

SIMULATION MULTI-ÉCHELLE DES PARTICULES PRIMAIRES ET SECONDAIRES SUR PARIS: UNE ANALYSE A L'ECHELLE DE LA RUE

L. Lugon^{*1,2,3}, K. Sartelet¹, Y. Kim¹ et O. Chretien²

¹CEREA, Ecole des Ponts ParisTech, EDF R&D, 77455 Marne la Vallée, France

²Ville de Paris Direction des Espaces Verts et de l'Environnement, 75013, Paris, France

³Maintenant à l'Institut Max Planck de Météorologie,

*Courriel de l'orateur : lya.von-martens@mpimet.mpg.de

TITLE

Multi-scale simulation of primary and secondary particles in Paris: a street-resolution analysis

RESUME

Dans cette étude les concentrations des particules primaires et secondaires sont simulées pendant toute l'année 2014 dans les principales rues de Paris avec une chaîne de modèles multi-échelles, et avec une paramétrisation revisitée pour estimer les émissions hors échappement du trafic. Les concentrations des polluants réglementés concordent bien avec les observations en site de fond urbain et trafic. Quel que soit la saison, les concentrations de PM₁₀, PM_{2.5}, carbone suie et composés organiques anthropiques sont plus élevées dans les rues que dans le fond urbain d'un facteur 2,5 à 3 pour le carbone suie et les composés organiques anthropiques). Les concentrations sont les plus élevées durant les saisons froides (automne et hiver), à cause des émissions de particules et précurseurs par le chauffage résidentiel, et de la condensation des composés semi-volatils, favorisée par les basses températures. Les composés organiques biogéniques et inorganiques des particules présentent de faibles gradients de concentrations entre le fond urbain et les rues, mais ils sont aussi sensibles aux variations saisonnières et météorologiques.

ABSTRACT

In this study the concentrations of primary and secondary particles are simulated throughout the year 2014 in the main streets of Paris with a chain of multi-scale models. A revised parameterization is used to estimate non-exhaust emissions. The concentrations of regulated pollutants over the whole year agree well with the observations. Regardless of the season, the concentrations of PM₁₀, PM_{2.5}, black carbon and anthropogenic organic compounds are higher in the streets than in the urban background (by a factor 2.5 to 3 for black carbon and anthropogenic organic compounds). The concentrations are the highest in the cold seasons (autumn and winter), because of emissions of particles and precursors by residential heating, and of the condensation of semi-volatile compounds, favored by low temperatures. Biogenic and inorganic organic particles exhibit low concentration gradients between the urban background and the streets, but they are also sensitive to seasonal and meteorological variations.

MOTS-CLÉS : simulations multi-échelle, polluants primaires et secondaires, exposition de la population, conditions météorologiques / **KEYWORDS**: multi-scale simulations, primary and secondary pollutants, population exposure, weather conditions

1. INTRODUCTION

Les polluants atmosphériques, notamment les particules fines, constituent l'un des risques les plus importants pour la santé humaine. Ils peuvent générer de graves maladies comme le cancer (Lequy *et al* 2021), et impactent l'environnement en zone urbaine. Actuellement, en France et en Europe, les concentrations de PM₁₀ et de PM_{2.5} (particules de diamètres inférieur à 10 µm et 2,5 µm, respectivement) sont réglementées et continuellement surveillées (WHO, 2021). De fortes concentrations de particule et notamment de composés tels que le carbone suie et les composés organiques anthropiques qui impactent fortement la santé sont observées à proximité des rues. Les particules peuvent avoir différentes origines, elles peuvent être directement émises (particules primaires), et/ou formées dans l'atmosphère à partir d'interactions physico-chimiques (particules secondaires). Il est, donc, important de représenter les particules primaires ainsi que les secondaires pour estimer les concentrations des particules auxquelles la population est exposée.

Plusieurs modèles de qualité de l'air ont été développés pour estimer la dispersion des polluants aux différentes échelles spatiales, et ils sont utilisés pour guider les actions publiques visant à réduire l'exposition de la population. A l'échelle régionale, les modèles de chimie-transport (CTM) représentent bien les concentrations de fond urbain, en tenant compte de la formation des composés secondaires. Par contre, les fortes concentrations observées dans les rues doivent être modélisées par des modèles adaptés à l'échelle locale. Cependant, ces modèles adoptent souvent des simplifications pour déterminer les concentrations de fond, et souvent ne prennent pas en compte la formation des particules secondaires. En plus des limitations des modèles, les concentrations locales sont difficiles à modéliser car de fortes incertitudes subsistent sur les émissions hors échappement du trafic routier (usage des freins, pneus et de la route, ainsi que la remise en suspension des particules). La littérature présente des facteurs d'émission hors-échappement très variables, même si des nombreuses études indiquent que les émissions hors échappement sont des sources importantes de particules dans les zones urbaines.

Dans cette étude, la concentration des polluants primaires et secondaires dans les principales rues de Paris sur l'année 2014 est simulée avec une chaîne de modèles multi-échelle. Une approche récemment revisitée est utilisée pour estimer les émissions hors échappement. Les concentrations de fond urbaine sont calculées avec le CTM Polair3D (Mallet *et al* 2007), à l'échelle régionale, et les concentrations dans les rues sont calculées avec le modèle MUNICH (Model of Urban Network of Intersecting Canyons and Highways) (Kim *et al* 2018 ; Lugon *et al* 2020a ; Lugon *et al* 2020b ; Lugon *et al* 2021 ; Gavidia-Calderon *et al* 2021). Polair3D et MUNICH représentent l'évolution des particules primaires et la formation de particules secondaires, en fond urbain et dans les rues respectivement. Chacun des deux modèles sont couplés au module chimique SSH-aérosol (Sartelet, *et al* 2020) pour représenter la chimie en phase gazeuse, ainsi que la dynamique des aérosols (coagulation, nucléation et condensation/évaporation). Les émissions hors échappement sont calculées selon avec une approche récemment revisitée, notamment pour le calcul de l'usure des pneus, et de la remise en suspension des particules. Cette dernière est calculée en fonction de la masse déposée sur la surface de la rue, en respectant strictement le bilan de masse à la surface (Lugon *et al* 2020b). Les concentrations des particules primaires et secondaires sont analysées dans ce papier selon la saison de l'année, car les conditions météorologiques ont un effet direct sur les processus physico-chimiques dans la formation de particules secondaires, et dans la variabilité des émissions primaires hors trafic (i.e. émissions biogéniques, chauffage résidentiel).

2. MISE EN PLACE ET VALIDATION DES SIMULATIONS

Les concentrations des composés primaires et secondaires dans Paris ont été simulées sur l'année 2014. Les champs météorologiques ont été obtenus en utilisant le modèle WRF v3.9.1.1 (Weather Research and Forecasting), comme détaillé dans Lugon, *et al* (2020a). Les conditions initiales et aux limites de la simulation à l'échelle régionale sur Paris ont été obtenues à partir des simulations "emboîtées" réalisées avec Polair3D sur des domaines plus larges, comme décrit dans André *et al* (2020). Les émissions biogéniques ont été calculées avec le modèle MEGAN v2.04 (Model of Emissions of Gases and Aerosols from Nature). Les émissions anthropiques ont été estimées avec différents inventaires d'émission de l'Agence de qualité de l'air de la région Ile-de-France (AIRPARIF) : les émissions des secteurs hors-traffic sont celles de l'inventaire de l'année 2012, et les émissions du trafic routier dues à l'échappement sont celles de l'inventaire de l'année 2014, comme détaillé dans Lugon *et al* (2021). Les émissions hors échappement ont été calculées selon Lugon *et al* (2020b), avec une approche revisitée des émissions de l'abrasion des pneus, et avec la remise en suspension des particules calculée en fonction de la masse déposée à la surface de la rue.

Les concentrations moyennes journalières des polluants réglementés (PM₁₀, PM_{2.5} et dioxyde d'azote, NO₂) en fond urbain (simulées avec Polair3D) et dans les rues (simulées avec MUNICH) ont été comparées aux mesures des différentes stations de qualité de l'air dans Paris. Les comparaisons se basent sur les deux critères de performance indiqués dans Hanna and Chang (2012) et Herring and Huq (2018) : (i) le critère le moins strict, défini pour les zones urbaines, avec $-0,67 < FB < 0,67$; $NMSE < 6$; $FAC2 \geq 0,3$; $NAD < 0,5$; et (ii) le critère le plus strict, avec $-0,3 < FB < 0,3$; $0,7 < MG < 1,3$; $NMSE < 3$; $VG < 1,6$; $FAC2 \geq 0,5$; $NAD < 0,3$ ¹. Le Tableau 1 montre les indicateurs statistiques obtenus : le critère de performance le plus strict est atteint pour les polluants réglementés, aussi bien pour les concentrations simulées en fond urbain que dans les rues.

Tableau 1. Indicateurs statistiques pour la comparaison entre les concentrations observées et simulées avec Polair3D (fond urbain) et MUNICH (rues) aux stations de mesure dans Paris en 2014

Model	Pollutant	Conc. obs. ($\mu\text{g}\cdot\text{m}^{-3}$)	Conc. sim. ($\mu\text{g}\cdot\text{m}^{-3}$)	FB	MG	NMSE	VG	FAC2	NAD
Polair3D (fond)	PM ₁₀	22,6	23,5	0,04	1,05	0,19	1,13	0,93	0,14
	PM _{2.5}	15,3	19,4	0,24	1,32	0,28	1,22	0,88	0,19
	NO ₂	39,0	43,2	0,10	1,04	0,18	1,16	0,91	0,15
MUNICH (rues)	PM ₁₀	33,10	35,64	0,08	1,06	0,20	1,17	0,90	0,16
	PM _{2.5}	20,73	24,96	0,18	1,21	0,22	1,19	0,89	0,16
	NO ₂	67,62	73,00	0,10	1,10	0,30	1,24	0,87	0,17

3. ANALYSE DES CONCENTRATION DES PARTICULES PRIMAIRES ET SECONDAIRES DANS LES RUES DE PARIS

La formation des particules secondaires influence fortement les concentrations de PM_{2.5} à l'échelle régionale. A l'échelle de la rue, Lugon *et al* 2021 ont montré que la formation des particules secondaires es est également

¹ FB représente le *fractional bias*, MG le *geometric mean bias*, NMSE le *normalised mean square error*, VG le *geometric variance*, NAD le *normalised absolute difference*, and FAC2 la fraction des estimations dans un facteur deux des observations.

importante, avec une contribution variable selon la rue et l'heure du jour, et qui peut atteindre jusqu'à 27% durant les heures de pointe du trafic dans les rues à fort trafic automobile. Les particules primaires proviennent en grande partie des sources hors échappement, et influencent très fortement les composés inertes tels que le carbone suie dont les concentrations sont très élevées dans les rues (Lugon *et al* 2020b). Les incertitudes liées ces émissions hors échappement doivent être réduites. Lugon *et al* 2020b montrent que les émissions de carbone suie dues à l'usure des pneus peuvent être aussi importantes que les émissions dues à l'échappement, mais que la remise en suspension des particules a moins d'impact sur les concentrations de carbone suie dans les rues. Dans cette section, les concentrations des particules strictement primaires, comme le carbone suie, et celles primaires et secondaires (organiques et inorganiques) sont analysées séparément selon les différentes saisons de l'année. Les saisons de l'année peuvent influencer (i) les conditions météorologiques, et donc les conditions ambiantes déterminant les interactions physico-chimiques pour la formation des particules secondaires ; et (ii) la variabilité des émissions de particules primaires et précurseurs des secteurs autres que le trafic (i.e. émissions biogéniques, chauffage résidentiel en hiver). Les concentrations de PM₁₀ et PM_{2,5}, sont estimées, ainsi que celles de différents composés des particules : les composés organiques d'origine anthropique et biogénique (PM_{org,anth} et PM_{org,bio}, respectivement), les composés inorganiques (PM_{inorg}) et le carbone suie (BC).

La Figure 1 illustre les concentrations de PM_{2,5} simulées en fond urbain et dans les rues de Paris en été et en hiver 2014. Aussi bien en été qu'en hiver les concentrations de PM_{2,5} sont plus élevées dans les zones densément habitées (nord de la ville) et/ou avec un fort trafic routier (notamment les rues qui bordent la ville, tel que le Boulevard Périphérique). Même si la distribution spatiale des concentrations est assez similaire au long de l'année, des différences importantes sont observées dans l'intensité des concentrations des particules selon les saisons. En général, les concentrations les plus faibles de particules sont simulées durant les saisons les plus chaudes de l'année (été et printemps), contrastant avec les concentrations plus élevées simulées durant les saisons plus froides (automne et hiver). Cela peut s'expliquer par (i) l'augmentation des émissions des particules dans les saisons froides dues au chauffage résidentiel (ii) des températures plus basses durant les saisons froides, favorisant la condensation des composés semi-volatils, tels que les composés organiques anthropiques émis par le trafic et le chauffage résidentiel, (iii) une couche limite atmosphérique plus stable et basse durant les stations froides, ce qui défavorise la dispersion des polluants.

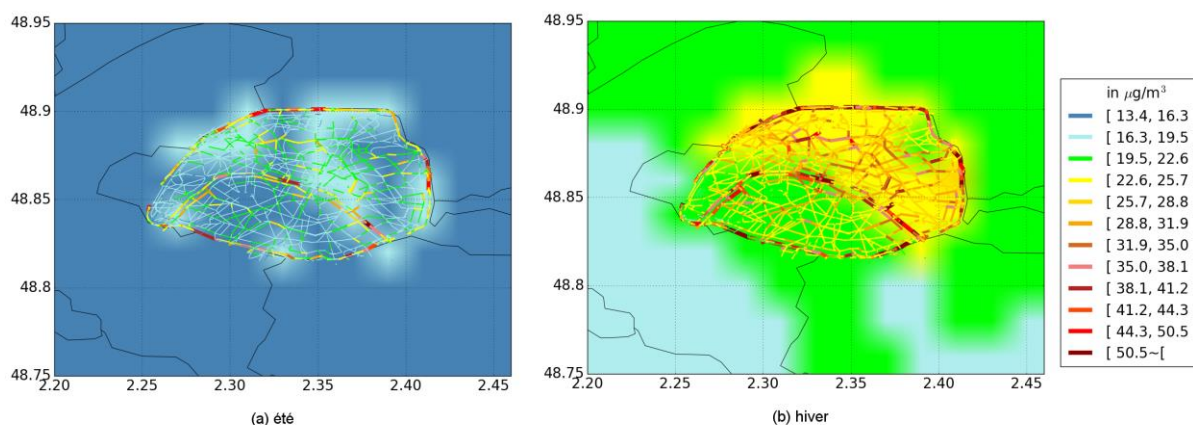


Figure 1. Concentrations moyennes de PM_{2,5} simulées en fond et dans les rues (a) en été, et (b) en hiver
 Tableau 2. Concentrations moyenne des particules primaires et secondaires (en µg.m⁻³) en fond urbain et dans les rues simulées pour les différentes saisons de l'année 2014

	2014		Été		Printemps		Automne		Hiver	
	Fond	Rues	Fond	Rues	Fond	Rues	Fond	Rues	Fond	Rues
PM ₁₀	21,6	35,3	18,0	29,1	20,3	30,7	26,0	45,4	24,2	39,0
PM _{2,5}	18,3	23,7	15,2	19,1	17,6	21,4	21,3	29,3	20,7	26,9
PM _{org,anth}	2,8	7,0	2,1	5,3	2,0	5,2	3,7	9,5	3,3	8,2
PM _{org,bio}	2,4	2,4	3,4	3,3	2,1	2,1	3,5	3,4	1,4	1,3
PM _{inorg}	7,4	7,9	6,2	6,4	7,6	7,7	9,0	10,1	8,3	9,0
BC	2,1	5,9	1,6	5,0	1,5	4,6	3,0	8,4	2,3	6,3

Le Tableau 2 montre les concentrations de particules et leurs composés simulées pour les différentes saisons de l'année. Pour tous les polluants largement émis par le trafic routier (PM₁₀, PM_{2,5}, PM_{org,anth} et BC), les concentrations dans les rues sont plus élevées que celles en fond urbain, quel que soit la saison. Les concentrations dans les rues de BC sont entre 2,7 et 3 fois plus élevées que celles de fond, et les concentrations de PM_{org,anth} sont environ 2,5 fois plus élevées que celles de fond. Le BC et les composés PM_{org,anth} étant suspectés d'impacter la santé de manière plus importante que les autres, cela souligne

l'importance de prendre en compte les concentrations dans les rues, et non celles de fond urbain, pour estimer l'exposition de la population et mettre en place les mesures nécessaires à sa limitation. Pour d'autres composés, comme les $PM_{org,bio}$ et les PM_{inorg} , les concentrations dans les rues sont en majorité importées du fond urbain, et le gradient de concentrations entre les deux échelles est faible. Les concentrations de PM_{inorg} sont légèrement supérieures à celles du fond urbain, principalement durant les saisons froides. Cela peut être expliqué par la condensation de nitrate d'ammonium, favorisée par les basses températures. Les plus basses concentrations de $PM_{org,bio}$ sont observées en hiver (environ $1,3 \mu g \cdot m^{-3}$), et les plus élevées en été et en automne (environ $3,5 \mu g \cdot m^{-3}$). Cela est dû à l'influence des conditions météorologiques favorisant les émissions biogéniques en été.

Les concentrations des particules primaires et secondaires sont variables selon l'année, et cette variation dépend notamment du type de composé et de ses sources. Des actions visant réduire l'exposition de la population devraient être encouragées durant les saisons froides (hiver et automne), époque où la population est exposée à de plus fortes concentrations.

4. CONCLUSION

Cette étude présente une simulation multi-échelle des concentrations des particules primaires et secondaires dans Paris en utilisant (i) une chaîne de modèles capables de représenter la formation des particules secondaires aussi bien en fond urbain que dans les rues, (ii) des émissions hors-échappement revisitées, basées sur des observations et de la modélisation. Pour tous les polluants fortement émis par le trafic routier (PM_{10} , $PM_{2,5}$, $PM_{org,anth}$ et BC), les concentrations dans les rues sont plus élevées que celles en fond urbain (d'un facteur entre 2,5 et 3 pour $PM_{org,anth}$ et BC qui sont des polluants d'intérêt pour la santé). La variabilité des concentrations des particules est analysée en fonction de la saison de l'année. En générale, les concentrations les plus élevées de particules sont obtenues durant les saisons froides (automne et hiver), notamment pour le BC et les $PM_{org,anth}$. Les $PM_{org,bio}$ et PM_{inorg} présentent des faibles gradients de concentrations entre le fond urbain et les rues, ils mais sont très sensibles aux variations saisonnières et météorologiques.

Ce travail a été financé par le Département des Espaces Verts et de l'Environnement (DEVE) sous la subvention CIFRE no. 2017/06 avec l'Ecole des Ponts ParisTech.

Lequy, E., Siemiatycki, J., Hoogh, K., Vienneau, D., Dupuy, J. F., Garès, V., Hertel, O., Christensen, J. H., Zhivin, S., Goldberg, M., Zins, M., et Jacquemin, B. (2021) Environ. Health Perspect. 129 (3), 037005 1-11.

WHO – World Health Organization (2021) Ambient (outdoor) air pollution, available at [https://www.who.int/news-room/fact-sheets/detail/ambient-\(outdoor\)-air-quality-and-health](https://www.who.int/news-room/fact-sheets/detail/ambient-(outdoor)-air-quality-and-health). Accessed on 24 September 2021.

Mallet, V., Quélo, D., Sportisse, B., Ahmed de Biasi, M., Debry, É., Korsakissok, I., Wu, L., Roustan, Y., Sartelet, K., Tombette, M., et Foudhil, H. (2007), Atmos. Chem. Phys., 7, 5479–5487.

Kim, Y., Wu, Y., Seigneur, C., et Roustan, Y., (2018) Geosci. Model Dev., 11, 611–629.

Lugon, L., Sartelet, K., Kim, Y., Vigneron, J., et Chrétien, O. (2020a) Atmos. Chem. Phys., 20, 7717–7740.

Lugon, L., Vigneron, J., Debert, C., Chrétien, O., et Sartelet, K. (2020b) Geosci. Model Dev. Discuss.

Lugon, L., Sartelet, K., Kim, Y., Vigneron, J., et Chrétien, O. (2021) Faraday Discuss., 2021,226, 432-456.

Gavidia-Calderón, M. E., Ibarra-Espinosa, S., Kim, Y., Zhang, Y., et Andrade, M. D. F. (2021) Geosci. Model Dev., 14, 3251–3268.

Sartelet, K., Couvidat, F., Wang, Z., Flageul, C., et Kim, Y. (2020) Atmosphere, 11(5), 525 1-23.

Hanna, S., et Chang, J. (2012), Meteorol. Atmospheric Phys. 116 (133–146).

Herring, S. et Huq, P. (2018) Fluids, 3(1), 20.