des plus complexes à étudier: en bord de mer, mais entouré de reliefs montagneux importants (Pyrénées et Alpes), elle abrite un site industrialisé conséquent avec la zone de Fos-Berre. Enfin, relativement proche de ces industries, Marseille et ses alentours représente une des grandes agglomérations Européenne, donc une population nombreuse et sensible à une pollution atmosphérique importante.

Le but de ce type d'étude est avant tout de mieux comprendre les situations pouvant mener à des pics de pollution afin de pouvoir engager des mesures pour les réduire, voire les éliminer. Modifier des activités en cours afin de modifier un évènement probable nécessite donc d'anticiper la situation, de la prévoir. Or, la pollution atmosphérique est un bilan mélangeant tellement de processus complexes et différents que seule la modélisation peut permettre d'estimer des mesures fiables. Il faut donc jauger de la capacité des modèles à reproduire des champs de concentrations de polluants sur

une région donnée.

Cette quantification de la capacité des modèles existants à reproduire ou non des événements de pollution est le but premier de cette campagne. Pour cela, il a été nécessaire de construire des “outils” à mettre d'estimer au mieux cette capacité:

- Etablir une base de données de référence en terme de mesures
- Etablir un cadastre d'émissions à jour et à bonne résolution

La base de données doit reprendre l'ensemble des mesures réalisées pendant la campagne sous un format accessible facilement aux expérimentateurs pour analyser et comparer leur données, et aux modélisateurs pour les comparer à des champs simulés par des modèles. Ainsi, il a fallu ordonner l'ensemble des mesures au sein d'un même ensemble sachant qu'elles représentent des variables différentes (vent, température, concentrations d'ozone), des fréquences temporelles différentes (de la seconde à l'heure), des localisations différentes (fixes en surface, aéroportées...), et donc des représentativités différentes mais aussi des erreurs instrumentales différentes etc.

Le cadastre d'émissions, quant à lui, est un pré-requis indispensable à une analyse par modélisation d'évènements observés. Il n'en reste pas moins l'un des aspects les plus délicats de ce genre d'étude étant très difficile à évaluer et devant, en permanence, être ré-évalué.

Un travail de synthèse de connaissances acquises a été réalisé:

- Jauger de l'avancement des connaissances en termes de processus
- Jauger de l'avancement de l'intégration de ces processus dans les outils numériques

Car les modèles représentant toujours une version simplifiée de la réalité, un délai de maturation des résultats scientifiques liés à la mesure est toujours existant (et non négligeable). Il faut envisager de manière différente ce que l'on connait car on vient de l'observer et ce que l'on représente de manière stable dans un modèle. Ainsi, par exemple, si les mesures liées aux aérosols sont de plus en plus fines et à même de caractériser des processus très complexes, ces aérosols ne sont encore représentés que très grossièrement dans les modèles.

La suite de ce document s'articulera principalement selon trois sujets: (i) la dynamique, (ii) les émissions, (iii) la chimie, incluant les gaz et les aérosols.

2. Dynamique:

La première difficulté d'étude de la région d'ESCOMPTE est sa dynamique propre. Par rapport à un écoulement météorologique continental classique, il est nécessaire de prendre en compte nombre de perturbations qui vont modifier cet écoulement. Parmi ces processus locaux à méso-échelle, on note principalement les effets de **brise** sur le mélange turbulent près des côtes, les effets de vent de pente lorsque l'écoulement aborde un relief et les modifications apportées par le tissu urbain sur son environnement.

Toute la difficulté est de quantifier ces influences sachant que ces différents processus n'ont pas la même amplitude, et peuvent interagir. La question posée est donc: s*ait-on comment interagissent ces phénomènes?* Afin d'avoir des éléments de réponse, il faut commencer par quantifier notre capacité à analyser et modéliser ces phénomènes.

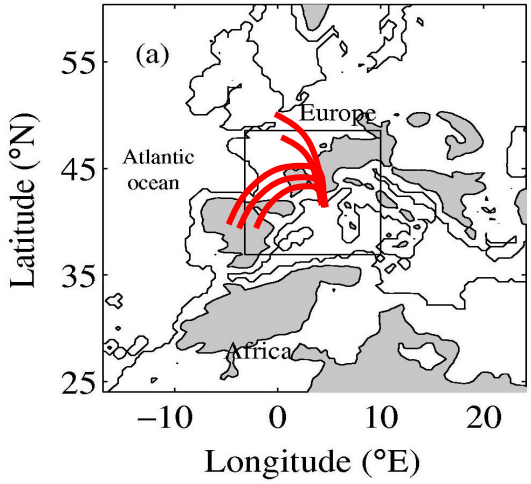
Pendant cette campagne, un grand nombre d'expériences ont été dédiées à la caractérisation de ces processus indépendamment les uns des autres. Une synthèse très complète de la plupart des études

réalisées est publiée dans [Drobinski et al., 2006]. Ces différents travaux ont permis de caractériser un grand nombre de situations différentes afin de savoir si l'on savait reproduire ces différents processus dynamiques indépendamment les uns des autres, puis de manière couplée. Plus précisément, les questions se sont orientées vers la capacité à simuler des périodes de manière ponctuelle uniquement ou plus généralement de manière systématique, dans un cadre de prévision.

Finalement, ces études dynamiques ont été vues comme des études amont pour la pollution, afin de savoir si les différentes situations (mistral, brises..) étaient des facteurs aggravants ou non pour les situations de pollution.

A l'échelle synoptique

Des masses d'air déjà chargées en ozone peuvent être advectées sur la zone ESCOMPTE depuis plusieurs centaines de kilomètres: Espagne, Nord de l'Europe. Le problème de la pollution sur une étendue spatiale restreinte comme la zone ESCOMPTE n'est donc pas limité à cette région.



Comme cela avait été précédemment montré pendant la campagne ESQUIF, le transport à longue distance en Europe de l'Ouest peut importer des polluants qui auront une part importante dans le bilan final localement mesuré. Dans le cas particulier d'ESCOMPTE, et comme l'ont montré des études trajectographiques, la majorité des flux arrivant sur la région sont issues d'Espagne et du Benelux: Cela siginifie que des masses d'air fortement chargées en polluants peuvent être mesurées sur le site et donc que la prévision de la pollution ne sera valide que lorsque le domaine complet de la Figure ci-dessus sera correctement représenté dans les modèles. Il est donc indispensable de savoir caractériser la part relative de l'ozone produit sur place de celui déjà formé et advecté sur le site d'étude. [Cousin et al., 2005] ont montré que non seulement différentes origines pouvaient être mesurées (par lidar) et simulées mais que ces concentrations étaient réparties verticalement sous forme de couches assez stratifiées. Cela implique aussi une variabilité complexe des concentrations de polluants dans la troposphère libre et donc le besoin de réaliser des mesures non seulement dans la couche limite mais aussi jusqu'a une dizaine de kilomètres d'altitude comme l'ont montré [Colette et al., 2006].

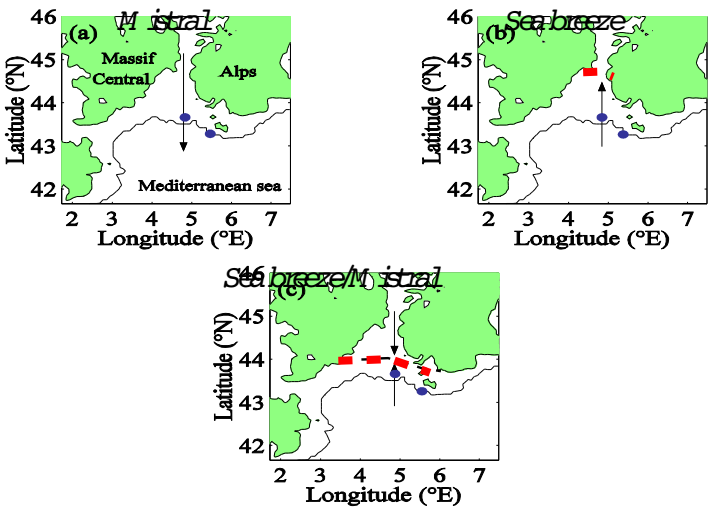
Météorologie urbaine:

La météorologie urbaine est un domaine de recherche assez récent, en comparaison des autres types d'études réalisées pendant ESCOMPTE. Depuis les années 1970 (*Oke, Grimmond...*), la mesure et la modélisation ont montré que la ville avait une influence non négligeable sur son proche environnement. De par son chauffage et les matériaux constituant sa surface, les bilans de flux de

chaleur et d'humidité sont modifiés en mileux urbains: ainsi, il est souvent observé des températures plus fortes et une humidité plus faible en ville qu'aux alentours. De plus, il a été montré que la ville avait tendance à stocker plus facilement de la chaleur. Le fait de relacher cette chaleur emmagasinée avec des temps caractéristiques plus longs qu'une environnement continental naturel (champs, foret) est à l'origine de panache d'anomalies de température et d'humidité sous le vent de la ville.

Météorologie côtière:

Par vent faible, la brise de mer peut se former et créer des cellules et du transport perpendiculairement à la côte, comme l'ont discuté [Corsmeier et al., 2005] et [Bastin et al., 2005]. La figure ci-dessous présente ainsi schématiquement les différentes configurations dynamiques de brises qui ont été observées et que des modèles à très fine échelle, comme Méso-NH, ont tenté de reproduire. On a d'une part un régime de mistral allant du Nord vers le Sud et dégageant des polluants émis et formés au dessus des grandes agglomérations vers la mer (fig.(a)). On observe d'autre part d'autres régimes avec des brises qui, au contraire, vont ramener de l'air de la mer vers l'intérieur des terres, donc vers le Nord, fig.(b). Il a été observé, dans cette configuration, que des panaches de polluants, formés sur les côtes, pouvaient pénétrer jusqu'a une centaine de kilomètres dans les terres. Alors que l'on a vu précédemment que des polluants d'origine lointaine pouvaient être pris en compte dans le bilan mesuré localement, on voit donc aussi ici que ce processus peut se produire à nettement plus petite échelle et sur des périodes de temps plus réduites. Ces deux processus pouvant intervenir à des altitudes différentes, ou à même altitude et en même temps, il est montré, fig(c), que la conjonction des deux créait une ligne de convergence à quelques dizaines de kilomètres des côtes ou les polluants se concentraient de manière importante, des dépassements de seuils sur les concentrations pouvant alors être observés.



La zone ESCOMPTE est donc un mélange entre ces processus complexes de dynamique locale, urbaine et de brise de mer, l'ensemble étant lui aussi sous l'influence de transport à plus longue distance, ainsi que de régimes de vent régionaux avec le Mistral. Des études ont donc été consacrées à la caractérisation du régime du vent et des concentrations d'ozone observées. Ainsi, il a été montré que pour les cinq cas ou il n'y a avait que du mistral, les moyennes des maxima diurnes étaient de 86 µg.m-3. La même valeur a été relevée pour des cas de brise seule. Par contre, lorsque les deux régimes de vent sont observés simultanément , on relève les plus forts concentrations d'ozone, 120ug/m3.

A l'échelle régionale

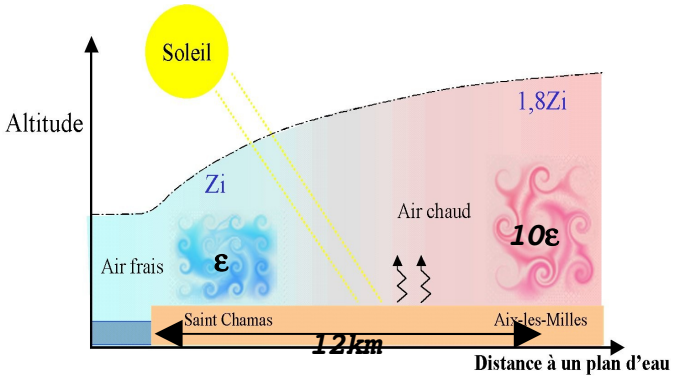
A mi-chemin entre transport à longue distance et brises locales (de mer ou urbaines), l'échelle

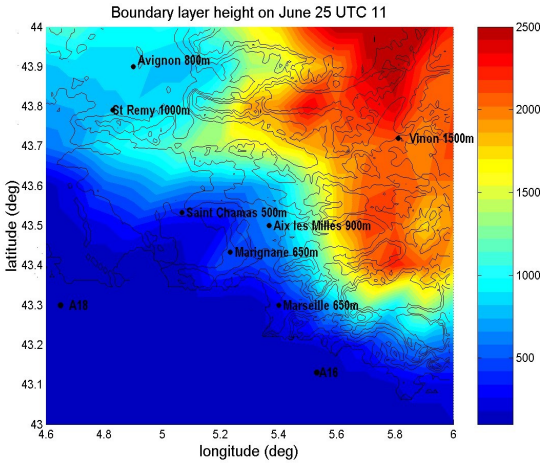
régionale caractérise un écoulement dynamique potentiellement perturbé par les nombreux reliefs encadrant la région. Deux vallées susceptibles de transporter des masses d'air polluées dans les terres: Durance et Rhône. Comme l'ont montré [Bastin et al. AR 2005; Kalthoff et al. AR 2005], une faible influence de la Vallée du Rhone a été mise en avant sur le bilan thermodynamique de la région. Par contre, une forte influence a été identifiée pour la vallée de la Durance sur l'écoulement. Enfin, [Bastin and Drobinski BLM 2005; Puygrenier et al. AR 2005] ont montré, dans le cadre des interactions de processus, que la brise de mer maintient et renforce les vents de pente ascendants.

Mélange vertical et structure de la couche limite:

Si l'on revient à la région étudiée uniquement, on note que de nombreux résultats ont été trouvé sur la description fine de la structure de la couche limite sur la région ESCOMPTE. Cela s'est tout d'abord traduit par de nombreuses mesures originales sur cette région et pour des périodes temporelles longues.

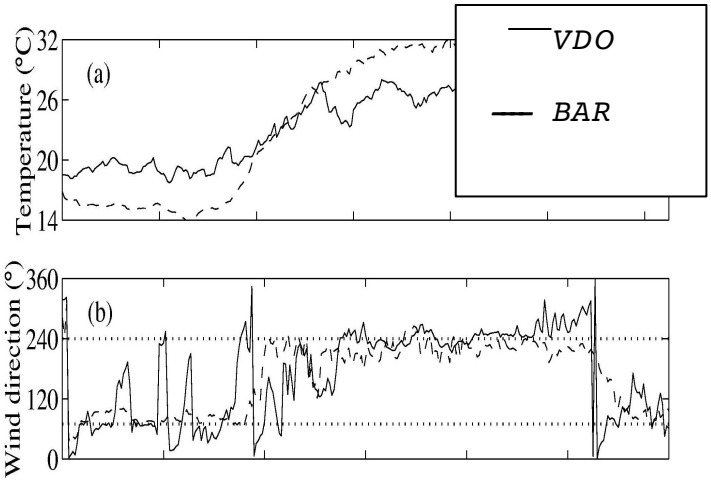
Tout d'abord a été mise en place une structure de mesures en continu de l'évolution de la hauteur de la couche limite (et plus généralement des caractéristiques thermodynamiques de la couche limite). Les résultats sont précisément décrit dans [Caccia et al. AG 2004; Guénard et al. BLM 2005; Puygrenier et al. AR 2005]. Il a notamment été montré que la brise de mer, près de la cote, entrainait des oscillations de l'altitude maximale de la hauteur de la couche limite. Ces oscillations ont été mesurées à Marseille même, mais aussi sur les bord de l'étang de Berre. En parallèle, [Zéphoris et al. AR 2005; Ancellet and Ravetta AR 2005] ont mis en place l'étude de profils verticaux de polluants par lidar pour des polluants à la fois gaz et aérosols. De plus, [Bock et al. PCE 2004; Champollion et al. AR 2005; Bastin et al. GRL 2005] ont mis en place un réseau de surveillance de la vapeur d'eau en installant des systèmes GPS sur toute la région. Il a été ainsi montré que l'intensité du développement de la couche mélangée dépend de la distance à la côte, comme le montre la Figure ci-dessous, synthétisant ces résultats. Sachant que l'épaisseur de la couche mélangée conditionne la concentration en polluant tels qu'ils peuvent être mesurés en surface, on voit que cet “effet” retard sur le développement de la couche limite va induire des épaisseurs plus faible près de la côte, donc pour les villes cotières fortement émettrices et ainsi être un facteur aggravant pour la dispersion des polluants. On notera près des cotes des effets encore plus locaux: notamment l'intensité de la brise ne bord de mer et les vents de pente près des reliefs.

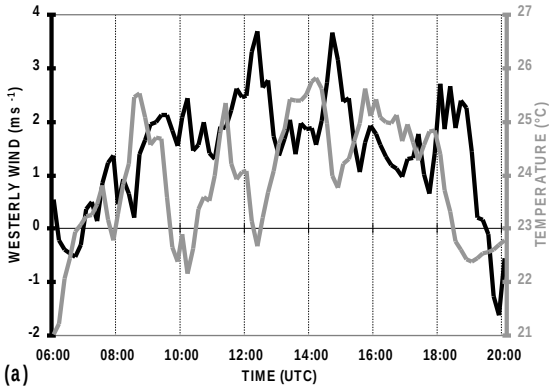




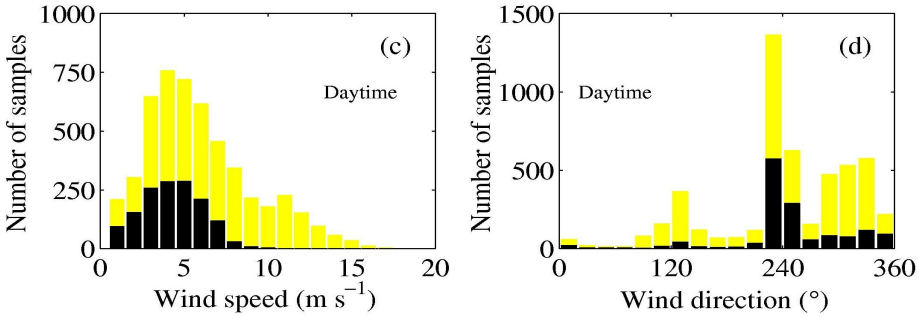
Ce constat a naturellement été un facteur motivant l'étude plus fine des interactions brise / pentes. Des observations par sodars, UHF, stations de surface montrent des oscillations de température et vitesse du vent sur la région de Marseille pendant plusieurs jours et nuits. Pourquoi?

Ainsi, pendant 11 nuits, a été observé un module du vent |U|=3m/s de l'Est Nord-Est, avec une période d'oscillation de 50 à 90mn. Pendant 8 autres jours, on a relevé un vent de l'Ouest Sud-Ouest avec une vitesse moyenne |U|=5m/s, et une période d'oscillation de 120 à 180 minutes. Ce phénomème est par exemple, représenté sur la figure ci-dessous pour le 25 Juin 2001.





La station “Vallon d'Ol” (notée VDO) montre ainsi les effets couplés de la brise de mer avec des vents de pentes. Cela montre clairement la mise en place d'oscillations de fréquence d'à peu près 3h. D'un autre coté, la station “Barden” (notée BAR) montre des caractéristiques de brise de mer uniquement et en terrain plat. Dans ce cas, aucun oscillation significative n'est observée. Le résultat suivant montre que l'on a une anti-corrélation entre température et vent zonal: ce résultat montre la trace de la propagation de la brise de mer dans les terres c'est à dire l'advection d'air maritime plus froid le jour que celui mesuré dans les terres.
Plus précisément sur la station du Vallon d'Ol, la distribution et la force du vent ont été relevées et sont présentées sur la Figure ci-dessous. En jaune, la distribution des données sur toute la période ESCOMPTE (i.e été 2001) et en noir uniquement quand les oscillations sont observées.

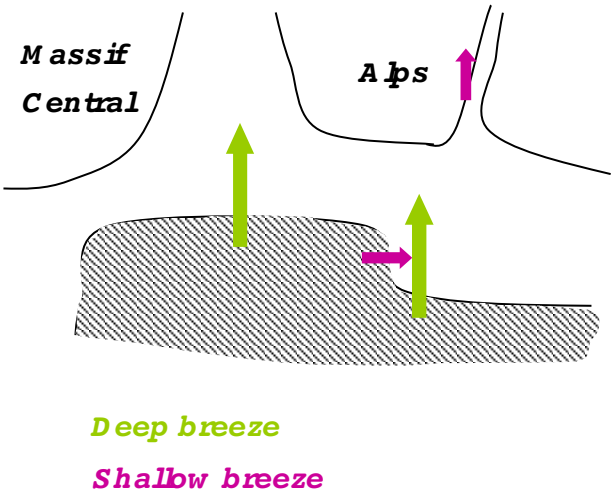


La direction “240” degres correspond a la direction principale moyenne de la brise de mer et vents de pente. On voit donc très clairement que cette direction est celle qui correspond aux oscillaitons

observées. Au contraire, la direction entre 330 et 360 qui correspond à la présence de Mistral montre que les oscillations sont très faibles.

Brise de mer: cas particulier de Marseille:

A la suite de ces résultats, des études ont été engagées sur le cas particulier de Marseille et de ses environs. Comme l'ont montré [Bastin and Drobinski, QJRMS 2005], la forme particulière de la côte induit deux types de brise, à différentes échelles de temps et d'espace: (i) Une brise de mer peu profonde, perpendiculaire au gradient de température (qui suit la cote sur une profondeur dans les terres d'approximativement 300m) et (ii) une brise de mer plus profonde, plus régionale, de profondeur ~1500 m. Ces deux brises différentes interagissent: A Marseille, deux branches de brise peu profondes convergent et créent des mouvements locaux ascendants [Lemonsu et al. BLM]. A l'échelle locale, les interactions entre les brises, vents de pente et écoulement synoptiques créent des structures et stratifications complexes [Delbarre et al. AR 2005; Puygrenier et al. AR 2005].



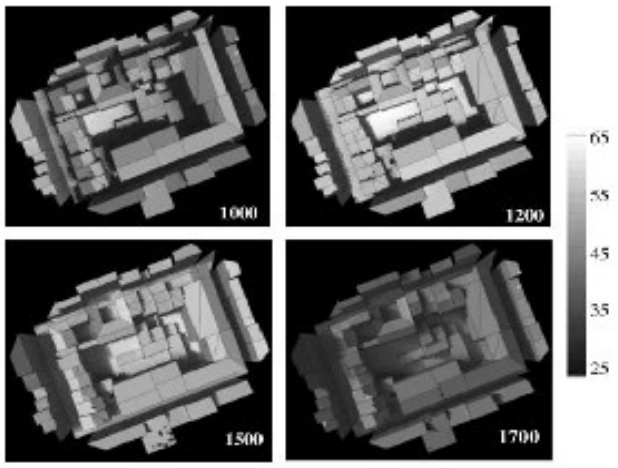
Origine de l'ozone troposphérique au dessus de Marseille:

Toujours au dessus de Marseille, mais cette fois plus en haut en altitude, les travaux de [Colette et al., ACPD 2006] ont consisté à analyser les mesures lidar ozone (ALTO) à des rétrotrajectoires et du modèle chimie-transport. Ont été mises en évidence des structures cohérentes de fortes concentrations en ozone venant d'Espagne (couche limite et/ou stratosphère selon situations). Au delà des rétrotrajectoires ponctuelles qui avaient pu être réalisées précédemment, uniquement dynamiques, une quantification précise de la part de polluants déjà formés et finalement observés à la verticale de marseille a été réalisée.

Etude de la météorologie urbaine: Résultats du projet CLU

Comme cela est présenté de manière complète dans [Mestayer et al, 2005], la campagne ESCOMPTE a été l'occasion unique d'un déploiement important d'instrumentation dédiée à la mesure des flux urbains. Cela a aussi été l'occasion unique de comprendre et d'acquérir des contraintes fines et à haute résolution spatiale et temporelle pour les schémas urbains de modèles comme le modèle TEB. Les résultats sont une caractérisation de la variabilité des champs d'humidité et de température pour la ville de Marseille: une distribution spatiale des températures et de l'humidité assez

homogènes, avec des conditions sèche et fraiches par temps de mistral, alors que d'importantes hétérogéneités des flux ont été mesurées par brise de mer (avec des conditionsplus humide et avec des températures plus élevées). De plus, l'étude a mis en avant et caractérisé une brise urbaine entre Marseille et sa banlieue.



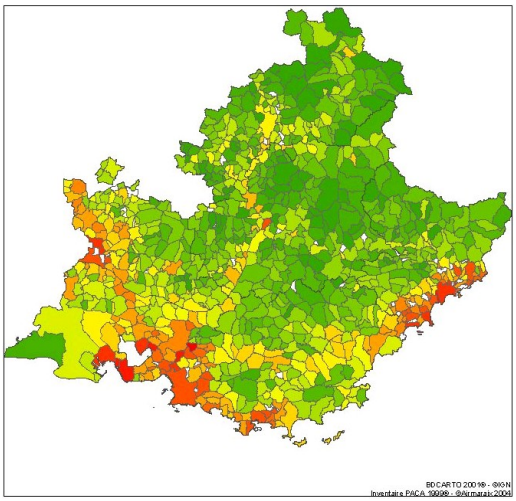
Acquis en dynamique sur la région ESCOMPTE

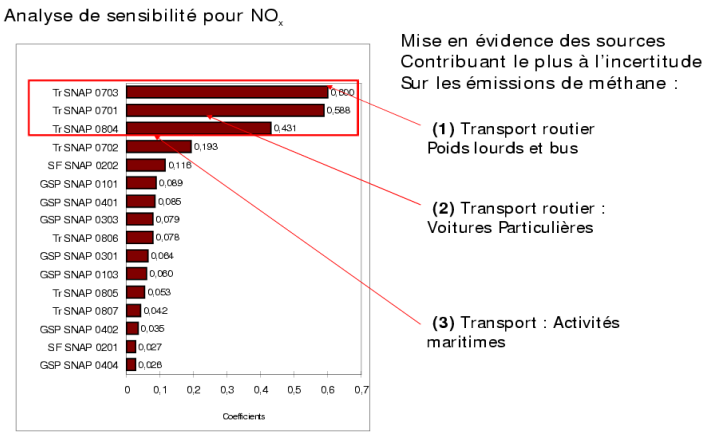
Finalement, l'ensemble de ces travaux a permis de caractériser uen région très complexe d'un point de vue dynamique. L'accumulation des nombreuses hétérogénéités et interactions d'échelles fait de l'étude de cette région l'une des plus complexes en Europe! C'est aussi un cas TRÈS particulier. Il apparait donc impératif de construire des systèmes de modélisation avec: (i) une haute résolution spatiale, (ii) une forte évolutivité des caractéristiques de la surface et (iii) un couplage fort pour gérer les interactions d'échelles. Ces systèmes de modélisation sont (partiellement) en cours de développement et validation. Leur mise en oeuvre apparait indispensable pour cette région, avant de pouvoir garantir une fiabilité de prévision à petite échelle. Restent donc des questions ouvertes. Certaines pourront être adressées avec les mesures de la campagne ESCOMPTE. En effet, même si les résultats déjà acquis sont très riches et complets, la base de données disponible peut encore permettre d'établir des nouveaux résultats originaux. Pour le transport horizontal, il va s'avérer nécessaire de savoir si l'on peut quantifier heure par heure la part réelle de transport à longue distance sur les cas de pollution locaux à la région ESCOMPTE? Si oui, dans quelle mesure cette connaissance pourra-t-elle intégrer la variabilité urbaine dans un système de prévision?
Concernant le transport vertical, peut-on quantifier précisément la part de polluants échangés entre la troposphère et la stratosphère? Est-ce véritablement significatif? Peut-on clairement quantifier la représentativité de ce que l'on a estimé sur ESCOMPTE pour quelques cas? L'appliquer à l'ensemble des pointes de pollution? À l'ensemble des situations? (opérationnel?)

3. Les émissions

Le cadastre d'émissions, bien avant d'être le “moteur” indispensable d'un modèle de chimie-transport, est l'outil permettant la caractérisation de la pollution en tout point d'un territoire. Il permet la sectorisation des rejets en aidant à la définition des politiques de réduction de ces rejets (PPA, PDU, PRQA). Il peut donc ensuite être mis en oeuvre pour des outils géostatistiques ainsi que pour la modélisation déterministe. En dernier lieu, il s'avère précieux comme outil d’aide pour l’optimisation du réseau de surveillance de la région concernée et permet l'évaluation de l’impact d’une infrastructure et des politiques d’aménagement du territoire. L'état de l'art sur la constitution fine d'un cadastre d'émissions avant ESCOMPTE est très complet et différentes étapes sont réalisées: Tout d'abord la

collecte de données statistiques (INSEE etc.) ainsi que des données météorologiques sur un ensemble de périodes (Météo-France etc.). Pour étayer ces statistiques par des mesures ponctuelles, sont réalisées des enquètes sur les activités commerciales, industrielles de la région. Enfin, l'ensemble de ces informations doit être agréger en un ensemble cohérent pour alimenter ensuite les modèles. Il faut ainsi tenir compte de la distribution en secteurs d'activité afin d'arriver finalement à une redistribution en espèces chimiques réelles puis à un regroupement en espèces modèles. Le résultat de ce type de travail de manipulation de base de donnee est illustré sur la Figure ci-dessous, qui montre la respatialisation de masses de polluants émis sur la région ESCOMPTE et suivant un découpage communal (conduisant ensuite à une répartition kilométrique pour les modèles eulériens à maillages réguliers).





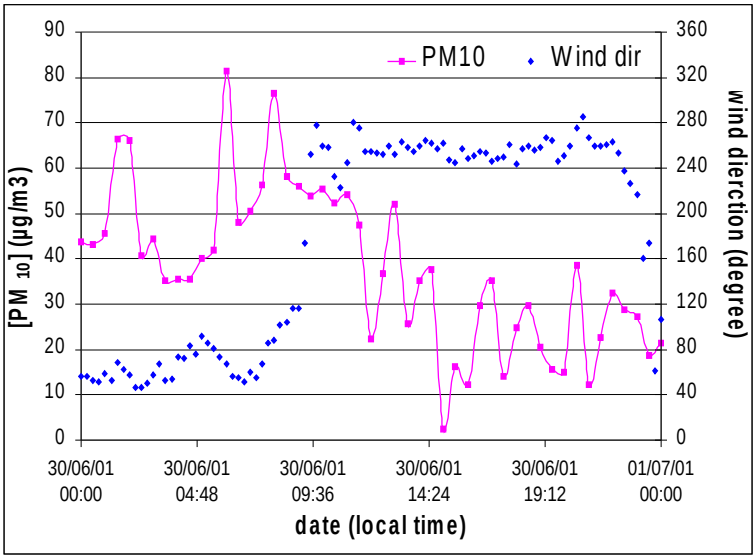
Dans le cadre d'ESCOMPTE, et vus les investissements réalisés aussi bien logistiques que temps de travail, il a été prévu de réaliser non seulement un cadastre le plus complet et à jour possible, mais aussi de mettre en place sa procédure de réactualisation, ainsi que l'estimation des incertitudes liées à la construction de ces données. Cette méthodologie, [Ponche et al., 2005], a pour objectif d'estimer des incertitudes par grandes catégories de sources et par types de composé chimique. La méthodologie est appliquée à l'inventaire ESCOMPTE 1999 afin d'estimer les incertitudes au niveau SNAP 1, prioritairement pour les polluants suivants : (1) le dioxyde de soufre (SO2), (2) les oxydes d'azotes (NOx), (3) le méthane (CH4), (4) les composés organiques volatiles non méthanique (COVNM), (5) le monoxyde de carbone (CO) et (6) le dioxyde de carbone (CO2). L'estimation de la propagation de l'incertitude a été réalisée sous la forme de flux d'émissions combinés à des facteurs d'émissions et secteurs d'activités en combinant les résultats par méthode Monte-Carlo. La Figure ci-dessus (droite) présente ce type de résultat pour les NOx. On peut voir notamment que les secteurs d'activités les plus incertains sont les différents types de transport routier.

Ce que ESCOMPTE a apporté est avant tout une expérience forte sur la constitution d'un cadastre aussi important, ainsi, évidemment qu'un outil mis à jour sur une région très polluée. Le résultat est un produit à plus haute résolution par rapport aux autres grandes villes Européennes, profitant d'une méthodologie de réactualisation ainsi que des calculs d'incertitudes sur les émissions. La méthodologie mise en oeuvre a montré l'intérêt de contrôles stricts des résultats, pas à pas: notamment, des erreurs grossières de conception sur certains secteurs d'activité ont pu être

détectées ave l'aide de modélisateurs du projet. Un cadastre étant difficile à évaluer, il est donc fortement recommandé d'utiliser des modèles le plus tôt possible pour éviter des erreurs bloquant l'ensemble du système.
En complément des approches de construction “bottom-up” des cadastres, une étude consistant à faire des mesures fines de concentrations et réactivité pour des localisations proche des sources [projet PRIMEQUAL2, S.Francois, A.Monod, H.Wortham] a été réalisée. Sous l'hypothèse que des tunnels et le centre ville de Marseille sont assez proches de sources pour pouvoir les assimiler aux émissions elles-mêmes, des mesures de radicaux OH (non mesurés pendant la campagne opérationnelle mais pourtant de grande importance en chimie atmosphérique) et de composés réagissant lentement comme l'acétylène (confortant ainsi l'hypothèse que les concentrations reflètent assez les émissions) ont montré un bon accord avec les flux d'émissions proppsés dans le cadastre.

4. Les aérosols

Une méthodologie expérimentale a été développée dans le cadre d'ESCOMPTE afin de pouvoir étudier les aérosols à la fois en masse et en nombre, de disposer de leur distribution granulométrique et cela sur des longues périodes et avec des mesures continues. L'ensemble a pu être réalisé sur des sites différents, représentatifs d'environnements caractéristiques de la région. Les résultats ont pu montré la très forte signature du l'écoulement atmosphérique sur les niveaux de concentrations. Les évènements les plus marqués sont clairement les cas de mistral ou de brise, limitant la stagnation et donc, pour de nombreux cas, de fortes concentrations, comme le montre la Figure ci-dessous.



Concernant la distribution en masse, [Cachier et al, 2005] ont ainsi caractérisé les abondances relatives d'aérosols entre différents sites comme cela est présenté dans le Tableau ci-dessous.

	Pres des sources		Site rural		
	Marseille	Martigues	Réaltor	Dupail	Plan d'Aups
Concentrations (ug/m3)	35	31	25	22	16
Fines (< 2um) en %	58	56	55	56	47

De ce Tableau, deux conclusions peuvent être déduites: (i) on observe un faible gradient depuis les

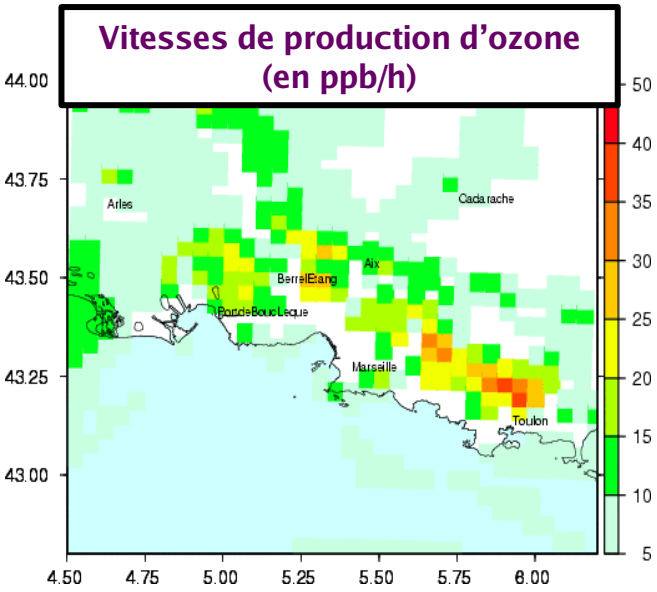
zones sources (urbain) vers les sites éloignés (ruraux), (ii) on observe aussi une prédominance du mode fin sur l'ensemble de la masse mesurée. Cela montre une prédominance de la fraction fine de l'aérosol (55%) sur la masse totale, prédominance qui ne fait que s'accroitre en période de POI (notamment par formation photo-chimique). L'origine de ces particules a été identifiée comme majoritairement des émissions (particules primaires liées au trafic) et de formation secondaire d'aérosols à partir d'un pool de VOC anthropiques ou biogéniques (car grande quantité de NOx), HNO3, SO2. Il est à noter que cette formation secondaire d'organiques et inorganiques commence dès la zone source (plus de OC et sulfate que dans les modèles).

Quelques pistes sont à explorer pour comprendre les poids relatifs de sprocessus pouvant expliquer la formation de ces aérosols: tout d'abord la création de nouvelles particules par nucléation: cela est obsrevé en période de Mistral, de manière plus importante le matin que l'après-midi, et plus en site périurbain plus qu'en site urbain. Ensuite, un processus de condensation sur des particules préexistantes: alors que les températures élevées le défavorise, une plus forte humidité peut favoriser ce processus. A ce jour, il est clair que seule une instrumentation plus complète que celle utilisée permettra d'aborder ces questions avec une incertitude moindre.

En conclusion pour ces aérosols, il est net que la zone ESCOMPTE a permis de mesurer des concentrations très fortes par rapport à la moyenne Européenne. Ces pics de pollution particulaires se sont révélés être des pics de très fines particules. Cela a été identifié comme étant dû principalement à un fort ensoleillement, la présence d'un «réservoir» d'espèces gazeuses et particulaires réactives. Un transport en altitude vers des stations distantes a aussi été caractérisé sur la région. Certains résultats trouvés pour ESCOMPTE semblent être communs à la plupart des sites urbains Européens: notamment, l'importance de la fraction fine, de l'aérosol secondaire organique et inorganique, de la composante carbonée, la rapidité de la formation secondaire ainsi que la rapidité de la formation de l'aérosol interne.

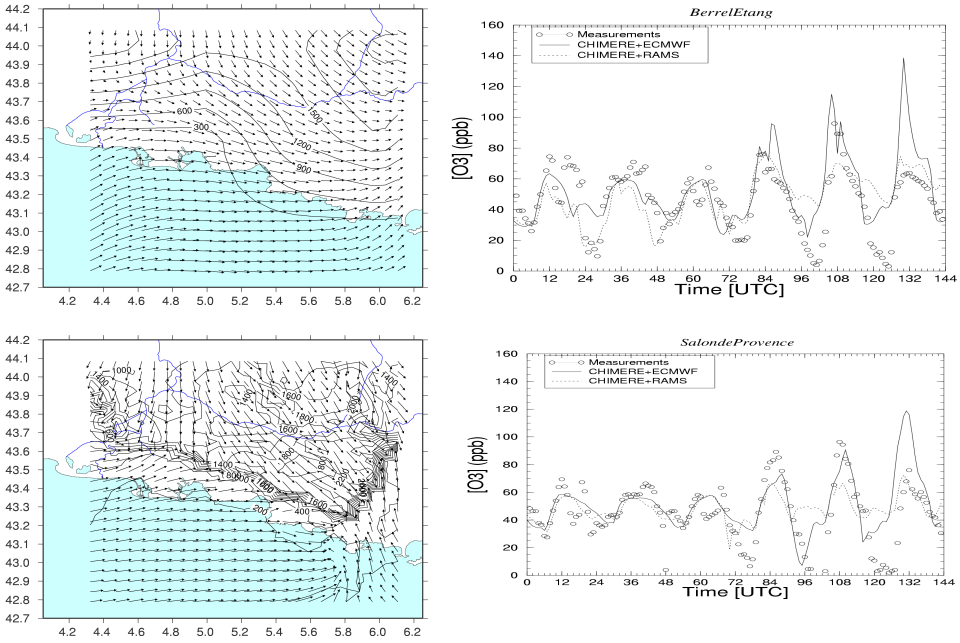
5. La modélisation de chimie-transport

La plupart des résultats concernant la modélisation de chimie-transport est présenté dans le chapitre consacré aux scénarios et à l'exercice d'inter-comparaison des modèles. On présente donc ici quelques résultats portant plus particulièrement sur des études de processus.



[Coll et al., 2005] ont montré que des vitesses de formation d'ozone très importantes étaient mesurées

et simulées sur la zone ESCOMPTE. Ces vitesses maximales étaient toujours observées: (i) Au nord sous le vent des zones émettrices, (ii) Pour des rapports COV/NOx compris entre 4 et 20 (faible variabilité). Avec la simulation d'une photochimie locale intense, des valeurs maximales de 40 à 60 ppbv par heure ont été modélisées et de 60 à 80 observées. Cela est le résultat d'un panache d'ozone toujours chimiquement intense, même si le mélange des émissions l'alimentant date de quelques heures auparavant. Cela montre qu'un “panache” d'ozone n'est pas seulement le résultat d'un transport d'ozone déjà formé mais qu'il peut s'enrichir au fur et à mesure de son déplacement. Enfin, le rôle aggravant des recirculations a été mis en évidence, notamment pour tous les sites côtiers.



Afin de quantifier l'impact de la résolution du modèle de chimie-transport utilisé sur les concentrations chimiques simulées, [Menut et al., 2005] ont forcé le modèle CHIMERE avec des données météorologiques différentes (ECMWF de résolution 0.5 degrés et RAMS de résolution 6km) sur la même prériode et ont comparés les résultats de simulation aux données de campagne pour la POI2. Ils ont ainsi montré que les différences les plus fortes étaient en bord de mer, là ou les émissions et la chimie sont les plus sensibles à une erreur sur la dynamique. La Figure ci-dessous montre ainsi la différence de hauteur de couche limite (i.e l'épaisseur d'atmosphère dans laquelle les polluants peuvent être mélangés puis transportés) diagnostiquée avec deux météorologie différentes. L'impact sur les concentrations d'ozone en surface simulées est ensuite montrée pour deux stations dont l'étang de Berre et la station de salon de Provence. La conclusion est qu'une résolution de mois de 6km est nécessaire à la représentation correcte des interfaces terre/mer surtout quand les émissions y sont regroupées.

Remerciements:
La présentation orale d'Avignon et cet article n'auraient pu se faire sans l'aide précieuse de Philippe Drobinski, Sophie Bastin, Frédérique Said, Isabelle Coll, Hélène Cachier, Sylvain Fayet, Jean-Luc Ponche, Henri Wortham et tous leurs collaborateurs. Qu'ils soient remerciés pour avoir mis à ma disposition l'ensemble des documents présentés ici.

Bibliographie:

- Colette A., Ancellet G., L. Menut and S.R. Arnold, A Lagrangian analysis of the impact of transport and transformation on the ozone stratification observed in the free troposphere during the ESCOMPTE campaign, *ACPD* submitted
- Cros B., P. Durand, E. Frejafon, Ch. Kottmeier, P.E. Perros, V-H. Peuch, J.L. Ponche, D. Robin, F. Saïd, G. Toupance, H. Wortham, *The ESCOMPTE Program: an Overview*, 69,3-4,241-279, 2004, Atmospheric Research.
- Drobinski P., F. Said, G. Ancellet, J. Arteta, P. Augustin, S. Bastin, A. Brut, J.L. Caccia, B. Campistron, S. Cautenet, A. Colette, B. Cros, U. Corsmeier, I. Coll, A. Dabas, H. Delbarre, A. Dufour, P. Durand, V. Guenard, M. Hasel, N. Kalthoff, C. Kottmeier, A. Lemonsu, F. Lohou, V. Masson, L. Menut, C. Moppert, V.H. Peuch, V. Puygrenier, O. Reitebuch, R. Vautard, Regional transport and dilution during high pollution episodes in southeastern France: Summary of findings from the ESCOMPTE experiment, *Journal of Geophysical Research, Atmospheres* submitted
- François S., S. Fayet, E. Grondin, J.-L. Ponche, *Establishment of the Atmospheric Emission Inventories of the ESCOMPTE Program*, 74,1-4,5-35, 2005 Atmospheric Research.
- Delbarre H., P. Augustin, P. Freville, B. Campistron, F. Said, B. Benech, F. Lohou, V. Puygrenier, E. Frejafon, *Ground-Based Remote Sensing Observation of the Complex Behaviour of the Marseille Boundary Layer during ESCOMPTE*, 74,1-4,403-433,2005 Atmospheric Research.
- Dufour A., M. Amodei, G. Ancellet, V.H. Peuch, *Observed and Modelled 'Chemical Weather' during ESCOMPTE*, 74,1-4,161-189,2005, Atmospheric Research.
- Cousin F., P. Tulet, R. Rosset, *Interaction between local and regional polluted layers in the low troposphere: impact on surface concentrations during ESCOMPTE 2001, IOP2*, 74,1-4,117-137,2005, Atmospheric Research.
- Ancellet G., F. Ravetta, *Analysis and Validation of Ozone Variability Observed by Lidar during the ESCOMPTE-2001 Campaign* , in press, 2005, Atmospheric Research.
- Champollion C., F. Masson, M.N. Bouin, A. Walpesdorf, E. Doerflinger, O. Bock, J. Van Baelen, *GPS Water Vapor Tomography: First Results from the ESCOMPTE Field Experiment*, 74,1-4,253-274,2005, Atmospheric Research.
- Corsmeier U., R. Behrendt, Ph. Drobinski, Ch. Kottmeier, *The Mistral and its Effect on Air Pollution Transport and Vertical Mixing, ESCOMPTE 2001*, 74,1-4,275-302,2005, Atmospheric Research.
- Menut L., I. Coll, S. Cautenet, *Impact of Meteorological Data Resolution on the Forecasted Ozone Concentrations during the ESCOMPTE IOP2*, 74,1-4,139-159,2005, Atmospheric Research.
- Taghavi M., S. Cautenet, *Impact of an highly detailed emission inventory on modeling accuracy*, 74,1-4,65-88,2005, Atmospheric Research.
- Bastin S., P. Drobinski, A. Dabas, P. Delville, O. Reitebuch, C. Werner, S. Cautenet, *Impact of the Rhone and Durance Valleys on Sea-Breeze Circulation in the Marseille Area*, 74,1-4,308-328,2005, Atmospheric Research.
- Kalthoff N., Ch. Kottmeier, J. Thürauf, U. Corsmeier, F. Saïd, E. Frejafon, P.E. Perros, *Mesoscale Circulation Systems and Ozone Concentrations during ESCOMPTE: A Case Study from IOP 2b ESCOMPTE 2001*, 74,1-4,355-380,2005, Atmospheric Research.
- Lasry F., E. Buisson, I. Coll, *An insight into the formation of Severe Ozone Episodes: Modeling the 21/03/01 Event in the ESCOMPTE region*, 74,1-4,191-215,2005, Atmospheric Research.
- Junkermann W., *The Actinic UV-radiation Budget during the ESCOMPTE Campaign 2001: Results of Airborne Measurements with the Microlight Research D-MIFU*, 74,1-4,461-475,2005, Atmospheric Research.
- Saïd F., U. Corsmeier, N. Kalthoff, C. Lothon, A. Wieser, Th. Hofherr, P.E. Perros, *Intercomparison of Four Aircraft Dynamical, Thermodynamical, Radiation and chemical measurement*, 74,1-4,217-252,2005, Atmospheric Research.
- Simon V., L. Domergues, S. Solignac, L. Torres, *Biogenic emissions from Pinus halepensis: a typical species of the Mediterranean area*, 74,1-4,37-48,2005, Atmospheric Research.
- Simon V., L. Domergues, P. Bouchoux, L. Torres, A. Lopez, *Isoprene emission rates and fluxes measured above a Mediterranean oak forest*, 74,1-4,49-63,2005, Atmospheric Research.
- Michou M., P. Laville, E. Personne, D. Serça, A. Fotiadi, V.-H. Peuch, *Measured and modeled dry deposition velocities over the ESCOMPTE area*, 74,1-4,89-116,2005, Atmospheric Research.
- Cachier H., F. Aulagnier, R. Sarda, F. Gautier, , P. Masclet, J.L. Besombes, N. Marchand, S. Despiau,, D. Croci,, M. Mallet, P. Laj,, A. Marinoni,, P.A. Deveau, J.C. Roger, J.Ph. Putaud, R. van Dingenen, , A. Dell'Acqua, J. Viidanoja, S. Martind-dos Santos, C. Liousse, , F. Cousin, , R. Rosset,, E. Gardat,, C. Galy-Lacaux, *Aerosol studies during the ESCOMPTE Experiment : an overview*, 74,1-4,547-563,2005, Atmospheric Research.
- Hasel M., Ch. Kottmeier, U. Corsmeier, *Airborne Measurements of Turbulent Trace Gas Fluxes and analysis of eddy structure in the Convective Boundary Layer over Complex Terrain*, 74,1-4,381-402,2005, Atmospheric Research.

- Marinoni M., P. Laj, P. A. Deveau, F. Marino, G. Ghermandi, F. Aulagnier, H. Cachier, *Physico-chemical properties of fine aerosols at Plan d'Aups during ESCOMPTE*, 74,1-4,565-580,2005, Atmospheric Research.
- Puygrenier V., F. Lohou, B. Campistron, F. Saïd, G. Pigeon, B. Benech, D. Serça, *Investigation of the fine structure of sea-breeze during ESCOMPTE experiment*, 74,1-4,329-353,2005, Atmospheric Research.
- Coll, I., S. Pinceloup, P.E. Perros, G. Laverdet , G. Le Bras, *3D analysis of high ozone production rates observed during the ESCOMPTE campaign*, 74, 1-4, 477-505,2005, Atmospheric Research.
- Putaud J.P., Frank Raes, Rita Van Dingenen, Erika Bruggemann, M.-Cristina Facchini, Stefano Decesari, Sandro Fuzzi, Robert Gehrig, Cristoph Huglin, Paolo Laj, Gundi Lorbeer, Willy Maenhaut, Nikolaos Mihalopoulos, Konrad Muller, Xavier Querol, Sergio Rodriguez, Jurgen Schneider, Gerald Spindler, Harry ten Brink, Kjetil Trseth, Alfred Wiedensohler, A European aerosol phenomenology2:chemical characteristics of particulate matter at kerbside, urban, rural and background sites in Europe, Atmospheric Environment 38 (2004) 25792595