



HAL
open science

Impact des feux de végétation sur la pollution particulaire en région Euro-Méditerranéenne et en Australie

Géraldine Rea

► **To cite this version:**

Géraldine Rea. Impact des feux de végétation sur la pollution particulaire en région Euro-Méditerranéenne et en Australie. Interfaces continentales, environnement. Université Pierre et Marie Curie - Paris VI, 2015. Français. NNT : 2015PA066558 . tel-01490374

HAL Id: tel-01490374

<https://theses.hal.science/tel-01490374v1>

Submitted on 15 Mar 2017

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.

Université Pierre et Marie Curie

Ecole doctorale des Sciences de l'Environnement d'Ile de France (ED 129)

Laboratoire de Météorologie Dynamique

Impact des feux de végétation sur la pollution particulaire en région Euro-Méditerranéenne et en Australie

par **Géraldine Rea**

Thèse de doctorat de Physique et Chimie de l'Atmosphère

Date de soutenance : 16 octobre 2015

Composition du jury :

Mme	Solène TURQUETY	Directrice de thèse
M.	Laurent MENUT	Directeur de thèse
Mme	Laurence PICON	Présidente du Jury
M.	Pierre-François COHEUR	Rapporteur
M.	Vincent-Henri PEUCH	Rapporteur
M.	Augustin COLETTE	Examineur
M.	Juan CUESTA	Examineur

*Le véritable voyage de découverte
ne consiste pas à chercher de
nouveaux paysages, mais à voir
avec de nouveaux yeux.*

Marcel Proust
« À la recherche du temps perdu »

Remerciements

En tout premier lieu, je tiens à remercier ma directrice de thèse Solène Turquetly pour m'avoir guidée et encadrée tout au long de ces trois ans. Je lui suis en particulier reconnaissante pour son écoute et son ouverture pour mes projets personnels, ainsi que pour sa compétence et sa disponibilité. Je remercie également Laurent Menut pour avoir suivi mon travail, et pour ses avis et son aide précieuse pendant cette thèse.

Je suis très reconnaissante envers la KIC-Climat pour avoir soutenu financièrement ma thèse, et pour m'avoir permis de participer à l'école d'été, me permettant de rencontrer des gens de tous horizons et de m'ouvrir l'esprit, personnellement et professionnellement. Je remercie en particulier Sabine Filiu pour sa disponibilité et pour s'être occupée efficacement de la mise en place de mon projet de mobilité.

Je remercie Pierre-François Coheur et Vincent-Henri Peuch pour avoir accepté de faire partie de mon jury de thèse en tant que rapporteurs, ainsi que Juan Cuesta et Augustin Colette qui ont pu suivre avec un œil extérieur et de manière constructive mon travail. Je remercie enfin Laurence Picon de me suivre depuis ma première année de master.

J'aimerais également remercier tous les membres du Laboratoire de Météorologie Dynamique et de l'équipe InTro pour m'avoir permis de m'intégrer et de m'épanouir en tant que doctorante, ainsi que l'équipe CHIMERE. Je remercie pour leur aide, entre de nombreux autres, Regis Briant, Sylvain Mailler, Guillaume Siour, Dmitry Khvorostyanov, Myrto Valari et Mathieu Reverdy.

Je tiens à remercier sincèrement le Centre de Chimie Atmosphérique de l'Université de Wollongong, et tout particulièrement Clare Murphy sans qui je n'aurais pas pu concrétiser mon projet de mobilité en Australie et qui m'a permis de le réaliser dans les meilleures conditions possibles. Mais aussi, je n'oublierai jamais Dagmar, la première à m'accueillir après 24h d'avion et avec qui j'ai vu mes premiers kangourous (entre autres marsupiaux), Max, grâce à qui j'ai pu me sentir chez moi dès le premier jour à Fairy Meadow, Voltaire, Elise, Jenny, et tout le reste de l'équipe pour m'avoir accueilli et si facilement intégrée à leur groupe de travail et d'amis. Cela fut pour moi une expérience chaleureuse et inoubliable.

Pour leur amitié, je remercie tous ceux avec qui j'ai partagé mon bureau, mes repas, mon temps libre, des fous rires et des moments plus difficiles aussi depuis mes débuts au laboratoire : en particulier Natacha, Aurélie et Grégory. Mais aussi Camill, Adrien, Thibault, Jean, Ségolène, Bénédicte, Charles, Paul-Etienne, Stavros. Je remercie mes amis de licence et de master de Jussieu qui eux aussi se sont lancés dans l'aventure du doctorat et dont le soutien a été très important pour moi : Antoine, Ann'Sophie et bien sûr Jessica. Je n'oublie pas non plus Catalina et Nicolas

pour les soirées passées à jouer au Molkky, et mes amies d'enfance Tiphaine, Hanna, Susan et Amandine qui ont toujours pris la peine de s'intéresser à ce que je faisais. Les moments passés ensemble ont été un vrai bol d'air pendant ma thèse.

J'ai bénéficié du soutien inconditionnel de mes sœurs et de mes parents, qui ont toujours cru en mon potentiel et qui ont toujours été à mon écoute. Enfin, je remercie tout spécialement Oussama pour sa présence et ses encouragements surtout en fin de thèse, et pour notre merveilleuse aventure à l'autre bout du monde.

Résumé

Impact des feux de végétation sur la pollution particulaire en région Euro-Méditerranéenne et en Australie

La quantification des impacts sanitaires et climatiques des aérosols nécessite de pouvoir quantifier précisément leur concentration, leur composition chimique et leur distribution en taille. Parmi les nombreux aérosols émis par les activités anthropiques et naturelles, les émissions de feux de végétation et leur transport sont encore très incertains. Ce travail de thèse vise à améliorer la caractérisation de ces feux, afin de mieux les représenter par modélisation. Afin de couvrir différents types de feux, l'étude portera à la fois sur des analyses de cas en Euro-Méditerranée et en Australie.

L'analyse porte tout d'abord sur les informations nécessaires afin de calculer un flux d'émissions de feux : les surfaces brûlées et les hauteurs d'injection sont quantifiées par analyse d'observations satellitaires. Les observations MODIS permettent de montrer que la végétation brûlée en Europe est principalement constituée et en moyenne de surfaces agricoles (70%), tandis que les feux de savane et de maquis dominant en Australie (50% et 40%). Au sein de cette moyenne, de très fortes hétérogénéités spatiales sont relevées, avec, par exemple, des feux de forêt représentant 13% au Portugal et 65% au Sud-Est de l'Australie du total observé. A partir d'observations MISR et CALIOP, il est montré que les hauteurs d'injection sont principalement près de la surface et vers 2000 m d'altitude pour les deux régions. Les plus grandes différences d'injection sont relevées au delà de 4000 m avec 4,6-6,4% des émissions en Europe et 8,9-11% en Australie.

Suite à ces analyses statistiques, la modélisation régionale des aérosols a été réalisée en Europe (été 2012) et en Australie (octobre 2013). Il a été quantifié pour ces périodes que l'Europe est dominée par le transport des poussières minérales (62% de PM_{10} et 17% de $PM_{2.5}$ en surface), et les activités anthropiques (19% de PM_{10} et 52% de $PM_{2.5}$ en surface) : les feux sont nettement plus faibles en moyenne estivale mais montrent de très forts signaux localement et ponctuellement. Au contraire, les concentrations d'aérosols en surface en Australie sont dominées par les feux de végétation pendant la période d'octobre 2013. En terme de qualité de l'air, il a été montré que ces feux étaient à l'origine de un (Espagne) à une dizaine (Balkans) de jours de dépassements des normes en Europe et de neuf jours de dépassements en Australie (région de Sydney et Wollongong). Pour estimer l'incertitude liée au mode de prise en compte d'un même flux émis, une étude de sensibilité faisant varier le cycle diurne et la hauteur d'injection a été conduite et a permis de montrer que les concentrations de surface de $PM_{2.5}$ pouvaient varier jusqu'à $\pm 50\%$.

Mots clés

Pollution particulaire; qualité de l'air; feux de végétation; modèle régional de chimie-transport CHIMERE; aérosols; émissions; hauteur d'injection; Euro-Méditerranée; Australie; observations satellite; MODIS; MISR; CALIOP; Air-Base; AERONET; ChArMEx

Abstract

Impact of biomass burning on particulate pollution in the Euro-Mediterranean region and in Australia

To determine the health and climatic impacts of aerosols, the quantification of their precise concentrations, their chemical composition and their size distribution is needed. Among the several aerosols emitted from anthropogenic and natural activities, fire emissions and their transport are still a concern. This work aims to improve the characterization of these fires, to allow a better representation in models. To cover different types of fires, the study focuses on case studies in the Euro-Mediterranean region and in Australia.

First, the information needed to compute fire emission fluxes is analyzed: the burnt area and injection heights are quantified using satellite observations. MODIS observations shows that the burnt area in Europe is mainly composed, on average, of cropland (70%), whereas savanna and shrubland fires are preponderant in Australia (50% and 40%). However, strong spatial heterogeneities are noticed, with by example forest fires representing 13% of the total observed burned area in Portugal and 65% in South-West of Australia.

Using MISR and CALIOP observations of plume heights, it is shown that injection heights are mainly concentrated near the surface and at about 2000 m of altitude for the two regions. The highest differences are noticed above 4000 m, with 4,6-6,4% of emissions in Europe and 8,9-11% in Australia.

Then, a regional modeling of aerosols has been computed in Europe (summer 2012) and in Australia (October 2013). It is quantified for these episodes that Europe is dominated by mineral dust transport (62% and 17% of surface PM_{10} and $PM_{2.5}$), and anthropogenic activities (19% and 52% of surface PM_{10} and $PM_{2.5}$): fires are significantly weaker on average over the summer, but shows strong local and punctual signals. On the contrary, surface aerosol concentrations in Australia are dominated by fires in October 2013. In terms of air quality, it is shown that these fires were responsible from one day (Spain) to about ten days (Balkans) of exceedances of European norms, and of nine days of exceedances in Australia (Sydney region and Wollongong). To estimate the uncertainty related to the method used to take into account a same emission flux, a sensitivity study with a variable diurnal cycle and injection height profile has been computed and showed that surface $PM_{2.5}$ concentrations can vary up to $\pm 50\%$.

Keywords

Particulate pollution; air quality; biomass burning; regional chemistry-transport model CHIMERE; aerosols; emissions; injection height; Euro-Mediterranean region; Australia; satellite observations; MODIS; MISR; CALIOP; AirBase; AERONET; ChArMEx

Table des matières

1	Introduction	1
1.1	Contexte général	2
1.2	Sources d'aérosols	4
1.3	Les impacts des aérosols	5
1.3.1	Aérosols et climat	5
1.3.2	Aérosols et santé	6
1.4	Les feux de végétation	8
1.5	Régions d'étude	11
1.5.1	La région Euro-Méditerranéenne	11
1.5.2	L'Australie et la région de Sydney	13
1.6	Objectifs de thèse	15
2	Observation des aérosols atmosphériques et des feux de végétation	17
2.1	Concentrations de surface	18
2.2	La campagne ChArMEx	20
2.3	Observation des propriétés optiques des aérosols	20
2.3.1	Épaisseur optique et coefficient d'Angström	21
2.3.2	Fonction de phase	22
2.3.3	Photomètres solaires AERONET	22
2.3.4	Capteur MODIS	23
2.4	Caractéristiques des feux de végétation	24
2.4.1	Localisation des feux	24
2.4.2	Puissance radiative des feux (FRP)	25
2.4.3	Surface brûlée	25
2.5	Altitude d'injection des panaches de feux	26
2.5.1	Hauteurs des panaches par MISR	26
2.5.2	Hauteurs de couche d'aérosols par CALIOP	29
2.6	Conclusion	31
3	Modélisation de la chimie et du transport avec CHIMERE	33
3.1	Principe général du modèle CHIMERE	34
3.2	Le module d'aérosol	36
3.2.1	Représentation de la distribution en taille	36
3.2.2	L'évolution chimique des aérosols	36
3.3	Photochimie et propriétés radiatives	39
3.4	Sources des gaz et aérosols	40
3.5	Émissions issues des feux de végétation	40
3.5.1	L'inventaire APIFLAME	41
3.5.2	Prise en compte du transport vertical	43
3.5.3	Incertitude sur les émissions de feux	44
3.6	Prévisions chimiques pendant la campagne ChArMEx	46
3.7	Conclusions	47

4	Caractéristiques des feux en Europe et en Australie	49
4.1	Variabilité interannuelle	50
4.2	Végétation brûlée	51
4.3	Altitude d'injection	56
4.3.1	Méthodologie	56
4.3.2	Variabilité interannuelle de l'altitude observée des panaches	57
4.3.3	Profils verticaux moyen des hauteurs de panaches	61
4.4	Discussion et conclusions	66
5	Contributions relatives des sources d'aérosols sur la pollution atmosphérique en région Euro-Méditerranéenne	69
5.1	Introduction	70
5.2	Article : <i>Source contributions to 2012 summertime aerosols in the Euro-Mediterranean region</i>	70
5.3	Conclusions	96
6	Impact des feux sur la qualité de l'air en Europe : cas de l'été 2012	99
6.1	Introduction	100
6.2	Les feux pendant l'été 2012	100
6.3	Evaluation de l'impact des feux avec CHIMERE	102
6.3.1	AOD	102
6.3.2	PM de surface	105
6.3.3	Dépassements de seuils	107
6.3.4	Spéciation	107
6.3.5	Influence de la variation de la hauteur d'injection et de la variabilité diurne des émissions de feux	108
6.4	Conclusions	110
7	Impact des feux sur la qualité de l'air en Australie : étude de cas des feux d'Octobre 2013 à Sydney	113
7.1	Introduction	114
7.2	Article : <i>Impact of the New South Wales Fires of October 2013 on regional air quality in eastern Australia</i>	114
7.3	Conclusions	130
8	Conclusion et perspectives	131
Annexes		139
A Contribution aux projets de recherche		139
B Publications et communications		141
Bibliographie		

Acronymes

AERONET AErosol RObotic NETwork.

AIRBASE European Air Quality Database.

AMMA African Monsoon Multidisciplinary Analyses.

AOD Aerosol Optical Depth.

APIFLAME Analysis and Prediction of the Impact of Fires on Air quality Modelling.

APPAD Analyse et Prévisibilité de Panaches Atmosphériques Denses, PI : L. Menut.

CALIOP Cloud-Aerosol Lidar with Orthogonal Polarization.

CHARMEX Chemistry-Aerosol Mediterranean Experiment,
<http://charmex.lsce.ipsl.fr>.

CSIRO Commonwealth Scientific and Industrial Research Organisation.

CTM Chemistry Transport Model.

EECLAT Expecting EarthCARE, Learning from A-Train.

EFFIS European Forest Fire Information System of the Joint Research Centre,
<http://effis.jrc.ec.europa.eu/>.

EMEP European Monitoring and Evaluation Programme.

FINN Fire INventory from NCAR.

FRP Fire Radiative Power.

GEOS-CHEM Goddard Earth Observing System.

GFAS Global Fire Assimilation System.

GFED Global Fire Emissions Database.

GIEC Groupe d'experts intergouvernemental sur l'évolution du climat.

INERIS Institut National de l'Environnement Industriel et des Risques.

LISA Laboratoire Interuniversitaire des Systemes Atmosphériques.

LMD Laboratoire de Météorologie Dynamique.

MINX MISR INteractive eXplorer, <http://www.openchannelsoftware.com/projects/MINX>.

MISR Multi-angle Imaging SpectroRadiometer.

MODIS Moderate Resolution Imaging Spectroradiometer.

NCAR National Center for Atmospheric Research.

NCEP National Centers for Environmental Prediction.

NEPC National Environment Protection Council.

NSW New South Wales.

OEH Office of Environment and Heritage.

OMS Organisation Mondiale de la Santé.

PM Matière Particulaire.

TRAQA TRansport and Air QuAlity.

WRF Weather Research and Forecasting Model.

1 | Introduction

Sommaire

1.1	Contexte général	2
1.2	Sources d'aérosols	4
1.3	Les impacts des aérosols	5
1.3.1	Aérosols et climat	5
1.3.2	Aérosols et santé	6
1.4	Les feux de végétation	8
1.5	Régions d'étude	11
1.5.1	La région Euro-Méditerranéenne	11
1.5.2	L'Australie et la région de Sydney	13
1.6	Objectifs de thèse	15

1.1 Contexte général

L'aérosol atmosphérique est défini comme étant une particule solide ou liquide en suspension dans l'air. Les quantités et propriétés physico-chimiques des aérosols sont variables dans l'espace et dans le temps, selon leur taille, la composition chimique des particules qui la composent et leur forme. On parle d'aérosols primaires lorsque ces particules sont émises directement dans l'atmosphère (particules minérales et sels de mer, carbone organique primaire, carbone suie), par opposition aux aérosols secondaires (provenant de processus de condensation de composés gazeux, appelés précurseurs d'aérosols comme les nitrates, les sulfates, l'ammonium, le carbone organique secondaire).

On distingue également les aérosols par rapport à leur source : elle peut être naturelle (émissions par les océans et les sols, la végétation, les feux ou les volcans) ou anthropique (combustion fossile, biocarburants, activités industrielles).

La taille d'un aérosol peut être sub-micronique (c'est le cas en général des aérosols secondaires ainsi que des primaires issus de processus de combustion), et peut varier jusqu'à plusieurs microns (aérosols issus de la resuspension du sol, d'une combustion incomplète, etc.). Les particules sont souvent regroupées en fonction de leur taille. Une population de particules se compose de trois modes principaux (Whitby and Cantrell, 1995), les plus fréquents au sein de cette population (Figure 1.1). Le mode ultrafin est composé des particules dont le diamètre va de $0,01 \mu\text{m}$ à $0,1 \mu\text{m}$, le mode d'accumulation de $0,1 \mu\text{m}$ à $1 \mu\text{m}$, et le mode grossier de $1 \mu\text{m}$ à $100 \mu\text{m}$. Ces différents modes permettent de représenter la gamme des aérosols existants, en les regroupant selon leurs propriétés.

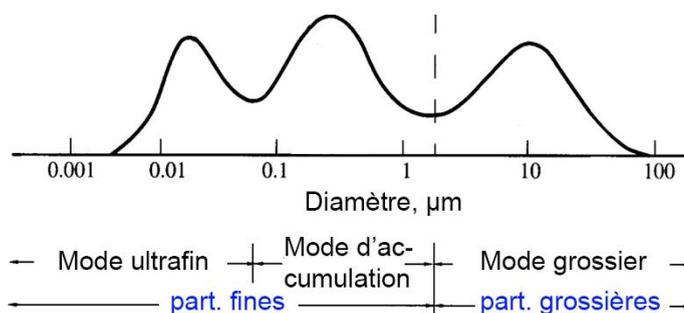


Figure 1.1 – Schéma de la distribution de l'aire d'un aérosol atmosphérique, montrant les 3 modes : ultrasons, d'accumulation et grossier (Whitby and Cantrell, 1995).

On note PM_x la matière particulaire dont le diamètre médian est inférieur à "x" microns. La réglementation actuelle de la qualité de l'air nécessite le suivi des $\text{PM}_{2,5}$ et PM_{10} , les PM_1 pourraient être ajoutés à ce suivi dans les années à venir.

L'impact des aérosols dépend à la fois de leur composition et de leur taille. Les enjeux majeurs associés, que nous présenterons de manière plus détaillée dans la suite de ce chapitre, sont d'une part les effets sur le forçage radiatif de la planète, c'est-à-dire la perturbation au bilan d'énergie radiative du système climatique qu'ils induisent, et d'autre part le risque environnemental sur la santé.

Les stations de mesures au sol sont d'une part nécessaires pour quantifier les

différents polluants émis par les sources d'aérosols. Plusieurs réseaux existent et permettent le suivi des concentrations de polluants, notamment les PM_{10} et plus récemment les $PM_{2.5}$. D'autre part et depuis plus de 10 ans, la télédétection spatiale a permis de mieux observer et d'étudier les aérosols (Ichoku et al., 2012), en ajoutant une information plus systématique et globale aux stations de mesures en surface. Cette information complémentaire concerne des mesures de propriétés optiques d'aérosols intégrés sur la colonne, tel que l'épaisseur optique. La télédétection active a également permis d'accroître l'accès à la structure verticale. Des campagnes de mesures ponctuelles sont également déployées pour une caractérisation plus complète de la composition atmosphérique.

La modélisation des particules dans l'atmosphère au niveau global et régional s'est beaucoup développée et est complémentaire aux observations, car les modèles fournissent des champs 4D de concentration en tout point d'une grille. Mais la modélisation des particules est encore soumise à de fortes incertitudes, comme le montre la Figure 1.2 qui représente les résultats de simulations de la concentration de $PM_{2.5}$ et PM_{10} en Europe et en Amérique du Nord pour 17 modèles régionaux différents, comparés aux observations (Solazzo et al., 2012). La variabilité entre les modèles et la sous-estimation remarquée notamment pour les PM_{10} peuvent être expliquées par différents paramètres, tels que des différences dans les champs météorologiques (vitesse du vent notamment) et les paramétrisations physiques et chimiques de chaque processus (dépôt, diffusion verticale, etc.), mais aussi par les erreurs dans les sources d'émissions de PM^1 (sources manquantes, inventaires, processus) (Roustan et al., 2010).

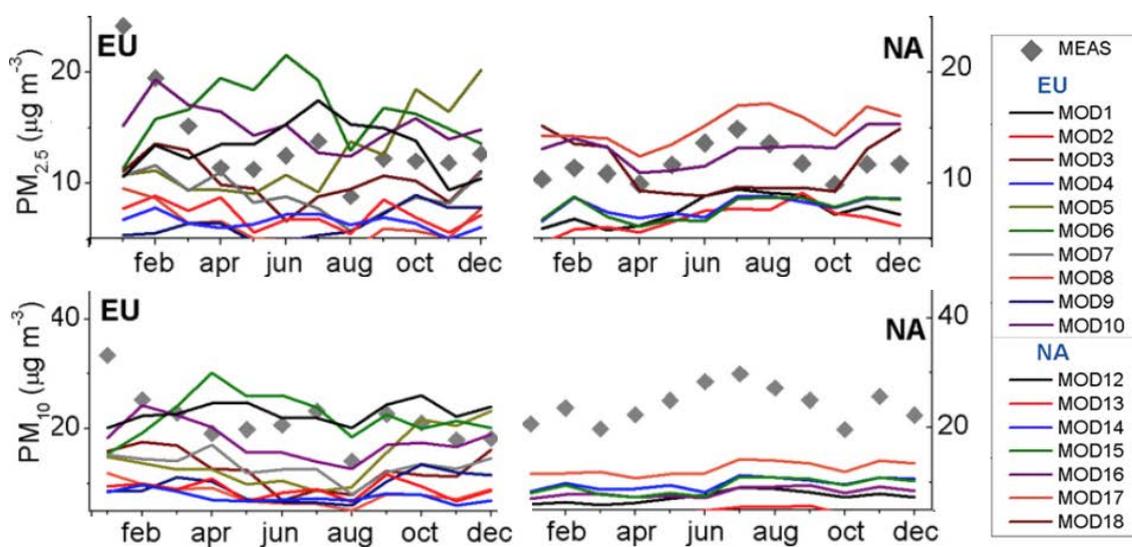


Figure 1.2 – Séries temporelles de la moyenne journalière des $PM_{2.5}$ (première ligne) et des PM_{10} (deuxième ligne) pour l'Europe (colonne de gauche) et l'Amérique du Nord (colonne de droite), modélisés par 17 configurations de modèles, les observations étant indiquées par des losanges gris (Solazzo et al., 2012).

Certaines sources naturelles comme les poussières désertiques ou les feux de vé-

gétation sont difficiles à prévoir et à quantifier, de par leur nature sporadique.

Pourtant, elles peuvent contribuer de façon significative à l'impact sanitaire et climatique, et il est donc important d'améliorer leur modélisation et la prévisibilité de leurs impacts. Les feux de végétation sont pris en compte dans des simulations globales et régionales depuis de nombreuses années afin de quantifier leur impact malgré les fortes incertitudes. Leur intégration dans les prévisions de qualité de l'air est encore très rare, et commence notamment avec la disponibilité en quasi temps réel des émissions de feux (par exemple avec les projets MACC² ou APIFLAME³).

En Europe, le pourtour méditerranéen est composé de grandes zones forestières sujettes à des incendies récurrentes, dont l'effet sur le bilan en aérosols est encore mal appréhendé. Cependant, l'intensité des feux dans cette région est relativement faible comparé à d'autres régions du globe, et le mélange avec d'autres sources d'aérosols rend son étude complexe. L'Australie est affectée par cette source de façon très intense chaque année avec un impact parfois ressenti au niveau global. La qualité de l'air de ses villes principales est en général plutôt bonne mais se dégrade pendant les périodes de feux.

Le présent travail de thèse s'inscrit dans ce cadre et vise à apporter une évaluation complète de notre compréhension de ces sources naturelles, en particulier les feux de végétation, et d'en analyser l'impact sur la qualité de l'air dans des régions densément peuplées.

1.2 Sources d'aérosols

Le [Tableau 1.1](#) résume les quantités massiques d'aérosols et de précurseurs d'aérosols émis par différentes sources et selon leurs compositions chimiques à l'échelle globale ([IPCC, 2013](#)). En terme de masse, les sources naturelles émettent globalement beaucoup plus que les sources anthropiques, particulièrement à cause des sels marins et des poussières désertiques (30% et 60% de la masse totale annuelle), qui sont des particules grossières.

Par exemple, à Erdemli, une station de mesure à l'Est de la mer Méditerranée, les aérosols marins peuvent être responsables jusqu'à 50% de la pollution aux PM₁₀ ([Koçak et al., 2007](#)). Le transport à longue distance des poussières minérales influence également de manière significative les concentrations de PM dans plusieurs régions, notamment celles transportées du Sahara vers la mer Méditerranée et l'Europe, où de fortes valeurs ont été observées à cause de ces poussières minérales ([Gerasopoulos et al., 2006](#); [Gobbi et al., 2007](#)). La distribution spatiale de ces soulèvements de poussière présente une grande variabilité, et un effort a été réalisé pour établir des inventaires de ces sources depuis la fin des années 90, mais l'incertitude concernant leur quantification est encore très forte ([Monks et al., 2009](#)).

Les émissions d'aérosols d'origine anthropique (particules primaires issus de processus de combustion, frottements, émissions agricoles) ainsi que celles issues des feux de végétation sont en majorité des particules fines, et représentent en réalité une part plus importante si on considère le nombre total de particules.

2. Monitoring atmospheric composition & climate

3. Analysis and Prediction of the Impact of Fires on Air quality ModEling

Tableau 1.1 – Estimation des émissions globales annuelles (Tg/an) des principaux types d'aérosols pour l'année 2000 (IPCC, 2013).

SOURCES	Global	Min-Max
AEROSOLS PRIMAIRES		
Provenant de sources naturelles :		
Feux de biomasse	49.1	29.0-85.3
Sels marins	-	1400-6800
Poussières minérales	-	1000-4000
Terrestrial Primary Biological Aerosol Particles	50	1000
Provenant de sources anthropiques :		
Carbone suie	4.8	3.6-6.0
Aérosols primaires organiques	10.5	6.3-15.3
AEROSOLS SECONDAIRES ET PRÉCURSEURS		
Provenant de sources naturelles :		
Secondary Organic Aerosol Production	-	20-380
Dymethylsulphide	-	10-40
Monoterpene	-	30-120
Isoprène	-	410-600
Provenant de sources anthropiques :		
Composés organiques non méthaniques (NMVOC)	126.9	98.2-157.9
Dioxyde de soufre (SO ₂)	55.2	43.3-77.9
Ammoniac (NH ₃)	41.6	34.5-49.6

1.3 Les impacts des aérosols

1.3.1 Aérosols et climat

Les aérosols agissent sur le système climatique par le forçage radiatif qu'ils induisent, estimé à -0.9 W m^{-2} en moyenne (de -1.9 à -0.1) d'après le dernier rapport du GIEC⁴ (IPCC, 2013). Plusieurs études ont contribué à définir plus précisément ce forçage en fonction du type d'interaction des aérosols avec le système climatique. Les aérosols peuvent affecter le climat par leurs effets direct, semi-direct et indirect :

- l'effet direct comprend la diffusion (refroidissement) et l'absorption (réchauffement) par les aérosols du rayonnement solaire ;
- l'effet semi-direct concerne la modification de l'humidité relative et de la stabilité de l'atmosphère, qui impacte la formation des nuages ;
- l'effet indirect est la modification des propriétés microphysiques et optiques des nuages par les aérosols, ainsi que leur temps de vie, en servant de noyau de condensation dans les nuages d'eau liquide.

Le forçage radiatif global et en moyenne annuelle au sommet de l'atmosphère associé aux effets direct et semi-direct est estimé à -0.45 (de -0.95 à $+0.05$) W m^{-2} . La Figure 1.3 illustre les contributions des différents composés d'aérosols : les émissions de biocarburants et de combustion fossile contribuent à ce forçage via les aérosols

4. Groupe d'experts intergouvernemental sur l'évolution du climat

sulfatés (-0.4 W m^{-2}), le carbone suie ($+0.4 \text{ W m}^{-2}$), et les aérosols primaires et secondaires organiques (-0.12 W m^{-2}). Les poussières minérales contribuent également à ce forçage (-0.1 W m^{-2}).

L'effet indirect quant à lui est difficile à estimer, il peut varier de 0 à -2.5 W m^{-2} (médiane de -1.4) selon une étude impliquant plusieurs modèles globaux (IPCC, 2013).

Les résultats du rapport du GIEC montrent qu'à l'échelle globale, l'effet induit par les aérosols (qui tend à un refroidissement) peut en partie compenser l'effet de réchauffement dû aux gaz à effet de serre. Mais à l'échelle régionale ou en surface, l'effet radiatif des aérosols peut être beaucoup plus important (Forster et al., 2007) dans les zones de fortes concentrations particulières, avec des rétroactions complexes sur la dynamique atmosphérique et le cycle de l'eau.

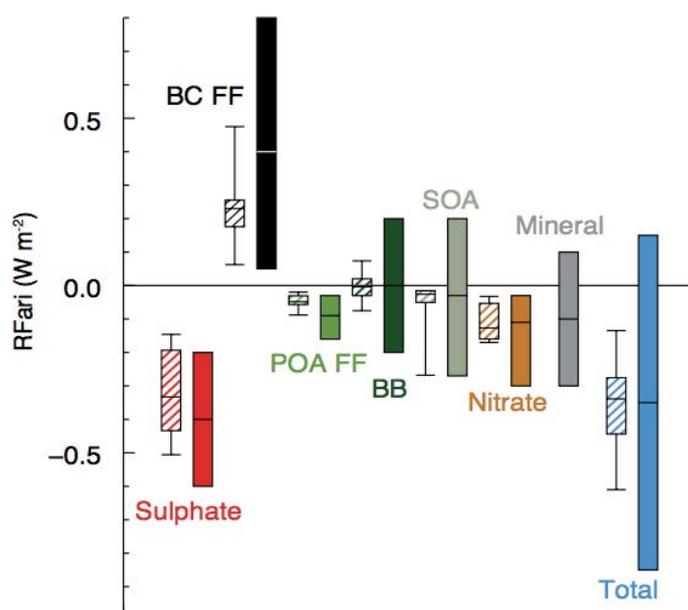


Figure 1.3 – Moyenne annuelle du forçage radiatif au sommet de l'atmosphère dû aux interactions directes et semi-directes des aérosols, en W m^{-2} , par type d'aérosols et pour la période 1750-2010 (IPCC, 2013). Les boîtes hachurées montrent la médiane et du 5e au 95e percentile, avec le minimum et maximum (moustaches), tandis que les boîtes pleines représentent le "best estimate" et l'incertitude à 90% associée. L'acronyme BC FF représente le carbone suie des combustions fossiles et des biocarburants, POA FF les aérosols primaires organiques, BB les aérosols provenant de feux de biomasse et SOA les aérosols organiques secondaires.

1.3.2 Aérosols et santé

Un autre enjeu majeur de la pollution de l'air est le risque environnemental pour la santé. Selon l'OMS⁵, le nombre de décès prématurés provoqués par la pollution ambiante aux particules fines dans le monde est estimé à 3,7 millions en 2012.

5. Organisation Mondiale de la Santé

La pollution particulaire atmosphérique d'origine anthropique est surveillée depuis les années 50 en plus des polluants gazeux comme l'ozone, le dioxyde d'azote et le dioxyde de soufre. A court terme, des épisodes de pollution extrêmes aux particules ont provoqué la mort de plusieurs centaines de personnes, comme par exemple l'épisode de pollution au soufre qui a eu lieu lors du « Great Smog » de Londres en 1952 (Wilkins (1954) ; Figure 1.4). Sur le long terme, les particules fines ont été associées à de nombreux effets sur la santé (principalement selon des études sur les PM urbains), comme l'augmentation de la mortalité, la dégradation des conditions respiratoires et cardio-vasculaires, ou encore des changements physiologiques comme des inflammations, stress oxydants, etc. (Pope III and Dockery, 2006). Par exemple, Pope III et al. (2002) montrent, avec une statistique sur plus de 16 ans, qu'une augmentation de $10 \mu\text{g m}^{-3}$ de la concentration en particules fines a été associée à environ 6 et 8% d'augmentation du risque de mortalité cardio-pulmonaire de cancers du poumon.

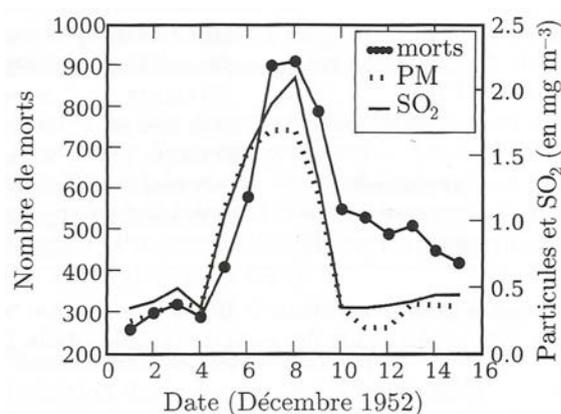


Figure 1.4 – *Great Smog, Londres, décembre 1952 : évolution de la mortalité, de la concentration de dioxyde de soufre (SO₂) et des fumées (particules) (Wilkins, 1954; Sportisse, 2008).*

Les effets des PM associés aux feux de végétation ont été moins étudiés, la plupart portant sur les émissions domestiques. Néanmoins, les études épidémiologiques existantes sur les particules provenant de panaches de feu spécifiques s'accordent à montrer des résultats similaires à celles sur les PM urbains (Hänninen et al., 2009; Morgan et al., 2010). Par ailleurs, une étude globale de 1997 à 2006 sur l'impact de PM_{2.5} émis par des feux de végétation estime à 339000 le nombre de décès annuels moyen (Johnston et al., 2012).

Ces études épidémiologiques nécessitent une connaissance de l'exposition aux particules des populations, et peuvent pour cela utiliser des sorties de modèles qui fournissent des champs 4D de concentration (Valari et al., 2011). Kim et al. (2015) utilisent par exemple le modèle de chimie-transport (CTM) global GEOS-CHEM⁶ pour montrer que différents scénarios de gestion du territoire relatifs aux feux en Asie Equatoriale influencent significativement l'exposition des populations.

6. Goddard Earth Observing System

D'autre part et dans ce contexte sanitaire, des lignes directrices de l'OMS relatives à la qualité de l'air de 2005 établissent pour les particules fines des seuils de recommandation de 10 et 20 $\mu\text{g m}^{-3}$ respectivement pour les PM_{10} et $\text{PM}_{2.5}$ en moyenne annuelle, et de 25 et 50 en moyenne sur 24 heures. Plusieurs dispositions relatives à la qualité de l'air pour les particules ont donc été définies dans de nombreux pays pour tenter de diminuer l'impact sanitaire de la pollution particulaire. Par exemple, l'Union Européenne a instauré pour ses états membres des objectifs de seuil maximal similaires pour les PM_{10} : 40 et 50 $\mu\text{g m}^{-3}$ (Directive n°2008/50/CE du 21/05/08⁷). En Australie, le NEPC⁸ a également instauré des mesures⁹, avec comme objectif 50 $\mu\text{g m}^{-3}$ en moyenne journalière pour les concentrations de PM_{10} (avec un maximum de 5 jours par an), et 25 $\mu\text{g m}^{-3}$ les $\text{PM}_{2.5}$. Ces directives ont pour but d'inciter les pays à surveiller leur qualité de l'air et de réduire leurs émissions afin de limiter l'impact sur la santé. Des sanctions peuvent s'appliquer dans les cas de non-respect de ces objectifs. A titre d'exemple, la France fait actuellement l'objet d'une procédure depuis le 19 mai 2011 pour non-respect des valeurs limites applicables aux PM_{10} .

Dans l'application de ces sanctions, ces directives prennent en général en compte les sources naturelles qui peuvent être évaluées mais non contrôlées. Celles-ci peuvent être déduites de la teneur en polluants de l'air ambiant lorsqu'elles peuvent être déterminées avec suffisamment de certitude. Les contributions des sources naturelles sont ainsi définies comme les émissions de polluants ne résultant pas directement ou indirectement des activités humaines, mais qui sont notamment dues à des événements naturels. Ceux-ci incluent les éruptions volcaniques, les activités sismiques, les activités géothermiques, les feux de terres non cultivées, les vents violents, les embruns marins, la resuspension atmosphérique et le transport de particules naturelles provenant de régions désertiques.

Les modèles de chimie-transport ont été amenés à se développer en termes de simulation des PM afin d'étudier ces impacts climatiques et sanitaires. Les études climatiques, épidémiologiques et sanitaires se basent sur la teneur en aérosols dans l'atmosphère, et ont donc besoin de connaître les concentrations partout et en tout point. Ce besoin n'est pas satisfait aujourd'hui par les mesures au sol et satellitaires (manque d'échantillonnage spatiale et/ou temporel, valeurs intégrées sur la verticale, etc.). D'autre part, seul le modèle peut effectuer de la prévision et des études de scénarios, importants pour la surveillance de la qualité de l'air et pour l'étude du climat futur.

1.4 Les feux de végétation

D'après le [Tableau 1.1](#), les feux de végétation peuvent contribuer fortement à l'apport en particules dans l'atmosphère à l'échelle globale. Outre les gaz traces émis par les émissions de feux (comme principalement le dioxyde de carbone, le

7. <http://eur-lex.europa.eu/LexUriServ/LexUriServ.do?uri=OJ:L:2008:152:0001:0044:FR:PDF>

8. National Environment Protection Council

9. <http://www.scew.gov.au/nepms/ambient-air-quality/>

monoxyde de carbone, mais aussi le méthane et les composés organiques volatiles), la matière particulaire émise est majoritairement constituée de particules fines.

Ces émissions induisent un forçage radiatif à l'échelle régionale et pendant les périodes de feux importants. Ces forçages peuvent atteindre des valeurs très fortes : [Hodzic et al. \(2007\)](#) a montré par exemple que les panaches provenant des feux intenses pendant l'été 2003 au Portugal ont augmenté le forçage radiatif dû à l'absorption par les particules carbonées de $+10$ à $+35 \text{ W m}^{-2}$, sur une grande partie de l'Europe. L'étude de [Péré et al. \(2014\)](#) montre quant à elle que les feux de Moscou (août 2010) ont diminué le rayonnement solaire direct atteignant la surface de 80 à 150 W m^{-2} en Europe de l'Est, refroidissant les masses d'air en surface jusqu'à 2.6° C . Avec l'impact climatique, les émissions de particules ont aussi un effet sur la qualité de l'air puisque l'augmentation des concentrations de particules fines dû à un événement de feu peut être très intense : à titre d'exemple, lors des feux ayant eu lieu en Grèce en août 2007, la concentration moyenne journalière de PM_{10} a atteint $96 \mu\text{g m}^{-3}$, avec plusieurs jours où le seuil imposé par la directive européenne ont été dépassés ([Liu et al., 2009a](#)). A Sydney, la majorité des dépassements du seuil de PM_{10} (défini par le NEPC) est attribué aux feux de végétation (48 sur 52 jours entre 1994 et 2007 dont 4 au dessus de $100 \mu\text{g m}^{-3}$, [Johnston et al., 2011a](#)).

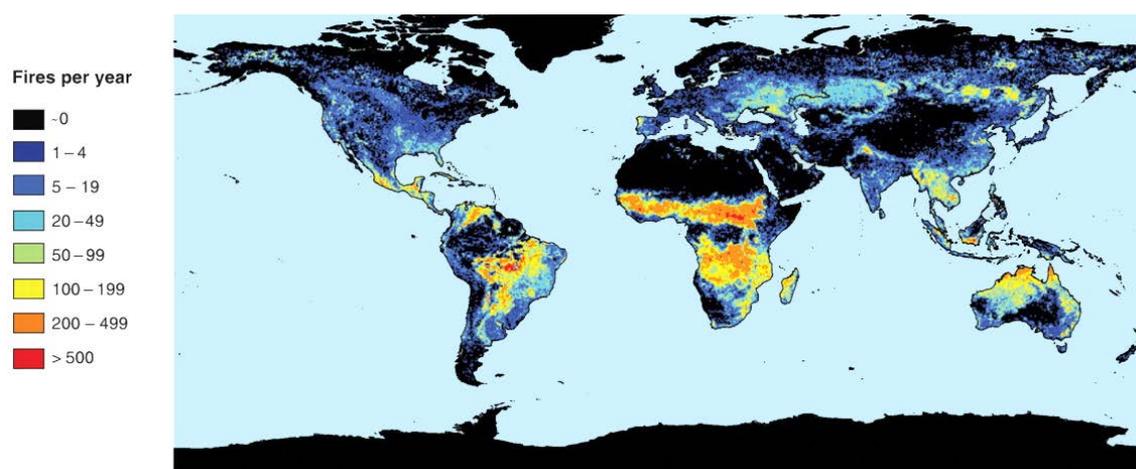


Figure 1.5 – Nombre de feux détectés par l'instrument MODIS ([Giglio et al., 2006](#); [Bowman et al., 2009](#)).

Sur la [Figure 1.5](#), qui représente le nombre de feux détecté par l'instrument satellitaire MODIS¹⁰, on peut remarquer que les feux affectent la majeure partie du globe (excepté les déserts et les pôles) des tropiques aux régions tempérées. La variabilité associée à ces zones présente des différences. Les feux récurrents se déclarent en général pendant les saisons sèches, c'est-à-dire au Nord des tropiques en décembre-janvier-février en Afrique centrale et Afrique de l'Ouest ainsi qu'en Indonésie, et en août-septembre pour le Sud des tropiques (Amérique du Sud, Afrique du Sud et Australie). Cette variabilité est également associée aux conditions météorologiques et à la circulation à grande échelle en particulier dans les latitudes moyennes, où la

10. Moderate Resolution Imaging Spectroradiometer

variabilité interannuelle est plus élevée, avec des saisons de feux correspondant aux étés hémisphériques. L'activité des feux est influencée jusqu'aux moyennes latitudes par l'oscillation ENSO¹¹ (Le Page et al., 2008; Giglio et al., 2010).

A l'échelle régionale, les régimes météorologiques jouent un rôle important dans le déclenchement et l'expansion des feux de végétation. Pereira et al. (2005) ont montré que pendant les feux intenses au Portugal entre 1980 et 2000 en été, la circulation atmosphérique forme un front sur la péninsule ibérique et advecte de l'air chaud et sec d'Afrique du Nord. Des conditions synoptiques de blocage peuvent également influencer le développement et la durée des feux de végétations (Hernandez et al., 2015). Les étés les plus intenses sont souvent précédés d'un hiver humide (et donc favorable au développement de la densité de biomasse), suivi d'un printemps très sec.

Les feux ont également une rétroaction sur la météorologie, liée à l'énergie qu'ils libèrent mais aussi à l'effet indirect des aérosols. La chaleur génère de la flottabilité qui provoque un transport vertical rapide des émissions, provoquant la condensation de la vapeur d'eau et la formation de panaches appelés « pyro-cumulus ». Les feux peuvent ainsi initier ou intensifier de la convection (appelée *pyro-convection*) dont l'amplitude dépend de la stabilité de l'atmosphère et de l'intensité du feu. Plusieurs études, basées sur des observations satellitaires, ont montré que certains feux peuvent injecter des particules directement dans la troposphère libre (Val Martin et al., 2010; Mims et al., 2010; Amiridis et al., 2010; Tosca et al., 2011) et même dans la stratosphère (Fromm and Servranckx, 2003; Damoah et al., 2006). Le transport vertical associé a un impact direct sur la composition atmosphérique locale puisque les trajectoires de transport dépendent de cette hauteur d'injection. Par l'effet indirect des aérosols, les feux de végétation peuvent aussi influencer la couverture nuageuse via leur rôle en tant que noyaux de condensation. Grell et al. (2011) ont montré que les aérosols émis par des feux en Amérique du Nord pendant l'été 2004 avaient diminué significativement les précipitations pendant les 12 premières heures, et renforcé les orages convectifs.

La rétroaction sur la météorologie peut également se traduire par une réduction de la couche limite atmosphérique (jusqu'à 65%, selon Péré et al., 2014), elle même impactant la dynamique de transport du panache sur la verticale.

Pour quantifier précisément l'impact des feux sur le climat et la qualité de l'air ainsi que l'étendue de cet impact, il est nécessaire de connaître la modification de la composition atmosphérique que les feux induisent par leurs émissions, associée au transport des panaches denses. Cependant, l'état de l'art sur ces différentes caractéristiques montre une grande incertitude liée aux émissions ainsi qu'à leur transport vertical. Ce travail de thèse tente d'améliorer la compréhension de ces émissions et de ce transport, et de leur impact. Les études réalisées sont focalisées sur deux régions du monde qui sont touchées de façon récurrente par les feux de végétation : la région Euro-Méditerranéenne et le Sud-Est de l'Australie.

11. El Niño Souther Oscillation

1.5 Régions d'étude

1.5.1 La région Euro-Méditerranéenne

La Méditerranée est une mer presque entièrement fermée, située entre l'Europe, l'Afrique et l'Asie et qui s'étend sur environ 2,5 millions de km². Elle présente des paysages marins, côtiers, des plaines et des montagnes ainsi que des péninsules. Ces caractéristiques orographiques influencent grandement la circulation atmosphérique (Lionello et al., 2006). Du point de vue climatique, la région méditerranéenne constitue une zone de transition entre les climats semi-arides et les anticyclones subtropicaux (le Sud du bassin) d'une part et les climats et dépressions tempérés (le Nord du bassin) d'autre part. Le climat est caractérisé par des hivers doux et humides, et des étés chauds et secs. La variabilité au Nord est principalement sous l'influence de flux atmosphériques d'Ouest contrôlés par les positions de l'anticyclone des Açores et de la dépression d'Islande et modulée par l'intensité et la phase de l'Oscillation Nord Atlantique (NAO) (Hoerling et al., 2004). Le bassin Ouest de la Méditerranée est sous l'influence des dépressions des moyennes latitudes qui régissent le taux de précipitations. Le Sud du bassin est sous l'influence de la branche descendante de la cellule de Hadley, et l'Est du bassin est sous l'influence de téléconnexions avec l'oscillation Sud d'El Niño et la mousson d'Asie du Sud, notamment en été.

Ces caractéristiques gouvernent le transport d'aérosols émis par les diverses sources anthropiques et naturelles autour du bassin Méditerranéen, et contribuent au mélange observé résultant du transport à longue distance des particules (Boselli et al., 2012) venant d'Europe, d'Asie et d'Afrique (la Figure 1.6 montre un exemple de transport de masses d'air dans la région).

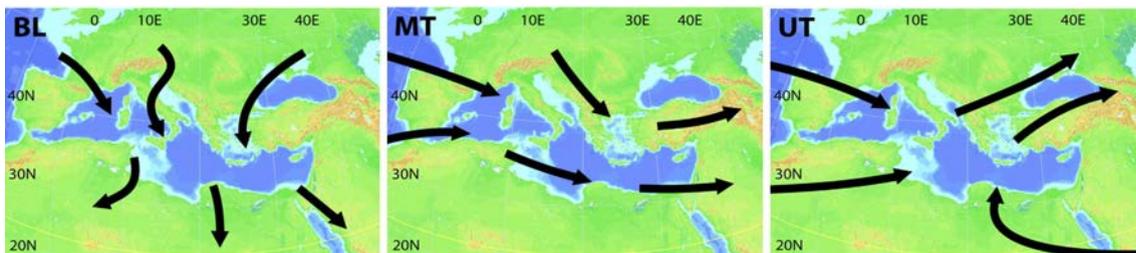


Figure 1.6 – Trajectoires schématisées des masses d'air en Méditerranée (pendant la campagne MINOS), représentant le transport pendant 3 jours environ dans la basse (BL), moyenne (MT) et haute (UT) troposphère (Lelieveld et al., 2002).

La météorologie et la chimie dans le bassin permettent de distinguer plusieurs sous-régions, notamment les bassins Est et Ouest. Les poussières minérales provenant d'Afrique du Nord peuvent être transportées de manière fréquente au printemps et en été à travers l'Atlantique pour atteindre principalement l'Ouest du bassin (Moulin et al., 1998; Ripoll et al., 2015), mais peuvent aussi traverser la mer Méditerranée et se retrouver en Europe centrale (Salvador et al., 2014). Ces transports impactent directement les concentrations de PM_{2.5} et PM₁₀, avec par exemple plus de 70% des dépassements de seuils de qualité de l'air pour les PM₁₀ dans différentes stations de fond en Espagne dus à ces transports de poussières d'Afrique du Nord (Escudero

et al., 2007). Des résultats similaires pour l'Est du bassin sont mentionnés dans Gerasopoulos et al. (2006); Gobbi et al. (2007); Koçak et al. (2007).

Bien que certains dépassements de seuils de qualité de l'air soient dus à la pollution primaire, la pollution peut aussi être accentuée par la production d'aérosols secondaires (Koçak et al., 2007). Sartelet et al. (2012) ont montré que la formation d'aérosols organiques secondaires (SOA) en Europe est fortement liée aux émissions de précurseurs d'origine biogénique (72-88%) en plus des précurseurs d'origine anthropique.

Enfin, comme développé dans la partie 1.4, les feux de végétation représentent une source récurrente de PM en Europe de l'Est et au Sud de l'Europe pendant le printemps et l'été (Turquety et al., 2014), avec des conséquences sur la qualité de l'air dans tout le bassin (Barnaba et al., 2011).

Les émissions naturelles provenant des feux et des poussières minérales du Sahara sont particulièrement difficiles à quantifier précisément à cause de leur nature sporadique et de leur intensité. Plusieurs campagnes de mesures ont eu lieu depuis de nombreuses années afin d'améliorer la quantification et la compréhension des bilans de pollution en aérosols, notamment en été et pour palier au manque relatif de mesures dans le bassin même. Parmi ces efforts, on peut citer le programme CHARMEX¹², ayant donné lieu à des campagnes de mesures intensives en 2012, 2013 et 2014. En 2012, les campagnes CHARMEX/TRAQA¹³ et EMEP¹⁴ ont permis la caractérisation d'un événement de poussières désertiques mesuré fin juin sur le bassin Ouest Méditerranéen (Nabat et al., 2015). Cette même année, des feux conséquents se sont déclarés pendant l'été, plus particulièrement dans les Balkans (Anttila et al., 2015) et en Espagne (Gómez-Amo et al., 2013). Cependant, les panaches de feux n'ont pas pu être échantillonnées par les instruments aéroportés (basés trop loin ou ne mesurant pas à la bonne période).

Sur le pourtour Méditerranéen, la saison des feux s'étend de mai à octobre avec des maximas en juillet et en août. Chaque année, le rapport de l'EFFIS¹⁵ reporte le nombre de feux et l'aire brûlée à l'échelle Européenne. Sur les 23 pays reportés, 600 000 ha de forêts ont été affectés chaque année de 2000 à 2005, avec la majorité dans les pays du pourtour méditerranéen (Barbosa et al., 2008). Environ 95% de ces feux sont d'origine humaine et la majorité sont de petite taille. Des politiques de régulation à l'échelle européenne ont été mises en place depuis les années 2003 (San-Miguel-Ayanz et al., 2013b) afin de réduire ces événements. Cependant, plusieurs épisodes de feux intenses, ou "méga feux", ont causé des dommages humains et matériels catastrophiques. La propagation de tels feux se distingue par une dépendance forte aux conditions météorologiques. Ils brûlent en général de façon incontrôlée, s'arrêtant quand les conditions deviennent moins favorables (San-Miguel-Ayanz et al., 2013a; Hernandez et al., 2015). La fréquence de ces feux intenses est restée stable, mais cette stabilité est remise en question avec l'augmentation probable, avec le changement climatique, des situations météorologiques extrêmes dans le bassin (IPCC, 2007).

12. Chemistry-Aerosol Mediterranean Experiment, <http://charmex.lsce.ipsl.fr>

13. TRansport and Air QuAlity

14. European Monitoring and Evaluation Programme

15. European Forest Fire Information System of the Joint Research Centre, <http://effis.jrc.ec.europa.eu/>

Parmi les évènements notables de ces dernières années, on peut citer l'été 2003 qui a été affecté par une vague de chaleur associée à une sécheresse favorisant des feux intenses au Portugal (Pace et al., 2005; Hodzic et al., 2007) ou encore les feux de végétation historiques de l'été 2007 en Grèce (Liu et al., 2009a; Turquety et al., 2009).

1.5.2 L'Australie et la région de Sydney

L'Australie s'étend sur 7,6 millions de km² et est l'un des continents les plus secs au monde, avec une moyenne annuelle de précipitations de 457 mm (Wahlquist, 2008). Cette sécheresse est due principalement aux courants océaniques froids sur sa côte Ouest, à une faible altitude du relief, à une prédominance d'un système de haute pression ainsi qu'à la forme du continent où aucun plan d'eau ne pénètre. La Figure 1.7 montre que, bien que la majeure partie du pays subisse un climat semi-aride ou désertique, les océans jouent un rôle important sur les nombreux climats régionaux. Dans le Nord du pays, le climat est caractérisé par les cyclones tropicaux et les moussons. Le phénomène ENSO influence également l'est de l'Australie, provoquant des inondations et des sécheresses prolongées lors des années El Niño. Cette sécheresse de la végétation locale provoque des feux récurrents et intenses, appelés "bushfires" ou feux de bush, en référence à la végétation australienne constituée de savane ou de forêts, bois et broussailles.

La région Sud-Est, et en particulier l'Etat de Nouvelle Galle du Sud (NSW), à laquelle s'intéresse cette thèse, possède une bande côtière avec un climat allant du tempéré au Sud jusqu'au subtropical humide au Nord, et subissant l'influence de El Niño ainsi que du Dipôle de l'Océan Indien (IOD). De plus, la ceinture de hautes pressions subtropicales traverse directement l'état et pousse les fronts froids au Sud pendant l'été.

La région de Sydney est la plus peuplée du pays (7,2 millions d'habitants), mais la densité de population reste relativement faible par rapport à l'Europe. Les émissions anthropiques sont majoritairement issues de l'industrie du charbon, mais également des bateaux commerciaux et du trafic routier.

Les poussières minérales atteignent occasionnellement Sydney, mais les évènements extrêmes sont relativement rares (excepté l'épisode de septembre 2009 où la moyenne journalière de PM₁₀ a excédé 1734 $\mu\text{g m}^{-3}$ à Randwick d'après Leys et al., 2011).

En revanche, la qualité de l'air liée aux particules à Sydney présente une dégradation significative en général pendant le printemps et l'été austral, à cause des feux de brousse (Gupta et al., 2007). Comme le documente l'étude de Johnston et al. (2011b) basée sur les évènements de pollution aux particules de 1994 à 2007 dans plusieurs villes d'Australie, 59% à 90% des jours présentant des concentrations élevées de PM à Sydney sont dus aux feux de végétation. Durant ces épisodes, la concentration en PM_{2.5} peut passer d'une moyenne de moins de 20 $\mu\text{g.m}^{-3}$ à plus de 70, et l'épaisseur optique être supérieure à 1 (Gupta et al., 2007).

Parmi les feux majeurs qui ont eu lieu en NSW, on peut citer les feux de Canberra en janvier 2003 qui ont émis environ 15 ± 5 Tg de CO (Paton-Walsh et al., 2010), ainsi que les feux de décembre 2006 dont le panache a été transporté à travers l'hémisphère

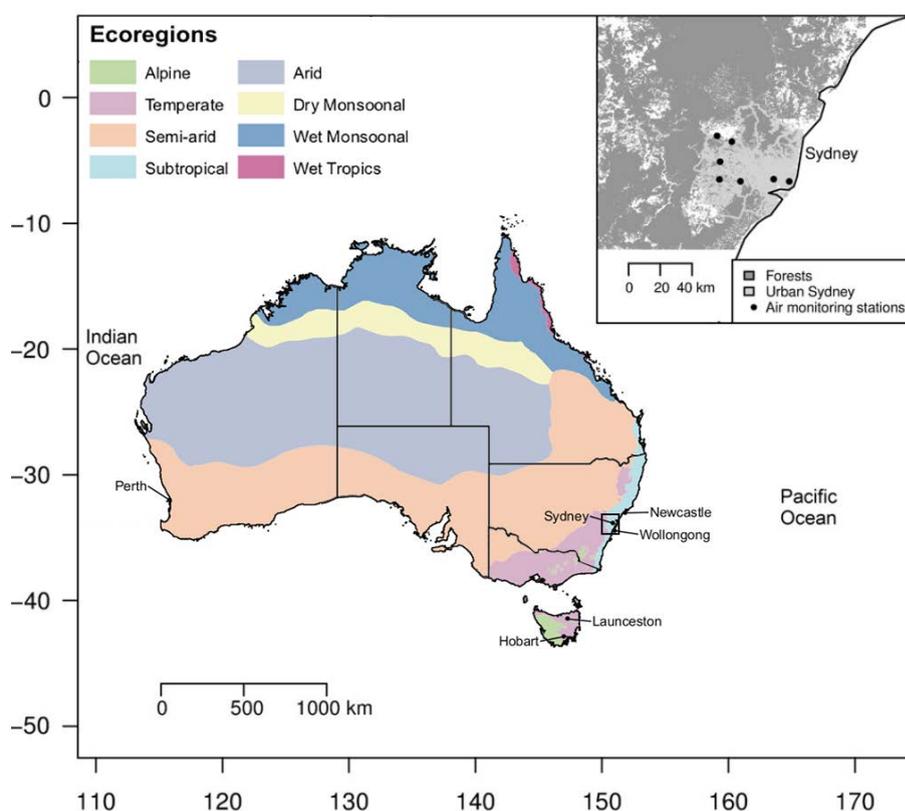


Figure 1.7 – Carte de l’Australie montrant les différents climats du pays, ainsi que la localisation de Sydney et des régions forestières alentours (Johnston et al., 2011a,b).

Sud pendant 12 jours (Dirksen et al., 2009). Plus récemment, de nombreux feux se sont déclarés en octobre 2013 et ont brûlé environ 1500 km² de végétation (d’après le NSW Rural Fire Service). Ces feux ont la particularité de se situer proche de zones habitées, et plusieurs stations de mesures, notamment de PM, ont été mises en place ces dernières années afin de mieux quantifier cette pollution. De plus, même si les campagnes de mesure restent relativement rares au vue de l’étendue du pays, quelques unes ont permis de déterminer des facteurs d’émissions pour les gaz émis par les feux dans les types de végétation locale (Smith et al., 2014; Paton-Walsh et al., 2014a). Ces campagnes permettent d’obtenir des observations proches des feux et de mieux caractériser les émissions atmosphériques des feux australiens.

Depuis les années 50, et avec le réchauffement climatique, l’influence désertique se fait de plus en plus sentir vers l’intérieur des terres, janvier 2006 étant devenu le mois le plus chaud jamais enregistré. La perturbation liée aux feux de végétation devrait s’intensifier avec la hausse des températures (Pitman et al., 2007). L’augmentation associée des concentrations de polluants dans l’atmosphère aura une conséquence sanitaire encore mal quantifiée dans les villes d’Australie mais pourrait être la cause de morbidité et de maladies respiratoires notamment à Sydney selon l’étude de Morgan et al. (2010).

Les deux régions étudiées (Euro-Méditerranée et Australie) présentent des simi-

larités et des différences dans leur climat et leurs influences, leur végétation et leur densité de population, mais aussi la variabilité et l'intensité des sources d'aérosols. Le fait d'étudier dans le cadre de cette thèse ces deux régions permet d'analyser les différents impacts sur la qualité de l'air que peuvent avoir une même source d'aérosols, mais aussi de tester l'adaptabilité d'un modèle et ainsi d'analyser la robustesse de son application à la prévision de la qualité de l'air. En Europe, le but de cette thèse est d'étudier l'influence locale et régionale des feux de végétation par rapport aux autres sources très présentes dans la région. En Australie, les feux de végétation sont la principale source de pollution en été à Sydney, puisqu'ils brûlent de façon intense à côté de zones habitées. De ce fait, leur proximité avec les stations de mesures et leur bonne caractérisation offre la possibilité d'évaluer plus précisément le développement des feux dans un modèle de chimie-transport de façon complémentaire avec la zone Euro-Méditerranéenne.

1.6 Objectifs de thèse

Le besoin d'une caractérisation plus fine du cycle de vie des aérosols, notamment ceux liés aux feux de végétation, a motivé ce travail de thèse. La thèse est structurée selon le plan suivant :

- Les Chapitres 2 et 3 décrivent les observations et la modélisation utilisées tout au long de la thèse.
- Une analyse des caractéristiques des feux et de leur variabilité sur 9 ans est réalisée dans le Chapitre 4.
- Le Chapitre 5 présente ensuite une première étude menée sur l'Europe et la Méditerranée pendant l'été 2012, afin de déterminer la contribution des sources naturelles sur les concentrations de PM et sur l'épaisseur optique, ainsi que les incertitudes associées à la modélisation de ces sources.
- L'impact sur la qualité de l'air des différents cas de feux de végétation pendant cette période est analysé dans le Chapitre 6.
- Une étude similaire du cas particulier de feu d'octobre 2013 en Australie est présenté dans le Chapitre 7.

Ces différentes études permettent de répondre aux objectifs suivants :

- **Quelles sont les caractéristiques des feux de végétation dans les deux régions d'étude ? La variabilité des feux et des profils d'injection associés dépend-t-elle de chaque région ?**

A partir exclusivement des observations satellitaires, une statistique de 2006 à 2014 a été réalisée afin d'extraire les caractéristiques des feux en Europe et en Australie. Parmi ces caractéristiques, la surface brûlée et le type de végétation sont décrits pour les deux régions à partir des mesures de l'instrument MODIS. La hauteur des panaches est analysée à partir des mesures des instruments MISR¹⁶ et CALIOP¹⁷.

16. Multi-angle Imaging SpectroRadiometer

17. Cloud-Aerosol Lidar with Orthogonal Polarization

- **Quelle est la contribution relative des sources d'émissions d'aérosols anthropiques et naturelles sur la pollution particulaire régionale en Europe (en surface et sur toute la colonne atmosphérique) et sur les dépassements des seuils de pollution ?**

Une première étude menée sur l'Europe et la Méditerranée pendant l'été 2012 a permis de déterminer la contribution des sources naturelles sur les concentrations de PM en surface et sur l'épaisseur optique. L'étude de cet été type permet de faire un état des lieux de cette région où plusieurs sources d'aérosols contribuent à la dégradation de la qualité de l'air. La détermination de la contribution des sources naturelles est déterminante dans le cadre des réglementations en vigueur, en particulier sur les dépassements de seuil de qualité de l'air.

- **Quelle est la contribution et l'influence spécifique des feux de végétation sur la qualité de l'air en Europe et en Australie ?**

Les feux de végétation pendant l'été 2012 en Europe sont analysés plus en détails afin de mieux caractériser leurs différentes influences, notamment sur la qualité de l'air et les dépassements de seuil. En Australie, l'étude des feux d'octobre 2013 dans la région de Sydney permet de façon complémentaire d'analyser les influences sur la composition atmosphérique des particules de feux.

- **Quelle est la performance dans la modélisation des PM et de leurs sources ?**

Les différents cas d'étude simulés avec le modèle CHIMERE (Menut et al., 2013) sont comparés avec des observations de concentrations de PM en surface et des observations d'épaisseur optique en surface et satellitaires, afin de mieux connaître la capacité d'un modèle régional à simuler de tels épisodes de feu.

- **Quels manques de connaissances sont les plus limitants dans le calcul des aérosols provenant des feux de végétation ?**

Plusieurs paramètres permettant de modéliser les feux de végétation sont analysés en détails dans cette thèse. Des inventaires d'émissions sont développés à l'échelle régionale et globale (e.g. van der Werf et al., 2006; Mieville et al., 2010; Wiedinmyer et al., 2011; Kaiser et al., 2012; Turquety et al., 2014), mais leurs incertitudes sont encore très importantes, par exemple jusqu'à un facteur 5 pour les émissions de carbone émis (Schultz et al., 2008), à cause d'estimations et d'hypothèses dans les différentes étapes de calcul. Dans cette thèse, un travail particulier a été réalisé sur les résultats de l'inventaire d'émission utilisé (inventaire APIFLAME), qui a été adapté à chaque région d'étude, et sur sa variabilité diurne.

Enfin, l'importance de la détermination du profil vertical d'injection lors de transport de panache est également étudiée.

2 | Observation des aérosols atmosphériques et des feux de végétation

Sommaire

2.1	Concentrations de surface	18
2.2	La campagne ChArMEx	20
2.3	Observation des propriétés optiques des aérosols	20
2.3.1	Épaisseur optique et coefficient d'Angström	21
2.3.2	Fonction de phase	22
2.3.3	Photomètres solaires AERONET	22
2.3.4	Capteur MODIS	23
2.4	Caractéristiques des feux de végétation	24
2.4.1	Localisation des feux	24
2.4.2	Puissance radiative des feux (FRP)	25
2.4.3	Surface brûlée	25
2.5	Altitude d'injection des panaches de feux	26
2.5.1	Hauteurs des panaches par MISR	26
2.5.2	Hauteurs de couche d'aérosols par CALIOP	29
2.6	Conclusion	31

La connaissance du contenu atmosphérique en aérosols et de leurs caractéristiques (taille, composition chimique, etc.) sont nécessaires pour analyser leurs impacts sur la qualité de l'air et sur le climat. Cette information est difficilement accessible par les observations, mais le développement des réseaux de mesure des concentrations massiques au sol permet un quadrillage assez dense pour certaines régions. Les mesures par télédétection active et passive permettent de déterminer les propriétés optiques des aérosols, qui donnent une information sur le type de particule. Le LIDAR permet d'avoir une information sur la verticale très précise, malgré sa couverture spatiale faible. Les instruments satellitaires passifs ne fournissent qu'une information intégrée sur la colonne, mais permettent de palier au manque d'échantillonnage spatial des autres types de mesure.

Ce chapitre décrit les observations utilisées dans cette thèse ainsi que les caractéristiques des instruments fournissant ces observations. Les mesures de concentrations en surface utilisées proviennent des réseaux de mesure de chacune des régions d'étude, le réseau AIRBASE¹ pour l'Europe et le réseau OEH² pour le NSW, présentés dans un premier temps. Les données du projet CHARMEX sont également intégrées à ces mesures, ainsi que les observations de campagnes australiennes sur les feux (Smith et al., 2014; Paton-Walsh et al., 2014a). Les données de télédétection sont également largement utilisées : les mesures au sol du réseau de photomètres AERONET³, et les observations des instruments embarqués MODIS, CALIOP et MISR.

Enfin, les produits utilisés pour la localisation et la caractérisation des feux de végétation sont détaillés.

2.1 Concentrations de surface

En surface, la concentration en aérosols peut être mesurée en fonction de leur distribution en taille (Figure 1.1). Un même type d'aérosol va avoir différentes tailles émises dans l'atmosphère, caractérisées par le diamètre aérodynamique de l'aérosol (et ce même si l'aérosol considéré n'est pas sphérique).

Les particules surveillées par les réseaux de qualité de l'air sont celles pouvant pénétrer dans le système respiratoire. Dans cette optique, les réseaux développent de plus en plus la mesure et la surveillance des PM_{2.5} et PM₁₀, qui représentent l'ensemble de la distribution en masse jusqu'aux diamètres respectifs 2,5 et 10 μm . Des mesures de PM₁ commencent également à être mises en place.

En Europe, la base de donnée AIRBASE de l'agence européenne fournit des informations sur 140 polluants dans 38 pays à travers l'Europe, et inclut plus de 6000 stations avec des mesures horaires et journalières. Ces stations sont classées par zone (urbaine, suburbaine ou rurale) et par type (route, industrie, de fond). La Figure 2.1 représente la localisation des stations de PM_{2.5} et PM₁₀.

Comme on peut le constater sur la figure, le réseau est très dense en Europe de l'ouest et centrale, surtout pour les PM₁₀, mais le réseau couvre moins la région

1. European Air Quality Database
2. Office of Environment and Heritage
3. AErosol RObotic NETwork

méditerranéenne (en particulier l'Afrique du Nord) et l'Europe de l'Est.

Par ailleurs, la diversité des instruments de mesure, des différents prélèvements, et des conditions météorologiques (humidité) apporte des sources d'incertitude quant aux données collectées. L'objectif de qualité pour ces données est de 25% d'incertitude au maximum. D'après Gerboles and Reuter (2010), cet objectif est atteint pour la grande majorité des instruments.

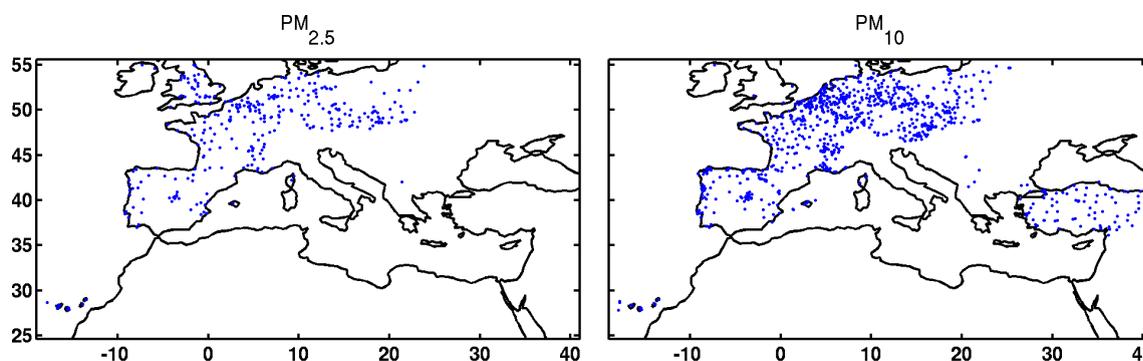


Figure 2.1 – Localisation des stations du réseau AIRBASE mesurant les $PM_{2.5}$ et les PM_{10}

Les données du réseau AIRBASE sont disponibles en téléchargement libre, et nous les avons ordonnées pour permettre une comparaison facile avec les sorties du modèle, avec une décomposition par polluant et par heure.

En Australie, le réseau de qualité de l'air est moins dense et est regroupé pour chaque état près des villes les plus fortement peuplées. Dans l'état du NSW, l'OE⁴ s'occupe de la maintenance et de la surveillance de la qualité de l'air, et ce au moyen de 41 stations dont la plupart se situent autour de la région de Sydney (Figure 2.2). A l'instar du réseau AIRBASE, la mesure de concentration en PM_{10} s'effectue dans presque toutes les stations, tandis que le nombre de stations mesurant les $PM_{2.5}$ est plus restreint. Cela s'explique par le fait que la réglementation sur les PM_{10} est plus ancienne que celle sur les $PM_{2.5}$. En Europe, la réglementation ne porte pour l'instant que sur les PM_{10} .

Les données du réseau OEH ont été obtenues dans le cadre de cette thèse grâce à la collaboration avec l'équipe de chimie atmosphérique de l'Université de Wollongong, qui communique régulièrement avec les équipes des réseaux de mesure au NSW. Nous avons ensuite organisé ces données de façon similaire à celles du réseau AIRBASE, par polluant et par heure.

Ces mesures de concentration en surface sont essentielles car elles constituent une information nécessaire aux études d'impacts des aérosols sur la qualité de l'air et sur le climat. Cependant, ces concentrations donnent des informations par rapport à la masse de l'aérosol, et rarement sur le type ou l'origine (les données de spéciation sont rarement disponibles).

4. Office of Environment and Heritage

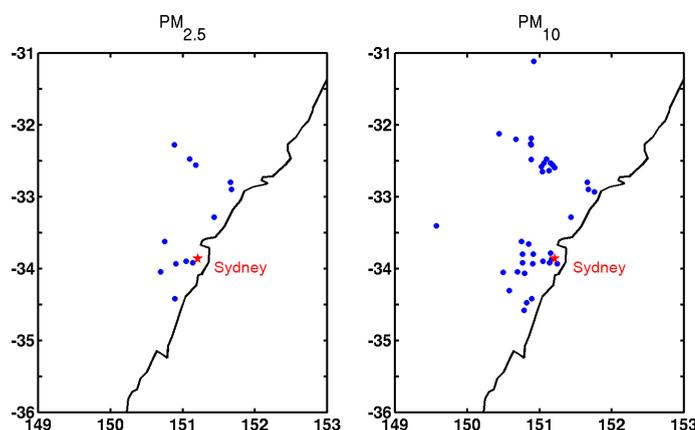


Figure 2.2 – Localisation des stations du réseau de surveillance de qualité de l'air de l'Office of Environment and Heritage (OEH) dans l'état du NSW, mesurant les $PM_{2.5}$ et les PM_{10}

2.2 La campagne ChArMEx

Le projet CHARMEX se focalise sur les espèces troposphériques particulières et gazeuses à faible durée de vie afin de déterminer leur budget régional, leurs tendances, et leurs impacts sur la qualité de l'air et le climat (cf. Annexe 1). Ce programme a donné lieu à des campagnes de mesures intensives depuis 2012. Par exemple, la campagne ADRIMED du 1^{er} juin au 15 juillet 2013 a permis un certain nombre de mesures dans l'Ouest du bassin méditerranéen. Cette campagne a notamment fait l'objet d'analyses avec le modèle CHIMERE (Menut et al., 2015a,b; Mailler et al., 2015). Cette même année, plusieurs périodes d'observations intensives (SOP) ont été organisées pour mieux caractériser la composition atmosphérique, particulièrement en termes d'ozone et de particules.

Ce projet et ces campagnes ont permis de mettre en relation un grand nombre de données diverses pour l'Europe (concentrations in-situ en aérosols, en polluants gazeux, mais aussi données de spéciation) aidant à l'analyse des études de cas.

L'étude de l'été 2012 dans la région Euro-Méditerranéenne se plaçant dans le cadre de ce projet, plusieurs jeux de données ont été utilisés. Les concentrations de PM_{10} et de $PM_{2.5}$ pour les stations de fond Venaco et Ersu en Corse ont été ajoutées à la base de données AIRBASE pour les comparer aux sorties de modèle.

2.3 Observation des propriétés optiques des aérosols

Nous introduisons ici tout d'abord la théorie concernant les paramètres observables qui seront utilisés tout au long du manuscrit, à savoir l'épaisseur optique τ et le coefficient d'Angström α .

Ensuite, les différents instruments de télédétection passive et active seront décrits. La télédétection passive utilise comme rayonnement mesuré les sources naturelles (le soleil), alors que la télédétection active mesure l'écho d'un rayonnement produit par l'instrument (par exemple un rayon laser).

2.3.1 Epaisseur optique et coefficient d'Angström

Les instruments par télédétection se basent sur l'interaction entre les particules et le rayonnement pour mesurer à distance la signature optique des aérosols. Les aérosols et molécules interagissent de trois manières différentes avec le rayonnement électromagnétique qui traverse l'atmosphère : ils le diffusent, l'émettent ou l'absorbent. L'absorption et la diffusion (extinction) permettent d'obtenir des informations sur la composition et les propriétés des couches traversées. La quantification de cette extinction dépend du domaine d'application des théories optiques, lié au rapport entre la longueur d'onde du rayonnement λ et la taille des particules (diamètre) d_p considérées. La distribution en taille est donc un paramètre sensible du point de vue du rayonnement. Le rapport a de ces dimensions est défini comme $\frac{d_p}{\lambda}$. Trois cas sont alors envisageables :

- $a \ll 1$: la particule est très petite devant la longueur d'onde du rayonnement incident. En pratique, cela correspond aux particules de diamètre inférieur à quelques dizaines de nanomètres, ou spécifiquement aux molécules. La théorie de Rayleigh s'applique dans ce cas pour le calcul du coefficient d'extinction, et celui-ci est alors proportionnel à $1/\lambda^4$.
- $a \approx 1$: le diamètre de l'aérosol est du même ordre de grandeur que la longueur d'onde du rayonnement incident. C'est le cas en général pour l'aérosol atmosphérique. La théorie de Mie s'applique dans ce cas (en faisant l'hypothèse de l'aérosol sphérique).
- $a \gg 1$: l'aérosol est très gros devant la longueur d'onde du rayonnement incident. On utilise alors la théorie de l'optique géométrique.

L'épaisseur optique atmosphérique (τ ou AOD pour Atmospheric Optical Depth) rend compte de l'extinction proportionnelle à la concentration en aérosol dans la colonne atmosphérique. Pour la définir, introduisons le facteur et le coefficient d'extinction.

Les surfaces de la particule qui interagissent avec le rayonnement pour le diffuser ou l'absorber sont les sections efficaces d'absorption s^{abs} et de diffusion s^{diff} . Les facteurs d'absorption et de diffusion, Q^{abs} et Q^{diff} , sont ainsi :

$$Q^{abs} = \frac{s^{abs}}{s^g} \quad \text{et} \quad Q^{diff} = \frac{s^{diff}}{s^g} \quad (2.1)$$

avec $s^g = \pi r^2$ la section géométrique pour une particule sphérique de rayon r . Le facteur d'extinction est donc égal à $Q^{abs} + Q^{diff}$. Le coefficient d'extinction σ^{ext} (m^{-1}) est obtenu en intégrant le facteur d'extinction pour une population de particules de distribution en tailles $n(r)$:

$$\sigma^{ext} = \sigma^{abs} + \sigma^{diff} = \int_0^\infty \pi r^2 Q^{abs}(r) n(r) dr + \int_0^\infty \pi r^2 Q^{diff}(r) n(r) dr \quad (2.2)$$

Ce coefficient est une propriété locale de l'atmosphère, il convient donc de l'intégrer sur la verticale, pour ainsi déduire l'épaisseur optique τ :

$$\tau = \int_{\text{surface}}^{\text{sommet de l'atmosphère}} \sigma^{ext}(z) dz \quad (2.3)$$

Cette épaisseur optique dépend bien sûr de la longueur d'onde du rayonnement incident, puisque les facteurs d'absorption et de diffusion ainsi définis sont fonction de la surface de la particule interagissant avec ce rayonnement. Le coefficient d'Angström, ou paramètre d'Angström, décrit la dépendance spectrale de τ , et se calcule comme suit :

$$\alpha = -\frac{\ln(\tau_1/\tau_2)}{\ln(\lambda_1/\lambda_2)} \quad (2.4)$$

Le coefficient d'Angström peut donner une indication sur la taille de l'aérosol. Par exemple, il est proche de zéro dans le cas des aérosols du mode grossier.

2.3.2 Fonction de phase

La manière avec lequel le rayonnement est diffusé est définie par la fonction de phase, décrivant la répartition angulaire du rayonnement diffus. Pour une particule sphérique, la fonction de phase dépend uniquement de l'angle entre la direction du rayonnement incident et celui du rayonnement diffusé Θ . La fonction de phase $P(\Theta)$ ou $P(\mu)$ avec $\mu = \cos(\Theta)$ est normalisée à une valeur de 2 :

$$\int_{-1}^1 P(\mu) d\mu = 2 \quad (2.5)$$

La fonction de phase permet de déterminer la répartition du rayonnement diffus et donne donc une information sur la particule diffusante.

2.3.3 Photomètres solaires AERONET

Dans cette thèse, les données du réseau AERONET sont utilisées pour les valeurs d'épaisseur optique observée. L'épaisseur optique des aérosols est calculée en utilisant une visée directe du Soleil, et selon la loi de Beer-Lambert qui permet de calculer la composante absorbée du rayonnement solaire $I = I_0 \exp(-m\tau_{tot})$. τ_{tot} est donc mesuré grâce aux valeurs de l'intensité du rayonnement solaire au sommet de l'atmosphère I_0 (connue) et celle mesurée à la surface par le photomètre I . La relation $\tau_{tot} = (\tau_m + \tau_a)/\cos\theta$, permet d'en déduire l'épaisseur optique des aérosols τ_a , τ_m étant l'épaisseur optique moléculaire et θ l'angle zénithal. Les longueurs d'onde considérées pour le réseau AERONET (choisies en général pour que l'absorption moléculaire soit négligeable par rapport à l'efficacité d'absorption des aérosols) sont 340, 380, 440, 500, 670, 870, 940 et 1020 nm.

L'incertitude sur le calcul des propriétés optiques des aérosols par des photomètres solaires est majoritairement liée aux erreurs de sensibilité et d'étalonnage du détecteur. Pour le réseau AERONET, l'incertitude sur l'épaisseur optique est estimée à ± 0.01 à 440 nm et pour un instrument récemment étalonné (Holben et al., 1998).

La répartition spatiale des stations du réseau AERONET est représentée sur la Figure 2.3, sur l'Europe. En Australie, le réseau AERONET n'est pas aussi déployé qu'en Europe, et ne permet pas d'apporter une information supplémentaire dans l'analyse des cas d'étude présentés ici.

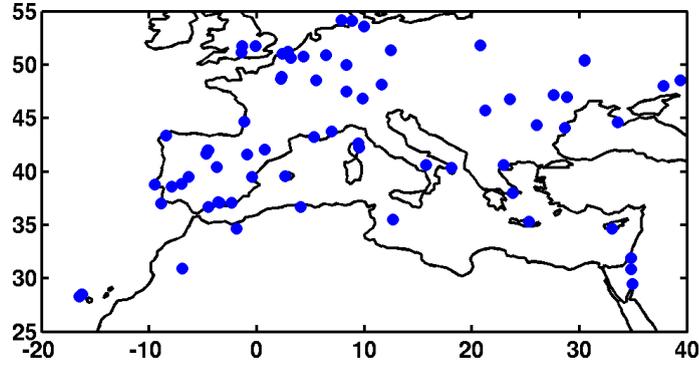


Figure 2.3 – Localisation des stations du réseau AERONET en Europe, permettant de restituer certaines propriétés optiques des aérosols.

Dans cette thèse, nous avons utilisé l’AOD des données de niveau 2 (données filtrées par un masque nuage et de qualité optimale assurée) dans le canal 500 nm. Ce canal a été choisi car il fournissait le plus de données en Europe. Le coefficient d’Angström utilisant les longueurs d’onde 380 et 870 nm est également utilisé. Nous avons traité ces données en calculant des moyennes horaires pour pouvoir les comparer directement aux sorties de modèle.

2.3.4 Capteur MODIS

Nous utilisons dans cette thèse les mesures dérivées du capteur passif MODIS (Moderate-Resolution Imaging Spectroradiometer), à bord des satellites TERRA et AQUA. L’instrument permet une couverture complète de la Terre tous les 1 ou 2 jours grâce à sa grande fauchée (d’environ 2330 km). Il dispose de 36 bandes spectrales (de 0,4 μm à 14,4 μm) dont 7 (466, 553, 644, 855, 1243, 1632, et 2119 nm) dédiées à l’étude des aérosols. Sa résolution spatiale est de 250 m à 1 km au nadir selon les bandes.

La luminance, intensité mesurée du rayonnement solaire à l’angle Θ , permet de restituer les paramètres physiques et optiques des aérosols. En effet, par exemple en faisant l’hypothèse d’une diffusion simple et d’une surface noire, cette luminance s’écrit :

$$L_{\lambda}(\Theta) = \frac{\omega_{\lambda}\tau_{\lambda}P_{\lambda}(\Theta)}{4\pi\mu} f_{\lambda} \quad (2.6)$$

avec ω_{λ} , τ_{λ} et $P_{\lambda}(\Theta)$ respectivement l’albédo de diffusion simple, l’épaisseur optique et la fonction de phase à la longueur d’onde λ .

En pratique, la diffusion multiple, l’absorption moléculaire et la réflectance de la surface sont prises en compte. L’inversion de cette luminance, qui consiste à retrouver les propriétés optiques à partir de la valeur mesurée, s’effectue grâce à des tableaux de valeurs pré-calculées de luminance ("Look Up Table"), à partir d’un modèle de transfert radiatif et des modèles d’aérosols théoriques. L’incertitude relative aux produits d’épaisseur optique de l’instrument MODIS est de $\pm 0.03AOD \pm 0.05$ au dessus des océans, et $\pm 0.05AOD \pm 0.15$ au dessus des terres (Remer et al., 2005). Cette incertitude est estimée à partir des données AERONET.

Les produits de niveau 2 MYD04_L2 et MOD04_L2⁵ utilisés dans le cadre de cette thèse incluent l'AOD à 550 nm, la fraction du mode fin à 550 nm, ainsi que l'AOD Deep-Blue (Sayer et al., 2013), fournissant l'épaisseur optique des aérosols sur les surfaces brillantes (particulièrement utile pour l'Afrique du Nord et l'Australie). La résolution de ces produits est de 10 x 10 km.

Nous avons choisi d'utiliser exclusivement l'AOD de l'instrument MODIS, bien que de nombreux satellites (PARASOL par exemple) fournissent également cette valeur. L'avantage de MODIS est sa grande fauchée qui permet d'avoir une grande couverture spatiale, et son produit Deep-Blue sur les surfaces brillantes. Les données MODIS sont téléchargeables librement. Nous les avons extraites et moyennées sur des grilles lat/lon pour faciliter l'analyse et la comparaison aux simulations. Nous avons mis en place des tableaux composites d'AOD, et lorsque celui-ci n'est pas disponible, nous l'avons remplacé par l'AOD de l'algorithme Deep-Blue. Les valeurs dans chaque maille sont des moyennes pondérées par le nombre de pixels où l'information est disponible.

L'AOD obtenu par ces instruments permet d'avoir une information sur le contenu en aérosols sur la colonne atmosphérique. La fraction fine et le coefficient d'Angström permettent d'y ajouter une information sur le type d'aérosol (particule fine ou grossière). Il ne permet cependant pas d'avoir des concentrations précises en particules ni le détail de la distribution verticale.

2.4 Caractéristiques des feux de végétation

L'instrument MODIS effectue des mesures dans 36 bandes spectrales (de 620 nm à 14.4 μm), lui permettant d'obtenir un grand nombre d'informations sur les différents objets émettant dans cette plage de longueur d'onde. L'instrument est largement utilisé dans l'étude des feux de végétation, avec ses produits de feux actifs (MOD14 et MYD14) ainsi que le produit de surface brûlée (MCD64), détaillés dans cette section. Ces produits sont utilisés tout au long de cette thèse pour déterminer les pixels de feux détectés par l'instrument, ainsi que comme forçage pour l'inventaire d'émissions de feux décrit au Chapitre 3.

2.4.1 Localisation des feux

Les canaux utilisés pour la détection sont ceux à 3,9 et 11 μm pour la journée, 1,65 et 2,15 μm pendant la nuit. L'algorithme compare la température apparente du pixel par rapport à la température de fond (Giglio et al., 2003). Lors d'un feu, les températures détectées peuvent aller de 800 K à 1800 K, selon la fraction du pixel couverte par le feu. Des critères multi-spectraux sont utilisés dans l'algorithme : différents canaux sont utilisés pour invalider des pixels de feux (fausses détections dues aux zones industrielles, volcans, etc.).

Dans cette thèse, nous utilisons les feux actifs, encore appelés "hotspots", afin d'identifier les régions intéressantes et de permettre une localisation pertinente des

5. http://modis-atmos.gsfc.nasa.gov/MOD04_L2/

produits de hauteurs. Les feux actifs sont également utilisés en entrée de l'inventaire d'émissions de feux utilisé.

2.4.2 Puissance radiative des feux (FRP)

Une fois un pixel de feu détecté par l'algorithme, le calcul de la puissance radiative du feu, ou "Fire Radiative Power" (FRP) se fait de la manière suivante (Kaufman et al., 1998) :

$$FRP = 4,34 \cdot 10^{-19} (T_4^8 - \bar{T}_4^8) A_{pix}$$

avec :

T_4 : température de brillance du pixel de feu (à 3,9 μm)

\bar{T}_4 : température de brillance moyenne du pixel de fond

A_{pix} : aire totale du pixel dans lequel le feu a été détecté

Le facteur $4,34 \cdot 10^{-19} \text{ MWK}^{-8} \cdot \text{km}^{-2}$ a été déterminé empiriquement avec les mesures de l'énergie totale émise par le feu en fonction de la différence de température dans le canal 3,9 μm .

Nous utilisons cette FRP pour évaluer son influence dans la détermination de la hauteur d'injection. Il est aussi utilisé dans certains inventaires d'émissions comme l'inventaire de feux MACC-GFAS⁶, qui supposent que l'émission est directement liée à l'intensité d'un feu (plus de biomasse consommée).

Il est important de prendre en compte pour l'analyse que la mesure de la FRP par l'instrument est une mesure instantanée à l'heure de passage du satellite, ne permettant pas de rendre compte de toute la dynamique de l'épisode de feu.

L'incertitude concernant ces produits est due à la précision sur la détection. Il peut y avoir des fausses détections (des industries sont parfois considérées comme points chauds), ou des détections manquées ainsi qu'une atténuation possible de la FRP quand les panaches d'aérosols ou les nuages sont très denses au dessus du feu. Ces incertitudes sont donc une source d'erreur à considérer pour des applications ultérieures.

Afin de diminuer ces incertitudes, et bien qu'il faut toujours les considérer dans nos analyses, nous utilisons uniquement les données de feux ayant un niveau de confiance de plus de 80% pour les feux actifs que la mesure soit effectuée au niveau du satellite Terra ou Aqua. De plus dans l'inventaire utilisé et décrit dans le chapitre 3, certaines fausses détections sont enlevées des données grâce à la localisation précise d'industries (Turquety et al., 2014).

2.4.3 Surface brûlée

Le produit de surface brûlée MCD64 (Giglio et al., 2010) fournit la date de début de feu ainsi que l'aire brûlée à une résolution de 500 m x 500 m, associé à un indice de qualité. L'algorithme est basé sur des seuils dynamiques appliqués à des images composites générées à partir d'un indice de végétation brûlée, dérivé des canaux 5 et 7 de l'instrument, permettant de "mesurer" une texture en fonction du temps. Les

6. Monitoring Atmospheric Composition and Climate - Global Fire Assimilation System

feux actifs sont également utilisés en complément pour guider la sélection. La taille minimum détectable par cet algorithme est de l'ordre de 120 ha.

La précision de ce produit a été évaluée sur diverses régions et a été estimée à 10% sauf dans des régions où la couverture végétale est composée d'arbres hauts, comme en Afrique du Sud où une surestimation de 41% a été estimée (Giglio et al., 2010). Pour les études suivantes, seules les données avec un indice de qualité maximum ont été retenues.

2.5 Altitude d'injection des panaches de feux

Une des études de cette thèse consiste à analyser l'influence de la hauteur d'injection des émissions de feux dans l'atmosphère. Pour ces analyses, deux instruments satellitaires ont été utilisés : le spectro-radiomètre MISR et le LIDAR CALIOP.

2.5.1 Hauteurs des panaches par MISR

Le Multi-angle Imaging SpectroRadiometer (MISR) (Diner et al., 1998) observe la Terre à l'aide de ses 9 caméras pushbroom, 4 de chaque côté de celle située au nadir (Df : 70,5°, Cf : 60,0°, Bf : 45,6°, Af : 26,1°, An : 0,0°, Aa : 26,1°, Ba : 45,6°, Ca : 60,0°, Da : 70,5°). Chaque caméra acquiert des données dans 4 bandes spectrales : 446, 558, 672 et 866 nm. La fauchée de l'instrument est environ de 360 km.

Tous les produits MISR sont disponibles via le Langley Atmospheric Science Data Center (LaRC DAAC) de la NASA⁷.

Les produits utilisés dans le cadre de l'étude des hauteurs des panaches sont décrits ci-dessous.

Le produit TOA/Cloud Top Height, disponible avec une résolution de 1,1 km, qui fournit les hauteurs stéréoscopiques des nuages ou panaches denses (Muller et al., 2002). Ce produit est établi de façon géométrique à l'aide des caméras de MISR (Figure 2.4). Le délai entre chaque caméra qui capture la même image est de 45 à 60 secondes, ce qui fait un total de 7 minutes pour l'ensemble des caméras. Un même objet se trouvera donc à deux positions différentes selon deux caméras (parallaxe). Cela permet de déterminer la hauteur et le vecteur déplacement de l'objet. La hauteur est tout d'abord déterminée en supposant que l'objet ne bouge pas (produit WithoutWinds) puis en prenant en compte son mouvement s'il en a un (produit BestWinds). L'algorithme se base sur des groupes de 2 ou 3 caméras, et l'inter-comparaison des hauteurs obtenues permet la validation. En général, les hauteurs obtenues en prenant en compte le mouvement sont plus proches de la réalité, mais la couverture spatiale due à la validation de ces hauteurs est moins grande que pour les hauteurs WithoutWinds. Les limitations de cette méthode sont d'une part qu'il faut identifier les pixels identiques entre 2 images, d'autre part que ça ne marche pas pour les objets à bord diffus. La résolution estimée sur les hauteurs ainsi calculées est de 560 mètres (Moroney et al., 2002).

7. <http://eosweb.larc.nasa.gov/>

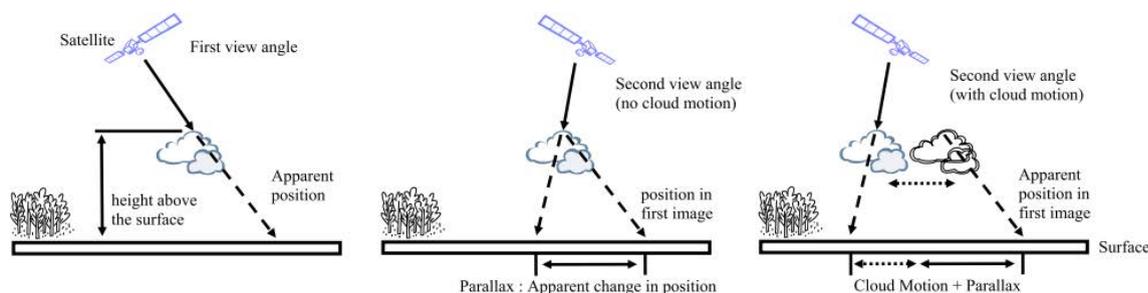


Figure 2.4 – Représentation de la parallaxe utilisée dans l’algorithme de calcul des hauteurs de panaches de l’instrument MISR, avec et sans mouvement (Marchand et al., 2007).

Le produit TOA/Cloud Classifiers, avec une résolution de 1,1 km également, permet de classer les scènes selon les classes suivantes : pas de données, aérosol, nuage, eau, terre, glace. Cette classification est déterminée à partir d’une machine à vecteurs de support (apprentissage supervisé), utilisant des produits spectraux, angulaires et textures de MISR (radiance et géométrie). En moyenne, 81% des scènes sont correctement identifiées (Mazzoni et al., 2007). Ces variables sont utilisées dans cette étude pour identifier les hauteurs correspondant à un pixel d’aérosol provenant d’un feu (classé alors en théorie en "smoke").

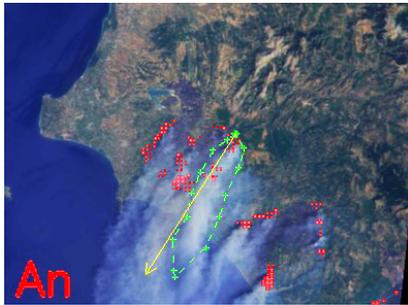
De nombreuses études sur les hauteurs d’injection des panaches de feux utilisent le logiciel MINX⁸ (Nelson et al., 2008), permettant de visualiser les données MISR et de délimiter chaque panache manuellement (Figure 2.5). L’avantage de ce logiciel par rapport aux données L2 TOA/Cloud Top Height est la précision et la rigueur quant à la présence de panache de feux. La numérisation panache par panache permet en outre d’éviter des erreurs de classification. L’avantage est également de bien isoler les panaches et leurs caractéristiques. Par exemple, la classification provenant du produit TOA/Cloud Top Height a tendance à couper les panaches lorsqu’ils arrivent au dessus de la mer. Cela peut être gênant lors de l’étude du transport du panache, mais pas lorsque l’on s’intéresse à la hauteur d’injection directement au dessus d’un feu.

Mims et al. (2010) ont montré que les L2 MISR étaient plus efficaces pour des panaches diffus et petits, car ils captent plus de points de hauteurs près de la surface. L’étude a également montré que pour les points en commun, les hauteurs calculées avec MINX étaient soit similaires, soit plus basses que les L2 MISR. Cela s’explique par le fait que le logiciel se base sur la caméra au nadir alors que l’algorithme des produits de niveau 2 utilise de manière plus systématique les caméras avec un angle plus oblique et qui sont plus sensibles aux panaches fins (Mims et al., 2010).

Pour confirmer cela, nous avons numérisé 52 panaches en Europe pendant l’année 2007 (Figure 2.6) et avons comparé les hauteurs co-localisées provenant du produit L2. Un grande partie des points (79, soit 71%) se situe sur et autour (à plus ou moins 500 m, soit la résolution du produit) de l’axe $y=x$, avec un coefficient de corrélation de 0,58. Les points incohérents proviennent de panaches de jours différents, avec une

8. MISR INteractive eXplorer, <http://www.openchannelsoftware.com/projects/MINX>

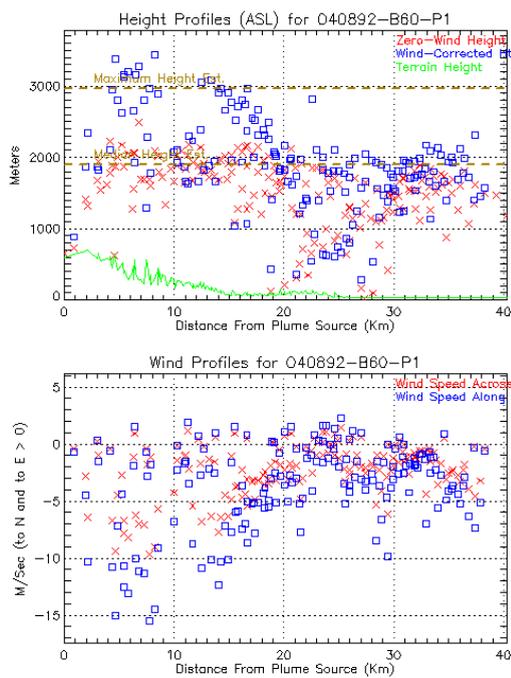
(a) Numérisation du panache



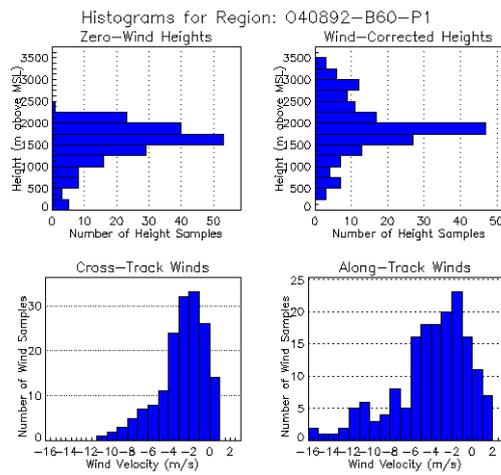
(b) Points de hauteur



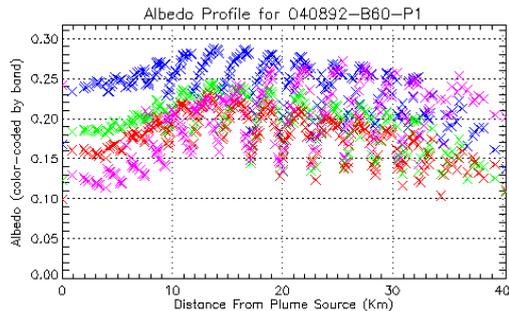
(c) Hauteur et vent en fonction de la distance par rapport au feu



(d) Distribution des hauteurs et du vent



(e) Albédo en fonction de la distance par rapport au feu



(f) Caractéristiques d'aérosols

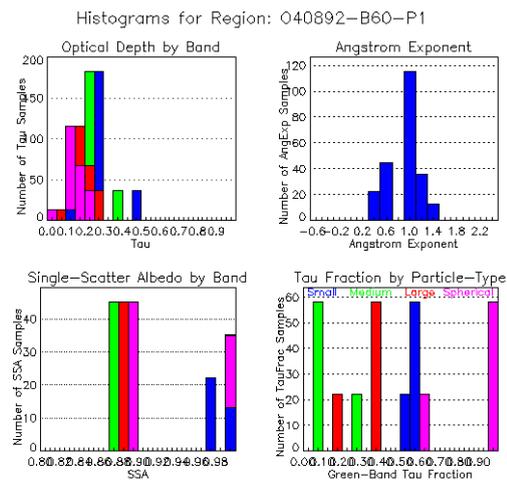


Figure 2.5 – Exemple de numérisation d'un panache de feux avec le logiciel MINX et des différents résultats.
28

erreur de classification en Italie du Sud. Le fait que MINX fournit des hauteurs plus basses d'après l'étude mentionnée précédemment ne se retrouve pas de manière significative ici, peut être du au fait que les panaches numérisés pendant cet été sont assez denses.

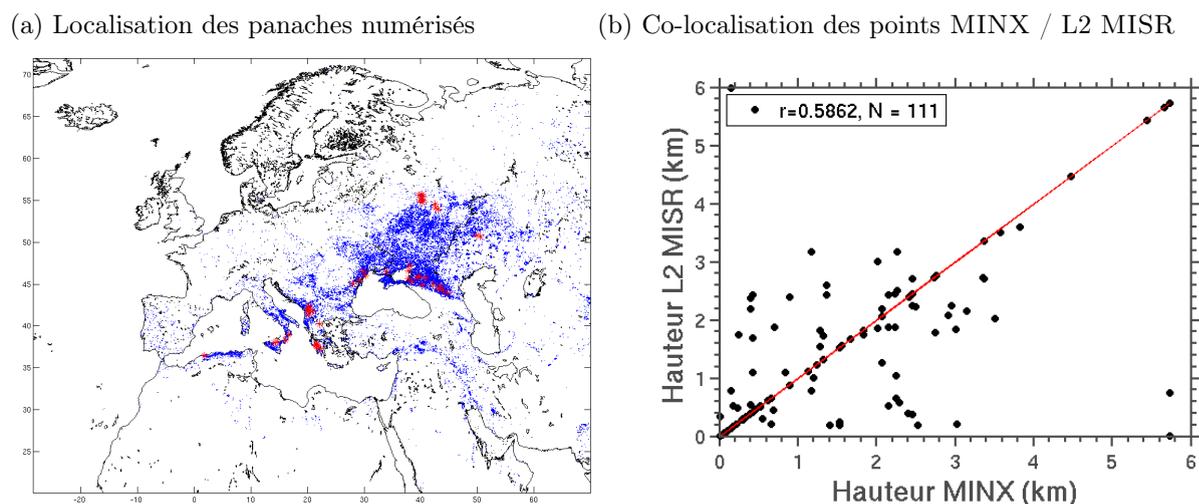


Figure 2.6 – (a) localisation des panaches (point de départ du feu représenté par une croix rouge) sur l'Europe pendant l'été 2007, les points bleus représentant les pixels de feu détectés par l'instrument MODIS ; (b) comparaison des hauteurs maximales des hauteurs obtenues avec le logiciel MINX, et des hauteurs co-localisées du produit L2 MISR.

Au regard de ces analyses, nous avons décidé d'utiliser pour les études suivantes les données L2. Cela automatise l'étude statistique des hauteurs d'injection sur plusieurs années, mais ne nous empêche pas de revenir vers un traitement panache par panache pour des études plus ponctuelles ou s'il y a un doute concernant la classification.

En pratique, nous avons moyenné ces données sur une grille de 20 km de résolution pour chaque région d'étude, en retenant le maximum, la médiane et la moyenne des hauteurs dans chaque maille. De plus, les hauteurs sont co-localisées avec les feux (obtenus grâce à l'instrument MODIS décrit dans la section précédente) avec un seuil à 7 km pour éviter les erreurs restantes de classification (cirrus ou panaches transportés depuis de longues distances).

2.5.2 Hauteurs de couche d'aérosols par CALIOP

Le LIDAR fournit une information sur la distribution verticale des particules dans l'atmosphère, en émettant une onde lumineuse qui interagit avec les différents composants qu'elle rencontre dans l'atmosphère. Une partie de cette onde est rétrodiffusée et collectée par un télescope. A partir de cette composante rétrodiffusée, on peut déduire des informations quant au diffuseur et sa distance.

L'intensité $P(\lambda, z)$ du signal reçu (en $J \cdot s^{-1}$ ou W), est définie par l'équation suivante :

$$P(\lambda, z) = C_o(\lambda) \frac{Ak}{z^2} \beta'$$

avec $\beta' = \beta(z, \lambda)e^{-2\tau(\lambda)}$, $\beta(z, \lambda)$ représentant le coefficient de rétrodiffusion en $\text{m}^{-1}\text{sr}^{-1}$, τ l'extinction, $C_o(\lambda)$ l'intensité initiale émise par le laser à la longueur d'onde λ en W, k une constante dépendante des caractéristiques optiques et électroniques du capteur et A l'aire du récepteur en m^2 .

Le rapport de rétrodiffusion atténué $R'(z, \lambda) = \frac{\beta'(z, \lambda)}{\beta'_m(z, \lambda)}$ permet de mettre en évidence la contribution des particules au signal (Winker et al., 2009), avec $\beta'(z, \lambda)$ et $\beta'_m(z, \lambda)$ les coefficients respectivement de rétrodiffusion atténué total (particulaire et moléculaire) et moléculaire. En effet, ce rapport est égal à 1 en l'absence d'aérosols et de nuages, et est supérieur à 1 en présence d'aérosols.

Le satellite CALIPSO (Cloud Aerosol Lidar and Infrared Pathfinder Satellite Observations) de l'A-Train est un satellite franco-américain lancé en 2006 afin d'étudier les impacts radiatifs des nuages et des aérosols. CALIOP (Cloud-Aerosol Lidar with Orthogonal Polarization) est le LIDAR à rétrodiffusion à deux longueurs d'ondes (532 et 1064 nm) embarqué sur ce satellite. Il permet donc l'observation de profils verticaux à haute résolution des nuages et des aérosols, et ce jusqu'à 40 km d'altitude.

Cette thèse utilise le produit de niveau 2 **CALIOP ALay**. Ce produit, déterminé à partir des propriétés optiques de la colonne atmosphérique ainsi retrouvées, fournit les hauteurs de couches d'aérosols. Il fournit la hauteur de la base et du sommet des couches ainsi que leur épaisseur optique, avec une résolution horizontale de 5 km suivant la trace du satellite. Ce produit est constitué d'une description de la colonne atmosphérique, avec plusieurs couches possibles, décrivant pour chacune ses propriétés optiques (altitude, coefficient de rétrodiffusion atténué, et épaisseur optique aux longueurs d'onde 532 et 1064 nm).

Les données de hauteur CALIOP sont extraites de manière similaire à MISR, en prenant en compte les indices de confiance et la classification aérosols. La méthodologie est décrite plus en détail dans le Chapitre 4.

CALIOP passe sur la région d'étude plusieurs fois le jour et la nuit, mais les données de jour sont plus bruitées (Hunt et al., 2009). CALIOP est le seul LIDAR satellitaire pour les périodes étudiées, et permet d'avoir des profils verticaux à haute résolution à différents endroits du globe par le même instrument, ce qui est très utile lorsque plusieurs régions sont étudiées comme dans le cadre de cette thèse.

Les instruments MISR et CALIOP sont complémentaires. MISR, ayant une couverture spatiale beaucoup plus grande, aura 40 fois plus de chance minimum d'observer un panache de feu (Kahn et al., 2008). CALIOP pourra détecter des panaches plus étendus horizontalement et plus fins (la limite de détection de l'épaisseur optique est plus petit pour CALIOP que pour MISR). Leur heure de passage est également différent, et CALIOP a l'avantage d'avoir des données de nuit et de jour.

2.6 Conclusion

Cette thèse repose en grande partie sur l'analyse d'observations. Les données utilisées sont résumées dans le [Tableau 2.1](#).

Tableau 2.1 – *Instruments utilisé dans cette thèse, leur applications et leurs points forts et points faibles.*

Réseau ou instrument	Type de mesure	Grandeur mesurée utilisée	Applications	Avantages	Inconvénients
AirBase	Concentrations de surface	PM _{2.5} PM ₁₀	Cycle diurne Valeurs de fond Pics	Précision Réseau étendu en Eur. Du N./Ouest Mesure horaire	Surface Peu de mesures en Méditerranée et zones moins accessibles
AERONET	Télé-détection passive	AOD Angström	Pics sur la colonne atmosphérique	Précision Mesure horaire	Couverture spatiale faible
MISR	Télé-détection passive	Hauteur des panaches	Caractérisation des profils d'injection	Un des seuls instruments permettant d'obtenir cette information Couverture spatiale	Couverture temporelle faible pour l'application aux feux
CALIOP	Télé-détection active	Hauteur des panaches	Caractérisation des profils d'injection	Précision verticale	Couverture temporelle très faible (faisceau laser)
MODIS	Télé-détection passive	AOD AOD DB Mode fin Localisation des feux Type de végétation Aire brûlée FRP	Pics sur la colonne atmosphérique Pollution fine Contrainte pour l'inventaire d'émissions de feux (caractéristiques)	Couverture spatiale	Couverture temporelle pour la détermination de l'activité du feu (intensité et surface brûlée)

Pour les différentes études effectuées dans cette thèse, des mesures de concentrations de PM avec une grande résolution spatiale et temporelle, au sol et sur la verticale seraient l'idéal, étant donné la nature très sporadique et parfois très localisée des feux de végétation. Cependant, les différentes observations qui existent à ce jour ne permettent pas d'avoir une telle couverture dans les régions d'étude.

Les mesures au sol ont été principalement utilisées pour leur temporalité. Les instruments satellitaires sont un très bon complément mais souffrent d'une couver-

ture temporelle limitée pour les instruments polaires, avec deux mesures par jour au maximum. Parmi les instruments existants, l'instrument CALIOP est le plus adapté pour l'étude des panaches de feux, mais sa couverture spatiale trop faible ne permet pas de l'utiliser dans les différents cas d'étude. MISR rate de même plusieurs feux importants. Ces instruments ont donc été utilisés majoritairement avec une approche statistique.

Nous n'avons pas eu le temps de traiter les données d'autres instruments, ceux utilisés dans cette thèse étant déjà nombreux. En particulier, l'instrument polaire PARASOL permet le calcul de l'AOD, et l'instrument SEVIRI permet le calcul de la FRP⁹ avec une plus grande couverture temporelle (satellite géostationnaire). Cependant, la présence du même instrument MODIS dans les deux régions d'étude permet de mieux interpréter les données des mêmes grandeurs si l'on compare les différentes caractéristiques.

Mon travail sur ces données a été majoritairement de les récupérer et de les extraire dans un format permettant la comparaison aux simulations et leur utilisation comme forçage. Ce travail a nécessité plusieurs étapes pour permettre la bonne prise en compte des incertitudes liées à chaque instrument, et pour garder toute l'information possible (variabilité dans la maille, heure de passage ou de mesure, etc.).

9. Fire Radiative Power

3 | Modélisation de la chimie et du transport avec CHIMERE

Sommaire

3.1	Principe général du modèle CHIMERE	34
3.2	Le module d'aérosol	36
3.2.1	Représentation de la distribution en taille	36
3.2.2	L'évolution chimique des aérosols	36
3.3	Photochimie et propriétés radiatives	39
3.4	Sources des gaz et aérosols	40
3.5	Émissions issues des feux de végétation	40
3.5.1	L'inventaire APIFLAME	41
3.5.2	Prise en compte du transport vertical	43
3.5.3	Incertitude sur les émissions de feux	44
3.6	Prévisions chimiques pendant la campagne ChArMEx .	46
3.7	Conclusions	47

Le travail présenté dans cette thèse s'appuie sur des simulations réalisées avec les modèles régionaux WRF et CHIMERE. Ce dernier calcule les concentrations en gaz et particules. Les résultats présenteront principalement des analyses sur les particules.

Ce modèle est développé au LMD¹ en collaboration avec l'INERIS² et le LISA³. Cela a été particulièrement utile dans cette thèse car il évolue constamment et a permis une interaction constante avec l'équipe de développement ainsi que l'intégration des émissions de feux en cours de thèse. Le modèle CHIMERE est en téléchargement libre⁴ et est donc utilisé par une grande communauté pour l'analyse d'épisodes de pollution, des études de scénarios, mais aussi pour de la prévision, que ce soit en Europe ou dans d'autres régions du monde : Afrique, Etats-Unis (Solazzo et al., 2012), Amérique Centrale (Hodzic et al., 2010).

Nous effectuons dans un premier temps une description du principe général du modèle et plus spécifiquement du module microphysique d'aérosols, ainsi que de la modélisation de leurs propriétés radiatives, puis nous décrivons comment sont modélisées les différentes sources en terme d'émission et de transport.

Les émissions de feux seront détaillées (description du calcul des émissions en elles-mêmes mais aussi de leur transport vertical), afin de comprendre les résultats de la modélisation de cas d'étude spécifiques dans les chapitres qui suivront.

Enfin, une dernière section décrit l'application du modèle en mode prévision, notamment pendant la campagne CHARMEX de 2013 avec l'intégration des feux en temps quasi réel.

3.1 Principe général du modèle CHIMERE

Le modèle de chimie-transport CHIMERE est un modèle tridimensionnel eulérien et offline. La configuration 'offline' signifie que les champs météorologiques, les émissions de polluants primaires et les conditions aux limites sont nécessaires et prescrites en amont d'une simulation et qu'il n'y a pas de prise en compte de rétroactions de la chimie vers la météorologie et les émissions. Avec ces forçages, CHIMERE calcule les concentrations atmosphériques 4D (dx, dy, dz, dt) d'un grand nombre d'espèces gazeuses et particulaires, sur des domaines urbains à continentaux (1 km à 1° de résolution). La Figure 3.1 schématise les processus clés entrant en jeu dans la simulation des concentrations : les émissions, le transport, la chimie et le dépôt.

Pour l'ensemble des simulations de cette thèse, la version 2014b a été utilisée. Cette version est décrite dans Menut et al. (2013) avec comme évolution la prise en compte de nouvelles bases de données de sol et surface pour les émissions de minéraux et le calcul des taux de photolyse et de l'épaisseur optique avec le modèle FastJX.

L'évolution des concentrations dépend du transport horizontal et vertical ainsi que de la diffusion turbulente, de la chimie des gaz et des particules et des émissions

1. Laboratoire de Météorologie Dynamique
2. Institut National de l'Environnement Industriel et des Risques
3. Laboratoire Interuniversitaire des Systemes Atmosphériques
4. <http://www.lmd.polytechnique.fr/chimere/>

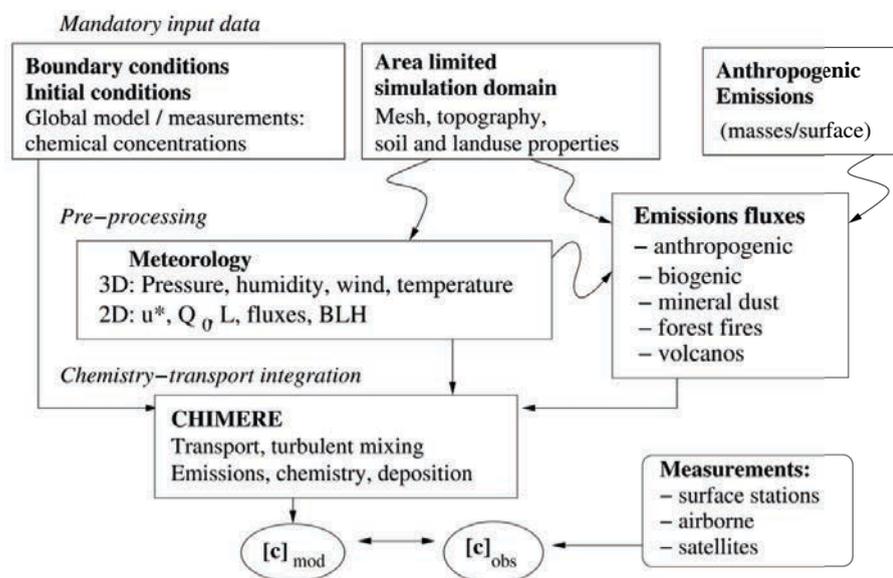


Figure 3.1 – Principe général d'un modèle de chimie-transport, en particulier CHIMERE (Menut et al., 2013). Dans la boîte "Météorologie", u^* est la vitesse de friction, Q_0 le flux de chaleur sensible, L la longueur Monin-Obukhov et BLH la hauteur de couche limite. c_{mod} et c_{obs} sont respectivement les champs de concentrations modélisés et observés.

de polluants (détaillées dans la Section 3.4).

Dans CHIMERE, le transport horizontal et vertical est estimé en flux de masse, dépendants du vent et de la turbulence. Dans les deux cas, le schéma de Van Leer est utilisé (Van Leer, 1979). Toutes les simulations ont été effectuées avec les résultats de simulation du modèle méso-échelle WRF⁵ v3.5.1 (Skamarock et al., 2008), dans sa configuration non-hydrostatique avec 30 niveaux verticaux de la surface à 50 hPa. Ces simulations nécessitent en amont (conditions aux limites et nudging) des valeurs de champs météorologique globaux. Elles proviennent ici des analyses NCEP⁶ (Kalnay et al., 1996), sur une grille régulière de $1.125^\circ \times 1.125^\circ$.

Les concentrations provenant des conditions initiales et aux limites du domaine sont issues de simulations mensuelles moyennées sur une période de 5 ans par les modèles globaux LMDz-INCA pour les aérosols et les gaz traces (Folberth et al., 2006) et GOCART pour les poussières minérales (Ginoux et al., 2001).

La chimie gazeuse utilise le schéma réduit MELCHIOR2 comprenant 44 espèces et environ 120 réactions. La liste de ces espèces et réactions sont décrites dans Menut et al. (2013). Concernant les aérosols, le module régissant les différents processus physicochimiques et leur évolution est détaillé dans la section suivante.

5. Weather Research and Forecasting Model

6. National Centers for Environmental Prediction

3.2 Le module d'aérosol

Dans cette section, nous présentons la modélisation des aérosols dans CHIMERE, d'après Bessagnet et al. (2004).

3.2.1 Représentation de la distribution en taille

Pour modéliser la distribution en tailles des aérosols, indiquée sur la Figure 1.1, les représentations modales et sectionnelles peuvent être utilisées. Dans CHIMERE, une représentation sectionnelle des aérosols est utilisée, permettant de discrétiser la distribution massique en un nombre fini de sections (aussi appelés "bins"). La description en bins a l'avantage de ne pas poser d'hypothèse sur les diamètres médians les plus importants des aérosols.

Le module d'aérosol utilisé dans cette thèse utilise 5 bins, de 40 nm à 40 μm (les diamètres de coupure exacts sont indiqués sur la Figure 3.2). Chaque section l sera définie par un diamètre médian en masse d_l . Pour x étant le logarithme de la masse d'une particule et Q la masse totale dans la section l , la distribution massique est définie comme :

$$q(x) = \frac{dQ}{dx}$$

Ainsi, en supposant constante $q(x)$ dans chaque section, la masse totale Q_l (en $\mu\text{g m}^{-3}$) dans la section l est la somme des masses des différents composés k d'aérosols contenus dans la section l .

$$Q_l = \int_{x_l}^{x_{l+1}} q(x)dx = q_l(x_l - x_{l+1})$$

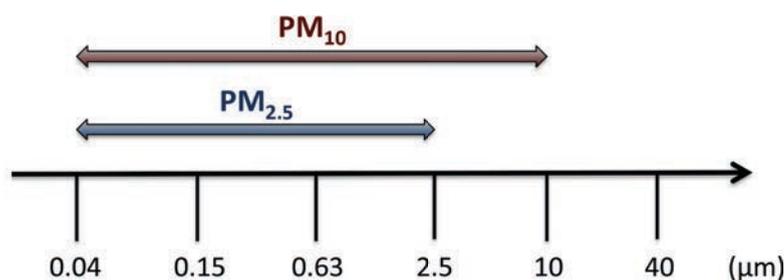


Figure 3.2 – Diamètres de coupure des 5 sections de la distribution en taille des aérosols utilisée dans les simulations CHIMERE réalisées dans le cadre de cette thèse.

3.2.2 L'évolution chimique des aérosols

Dans le modèle, les aérosols sont composés des espèces présentées dans le Tableau 3.1 et sont supposées en mélange interne.

La production des espèces primaires est obtenue par les inventaires d'émissions anthropiques, des paramétrisations (décrites dans la suite) représentant les feux de

végétation, les minéraux et les sels de mer. Le sulfate (pSO_4^{2-}) et l'acide nitrique (pHNO_3) sont formés par oxydation respective du SO_2 et des NO_x . L'ammonium quant à lui provient de la fixation de l'ammoniac gazeux, émis principalement par l'agriculture (polluant primaire), dans des particules acides (sulfate, nitrate).

Tableau 3.1 – Liste des espèces d'aérosols.

Espèce modèle	Espèce	Type
pPPM	Particules organiques primaires	Primaire
pOCAR	Carbone organique	Primaire
pBCAR	Carbone suie	Primaire
pDUST	Poussières	Primaire
pSALT	Sels marins	Primaire
pSOA	Aérosols Organiques Secondaires	Secondaire
pH ₂ SO ₄	Sulfate ^a	Secondaire
pHNO ₃	Nitrate ^a	Secondaire
pNH ₃	Ammonium ^a	Secondaire
pWATER	Eau	-

^a Ions, molécules, précipités.

Après émission, les aérosols et leurs précurseurs subissent un certain nombre de processus déterminant leur séjour dans l'atmosphère :

La nucléation : Ce processus désigne la transformation de molécules en phase gazeuse en un agrégat de molécules appelé noyau d'aérosols. Il apparaît lorsque la phase gazeuse est sursaturée et donc lorsque le nombre de collisions entre molécules est important. Les paramétrisations pour la nucléation d'aérosols sont en général basées sur des modèles théoriques, ajustés par des taux de nucléation déterminés en laboratoire ou en conditions ambiantes. Dans CHIMERE, le calcul du flux de masse d'acide sulfurique particulaire formé par nucléation du mélange $\text{H}_2\text{SO}_4/\text{H}_2\text{O}$ est basé sur la paramétrisation de [Kulmala et al. \(1998\)](#) :

$$\left(\frac{dQ_l^{\text{H}_2\text{SO}_4}}{dt} \right) = \frac{D^3 \rho J \pi}{6} \frac{X_{\text{H}_2\text{SO}_4}}{X_{\text{H}_2\text{SO}_4} + (1 - X_{\text{H}_2\text{SO}_4}) \frac{18}{98}}$$

avec J le taux de particules nucléées ($\text{cm}^{-3} \text{s}^{-1}$) et $X_{\text{H}_2\text{SO}_4}$ la fraction molaire de H_2SO_4 dans le cluster nucléé, calculé empiriquement à partir de l'humidité relative et de la température. ρ et D sont la masse volumique (1.5 g cm^{-3}) et le diamètre typique des particules nucléées.

Ce processus est favorisé dans des conditions atmosphériques froides et humides et affecte le nombre de particules ultrafines. Le flux nucléé est ajouté au bin le plus petit de la distribution sectionnelle.

La coagulation : Ce processus correspond à l'agglomération de particules. Il conserve donc la masse des aérosols mais diminue leur nombre. La cause principale de coagulation dans l'atmosphère est le mouvement brownien, induit par l'agitation thermique. Dans CHIMERE, la paramétrisation de [Gelbard and Seinfeld \(1980\)](#) est

utilisée :

$$\begin{aligned} \left(\frac{dQ_i^k}{dt}\right) = & \frac{1}{2} \sum_{i=1}^{l-1} \sum_{j=1}^{l-1} [{}^{1a}\beta_{i,j,l} Q_j^k Q_i + {}^{1b}\beta_{i,j,l} Q_i^k Q_j] \\ & - \sum_{i=1}^{l-1} [{}^{2a}\beta_{i,l} Q_i Q_l^k - {}^{2b}\beta_{i,l} Q_l Q_i^k] - \frac{1}{3} [{}^3\beta_{l,l} Q_l^k Q_l] - Q_l^k \sum_{i=l+1}^L [{}^4\beta_{i,l} Q_i] \end{aligned} \quad (3.1)$$

Les coefficients sectionnels de coagulation ${}^{1a}\beta, {}^{1b}\beta, {}^{2a}\beta, {}^{2b}\beta, {}^3\beta$ et ${}^4\beta$ dépendent du diamètre des particules et des conditions météorologiques (i.e. température, pression, et turbulence), et sont caractéristiques de la collision entre particules. Les mouvements browniens pilotent essentiellement les collisions pour les particules submicroniques, tandis que la sédimentation devient importante pour les particules grossières.

La condensation, adsorption ou absorption : Les composés semi-volatils peuvent condenser à la surface d'aérosols déjà existants. Le taux de condensation de ces composés dépend de la pression de l'espèce gazeuse, sa pression de vapeur saturante, du rayon de courbure de la particule et de l'affinité entre le gaz et la particule considérés. Dans CHIMERE, ces trois processus sont traités de manière similaire.

Le flux d'absorption/adsorption/condensation J ($\mu\text{g m}^{-3} \text{s}^{-1}$) des espèces inorganiques et organiques semi-volatiles sur une particule est :

$$J = \frac{1}{\tau} (G - G^{eq}) \quad (3.2)$$

où τ est un temps caractéristique qui dépend des propriétés des particules et de l'espèce transférée, G et G^{eq} les concentrations respectives de l'espèce en phase gazeuse et à l'équilibre. G^{eq} est calculé pour les espèces inorganiques semi-volatiles par le module ISORROPIA (Nenes et al., 1998), qui détermine également le contenu en eau des particules. Les interactions entre espèces organiques et inorganiques ne sont pas prises en compte dans le modèle.

Le transfert de masse dans les sections peut résulter soit d'une condensation des espèces semi-volatiles sur des particules de la section l (gain de masse pour la section l), soit d'un grossissement après condensation d'une partie des particules de la section l qui passe ainsi à la section suivante $l+1$ (perte de masse pour la section l).

Le dépôt sec : Caractérisé par l'élimination de particules de l'atmosphère par diffusion sur une surface en l'absence de précipitations, le flux de dépôt paramétré dans CHIMERE est :

$$\left(\frac{dQ}{dt}\right)_{sec} = -Q \frac{v_d}{H} \quad (3.3)$$

avec H l'épaisseur de la couche et v_d la vitesse de dépôt. Cette vitesse est paramétrée par analogie au principe des résistances électriques. Deux schémas sont présents dans le modèle : (Wesely, 1989) et (Zhang et al., 2001). Le schéma de (Zhang et al., 2001) est utilisé pour les simulations :

$$v_d = v_s + \frac{1}{r_a + r_s} \quad (3.4)$$

avec v_s la vitesse de sédimentation, r_a la résistances aérodynamique et r_s la résistance de surface qui dépend du type de végétation.

$$r_s = \frac{1}{\epsilon_0 \times u_* \times R_1 \times (E_B + E_{IM} + E_{IN})} \quad (3.5)$$

avec ϵ_0 une constante égale à 3 pour toutes les catégories de landuse, R_1 un facteur de correction décrivant la quantité relative d'aérosols à la surface, E_B , E_{IM} et E_{IN} les coefficients d'efficacité de captation par diffusion brownienne, par collision et par interception, respectivement.

Le dépôt humide : C'est un processus d'élimination des particules par les hydrométéores, par captation dans l'eau nuageuse ou par lessivage des précipitations. Dans le nuage, les particules peuvent servir de noyau de condensation, avec un flux de dépôt (Tsyro, 2002) défini par :

$$\left(\frac{dQ_l^k}{dt} \right)_{humide,incl} = -Q_l^k \frac{\epsilon_l P_r}{w_l H} \quad (3.6)$$

avec P_r le taux de précipitation ($\text{g cm}^{-2} \text{s}^{-1}$), w_l le contenu en eau liquide du nuage (g cm^{-3}), H l'épaisseur de la couche (cm) et ϵ_l l'efficacité de captation dépendant de la composition chimique de la particule.

Pour le lessivage par les précipitations, le flux de dépôt devient :

$$\left(\frac{dQ_l^k}{dt} \right)_{humide,incl} = -Q_l^k \frac{a P_r E_l}{u_g} \quad (3.7)$$

avec a un coefficient empirique, E_l le coefficient d'efficacité de collision entre les particules de la section l et les gouttes de pluie de vitesse de chute u_g (cm s^{-1}).

3.3 Photochimie et propriétés radiatives

Les taux de photolyse sont calculés grâce au module FastJX version 7.0b, (Wild et al., 2000; Bian and Prather, 2002), en résolvant les équations de transfert radiatif dans la colonne atmosphérique modélisée. La prise en compte des nuages et panaches d'aérosols se fait grâce à la multiplication de ces taux par temps clair par un coefficient d'atténuation qui dépend de l'épaisseur optique des nuages et des aérosols. Ce calcul s'effectue à chaque pas de temps et permet donc une rétroaction des variations de concentration en aérosols et en ozone sur la photochimie.

Le traitement des propriétés optiques s'effectue en prenant en compte l'absorption par l'ozone troposphérique et stratosphérique, la diffusion de Rayleigh, l'absorption par les aérosols, et la diffusion de Mie par les aérosols et les nuages d'eau liquide et de glace. L'épaisseur optique totale est obtenue à 5 longueurs d'onde différentes fixées : 200, 300, 400, 600 and 1000 nm (Mailler et al., 2015). Pour cette thèse, il est nécessaire d'estimer l'AOD aux mêmes longueurs d'ondes que les mesures utilisées, 500 et 550 nm. Une interpolation utilisant le coefficient d'Angstrom est utilisée telle que :

$$AOD_x = AOD_{600} \left(\frac{x}{600} \right)^{-\alpha} \quad (3.8)$$

avec x la longueur d'onde considérée (500 ou 550 nm) et α le coefficient d'Angström estimé à partir de l'équation 2.4 et des longueurs d'onde 400 et 600 nm.

3.4 Sources des gaz et aérosols

A l'intérieur du domaine, les émissions de polluants d'origine anthropique sont calculées à partir de l'inventaire EDGAR-HTAP_V2⁷ pour l'année 2010. Cet inventaire utilise les masses totales de l'inventaire HTAP (Hemispheric Transport of Air Pollution), qui prend en compte des émissions nationales combinées à des inventaires régionaux, et des données EDGARv4.3. L'inventaire est composé d'émissions globales annuelles de CH₄, NMVOC, CO, SO₂, NO_x, NH₃, PM₁₀, PM_{2.5}, BC et OC, avec une résolution de 0.1° × 0.1°. Ces masses annuelles émises sont ensuite désagrégées en espèces modèles et moyennées sur la grille du domaine de simulation choisi. Les émissions horaires sont obtenus en appliquant des facteurs saisonniers, journalier, et hebdomadaires en fonction des différents secteurs d'activité SNAP (Selected Nomenclature for Air Pollution).

Les flux d'émissions biogéniques de composés organiques volatiles (COV) et de monoxyde d'azote (NO) sont calculés par le modèle MEGAN (Model of Emissions of Gases and Aerosols from Nature; Guenther et al., 2006). MEGAN est basé sur des facteurs d'émission à l'échelle de la canopée, qui dépendent des espèces considérées et du type de végétation. Les flux dépendent également de la densité de biomasse et de la température. Le calcul des émissions de sel marins est basé sur le schéma de Monahan (1986), qui produit des aérosols marins par arrachement à l'écume des vagues, fonction du vent de surface.

Les émissions d'aérosols minéraux utilisent le schéma de production présenté dans (Alfaro and Gomes, 2001), permettant d'estimer le flux vertical à partir du flux horizontal paramétré à partir de Marticorena and Bergametti (1995) et optimisé en temps de calcul dans (Menuet et al., 2005b). Ce modèle peut être appliqué à n'importe quelle région grâce aux données globales de longueur de rugosité donnée par ASCAT/PARASOL (Prigent et al., 2012; Briant et al., 2014).

Les émissions de feux de végétation proviennent de l'inventaire APIFLAME v1.0 (Turquety et al., 2014), et sont décrits plus en détails dans la suite.

3.5 Émissions issues des feux de végétation

La prise en compte des feux de végétation dans les modèles de chimie-transport dépend de plusieurs paramètres, influençant les concentrations et le transport des polluants : la quantité émise à la source et la hauteur d'injection.

Dans cette thèse, nous utilisons le modèle APIFLAME v1.0, qui est basé sur une approche classique expliquée dans la Section 3.5.1, mais qui permet un calcul des émissions à haute résolution spatiale et qui permet en entrée une utilisation plus flexible des paramètres de feux. De plus, le modèle permet de calculer des flux d'émissions directement sur la grille utilisée par CHIMERE.

7. http://edgar.jrc.ec.europa.eu/htap_v2

Cette section décrit l’inventaire APIFLAME et ses données d’entrée ainsi que la paramétrisation du transport vertical.

3.5.1 L’inventaire APIFLAME

L’inventaire APIFLAME (Turquety et al., 2014) a été développé au LMD dans le cadre du projet APIFLAME⁸, financé par le programme PRIMEQUAL. L’approche est basée sur Seiler and Crutzen (1980) et est représentée schématiquement sur la Figure 3.3.

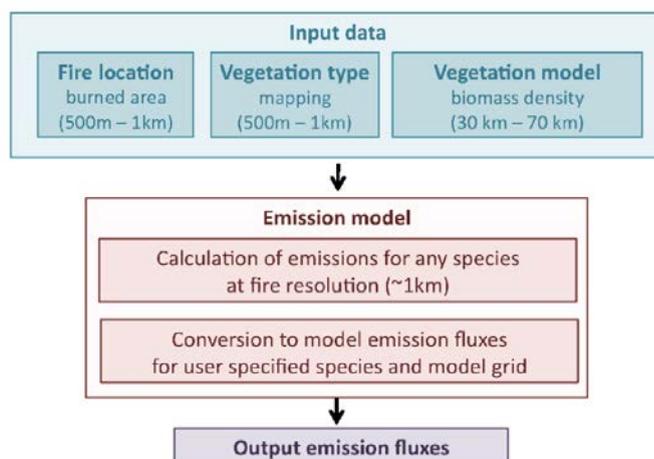


Figure 3.3 – Représentation schématique de la structure du calcul des émissions de feux avec le modèle APIFLAME (Turquety et al., 2014).

Pour chaque espèce de l’inventaire émise i (gaz trace ou aérosol), l’émission associée à un feu détecté E_i est calculée par l’équation :

$$E_i = A \sum_{v=1}^{veg_type} f_v F_v \epsilon_{v,i}$$

où A est la surface brûlée totale, f_v la fraction de surface et F_v la quantité de combustible pour le type de végétation v , et $\epsilon_{v,i}$ le facteur d’émission spécifique à l’espèce i selon la végétation v .

Les données nécessaires à ce calcul sont décrites ci-dessous.

- Le type de végétation est fourni par les observations de l’instrument MODIS. Plus spécifiquement, nous utilisons le produit MCD12Q1 collection 5 (Friedl et al., 2010) pour l’année 2007, qui fournit la fraction dans les différents types de végétation à 500 m de résolution. L’inventaire utilise la classification IGBP (International Geosphere-Biosphere Program). Sur la Figure 3.4 est représentée la fraction de la couverture végétale sur une grille de $0.1^\circ \times 0.1^\circ$, pour les deux régions d’étude. En Europe, les types de végétation dominants sont les terres agricoles et les forêts, tandis que l’Australie est composée en majorité

8. <http://www.lmd.polytechnique.fr/apiflame/>

de maquis dans la partie désertique du territoire, et de forêts et savanes pour la région de Sydney. Le type de végétation attribué peut être une source d'incertitudes à considérer dans l'inventaire d'émission. Pour le cas d'étude sur l'Europe en 2012, l'utilisation de la base de données CORINE Land Cover (CLC) permet plus de rigueur concernant ce type de végétation.

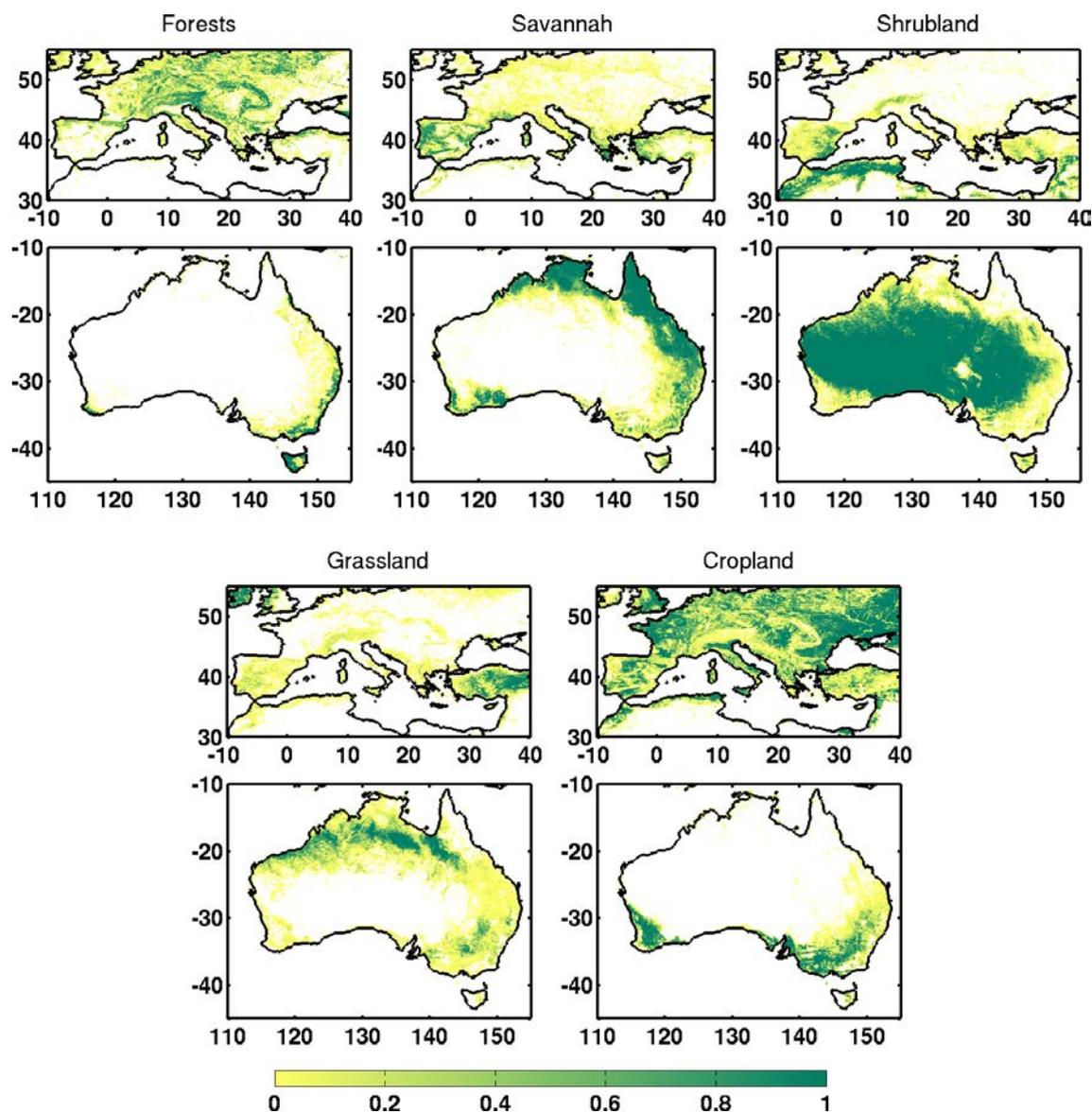


Figure 3.4 – Fraction de végétation classée par type, moyennée sur une grille de $0.1^\circ \times 0.1^\circ$, selon les données MODIS MCD12 (pour l'année de référence 2007), sur l'Europe et l'Australie.

- La localisation des feux et leur surface brûlée est déterminée également à partir des observations de l'instrument MODIS. Les produits de feux actifs sont utilisés (produits MOD14A1 ET MYD14A1 pour les satellites Terra et Aqua respectivement, comme décrits dans le Chapitre 2). L'aire brûlée peut être soit déterminée avec le produit MCD64 (c'est le cas pour l'Europe), soit directement à partir des feux actifs : pour chaque hotspot, on estime l'aire

brûlée suivant [Wiedinmyer et al. \(2011\)](#), en fonction du type de végétation présente dans le pixel, en brûlant 100% de la proportion d'arbres et 75% de la proportion de savane. Cette dernière méthode est utilisée pour l'Australie car elle donne de meilleurs résultats de temporalité comparé aux rapports de terrain (voir Chapitre 5).

- Les facteurs d'émissions $\epsilon_{v,i}$ proviennent de [Akagi et al. \(2011\)](#) pour la plupart des espèces, et sont indiquées dans le [Tableau 3.2](#) pour les différents types de végétation. Pour l'Australie, certains ont été adaptés selon les travaux de [Paton-Walsh et al. \(2014b\)](#) et [Smith et al. \(2014\)](#) (nouvelles valeurs pour la savane et les forêts tempérées d'Australie), comme détaillé dans le [Tableau 3.3](#).
- La quantité de combustible est calculée en multipliant la densité de biomasse, estimée grâce au modèle global de végétation ORCHIDEE ([Krinner et al., 2005](#); [Maignan et al., 2011](#)), par la fraction de végétation effectivement disponible pour la combustion (indiquée dans le [Tableau 3.4](#)) et par l'efficacité de combustion.

3.5.2 Prise en compte du transport vertical

La simulation du transport vertical des émissions à la source est importante pour pouvoir modéliser correctement la trajectoire d'un panache, mais aussi son impact local sur la qualité de l'air : si le panache émis reste confiné dans la couche limite, la qualité de l'air sera fortement dégradée dans la région d'émission mais la zone d'influence du feu sera réduite; au contraire, si une fraction importante des émissions monte jusque dans la troposphère libre, les concentrations en surface seront plus diluées mais le panache pourra potentiellement être transporté sur de plus longues distances.

Trois approches sont actuellement employées dans les CTMs : injecter les émissions de manière homogène dans la couche limite ou à la surface ; utiliser un profil vertical constant ; ou utiliser un modèle de pyro-convection.

Plusieurs études ont montré l'importance de prendre en compte un profil d'injection spécifique car certains feux, dans des conditions particulières concernant la caractéristique du feu lui-même (puissance, surface brûlée) et la météorologie (stabilité, vents, etc.) peuvent développer des panaches qui dépassent la hauteur de couche limite et même parfois atteignent la stratosphère ([Fromm and Servranckx, 2003](#); [Damoah et al., 2006](#)).

Dans sa configuration par défaut, la première option est utilisée dans CHIMERE (mélange homogène dans la couche limite). Cependant, l'influence du profil d'injection est également discuté dans cette thèse. Nous l'avons donc modifié dans les études suivantes à l'aide des hauteurs observées (voir Chapitre 2).

L'objectif initial était d'intégrer un modèle de pyro-convection 1D ([Rio et al., 2010](#)), mais le travail conséquent et les incertitudes liées n'ont pas pu aboutir à des résultats robustes. Nous avons donc choisi de contraindre ce profil par les observations MISR, si disponibles, et d'étudier la sensibilité de ce paramètre dans les différentes études de cas.

Tableau 3.2 – Facteurs d'émission utilisés dans le calcul des émissions de feux dans l'inventaire APIFLAME. Les valeurs sont issues d'(Akagi et al., 2011) sauf mention contraire.

Species	Tropical Forest	Savanna	Crop residue	Pasture Maintenance	Boreal forest	Temperate forest	Peatland	Chaparral
CO ₂	1643	1686	1585	1548	1489	1637	1563	1710
CO	93	63	102	135	127	89	182	67
CH ₄	5.07	1.94	5.82	8.71	5.96	3.92	11.8	2.51
C ₂ H ₂	0.44	0.24	0.27	0.21	0.18	0.29	0.14	0.20
C ₂ H ₄	1.06	0.82	1.46	1.28	1.42	1.12	1.79	0.75
C ₂ H ₆	0.71	0.66	0.91	0.95	1.79	1.12	–	0.36
C ₃ H ₄	0.02	0.01	–	0.02	–	–	–	–
C ₃ H ₆	0.64	0.79	0.68	0.85	1.13	0.95	2.30	0.38
C ₃ H ₈	–	–	–	–	0.06 ^g	–	–	–
C ₃ H ₈	0.13	0.10	0.28	0.22	0.44	0.26	–	0.19
Isoprene	0.13	0.04	0.38	0.12	0.15 ^g	–	1.07	–
C ₆ H ₆	0.39	0.20	0.15	0.70	1.11 ^g	–	2.46	–
Toluene	0.26	0.08	0.19	0.34	0.48 ^g	–	1.21	–
Xylene	0.11	0.01	–	0.11	0.18 ^g	–	–	–
Terpenes	–	–	–	–	3.09 ^g	–	–	–
C ₂ H ₅ OH	–	–	–	–	0.05 ^g	–	–	–
CH ₃ OH	2.43	1.18	3.29	5.84	2.82	1.93	5.36	0.80
Phenol	0.45	0.52	0.52	1.68	2.96	0.33	4.36	0.45
HCHO	1.73	0.73	2.08	1.90	1.86	2.27	1.69	0.83
CH ₃ COCH ₃	0.63	0.16	0.45	1.05	0.75 ^g	–	1.08	–
MVE	–	0.16	0.08	–	–	–	0.85	–
Acetic acid	4.08	3.82	6.89	10.66	5.15	2.43	7.78	1.178
OCS	0.02	–	–	–	0.46 ^g	–	1.20	–
NH ₃	1.33	0.52	2.17	1.47	2.72	0.78	10.8	1.03
123TMB	–	–	–	–	0.05 ^g	–	–	–
124TMB	–	–	–	–	0.03 ^g	–	–	–
135TMB	–	–	–	–	5.86 × 10 ⁻³ g	–	–	–
AROM ^a	0.06	0.01	–	–	0.13 ^g	–	–	–
ALKA ^b	0.07	0.04	0.15	0.06	0.35	0.08	–	0.14
ALKEN ^c	0.30	0.16	0.50	0.37	0.48	–	–	–
ALDEHS ^d	2.26	1.16	2.71	2.78	0.62	0.18	4.73	0.17
KETON ^e	1.06	–	–	3.5	0.43 ^g	–	–	–
FURANS ^f	2.29	0.17	0.11	2.63	0.8	0.2	1.51	0.18
SO ₂	0.40	0.48	0.4 ^h	0.32	1.g.h	1.g.h	–	0.68
HONO	1.18	0.20	0.	0.16	0.	0.52	0.	0.41
NO _x	2.55	3.9	3.11	0.75	0.90	2.51	0.8	3.26
N ₂ O	–	–	–	–	0.41	0.16	–	0.25
BC	0.52	0.37	0.75	0.91	–	0.56 ^g	0.20	1.3
OC	4.71	2.62	2.30	9.64	–	9.2 ^g	6.23	3.7
PM _{2.5}	9.1	7.17	6.26	14.8	15.3	12.7	–	11.9
Total PM	18.5	8.5 ^h	6.26 ^h	28.9	17.6 ^{g,h}	17.6 ^{g,h}	–	–

^a AROM: the aromatics other than benzene, toluene, and trimethylbenzene (Molar mass $M = 126 \text{ g mol}^{-1}$); ^b ALKAN: butanes and heavier alkanes ($M = 58 \text{ g mol}^{-1}$); ^c ALKEN: butenes and heavier alkenes ($M = 56 \text{ g mol}^{-1}$); ^d ALDEHS: aldehydes other than formaldehyde ($M = 44 \text{ g mol}^{-1}$); ^e KETONS: cetones other than acetone ($M = 72 \text{ g mol}^{-1}$); ^f FURANS: furans ($M = 82 \text{ g mol}^{-1}$); ^g Values for extratropical forest, also used for temperate forests; ^h Values from Andreae and Merlet (2001).

3.5.3 Incertitude sur les émissions de feux

La détermination des masses émises requiert la connaissance de la quantité, du type de végétation brûlée et de la densité de biomasse brûlée ainsi que des facteurs d'émissions pour chaque polluant. L'incertitude sur les émissions calculées dépend de chacun de ces paramètres. Un exercice d'inter-comparaison a montré des différences

Tableau 3.3 – Facteurs d’émission ($g\ kg^{-1}$) utilisés pour le calcul des émissions de feu pour l’Australie, pour les végétation savane et forêt tempérée, selon Paton-Walsh et al. (2014b) et Smith et al. (2014).

Espèces	Savane		Forêt tempérée	
	Eur.	Aus.	Eur.	Aus.
CO ₂	1686	1674	1637	1620
CO	63	87	89	120
CH ₄	1.9	2.1	3.9	3.6
C ₂ H ₂	0.2	0.11	0.3	1.3
C ₂ H ₄	0.8	0.49	1.1	1.7
C ₂ H ₆	0.7	0.08	1.1	2.4
HCHO	0.7	1.57	2.27	3.8
CH ₃ OH	1.2	1.06	1.9	0.4
H ₃ COOH	3.82	1.70	2.4	1.6
HCN	0.41	0.53	0.73	0.15
NH ₃	0.52	0.70	0.78	0.5

Tableau 3.4 – Fraction de végétation disponible pour la combustion dans les différents réservoirs de carbone selon (Hoelzemann et al., 2004). Le minimum et le maximum sont indiqués entre parenthèses.

ORCHIDEE PFT	Litter	Leaf	Wood	Roots
Tropical broad-leaved evergreen	100	10 (5–20)	0	0
Tropical broad-leaved raingreen	100	10 (5–20)	0	0
Tropical needleleaf evergreen	100	30 (15–60)	10 (5–20)	0
Temperate broad-leaved evergreen	100	30 (15–60)	10 (5–20)	0
Temperate broad-leaved summergreen	100	20 (10–40)	10 (5–20)	0
Boreal needleleaf evergreen	70	20 (10–40)	20 (10–40)	5 (2.5–10)
Boreal broad-leaved summergreen	70	20 (10–40)	20 (10–40)	5 (2.5–10)
Boreal needleleaf summergreen	70	20 (10–40)	20 (10–40)	5 (2.5–10)
C3 grass	100	50 (25–100)	5 (2.5–10)	0
C4 grass	100	50 (25–100)	5 (2.5–10)	0
C3 agriculture	100	50 (25–100)	5 (2.5–10)	0
C4 agriculture	100	50 (25–100)	5 (2.5–10)	0

de calcul des émissions de CO pour l’année 2003 allant de 1.6 à 87.8 Tg, selon la méthodologie et le produit de surface brûlée utilisé (Stroppiana et al., 2010). Dans Urbanski et al. (2011), l’incertitude estimée pour les émissions dépend de la résolution temporelle et spatiale, et peut aller jusqu’à 133% sur les émissions de CO journalières pour une résolution d’environ 1 km. Ils ont trouvé que l’incertitude était principalement due à la surface brûlée et à la densité de biomasse.

Comparé à d'autres inventaires (GFAS⁹, GFED¹⁰, FINN¹¹), APIFLAME est assez cohérent mais diffère parfois d'un facteur 2 à 4 dans l'amplitude des émissions de CO.

Enfin, l'incertitude liée à la hauteur d'injection est très difficile à déterminer, et le peu d'évaluations des modèles de pyro-convection existant montrent des dépendances à de nombreux paramètres. Le modèle de Freitas et al. (2007), implémenté dans WRF-Chem (un modèle de chimie transport du NCAR¹² couplé avec le modèle météorologique WRF), a par exemple été testé par Sessions et al. (2011) en Alaska pendant un campagne de 10 jours en 2008. La comparaison a montré, pour la paramétrisation la plus cohérente (inventaire de feu avec variabilité diurne), une corrélation de 0,45 entre les hauteurs du modèle et celles observées par MISR, et mettant en valeur l'importance d'un profil atmosphérique correct. L'analyse de Val Martin et al. (2012) utilisant ce même modèle et comparant ses résultats à MISR en Amérique du Nord suggère que le modèle ne permet pas de reproduire les valeurs observées.

3.6 Prévisions chimiques pendant la campagne ChArMEx

Le modèle CHIMERE peut facilement être utilisé en mode prévision. Il est en général pour cela lancé le jour J à partir du jour J-1, pour une simulation jusqu'au jour J+2, soit 4 jours de simulation au total.

Le modèle météorologique WRF est utilisé aussi en mode prévision et lancé juste avant la simulation CHIMERE (les données GFS¹³/NCEP nécessaires à son lancement sont téléchargées chaque jour).

Pour les émissions de feux, les données en temps quasi-réel de l'activité des feux de l'instrument MODIS (MODIS Near Real Time) sont aussi téléchargées chaque jour et utilisées pour le calcul de l'aire brûlée correspondante. Le modèle APIFLAME calcule ensuite les émissions associées avec la même approche qu'en réanalyse. On suppose que les feux présents persistent pendant les 72 premières heures, justifié par une faible persistance des feux en Europe en moyenne.

Les émissions biogéniques et de poussières minérales dépendent de la météorologie et sont calculées de manière usuelle comme indiquées dans la Section 3.4.

Les concentrations initiales sont déterminées à partir des prévisions des jours précédents (et d'une simulation préalable pour un premier jour de campagne).

Cette configuration (mais sans les feux) a déjà été utilisé lors de plusieurs campagnes de mesures : le projet ESCOMPTE dans le sud de la France (Menut et al., 2005a) et pendant la campagne AMMA¹⁴ en Afrique de l'Ouest (Menut et al., 2009).

En 2013 et avec l'intégration des feux, nous avons participé aux prévisions pour

-
- 9. Global Fire Assimilation System
 - 10. Global Fire Emissions Database
 - 11. Fire INventory from NCAR
 - 12. National Center for Atmospheric Research
 - 13. Global Forecast System
 - 14. African Monsoon Multidisciplinary Analyses

la campagne CHARMEX du 10 juin au 5 juillet 2013. Ce travail a été publié dans le journal *Atmospheric Chemistry and Physics* (Menut et al., 2015b). Le modèle est capable de simuler les principaux événements observés pendant la période (poussières minérales et sels marins en majorité). Cependant, les différences existantes sont expliquées par les biais présents dans les modèles (WRF et CHIMERE), et par la météorologie, plus spécifiquement la grande variabilité du vent et la difficulté à le prévoir d'un jour à l'autre. Celui-ci impacte les directions de transport des panaches d'aérosols ainsi que les émissions de poussières minérales et les émissions biogéniques.

3.7 Conclusions

Les outils de modélisation utilisés dans la suite de cette étude ont été présentés. Il s'agit, en résumé, de :

- Différents codes de calculs pour les émissions. J'ai notamment contribué à la vérification et validation du code APIFLAME, nécessaire pour les feux de végétation et développé pendant cette thèse. Le code a été utilisé par l'ensemble des développeurs du modèle sur l'Europe, mais j'ai réalisé intégralement sa portabilité sur l'Australie, dans le cadre de l'étude présentée au Chapitre 7. Pour cela, il a fallu récupérer les données MODIS sur la région et la période d'étude, et tester les différentes valeurs de surfaces brûlées les plus adaptées au problème. De même, j'ai adapté le modèle d'émissions anthropiques pour calculer les flux sur l'Australie.
- Si le modèle WRF est utilisé tel quel, j'ai contribué à la mise en place de la lecture des émissions de feux dans CHIMERE, à la validation de la prise en compte des valeurs de flux, notamment concernant la définition des profils verticaux. Le modèle ayant beaucoup évolué pendant ce travail de thèse, j'ai adapté ma version de travail aux différentes évolutions, notamment les nouveaux schémas permettant le calcul des taux de photolyse et les émissions d'aérosols minéraux.

Les trois modèles utilisés (APIFLAME, WRF et CHIMERE) sont relativement complexes mais les résultats sont aussi dépendants de leur limitations et dans le cas des feux, une meilleure représentation de la pyro-convection et la possibilité de prendre en compte les interactions aérosols-rayonnement font partie des perspectives de développement actuellement en cours.

4 | Caractéristiques des feux en Europe et en Australie

Sommaire

4.1	Variabilité interannuelle	50
4.2	Végétation brûlée	51
4.3	Altitude d'injection	56
4.3.1	Méthodologie	56
4.3.2	Variabilité interannuelle de l'altitude observée des panaches	57
4.3.3	Profils verticaux moyen des hauteurs de panaches	61
4.4	Discussion et conclusions	66

Les feux de végétation présentent dans les deux régions d'étude de cette thèse des caractéristiques (surfaces brûlées, végétation, hauteur d'injection, etc.) et une variabilité (spatiale et temporelle) propres à chacune. Le premier objectif de cette thèse est de déterminer quelles sont ces caractéristiques et cette variabilité, ainsi que les profils verticaux de particules au dessus des feux, car cela est déterminant par la suite pour la prise en compte des feux dans les modèles. Ce chapitre vise à répondre à cet objectif pour chaque région, et à saisir leurs similitudes et leurs différences en se basant sur les observations disponibles.

4.1 Variabilité interannuelle

Dans cette section, une analyse sur 9 ans (de 2006 à 2014) est réalisée pour les deux régions, à partir des produits de feux de l'instrument MODIS, présentés Section 2.4. Ces données ont été moyennées sur une grille de $0.2^\circ \times 0.2^\circ$ de résolution pour faciliter les manipulations.

La Figure 4.1 représente la moyenne annuelle sur la période de la totalité de la surface brûlée et la fréquence associée des feux (égale à 1 si un feu est détecté chaque année dans une maille donnée). Les principales régions affectées en Europe se trouvent sur le pourtour méditerranéen et en Europe de l'Est. D'importantes surfaces brûlées sont observées au sud de l'Europe, associées pour certaines à une fréquence importante (Espagne, Sicile, Grèce, Balkans). En Europe de l'Est, beaucoup de petits feux sont observés et associés à une forte fréquence, liés à la présence de feux agricoles (Amiridis et al., 2010).

En Australie, les feux de végétation présentent une grande fréquence dans toutes les régions (supérieure à 0.5 pour la majorité des feux du pays). Les surfaces brûlées les plus importantes se retrouvent au Nord, mais certaines zones sont également touchées dans le Victoria et la côte Est. Cette dernière présente en outre une fréquence aussi élevée qu'au Nord (entre 0.9 et 1).

La surface brûlée totale mensuelle pour la période 2006-2014 pour les principales régions affectées est représentée sur la Figure 4.2 pour l'Europe et Figure 4.3 pour l'Australie. Pour toutes les régions d'Europe, l'activité liée aux feux est maximale pendant les mois d'été boréal, et s'étend principalement de juin à septembre voir octobre pour les pays à l'Est. La variabilité interannuelle y est moins marquée que dans les pays du sud de l'Europe, où les feux sont moins fréquents mais dont la variabilité est très forte. On peut noter quelques événements intenses : 2007 dans le bassin Est et Centre, 2006 au Portugal, 2012 en Espagne et Europe de l'Est, 2006, 2007 et 2008 en Russie¹. L'année la plus importante en terme de surfaces brûlées dans tout le bassin pendant la période était l'année 2007.

La variabilité interannuelle pour l'Australie est globalement moins marquée que pour l'Europe avec des feux quasiment toute l'année, surtout au Nord, et des maxima plutôt en fin d'année. Les années notables sont fin 2006 pour presque toutes les régions, fin 2012 au Nord et Nord-Est, fin 2013 au NSW, au Nord et Nord-Est. Le Sud présente également de forts épisodes en 2009 et 2014. Les zones de fortes

1. 2010 était également une année de feux extrêmes en Russie (dans la région de Moscou), mais l'épisode se situe en dehors du domaine représenté ici

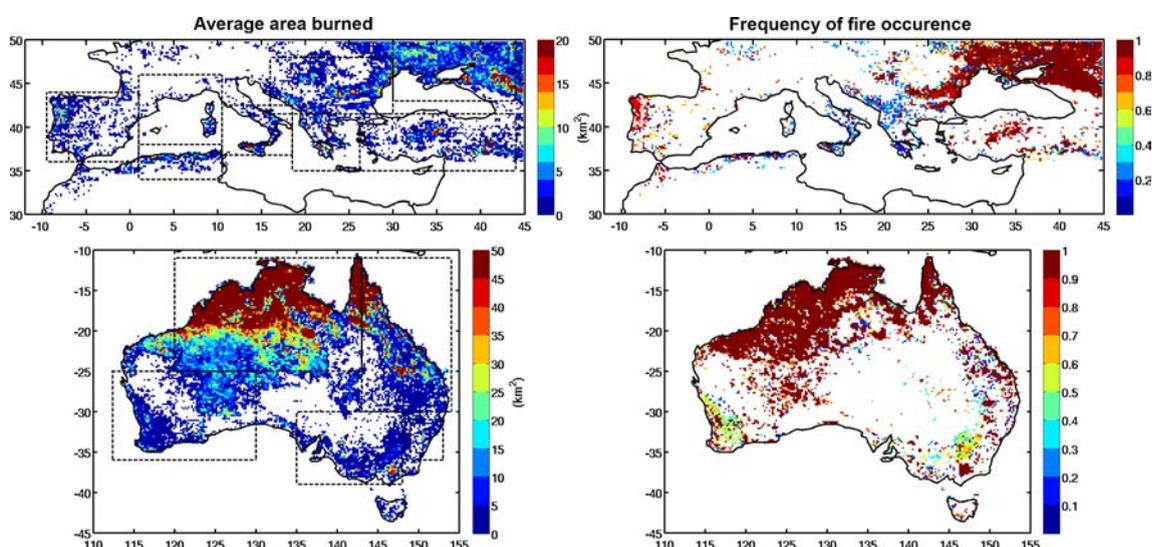


Figure 4.1 – Moyenne de l’air brûlé totale pour la période 2006-2014, sur une grille de $0.2^\circ \times 0.2^\circ$, selon le produit MODIS MCD64. La fréquence correspondante des évènements de feux dans chaque cellule de grille est également représentée. Les régions utilisées pour les séries temporelles sont indiquées sur la première figure.

surfaces brûlées sont plus étendues, et brûlent toute l’année, impactant la qualité de l’air de manière récurrente et plus intense.

La variabilité interannuelle est guidée par la saisonnalité. Les feux les plus intenses coïncident avec les étés hémisphériques et des conditions favorables à leur propagation, notamment une sécheresse intense, des températures élevées et peu de vent (Pereira et al., 2005; Bradstock et al., 2010). Des conditions synoptiques de blocage influencent très fortement le développement et l’arrêt des feux de végétation (Hernandez et al., 2015). La durée de ces conditions, associée à des vents plus ou moins forts, permet de propager les feux sur de grandes surfaces.

L’origine des feux est très diverse, bien que la propagation et l’amplitude soit soumise à des conditions météorologiques favorables. En Europe, la plupart des feux de végétation (95%, selon San-Miguel-Ayanz et al., 2013a) est liée aux activités humaines (feux agricoles, actes criminels, déclenchements accidentels). En Australie, la densité de population est beaucoup moins importante qu’en Europe, et on estime à la moitié les déclenchements de feux dus à la foudre (Dowdy and Mills, 2012), le restant étant lié aux activités humaines.

4.2 Végétation brûlée

Les Figure 4.4 et Figure 4.5 montrent la contribution relative de chaque type de végétation aux surfaces brûlées mensuelles. Cette végétation est attribuée pour chaque feu détecté grâce au produit MODIS MCD12, à une résolution de 500 m (Section 2.4). La contribution est ensuite moyennée sur la grille d’analyse à $0,2^\circ$ de résolution. Les Figures représentent les moyennes mensuelles sur l’ensemble de la période 2006-2014, et pour les régions indiquées sur la Figure 4.1.

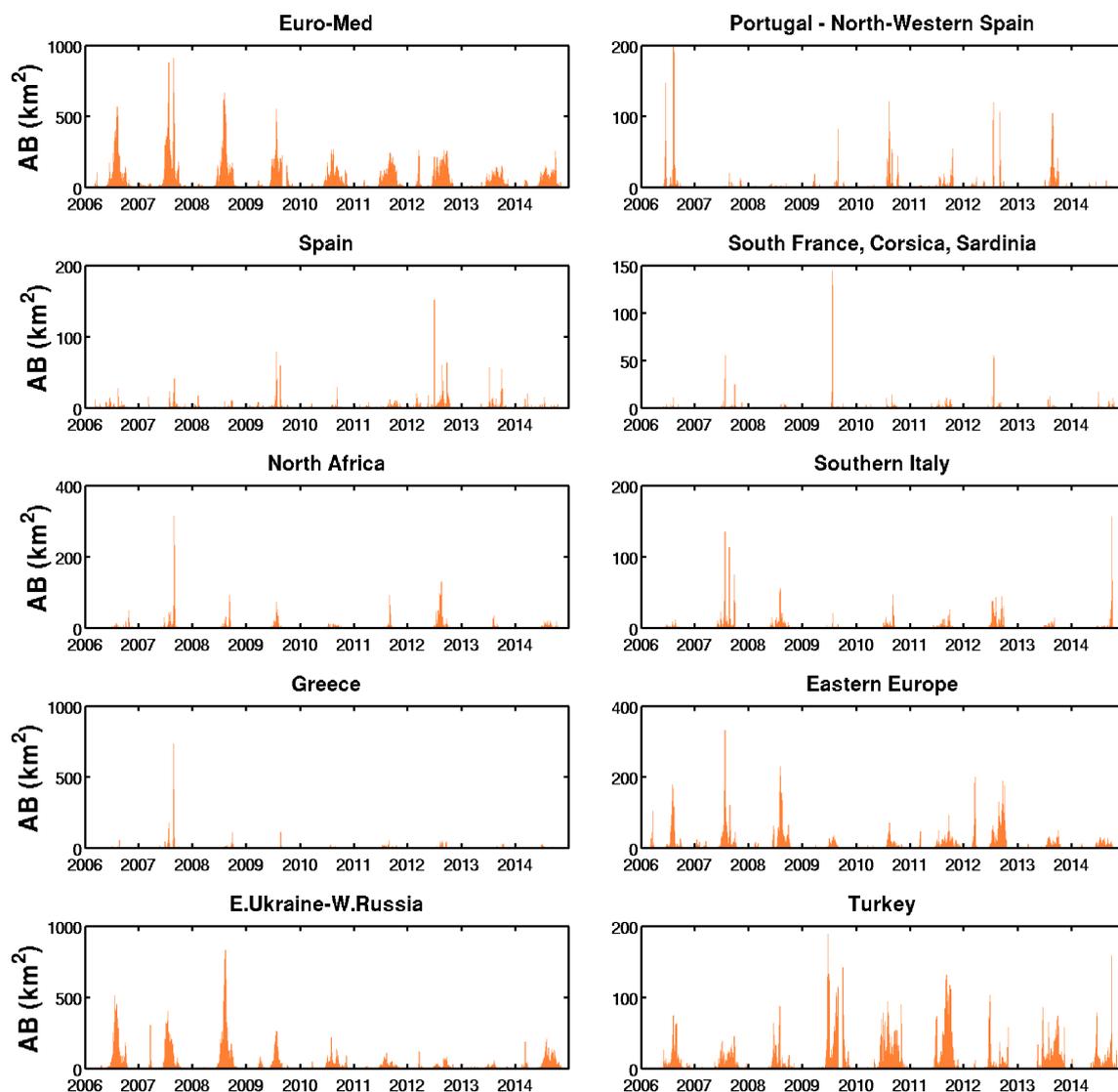


Figure 4.2 – Surface brûlée journalière 2006-2014 selon le produit MODIS MCD64 pour les principales sous-régions de la région Euro-Méditerranéenne, définies Figure 4.1. La localisation des années sur l'axe des abscisses correspond au mois de janvier de chaque année.

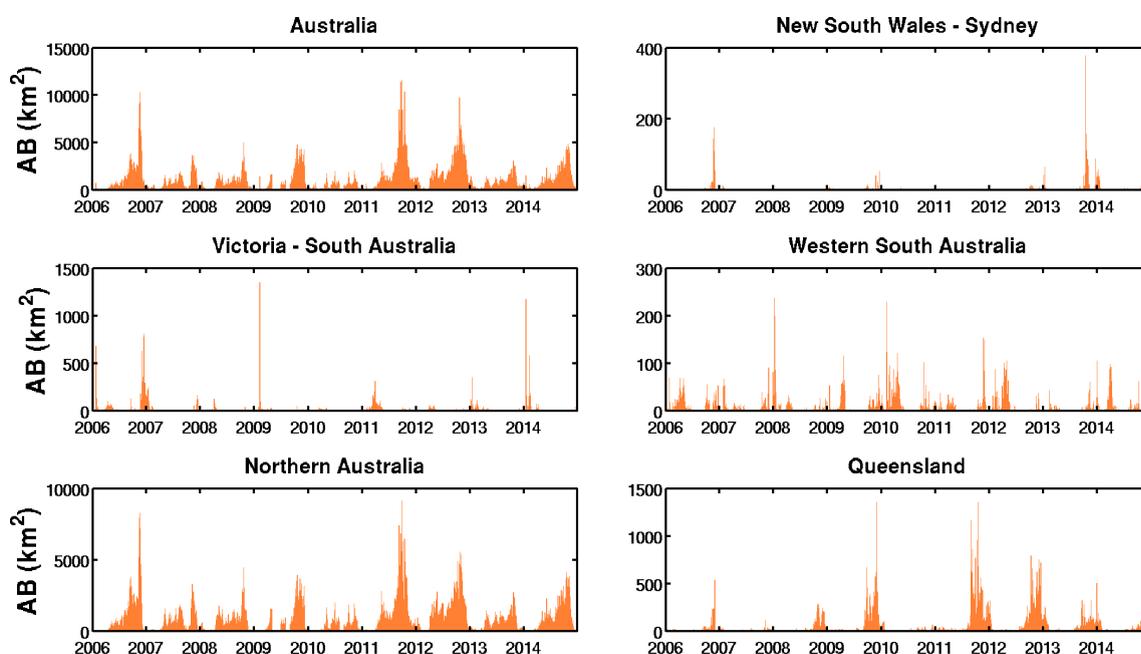


Figure 4.3 – Même figure que la [Figure 4.2](#) pour l’Australie et ses principales régions affectées par les feux.

En Europe et pendant les mois de juillet-août, environ 70% des feux détectés sont attribués à des surfaces agricoles, 10% à de la savane, 10% à des prairies, 5% à des forêts et 5% à du maquis. Les feux agricoles sont prédominants en Europe de l’Est, Ukraine, Russie et Turquie, et également en Italie du Sud. A part cette dernière, la végétation brûlée sur le pourtour méditerranéen est composée de savane, de forêt et de maquis. Les feux de forêt représentent environ 13% des feux au Portugal, 8% en Espagne, 7% au sud de la France, Corse et Sardaigne.

Ces chiffres dépendent de la base de donnée de végétation choisie. Par exemple, [Turquety et al. \(2014\)](#) ont réalisé une analyse similaire pour la période 2003-2012 en utilisant la classification CORINE Land Cover (CLC), et ont obtenu une proportion moins importante pour les feux agricoles (48.5%) et davantage pour les feux de forêt (21.1%) et de prairies (20%). Cette base de données est plus raffinée car elle est issue de plusieurs produits satellites ainsi que de données auxiliaires (topographie, statistiques, données locales). La difficulté dans l’attribution de la végétation brûlée au niveau régional est une des principales incertitudes dans la détermination des émissions de feux. Même s’ils représentent un faible pourcentage, les feux de forêts sont importants en Europe et Méditerranée car ce sont en général les feux les plus intenses, étant donné les quantités de combustibles accumulés ([San-Miguel-Ayanz et al., 2013a](#)).

En Australie, la végétation est plus diverse selon les régions, dû à la différence de climat du pays. C’est la savane et le maquis qui prédominent (50% et 40% respectivement), sauf en NSW, où les forêts représentent 65% et la savane 26% des surfaces brûlées. Des feux agricoles sont aussi présents dans le Victoria (30%).

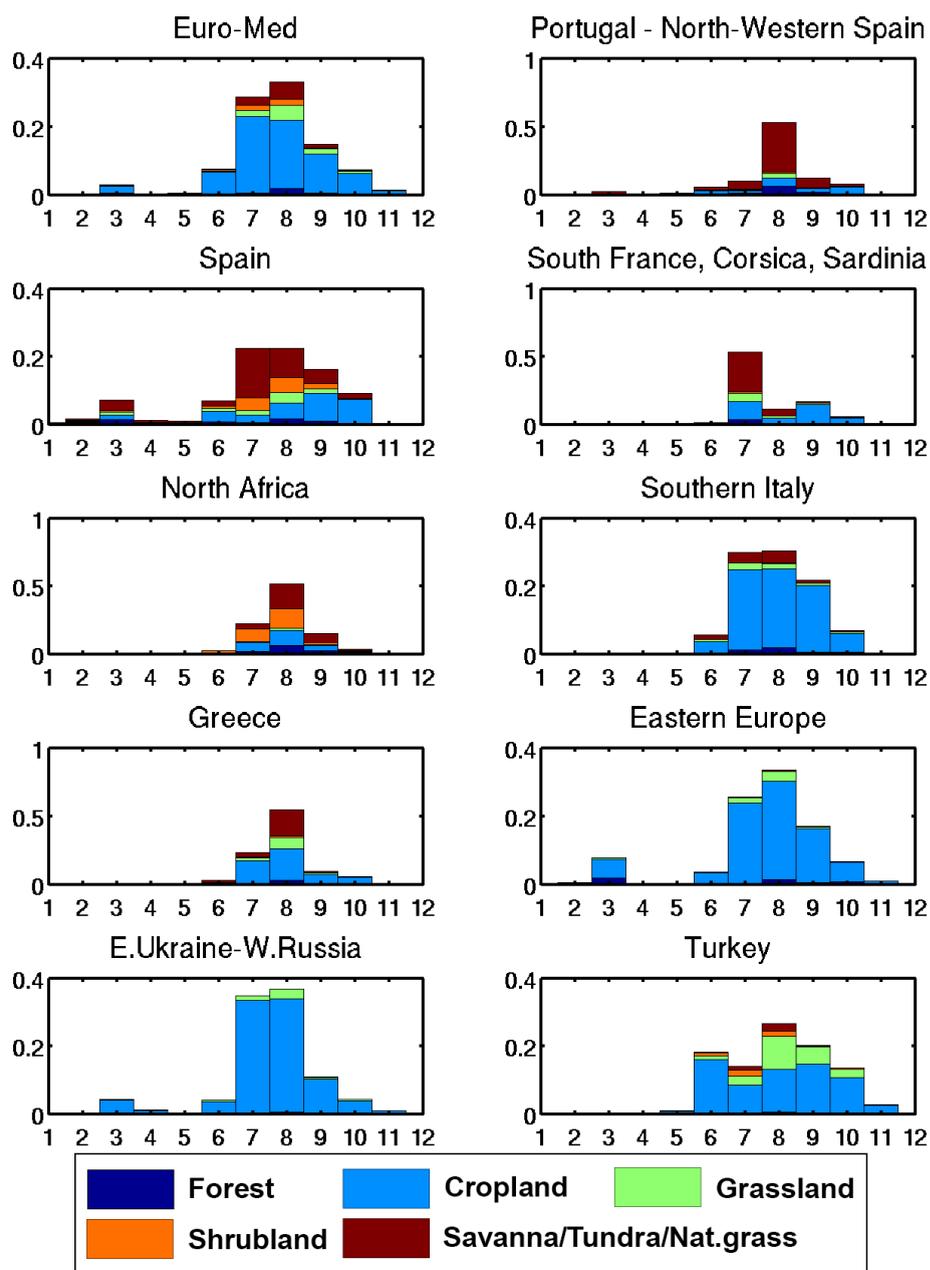


Figure 4.4 – Fraction moyenne sur la période 2006-2014, sur l'Europe et ses principales régions, de l'aire brûlée associée à chaque type de végétation MODIS.

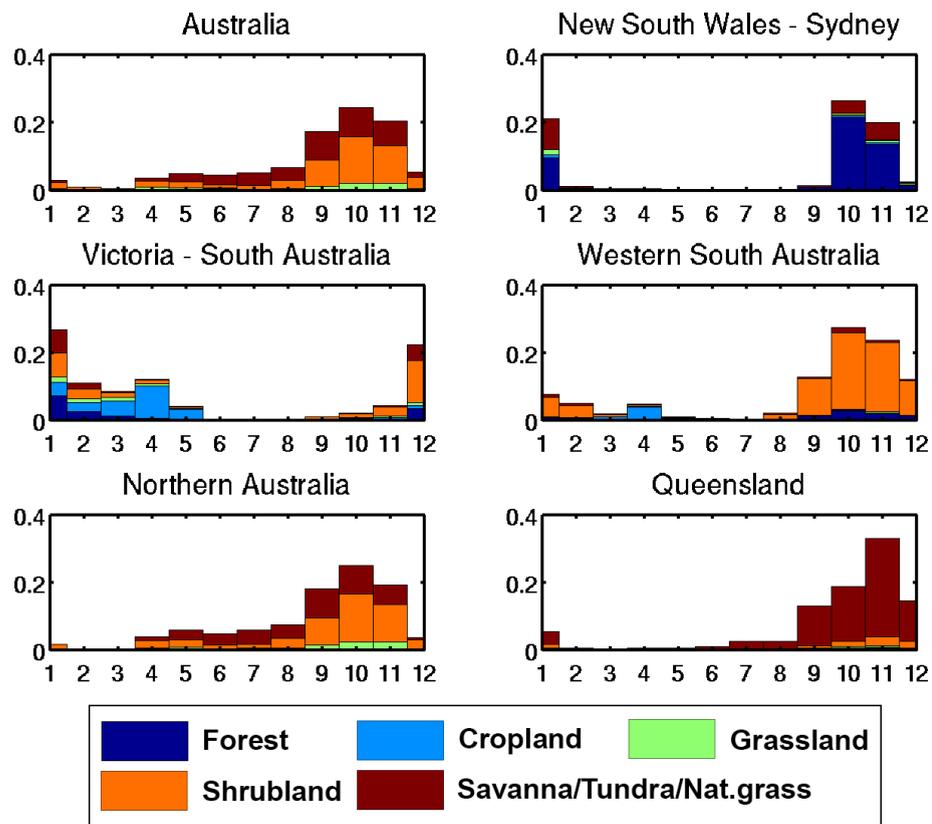


Figure 4.5 – Fraction moyenne sur la période 2006-2014, sur l'Australie et ses principales régions, de l'aire brûlée associée à chaque type de végétation MODIS.

4.3 Altitude d'injection

L'altitude d'injection est une caractéristique importante dans la modélisation des feux, car elle influence le transport des panaches. Les panaches concentrés en surface auront un impact très local sur la qualité de l'air au contraire des panaches dilués sur la verticale. Ceux pouvant dépasser la couche limite atmosphérique (CLA) pourront être transportés et impacter des régions plus éloignées.

Cette altitude peut être influencée par l'intensité du feu (qui peut être évaluée grâce à la FRP), et les conditions météorologiques (vents, stabilité de l'atmosphère).

Ici, une analyse statistique des altitudes de panaches de feux est menée. L'objectif est d'estimer l'importance d'une injection en altitude dans nos régions d'étude. Cette analyse statistique s'effectue sur la période de 2006 à 2014 (9 ans), à partir des données des instruments satellitaires MISR et CALIOP décrits dans le Chapitre 2. L'instrument MISR permet d'obtenir la hauteur de panache grâce à ses 9 caméras, et sa fauchée permet une couverture complète de la Terre tous les 16 jours. Le LIDAR CALIOP quant à lui, même si sa couverture spatiale est beaucoup moins élevée, est plus précis puisqu'il permet de retrouver l'information sur la totalité de la colonne atmosphérique.

Le lien entre l'altitude d'injection et la FRP et la hauteur de couche limite est également discutée, ainsi qu'une comparaison aux études existantes.

4.3.1 Méthodologie

Seules les données observées pendant le maximum des saisons de feux ont été analysées (i.e. entre juin et septembre pour l'Europe, et entre octobre et mars pour l'Australie, d'après la section précédente).

Les hauteurs des produits de niveau 2 de MISR et CALIOP sont traitées de manière similaire. Seules les données classées en type aérosol et dont la valeur est inférieure à 7 km sont conservées. Ces données sont tout d'abord projetées sur des grilles d'une résolution de 20 km, la finalité de cette étude étant de modéliser les panaches de façon réaliste avec le modèle CHIMERE. Dans chaque maille de grille, les paramètres conservés sont : la médiane des hauteurs, le maximum des hauteurs, leur nombre, et la distribution verticale de l'ensemble des pixels.

Les pixels de feux MODIS sont également reprojétés sur la même grille de 20 km, avec pour chaque maille la FRP moyenne, médiane et maximum, et le nombre de points.

Les mailles comportant à la fois des observations de feux et de hauteurs sont considérées dans l'analyse.

Enfin, la hauteur de couche limite pour chaque maille de grille est déterminée à partir des réanalyses ERA-INTERIM, disponibles 4 fois par jour pour une résolution de $0,75^\circ$. La valeur est interpolée spatialement et temporellement (à l'heure de passage des instruments) sur la grille à 20 km de résolution.

4.3.2 Variabilité interannuelle de l'altitude observée des panaches

Les points de hauteur les plus hauts sont observés avec MISR en Afrique du Nord, Italie du Sud et Europe de l'Est. Cependant la couverture spatio-temporelle de l'instrument MISR ne permet pas d'avoir des données chaque jour pour toutes les régions, impliquant une possibilité de données manquantes pour certains feux, parfois les plus intenses. C'est le cas par exemple de l'été 2007 en Grèce où il n'y a pas de donnée MISR pour la plus grande valeur de la FRP mesurée avec MODIS. Cela est d'autant plus vrai pour l'instrument CALIOP. La variabilité spatiale des hauteurs maximales observées pendant la période avec CALIOP est assez cohérente avec celle observée par MISR, mais les hauteurs sont cependant moins élevées et plus uniformes (en Italie du Sud par exemple, la hauteur maximale observée avec CALIOP est d'environ 5 km, contre 6,5 km pour MISR). Une des raisons de cette différence est que CALIOP est plus sensible aux panaches fins. Le LIDAR peut mesurer des couches d'aérosols très fines ($AOD \simeq 0,02$ (Kahn et al., 2008)). MISR fonctionne en identifiant les aérosols par des différences de texture, et peut détecter des AOD de l'ordre du dixième. CALIOP détectera donc des panaches plus étendus et fins avec des points confinés plus bas, qui ne seront pas détectés par MISR, influençant la valeur de la hauteur médiane dans la maille.

L'Australie présente une variabilité spatiale un peu différente à celle analysée dans la section précédente. Les hauteurs médianes des feux observées au Nord restent en dessous de 3 km. Les valeurs les plus hautes sont observées dans le centre de l'Australie et l'Ouest. Des points dans le Victoria, où la surface brûlée et la fréquence étaient élevées, ont également des valeurs hautes (7 km environ pour MISR, mais pas de valeur pour CALIOP).

La [Figure 4.6](#) représente les séries temporelles correspondantes pour MISR et chaque sous-région de la région Euro-Méditerranéenne, de même que la [Figure 4.7](#) pour CALIOP, et la [Figure 4.8](#) pour l'Australie et d'après les deux instruments. Ces séries temporelles pour une même région présentent des différences, témoignant de l'échantillonnage différent. Comme observé auparavant, les hauteurs CALIOP sont plus uniformes au total dans la région, bien que certains pics se démarquent : au Portugal en 2006 (jusqu'à environ 3,5 km pour CALIOP et 5 km pour MISR) en 2011 (jusqu'à environ 5 km pour CALIOP, mais pas de valeurs notables pour MISR). L'Afrique du Nord présente des panaches assez hauts pour les deux jeux de données (souvent plus de 3 km chaque année). La Grèce se démarque également en 2008 et 2009.

L'Australie présente des hauteurs globalement plus élevées, avec une variabilité plus démarquée. Le Queensland et le Nord présentent des hauteurs élevées (jusqu'à 6 km), tandis que la région de Sydney est plus rarement marquée par des panaches hauts. Dans cette région, les seules années comportant des informations de hauteur sont fin 2007 et fin 2012, pour les deux instruments, avec des panaches allant jusqu'à 6 km pour MISR et 700 m pour CALIOP, la différence correspondant à un manque d'échantillonnage. Le seuil de 7 km utilisé pour éviter les erreurs de classification peut influencer les résultats. Des panaches de feux pourraient atteindre des hauteurs supérieures et donc ne pas être prises en compte dans cette analyse.

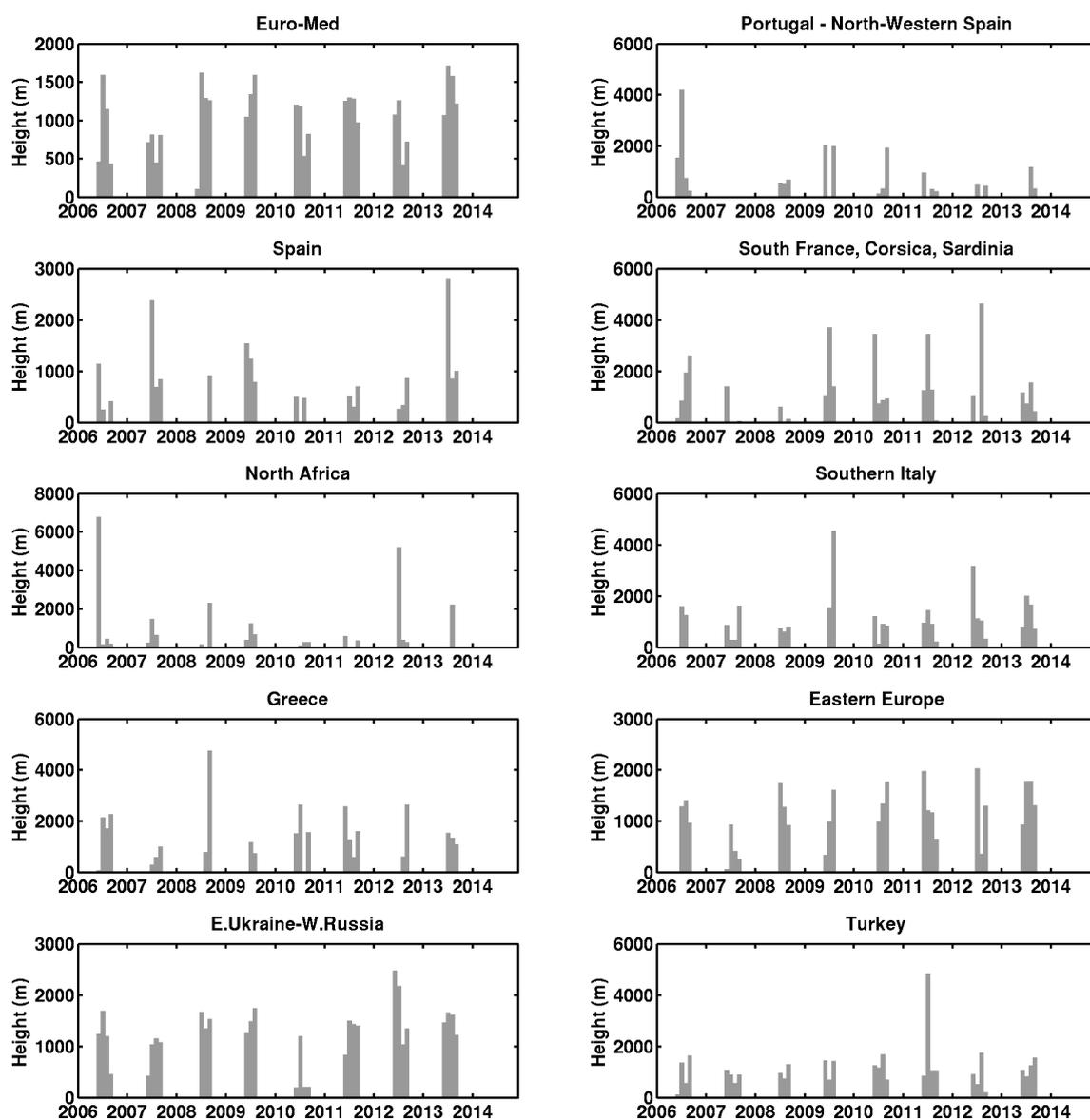


Figure 4.6 – Séries temporelles de la hauteur médiane déterminée à partir des données de hauteurs MISR, pendant la période 2006-2014, pour la région Euro-Méditerranéenne et ses sous-régions.

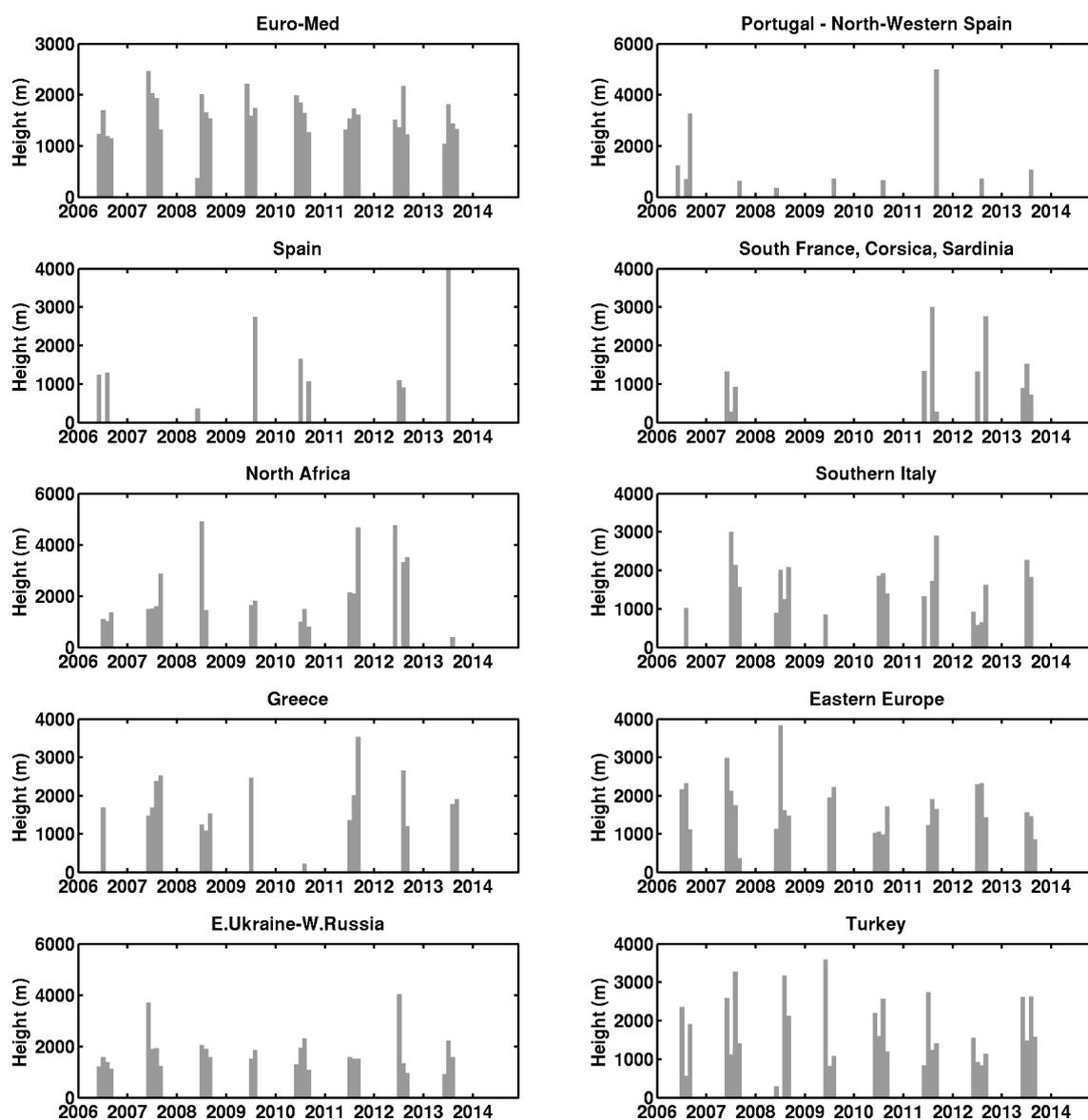


Figure 4.7 – Séries temporelles de la hauteur médiane déterminée à partir des données de hauteurs CALIOP, pendant la période 2006-2014, pour la région Euro-Méditerranéenne et ses sous-régions.

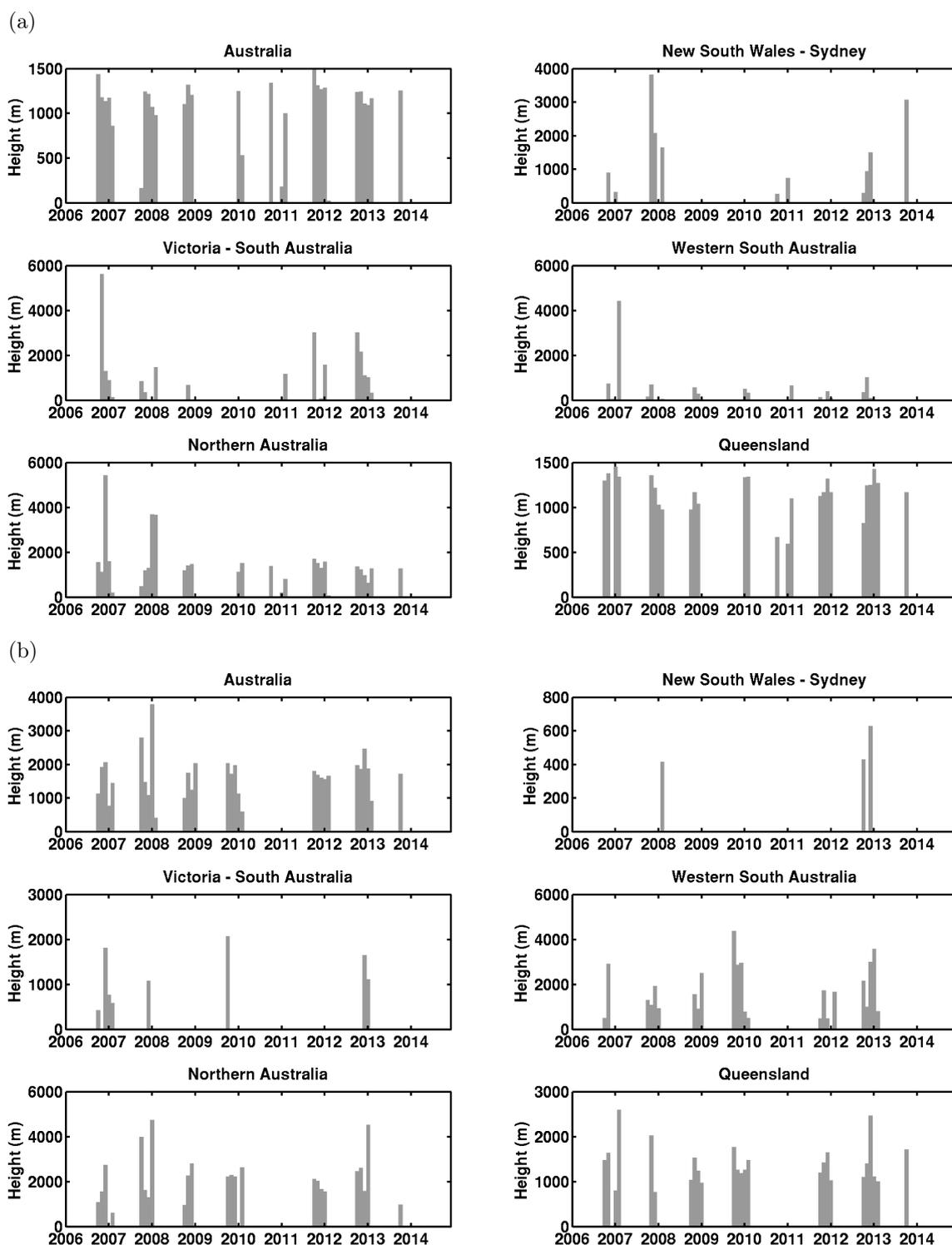


Figure 4.8 – Séries temporelles de la hauteur médiane déterminée à partir des données de hauteurs a) MISR et b) CALIOP, pendant la période 2006-2014, pour l’Australie et ses sous-régions

4.3.3 Profils verticaux moyen des hauteurs de panaches

Grâce à ces jeux de données pour MISR et CALIOP, nous avons pu déterminer la répartition des hauteurs dans chaque région. La FRP a aussi été ajoutée à la statistique afin d'évaluer son influence, pour déterminer si une intensité plus élevée entraîne un panache de feu plus haut.

De 2006 à 2014, 2974 observations MISR co-localisées avec les feux détectés par MODIS ont été analysées pour l'Europe et l'Australie. La distribution en fréquence de la hauteur médiane est représentée sur la [Figure 4.9](#). Pour les deux régions, le profil moyenné comporte un nombre de points important proche de la surface, et avec un autre mode vers 2 km, vu par les deux instruments.

Pour l'Europe et ses sous-régions, les distributions sont représentées sur la [Figure 4.10](#) pour MISR, et sur la [Figure 4.12](#) pour CALIOP. Une grande proportion des hauteurs se trouve près de la surface (44% se trouve en dessous de 1 km pour les hauteurs MISR, 26% pour les hauteurs CALIOP), et que seulement une petite fraction atteint 4 km d'altitude (6,4% et 4,6% pour MISR et CALIOP respectivement). La région présentant les hauteurs les plus hautes est l'Afrique du Nord (24% et 18% au dessus de 4 km) et la péninsule Ibérique (9% et 8% respectivement pour le Portugal et l'Espagne), avec une FRP en moyenne un peu plus élevée que les autres régions. L'Europe de l'Est et l'Ukraine présentent des FRP plus faibles (autour de 30% en moyenne), et sont associés à des distributions plus uniformes.

L'Australie présente des profils moins classiques ([Figure 4.11](#) et [Figure 4.13](#)), avec notamment plus de hauteurs au dessus de 4 km qu'en Europe en proportion (11% et 8,9% pour les points MISR et CALIOP respectivement). Le Nord et l'Ouest contribuent le plus à ces hauteurs (10% et 20% selon MISR). Les valeurs de FRP sont également en moyenne plus hautes (le double comparé à l'Europe).

Par rapport à la hauteur de couche limite, nous avons déterminé la proportion des hauteurs au dessus de celle donnée par ERA-INTERIM + 500 m pour prendre en compte les différentes incertitudes sur les hauteurs. Pour l'Europe, une grande proportion a été trouvée au dessus de cette hauteur (46% et 70% respectivement pour MISR et CALIOP). Cette grande proportion est due surtout aux régions Europe de l'Est, Ukraine et Turquie. Pour les autres régions, la proportion va de 11,8% (Espagne) à 31,3% (Afrique du Nord) pour les hauteurs MISR. La proportion pour CALIOP est beaucoup plus importante due aux données de nuit, où la hauteur de couche limite est très basse par rapport au jour.

En Australie, la proportion au dessus de la hauteur de couche limite est similaire (de 43,2% et 60,9% pour MISR et CALIOP respectivement) avec un minimum pour le NSW (23%) et un maximum pour le Nord de l'Australie et l'Ouest (jusqu'à 68% pour CALIOP). La similarité par rapport à l'Europe de cette proportion alors que celle au dessus de 4 km était plus grande, est sûrement due au fait que la hauteur de couche limite est plus importante en moyenne en Australie.

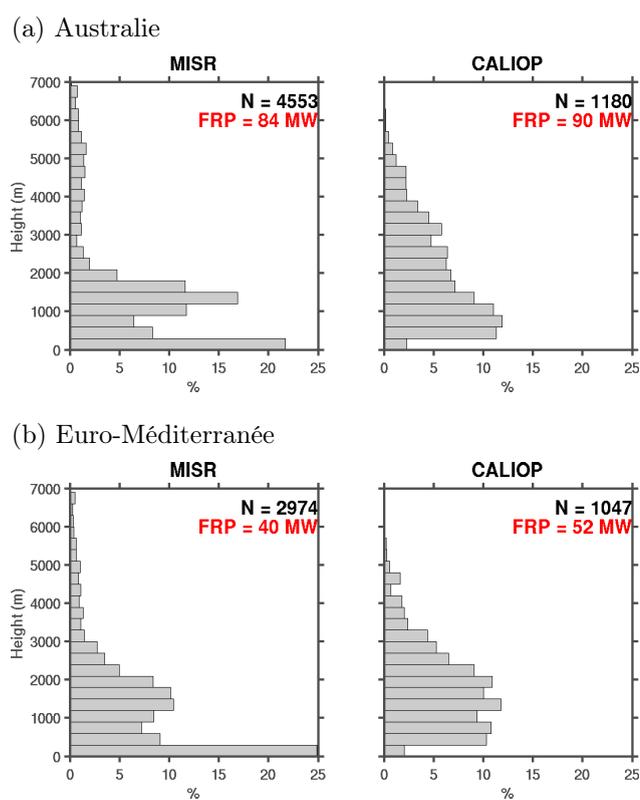


Figure 4.9 – Histogramme des hauteurs de panaches obtenues à partir des observations MISR et CALIOP, pendant la période 2006-2014, pour a) l’Australie et b) la région Euro-Méditerranéenne.

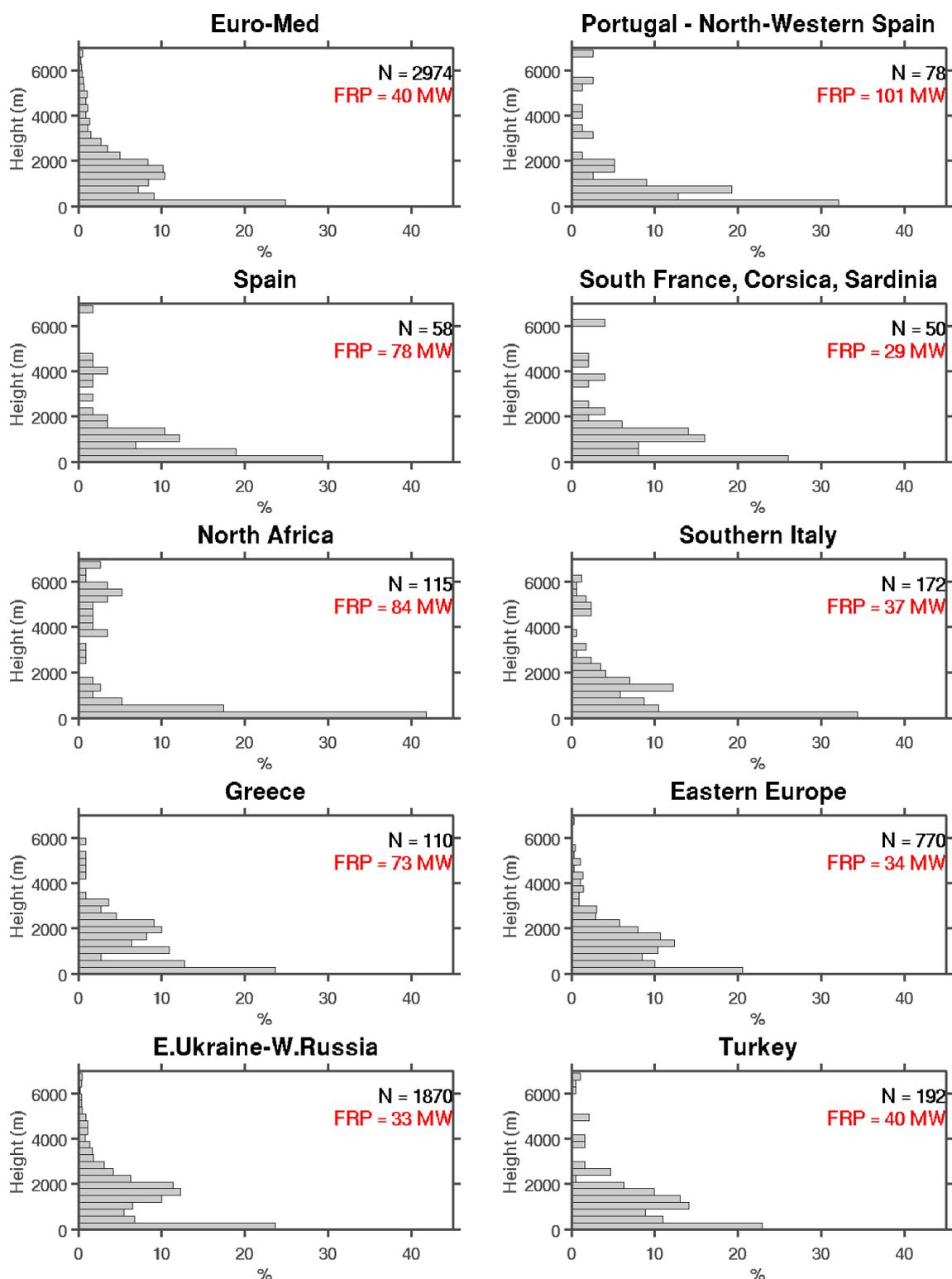


Figure 4.10 – Histogramme des hauteurs de panaches obtenues à partir des observations MISR dans chaque sous-région d'Europe. L'intensité moyenne du feu (FRP) pour ces hauteurs est indiqué en rouge. N est le nombre total de points dans chaque sous-régions.

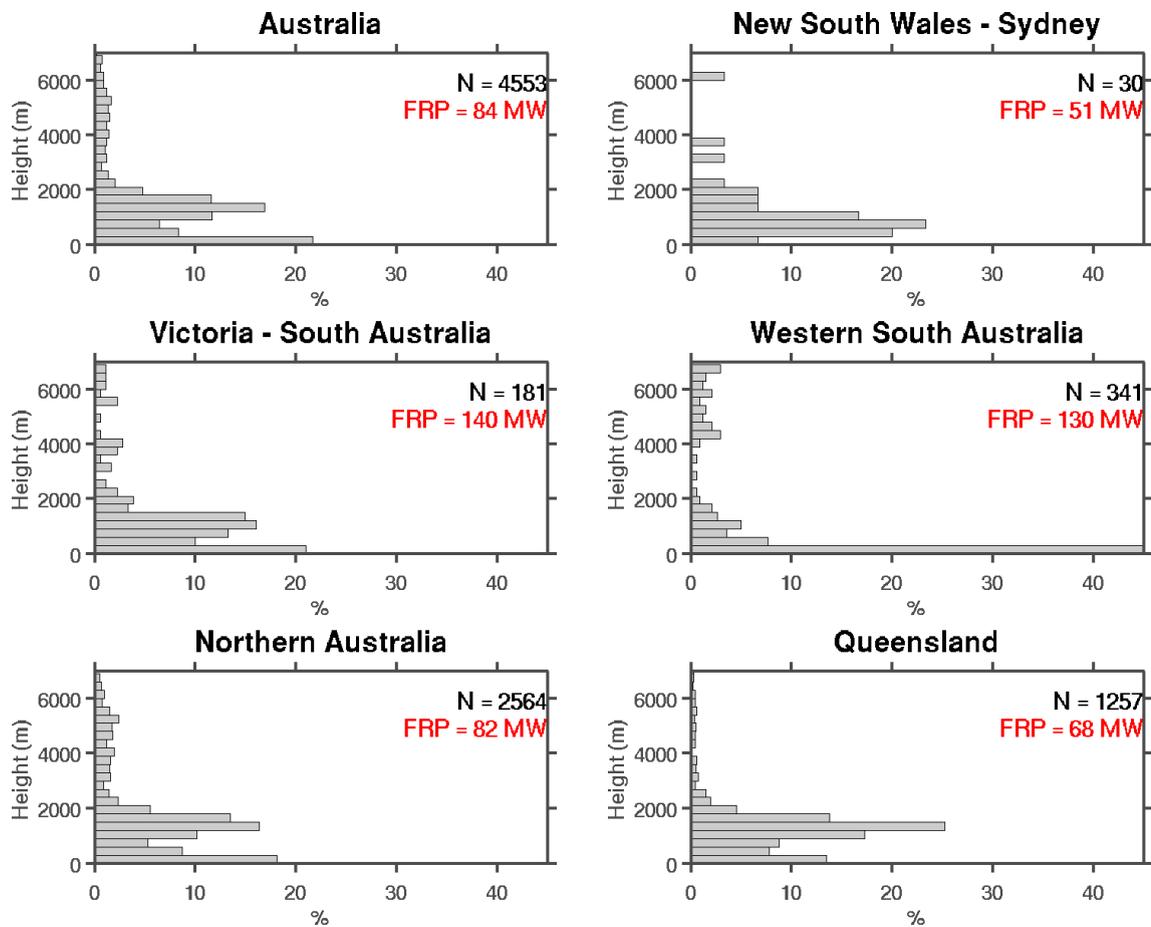


Figure 4.11 – Histogramme des hauteurs de panaches obtenues à partir des observations MISR dans chaque sous-région d’Australie. L’intensité moyenne du feu (FRP) pour ces hauteurs est indiquée en rouge. N est le nombre total de points dans chaque sous-régions.

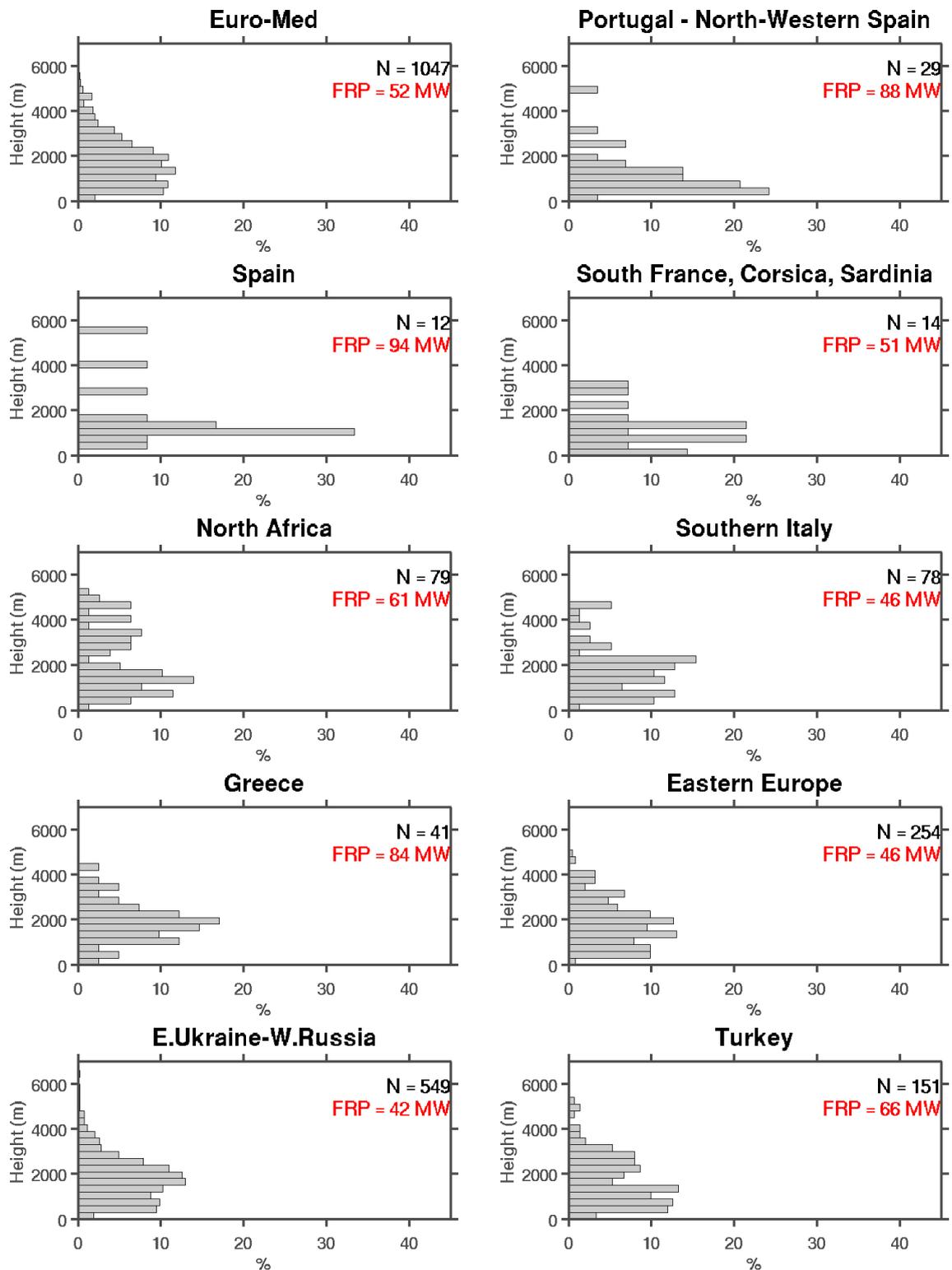


Figure 4.12 – Histogramme des hauteurs de panaches obtenues à partir des observations CALIOP dans chaque sous-région d'Europe. L'intensité moyenne du feu (FRP) pour ces hauteurs est indiquée en rouge. N est le nombre total de points dans chaque sous-régions.

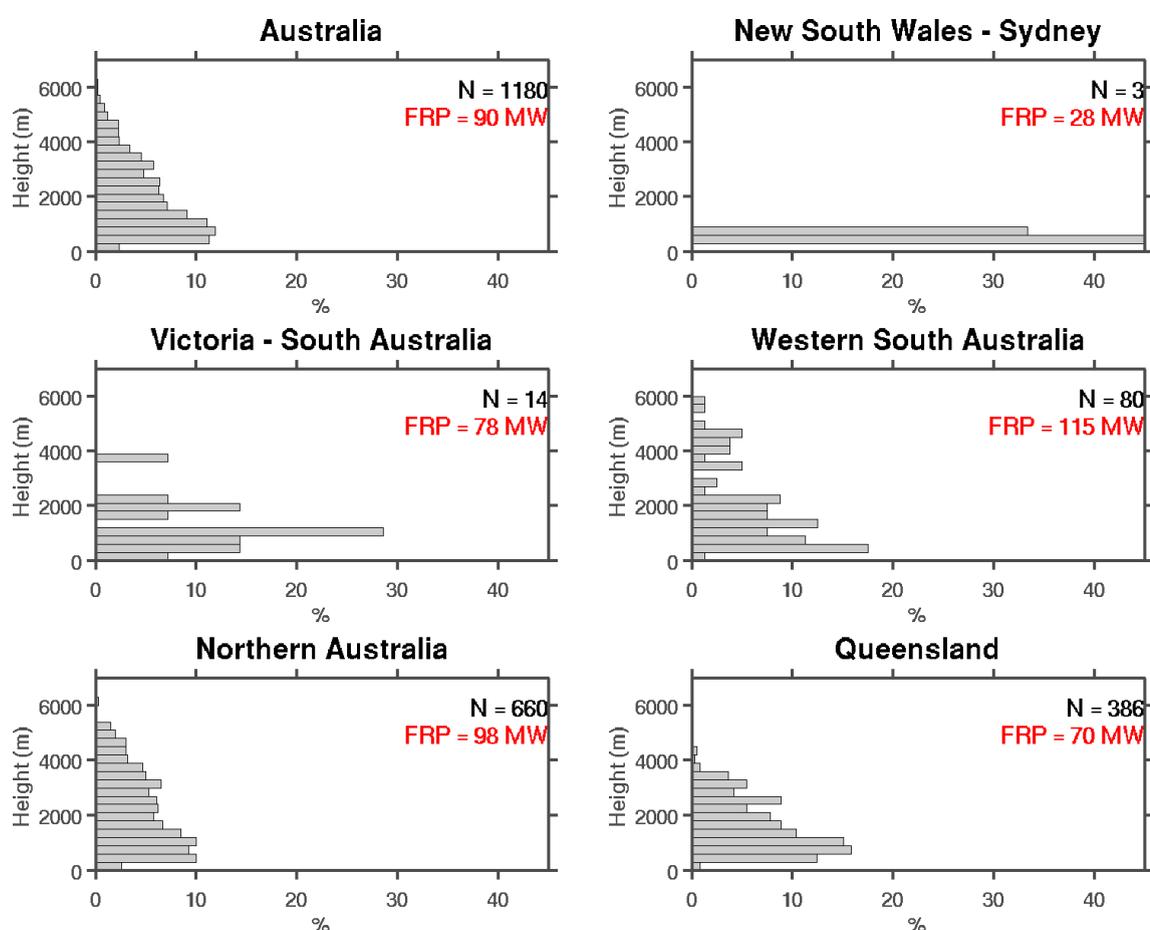


Figure 4.13 – Histogramme des hauteurs de panaches obtenues à partir des observations CALIOP dans chaque sous-région d’Australie. L’intensité moyenne du feu (FRP) pour ces hauteurs est indiquée en rouge. N est le nombre total de points dans chaque sous-régions.

4.4 Discussion et conclusions

Les caractéristiques des feux de végétation en Europe et en Australie ont été analysées dans ce chapitre, afin de répondre au premier objectif de thèse : quelles sont les caractéristiques des feux de végétation dans les deux régions d’étude ? La variabilité des feux et des profils d’injection associés dépend-t-elle de chaque région ?

Les observations du type de végétation et de la surface brûlée ont été extraites de 2006 à 2014. D’après l’instrument MODIS, la végétation brûlée en Europe est principalement constituée de surfaces agricoles (70%). Les feux de forêts peuvent atteindre 13% de la végétation brûlée sur le pourtour Méditerranéen. La proportion de surfaces agricoles est supérieure à la proportion obtenue en utilisant la base de données de végétation CLC, qui elle attribue 48% aux surfaces agricoles, mais 21% aux feux de forêt. Ceci met en évidence l’incertitude sur le landuse. En Australie, les feux de savane et de maquis sont majoritaires (50% et 40%), avec plus de contraste entre les régions. Par exemple, le Sud-Est brûle davantage de forêts (jusqu’à 65%)

et de surface agricoles (jusqu'à 30%).

La variabilité de ces feux est évaluée à l'aide de la surface brûlée détectée par l'instrument MODIS. Cette variabilité est guidée par les saisons de feux propres à chaque région d'étude, correspondant aux étés hémisphériques, bien que la saison des feux australien soit plus étalée.

La variabilité de la hauteur d'injection est également analysée et dépend fortement des sous-régions. Les profils de hauteur moyens montrent la nécessité de prendre en compte une distribution verticale plus adaptée, avec une concentration en surface et vers 2000 m plus importante, ainsi que des valeurs en proportion non négligeable pouvant atteindre de hautes altitudes dans les deux régions (4,6-6,4% au dessus de 4 km en moyenne pour l'Europe, 8,9-11% pour l'Australie). Cependant, le lien avec les paramètres de FRP ou de hauteur de couche limite est difficile à établir. En effet, bien qu'en moyenne les panaches de l'Australie, avec de plus grandes valeurs de FRP, atteignent des hauteurs plus élevées, il n'y a pas de corrélation entre les hauteurs ainsi extraites et les valeurs de FRP. Le résultat est le même en comparant les hauteurs et la hauteur de couche limite. Cela traduit la complexité dans la détermination de ce profil vertical adapté à chaque feu.

Tableau 4.1 – *Tableau récapitulatif des résultats de l'analyse statistique, en comparaison avec la littérature.*

Région	% au dessus de la CLA		Période	Référence
	CALIOP	MISR		
Europe de l'Est/ Russie	48.5%		2006-2008	Amiridis et al. (2010)
	76.4%	48.4%	2006-2014	cette étude
Amérique du Nord		4-12%	2002, 2004-2007	Val Martin et al. (2010)
Australie		26%	déc. 2000, nov. 2002	Mims et al. (2010)
	61%	34%	2006-2014	cette étude
Euro- Méditerranée	70%	46%	2006-2014	cette étude

Ces résultats sont à comparer aux études existantes, résumées dans le [Tableau 4.1](#). L'analyse de [Labonne et al. \(2007\)](#) basée sur les données CALIOP pendant juillet et août 2006 indique que les panaches restent en général dans la couche limite, sauf pour des cas extrêmes en Afrique. Dans une étude similaire en Europe de l'Est, [Amiridis et al. \(2010\)](#) se sont intéressés aux émissions de feux agricoles entre 2006 et 2008. Ils ont trouvé que la moitié des 163 feux analysés se situaient au dessus de la couche limite, avec des hauteurs allant de 1677 m à 5940 m. Le résultat obtenu ici est cohérent pour MISR (48,4% en Europe de l'Est) mais un peu plus élevé pour CALIOP (76,4%).

En Australie, l'étude de [Mims et al. \(2010\)](#) réalisée avec les données MISR sur 6 exemples de feux montre que 26% des panaches dépassent la couche limite. Là encore, les résultats obtenus dans ce chapitre sont nettement supérieurs (43,2%-60,9%), mais concernent un nombre de hauteurs beaucoup plus important.

D'autres statistiques utilisant l'instrument MISR et concernant des régions du globe différentes ont été réalisées. Parmi ces études, on peut citer [Val Martin et al. \(2010\)](#) qui utilise les observations MISR en Amérique du Nord, et qui a montré que 4 à 12% des panaches se situaient au dessus de la couche limite. Pas de règle claire n'a été trouvée concernant ce qui gouverne cette hauteur d'injection, bien que le pourcentage de panaches atteignant la troposphère libre était plus important pour les feux de forêt (plus intenses) que les feux agricoles ou de prairies. Une autre analyse à Sumatra montre qu'au moins 4% des panaches sont injectés au dessus de la couche limite ([Tosca et al., 2011](#)).

Les différentes études citées ainsi que les résultats analysés dans ce chapitre montrent une grande variabilité des hauteurs d'injection et la difficulté à déterminer avec certitude les profils verticaux et leur lien avec les différents paramètres pouvant entrer en jeu. Bien que peu d'études similaires ont été réalisées sur l'Europe et l'Australie en particulier, la proportion des hauteurs injectées au dessus de la couche limite trouvée dans ce chapitre est plus élevée que pour les études existantes. Cependant, la hauteur de couche limite utilisée dans chacune des études peut impliquer elle aussi une incertitude quant à cette proportion, mais est un diagnostic essentiel dans chaque étude pour le transport des panaches.

5 Contributions relatives des sources d'aérosols sur la pollution atmosphérique en région Euro-Méditerranéenne

Sommaire

5.1	Introduction	70
5.2	Article : <i>Source contributions to 2012 summertime aerosols in the Euro-Mediterranean region</i>	70
5.3	Conclusions	96

5.1 Introduction

Les différentes sources d'aérosols présentes dans la région Euro-Méditerranéenne constituent une difficulté dans la modélisation des PM, et donc dans la caractérisation de la pollution dans cette région. Ces sources présentent une variabilité spatiale et temporelle différente. Les émissions anthropiques et biogéniques représentent des sources récurrentes, avec un maximum d'émissions biogéniques en été lorsque la végétation est présente et les températures plus élevées. Les sources sporadiques sont les poussières minérales et les feux de végétation. L'étude présentée dans ce chapitre a pour but de répondre au deuxième objectif de thèse, c'est-à-dire d'obtenir un état des lieux du bilan en aérosols sur la région, et d'estimer la contribution relative de ces différentes sources sur les PM de surface et sur l'épaisseur optique, ainsi que sur les dépassements de seuil de pollution. Cela répond également à l'objectif d'évaluer la modélisation des PM, et de déterminer les sources qui présentent le plus d'incertitude.

Pour répondre à ces questions, une série de simulations sont réalisées pour l'été 2012 (du 1^{er} juin au 31 août). Une première simulation de référence, contenant tous les processus, est comparée aux observations de surface et satellitaires de concentration et d'AOD (MODIS, AIRBASE, AERONET). Une série de simulations pour lesquelles chaque processus d'émission est éliminé est ensuite analysée. Les sources concernées sont les émissions anthropiques (inventaire EDGAR-HTAP), biogéniques (MEGAN), les feux de végétation (inventaire APIFLAME), les poussières désertiques et les sels marins (Chapitre 3).

Nous présentons ici l'article publié dans Atmospheric Chemistry and Physics Discussions (Rea et al., 2015) et qui vient d'être accepté dans Atmospheric Chemistry and Physics.

5.2 Article : *Source contributions to 2012 summertime aerosols in the Euro-Mediterranean region*

Source contributions to 2012 summertime aerosols in the Euro-Mediterranean region

Géraldine REA¹, Solène TURQUETY¹, Laurent MENU¹, Régis BRIANT¹, Sylvain MAILLER¹, and Guillaume SIOUR²

¹Laboratoire de Météorologie Dynamique, UMR CNRS 8539, Université Pierre et Marie Curie - Paris 6, ENPC, Ecole Polytechnique, Palaiseau, France

²Laboratoire Inter-Universitaire des Systèmes Atmosphériques, UMR CNRS 7583, Université Paris Est Créteil et Université Paris Diderot, Institut Pierre Simon Laplace, Créteil, France

Abstract. In the Mediterranean area, aerosols may originate from anthropogenic or natural emissions (biogenic, mineral dust, fire and sea salt) before undergoing complex chemistry. In case of a huge pollution event, it is important to know if european pollution limits are exceeded and, if so, if the pollution is due to anthropogenic or natural sources. In this study, the relative contribution of emissions to surface PM₁₀, surface PM_{2.5} and total aerosol optical depth (AOD) is quantified. For Europe and the Mediterranean regions and during the summer of 2012, the WRF and CHIMERE models are used to perform a sensitivity analysis on a 50 km resolution domain (from -10°W to 40°E and from 30°N to 55°N): one simulation with all sources (reference) and all others with one source removed. The reference simulation is compared to data from the AirBase network and two ChArME_x stations, and from the AERONET network and the MODIS satellite instrument to quantify the ability of the model to reproduce the observations. It is shown that the correlation ranges from 0.19 to 0.57 for surface particulate matter and from 0.35 to 0.75 for AOD. For the summer of 2012, the model shows that the region is mainly influenced by aerosols due to mineral dust and anthropogenic emissions (62% and 19%, respectively, of total surface PM₁₀ and 17% and 52% of total surface PM_{2.5}). The western part of the Mediterranean is strongly influenced by mineral dust emissions (86% for surface PM₁₀ and 44% for PM_{2.5}), while anthropogenic emissions dominate in the northern Mediterranean basin (up to 75% for PM_{2.5}). Fire emissions are more sporadic but may represent 20% of surface PM_{2.5}, on average during the period near local sources. Sea salt mainly contribute for coastal sites (up to 29%) and biogenic emissions mainly in central Europe (up to 20%).

The same analysis was undertaken for the number of daily exceedances of the European Union limit of 50 $\mu\text{g m}^{-3}$

for PM₁₀ (over the stations), and for the number of daily exceedances of the WHO recommendation for PM_{2.5} (25 $\mu\text{g m}^{-3}$), over the western part of Europe and the central north. This number is generally overestimated by the model, particularly in the northern part of the domain, but exceedances are captured at the right time. Optimized contributions are computed with the observations, by subtracting the background bias at each stations and the specific peak biases from the considered sources. These optimized contributions show that if natural sources as mineral dust and fire events are particularly difficult to estimate, they were responsible exclusively for 35.9% and 0.7%, respectively, of the exceedances for PM₁₀ during the summer of 2012. The PM_{2.5} recommendation of 25 $\mu\text{g m}^{-3}$ is exceeded in 21.1% of the case because of anthropogenic sources exclusively and in 0.02% because of fires. The other exceedances are induced by a mixed contribution between mainly mineral dust (49.5%-67% for PM₁₀ exceedances contributions, 4.4%-13.8% for PM_{2.5}), anthropogenic sources (14.9%-24.2% and 46.3%-80.6%), biogenic sources (4.1%-15.7% and 12.6%-30%) and fires (2.2%-7.2% and 1.6%-12.4%).

1 Introduction

Numerous studies have shown the deleterious impact of particulate matter (PM) air pollution on human health. In particular, small particles, PM₁₀ and PM_{2.5} (particulate matter with an aerodynamic diameter lower than 10 and 2.5 μm , respectively), enhance cardiopulmonary mortality and morbidity (Katsouyanni et al., 1997; Boldo et al., 2006; Pope III and Dockery, 2006) due to their deeper penetration into the respiratory system.

Beyond these concerns, aerosol quantification is needed to evaluate its contribution to climate change. PM have a direct impact due to the absorption and scattering of solar radiation, the so-called "aerosol direct effect", as well as an

Correspondence to: Géraldine REA
(geraldine.rea@lmd.polytechnique.fr)

indirect impact due to their role as cloud condensation nuclei (Yu et al., 2006; Carslaw et al., 2010; Stocker et al., 2013). Absorbing aerosols have also a "semi-direct effect" on cloud evaporation and cloud cover (Hansen et al., 1997).

Monitoring particulate matter ambient concentrations is thus an important issue for regional air quality and climate, and has become a key concern for pollution regulations in the past decade. Therefore, a correct understanding and quantification of aerosol formation and evolution is required.

The Mediterranean region is heavily influenced by numerous anthropogenic and natural aerosol sources and is often exposed to air pollution (Monks et al., 2009). Those sources, combined with complex interactions between atmospheric dynamics, geographical features and land-sea temperature gradients (Lionello et al., 2006), lead to an European aerosol load maximum (Textor et al., 2006; Putaud et al., 2010). Meteorological conditions hold a key role in the development of aerosol-related pollution events (Millán et al., 2002). Being in a transitional zone between the subtropical high-pressure belt and the mid-latitude westerlies and low pressure systems, the Mediterranean region is characterized by hot, dry summers and mild, wet winters. These meteorological patterns govern the transport of aerosols released from various sources around the Mediterranean region and lead to a maximum aerosol load during the summer (Monks et al., 2009; Nabat et al., 2013). Moreover, a mixture of different sources is usually observed due to the long-range transport of the associated particles (Dall'Osto et al., 2010; Gerasopoulos et al., 2011; Boselli et al., 2012). Due to these complex characteristics, the specific impact of each aerosol source cannot be easily assessed.

The region is impacted by local emissions from anthropogenic activities and by biogenic emissions of precursors of aerosol formation. Most of $PM_{2.5}$ exceedances are due to primary pollution but these are enhanced by the production of secondary aerosols (Koçak et al., 2007). For instance, Sartelet et al. (2012) found that Secondary Organic Aerosol (SOA) formation over Europe is strongly impacted by biogenic emissions (72-88%) in addition to anthropogenic emissions of precursors. Another study by Im and Kanakidou (2012) showed that regional anthropogenic emissions contributes to 47% of $PM_{2.5}$ in the eastern Basin (Greece, Turkey) in summer, with 4% from Istanbul.

Moreover, the long-range transport of mineral dust from North Africa significantly affects PM concentration throughout the region. Several studies of available observations show that the PM_{10} European Union air quality standard ($50 \mu g m^{-3}$, daily average) is exceeded at many locations around the basin because of a combination of mineral dust and anthropogenic pollutants from local sources (Gerasopoulos et al., 2006; Gobbi et al., 2007; Koçak et al., 2007; Rodriguez et al., 2007; Kaskaoutis et al., 2008). Mineral dust outbreaks, although transported through the Mediterranean sea during all seasons, are more frequent in spring and summer, where dust plumes are transported through the Atlantic

and reach mainly and regularly the western part of the region (Moulin et al., 1998; Israelevich et al., 2012; Salvador et al., 2014; Ripoll et al., 2015). In summer, mineral dust aerosols are also observed over central Europe (Israelevich et al., 2012; Salvador et al., 2014).

Another important source of PM in the Mediterranean basin is sea salt, which can account for instance in Erdemli (eastern Mediterranean coast) for up to 50% of PM_{10} concentration thresholds exceedances (Koçak et al., 2007).

Vegetation fires (recurrent in eastern and southern Europe during spring and summer) are also a significant additional source of PM (Turquety et al., 2014), with consequences on air quality throughout the basin (Pace et al., 2005; Hodzic et al., 2007; Barnaba et al., 2011).

The natural emissions from fires and mineral dust are particularly difficult to quantify accurately due to their intense and sporadic nature resulting in large spatial and temporal variability. Several projects have been undertaken over the past years to improve the understanding and the quantification of particulate pollution over the Mediterranean region. Among those, the ChArMEx international program (Chemistry-Aerosol Mediterranean Experiment, <http://charmex.lscce.ipsl.fr>), allowed the settlement of several additional observation sites as well as intensive measurement campaigns during the summers of 2012, 2013 and 2014. In 2012, the ChArMEx/TRAQUA (TRANsport and Air QuALity) experiment allowed the characterization of a very intense dust transport event measured at the end of June over the western Mediterranean (Nabat et al., 2015). In addition, several large fires were reported during the summer of 2012, more particularly in the Balkans (Anttila et al., 2015) and in Spain in July (Gómez-Amo et al., 2013).

The majority of the studies previously cited have been made at specific experimental sites and sometimes for specific case studies or sources. The purpose of our analysis is to estimate the relative contributions of this diversity of sources, and thus to draw a regional context of aerosol pollution during the summer of 2012 in the framework of the ChArMEx program.

Aerosol optical properties are important to characterize aerosols for air pollution monitoring. They are needed to estimate the radiative effects, which have themselves an impact on photochemistry by modifying the photolysis rates (Mailler et al., 2015). Moreover, optical properties are directly related to aerosol particle concentration, type and size. The observations of aerosol optical properties from remote sensing instruments thus provide an important complement to the surface PM databases. In particular, extensive measurements of the Aerosol Optical Depth (AOD), characterizing the light extinction associated with the aerosols along the full vertical column, are provided by the surface AEROSOL ROBOTIC NETWORK (AERONET; <http://aeronet.gsfc.nasa.gov>) and by several satellite-based instruments, allowing a very good spatial and temporal coverage.

In addition to the analysis of surface and remote sensing observations, chemistry-transport models (CTMs) are required for the simulation of atmospheric composition and the understanding of physico-chemical processes. Model validation or inter-comparisons have shown that, although the modelling of ozone or other gases has been improved in the past years, the modelling of PM is still a concern, with a persistent underestimation of PM_{10} for the majority of the CTMs (Roustan et al., 2010; Solazzo et al., 2012; Im et al., 2014). Moreover, $PM_{2.5}$ is also overestimated when PM_{10} is improved, although the biases on $PM_{2.5}$ are lower than those on PM_{10} . Even though emissions probably constitute a significant source of uncertainty, the uncertainty in modelled PM concentrations linked to the parameterization choices (vertical diffusion, number of levels, deposition, etc.) and to the meteorological fields can be for instance higher than the uncertainty linked to PM anthropogenic and biogenic emissions (Sartelet et al., 2012). The uncertainty on PM concentrations leads to uncertainties on the simulated aerosol optical properties and AOD (P  r   et al., 2010; Curci et al., 2014), in addition to uncertainties in the calculation of optical properties (refractive indices, assumptions on aerosol mixing, density).

This paper provides an analysis of the main contributions of aerosol sources to both surface PM and Aerosol Optical Depth (AOD) in the Mediterranean region using the state-of-the-art regional CTM CHIMERE (Menut et al., 2013). This paper aims at estimating the contribution of each source in Europe and the Mediterranean Basin, to provide a description of the zones of influence of given sources on regional air pollution.

After an evaluation of the model's performance through comparisons to observations from surface networks and remote sensing, a sensitivity analysis is conducted on the case study of the summer of 2012 (June-July-August). This time period allows an analysis including all sources (fires and dust outbreaks notably occurred during this period). Estimations of the relative contributions of the main aerosol sources to the aerosol load in the Mediterranean area is provided. Section 2 describes particulate pollution during the summer of 2012 based on the available observations of surface PM and AOD. Section 3 presents the tools and methodology used in this paper. The model is evaluated against observations in section 4, and sensitivity simulations are discussed in section 5 and 6, where an estimation of contributions to surface PM and AOD and to air quality threshold exceedances is also assessed.

2 Presentation and analysis of observations

Aerosol quantification from 1st June to 31 August over the region is analyzed in this section using observations of both surface PM concentrations and AOD, which provide an overview of the main polluted regions and the temporal variability of aerosol concentrations.

The domain was divided into six sub-regions, which present different characteristics in terms of sources, population density as well as meteorological patterns, which are reflected in the observations. The acronym MED and NEU represent, respectively, all the Mediterranean Basin and the northern European part of the domain. MED and NEU regions are divided into western, central and eastern zones (MED-We, MED-Ce, MED-Ea and NEU-We, NEU-Ce, NEU-Ea). The delimitation of the regions are indicated in Table 1 and Figure 1.

2.1 Surface PM

Surface PM concentrations from the model are evaluated through comparisons to $PM_{2.5}$ and PM_{10} observations from the European Air quality database (AirBase) of the European Environment Agency (<http://acm.eionet.europa.eu/databases/airbase>). This database provides air quality monitoring data and information from 38 countries around Europe, and includes more than 6000 stations providing hourly and daily measurements. The diversity of instruments and sampling, associated with certain meteorological conditions (relative humidity) contribute to the uncertainty of the database. The standard error of the AirBase network PM measurements is better than 25%. Only rural and background stations are included in the present paper. Indeed, urban sites being strongly influenced by local sources, they are not relevant for this analysis of the regional trends and budget of pollution. This reduces the number of stations to 927 for PM_{10} and 316 for $PM_{2.5}$. Two additional rural stations located in Corsica in the framework of the ChArMEX project are also taken in consideration (Venaco and Ersu).

The average concentration from 1 June to 31 August 2012 at the PM_{10} stations is shown in Figure 2, with the number of days with data shown on Figure 1. Almost all stations present data every day of the studied time period. Most of the stations are concentrated in the central north of the domain, so that the analysis over the Mediterranean Sea itself and around most of its coasts is not possible.

The observations show that some regions are recurrently affected by pollution. These correspond to most of the Mediterranean coastline (stations in Spain, South of France), with monthly averaged concentrations of PM_{10} up to $40 \mu\text{g m}^{-3}$ and maxima around $200 \mu\text{g m}^{-3}$. The Po Valley and the Benelux are also affected by high levels (up to $200 \mu\text{g m}^{-3}$) as well as eastern Europe.

For example, high values of PM are detected in Farollilo near Salamanca, Spain (Figure 3) at the end (27-28) of June (with a concentration up to $120 \mu\text{g m}^{-3}$), and end of July and above $80 \mu\text{g m}^{-3}$ during August (around the 10 and 18-19). The level of PM in this area remains high (around $40 \mu\text{g m}^{-3}$ for daily mean) during the whole time period. Observations in the South of France show lower temporal variability with concentrations from 10 to around $50 \mu\text{g m}^{-3}$. Some spo-

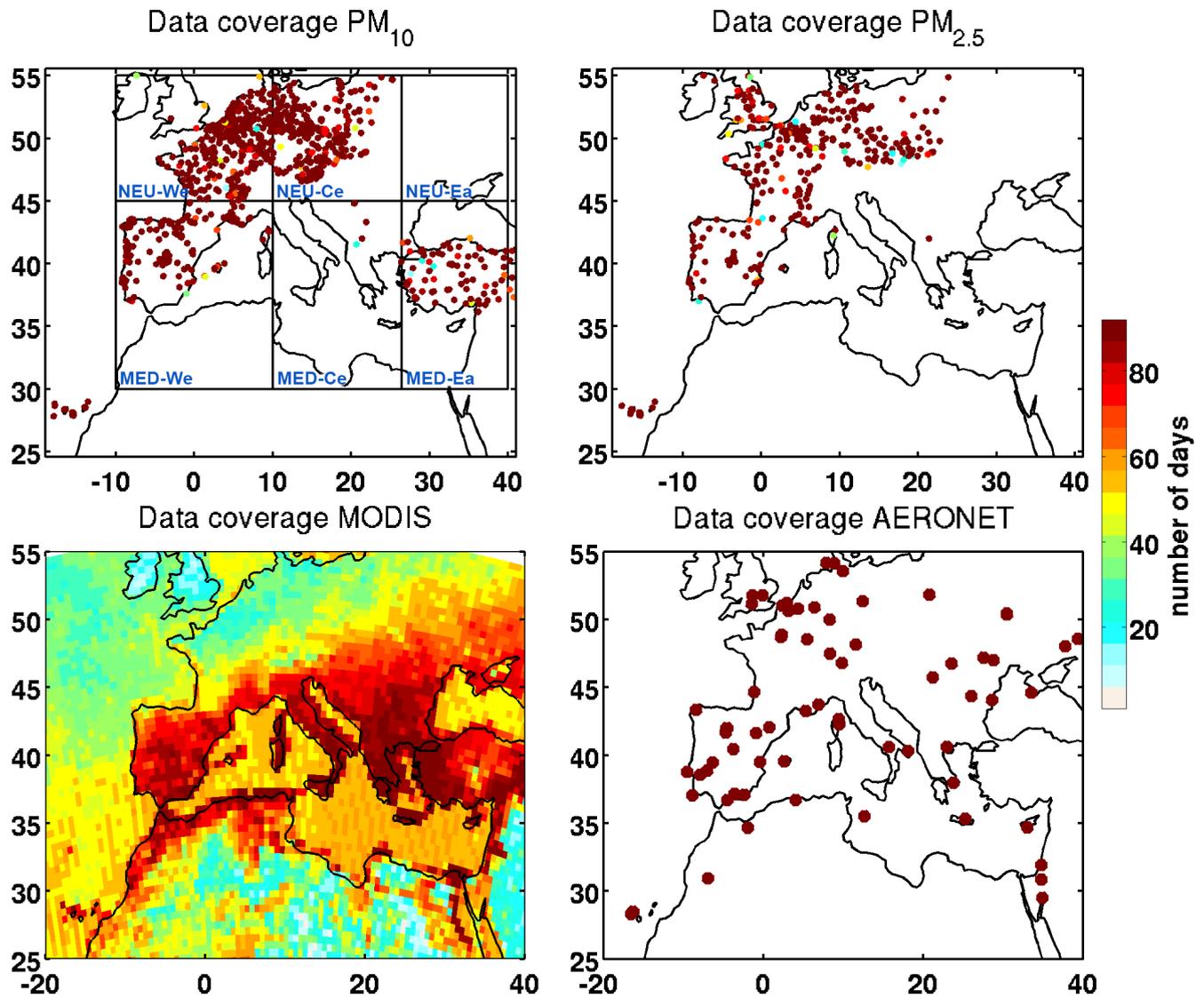


Fig. 1. Data coverage during the summer of 2012 (1st June to 31 August, 92 days) for each observation dataset, i.e. number of days with measurements from AirBase stations with PM_{10} and $PM_{2.5}$ values, AERONET stations and MODIS data with values for the AOD at 500 and 550nm, respectively.

radic hourly values (not shown) reach more than $100 \mu\text{g m}^{-3}$ around the 20-21 June, at the end of July and the end of August. For example, at the station located in Miramas in South of France, hourly values reach more than $250 \mu\text{g m}^{-3}$ (daily mean value of $80 \mu\text{g m}^{-3}$) around the 20 June, during the end of July, and during the beginning of August.

Eastern Europe is also affected by high concentrations, as shown for example by the Lomza station in Poland, with peak values around the 30 June (up to $90 \mu\text{g m}^{-3}$), at the end of July (above $300 \mu\text{g m}^{-3}$ for Mragowo, Poland) and during the second half of August (up to $100 \mu\text{g m}^{-3}$).

2.2 Aerosol optical depth (AOD)

In addition to surface PM, remote sensing observations of AOD, which provides information on the column integrated aerosol load, are analysed. Both surface remote sensing from AERONET and satellite observations from the Moderate Resolution Imaging Spectroradiometer (MODIS) are used.

AERONET is an optical ground-based aerosol-monitoring network, composed of spectral radiometers. It allows measurements of AOD every 15 min at 8 wavelengths (centred between 340 and 1020 nm). With more than one hundred stations in the world, the network is widely used for the vali-

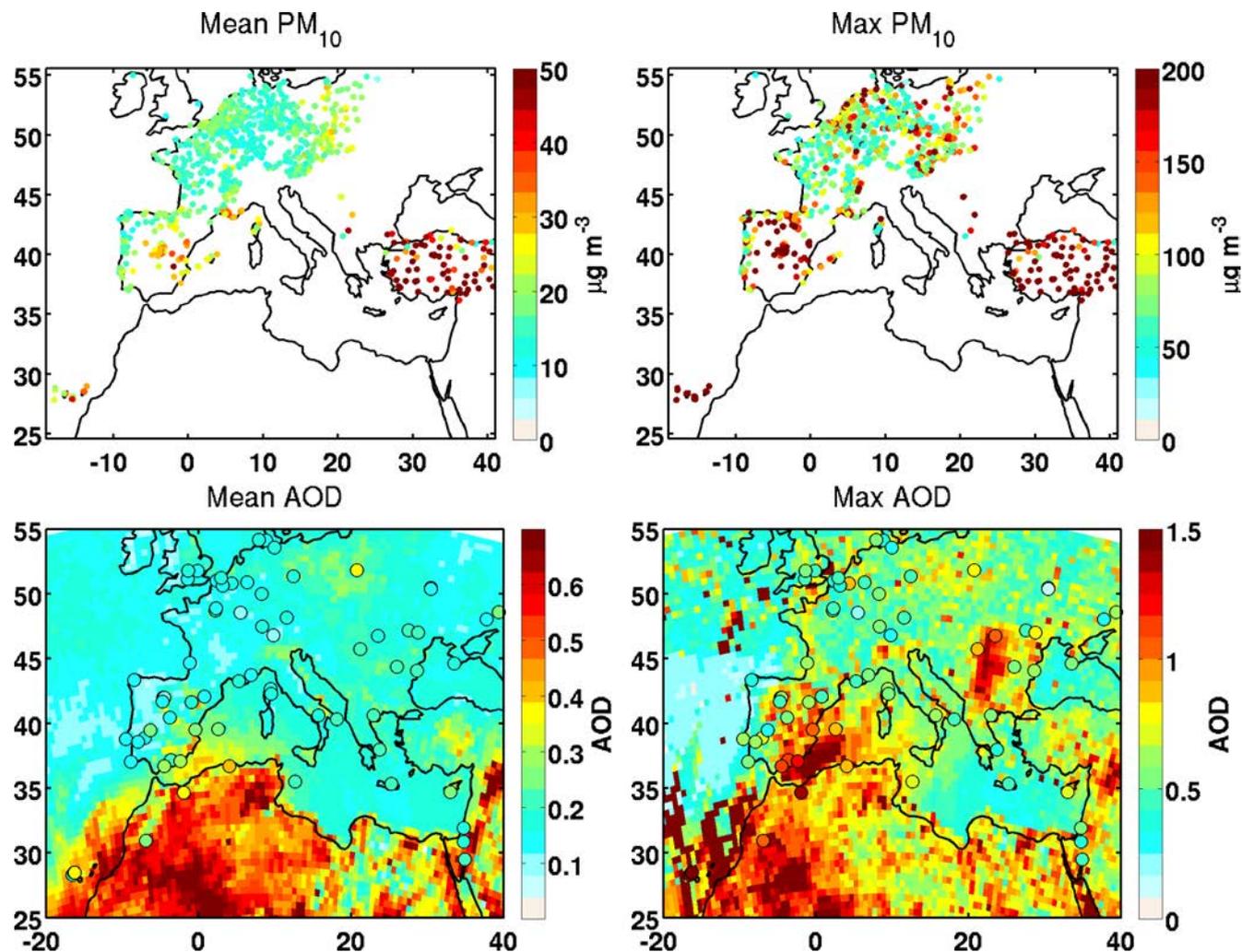


Fig. 2. Summer 2012 (1st June to 31 August) daily average for surface PM_{10} concentrations from the AirBase network and Ersar and Venaco stations (upper left) and Aerosol Optical Depth at 550 and 500 nm, respectively, from MODIS instrument and AERONET stations (bottom left). Daily maximum over the period is shown on upper right panel for surface PM_{10} concentrations and bottom right panel for Aerosol Optical Depth.

dation of model simulations and satellites observations. The main product examined here is the level 2.0, cloud-screened and quality assured, total AOD at 550 nm retrieved from the ground based AERONET sun photometers.

255 The estimated precision of the direct AOD measure-270
ments is ~ 0.01 (at 440 nm) for a recently calibrated instrument (Holben et al., 1998), and the uncertainties are well-documented (Dubovik et al., 2000). During the period of the simulation, data from 53 stations of the network are available within the domain, with values each day of the summer 275
of 2012 (Figure 1).

260 Surface site measurements do not allow a full regional
evaluation, particularly around the Mediterranean Basin,
which is poorly covered. Satellite observations therefore offer
265 a good complement. MODIS is carried on board the Terra 280

and Aqua satellites (NASA) and enables a daily near-global coverage of the Earth with its large swath of almost 2330 km. The satellites cross the equator at about 10:30 and 13:30 (ascending node), respectively. The measurements over 36 spectral bands (from 0.41 to 15 μm) allow the retrieval of many aerosols properties. For this study, the aerosol products MOD04 (for Terra) and MYD04 (for Aqua) from L2 5.2 collection data are used (Remer et al., 2006). It includes daily AOD at 550 nm, as well as the Deep-Blue AOD (Sayer et al., 2013) that provides AOD over bright land areas (especially useful here for North Africa). They are available at 10 km \times 10 km resolution. The expected error for the AOD is $\pm 0.05 \pm 0.15 \text{ AOD}$ over land and $\pm 0.03 \pm 0.05 \text{ AOD}$ over ocean, with a good agreement with ground based measurements (Remer et al., 2005).

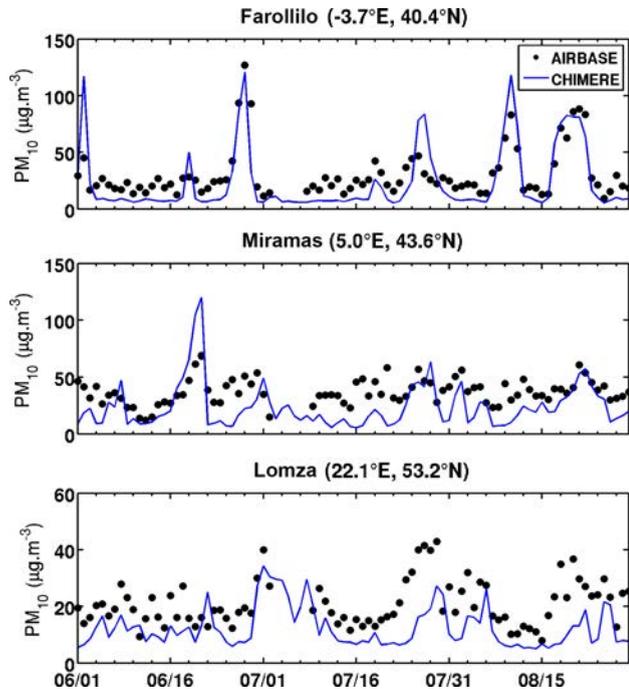


Fig. 3. Time series from 1st June to 31 August of daily mean surface PM_{10} concentrations from 3 stations of the AirBase network. Top station is located near Salamanca in Spain, middle is in Miramas in South of France, and bottom is in Lomza in Poland. The corresponding simulated CHIMERE concentrations (spatially co-localized) are also indicated (blue line).

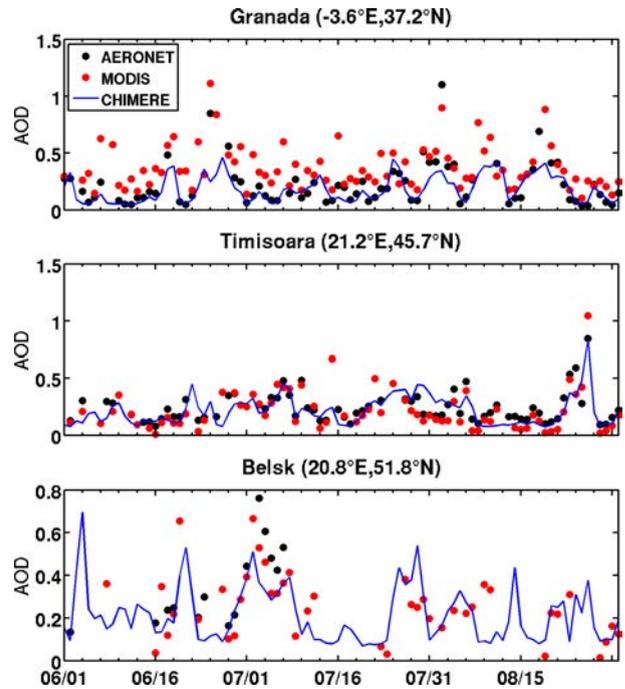


Fig. 4. Time series from 1st June to 31 August of the daily AOD at 500 nm from three AERONET stations. Top station is Granada in Spain, middle is Timisoara in Romania, and bottom is Belsk in Poland. Values from MODIS at 550 nm are also indicated in red dots at these stations, as well as the simulated spatially co-localized 550 nm AOD from CHIMERE (blue line).

The data coverage over the studied time period is shown ³⁰⁵ on Figure 1. The Mediterranean Basin presents AOD values almost every day. For eastern Europe and the Balkans, fewer AERONET or AirBase stations are available. The North of Europe is under-represented during the period, due to recur- ²⁸⁵ rent clouds in the area. ³¹⁰

The AOD at 550 nm from the AERONET and MODIS datasets have been compared over the studied region and time period. Both datasets are coherent in variability and levels (not shown): correlation coefficients range from 0.71 ²⁹⁰ in MED-Ea to 0.96 in NEU-We and there is a slight overestimation of MODIS compared to AERONET measurements ³¹⁵ (mean fractional bias of 7% on average).

Spatial patterns of AOD over the region are similar to the ²⁹⁵ ones observed in terms of surface PM concentrations (Figure 2, bottom right panel), with high values at the south of the domain ³²⁰ (up to 2 for North Africa and all around the Mediterranean Sea on a seasonal average), the Po Valley and northern Europe (up to 1.2). MODIS allows a better coverage than ³⁰⁰ surface measurements in some regions, like North Africa, the Mediterranean Sea, the Atlantic Ocean, the Balkans and the eastern part of the domain ³²⁵ (eastern Europe, Middle East, etc.) For example, large values of AOD, from 1 to 2, are observed with MODIS in the Balkans.

Time series for three AERONET stations are shown in Figure 4. Clear enhancements are detected above Granada at the end of June (19 and 25–26 June), and in August (2nd of August, 8–9 and 18). The Timisoara station shows values around 1 on the 24 of August for both MODIS and AERONET. Finally, observations at Belsk in Poland show lower values but a notable peak around 1 July.

A comparison of these AOD observations for 2012 against the climatology from Nabat et al. (2013), which includes the AOD from 2003 to 2009 using both model and satellite-derived AOD products, indicates that this summer was in the average regarding the aerosol load. Exceptions appears in June when the AOD was higher than the climatology in North Africa and over the Atlantic Ocean near North African coasts (due to a strong dust event Nabat et al., 2015), and in August with high values over the Balkans and over the Mediterranean close to the Spanish coastline. There are also higher punctual values in Spain in July. This comparison shows that the period was affected by air pollution from different sporadic events.

From this analysis, several regions and time periods with enhanced aerosol concentrations are identified during the summer of 2012. North Africa and the western Mediterranean Basin were regularly affected by the highest aerosol

loads, with extreme peaks around 26 June and three times
in August (daily mean of around $130 \mu\text{g m}^{-3}$ for PM_{10} and
AOD around 1). Eastern Europe appears to show other influ-
ences with high concentrations of surface PM at the end of
June, the end of July and the end of August (daily mean of $40 \mu\text{g m}^{-3}$ for PM_{10} , AOD up to 0.8). In the Balkans, MODIS
also observed relatively high AOD (around 1) at the end of
August.

3 Modelling tools

The sensitivity of aerosol concentrations in the region to
each source is evaluated using the CHIMERE regional CTM,
driven by meteorological simulations performed using the
mesoscale non-hydrostatic Weather Research and Forecast-
ing (WRF) model.

The analysis is focused on the summer of 2012 (1 June
to 31 August 2012), with a 10-d spin-up. The simulation
domain is chosen to include all contributing sources around
the basin (including North Africa until Sahel, a part of the
Atlantic Ocean, eastern and northern Europe). A Lambert
conformal projection is used with a constant horizontal res-
olution of $50 \text{ km} \times 50 \text{ km}$. The domain is represented on
Figure 5.

This section introduces the models used, their configura-
tion for this analysis, the emissions databases as well as the
numerical approach used.

3.1 The WRF meteorological model

The meteorological fields are simulated using the WRF
model version 3.5.1 (Skamarock et al., 2008), on a 50 km
horizontal grid (same horizontal domain described above).
The simulation has been performed with boundary condi-
tions and nudging from the meteorological analysis data of
NCEP (Kalnay et al., 1996), provided on a regular $1.125^\circ \times$
 1.125° grid.

The model is used in its non-hydrostatic configuration.
The vertical grid covers 30 levels from the surface to 50 hPa.
The WRF Single-Moment 6-class (Hong and Lim, 2006) is
used for microphysics, and RRTMG (Iacono et al., 2008) and
the Dudhia schemes (Dudhia, 1989) are used for long and
short wave radiation, respectively. The surface layer scheme
is based on the Monin-Obukhov scheme (Janjic, 1996). Sur-
face planetary boundary layer physics use the Noah Land
Surface Model (Chen and Dudhia, 2001) and Yonsei Uni-
versity scheme (Hong et al., 2006), and the cumulus parame-
terization is based on the Kain-Fritsch scheme (Kain, 1993).

The WRF simulation outputs are then linearly interpolated
on the vertical resolution of CHIMERE and used to diagnose
additional parameters (e.g. boundary layer height, friction
velocity). Both meteorology and chemical concentration out-
put fields are provided at 1 hour time intervals.

3.2 The CHIMERE chemistry-transport model

CHIMERE is an off-line regional CTM forced by emis-
sions (see section 3.3), meteorological fields (see section 3.1)
and boundary conditions. The model version chimere2014
(Menut et al., 2013) is used here on the 50 km horizontal
resolution grid described above. The vertical discretization
consists in 18 uneven levels in hybrid sigma-pressure coordi-
nates, from the surface up to 200 hPa and with 8 levels under
800 hPa.

The reduced chemical mechanism called MELCHIOR2 is
used here and includes 44 species involved in almost 120
reactions. The list of species and reactions is provided in
Menut et al. (2013). The aerosol module developed by
Bessagnet et al. (2004) allows the simulation of primary par-
ticulate matter and secondary species: nitrates, sulphates,
ammonium, primary organic matter (POM), secondary or-
ganic aerosol (SOA), elemental carbon (EC), marine aerosols
and mineral dust. Their life cycle is represented with a com-
plete scheme of nucleation, absorption, adsorption, desorp-
tion, coagulation, as well as wet and dry deposition and scav-
enging. The size distribution is simulated using a sectional
representation, i.e using five diameter bins: 40-150 nm, 150-
630 nm, 630-2500 nm, 2.5-10 μm , 10-40 μm .

Initial and boundary conditions are provided by 5 years
monthly-averaged simulations by the global model LMDZ-
INCA for aerosols and trace gases (Folberth et al., 2006), and
GOCART for mineral dust (Ginoux et al., 2001).

The photolysis rates are calculated online using the Fast-
JX module, version 7.0b (Wild et al., 2000; Bian et al.,
2002) as described in Menut et al. (2013). The module com-
putes the actinic fluxes by resolving the radiative transfer in
the modelled atmospheric column. The treatment of opti-
cal properties is made by taking into account absorption by
tropospheric and stratospheric ozone, Rayleigh scattering,
absorption by aerosols, and Mie diffusion by aerosols and
by liquid- and ice-water clouds. The total AOD is also ob-
tained from these calculations, with an internal mixing state
assumption for aerosols, at five different wavelengths: 200,
300, 400, 600 and 1000 nm (Mailler et al., 2015). As the cal-
culation of the photolysis rates is performed at each physical
time step taking into account the actualized concentrations of
ozone and aerosols, this methodology allows radiative feed-
back of aerosol and ozone concentrations on photolysis rates.
In this study, the simulated AOD from CHIMERE at 500 and
550 nm are used and extracted using the Angström coeffi-
cient from the output wavelengths.

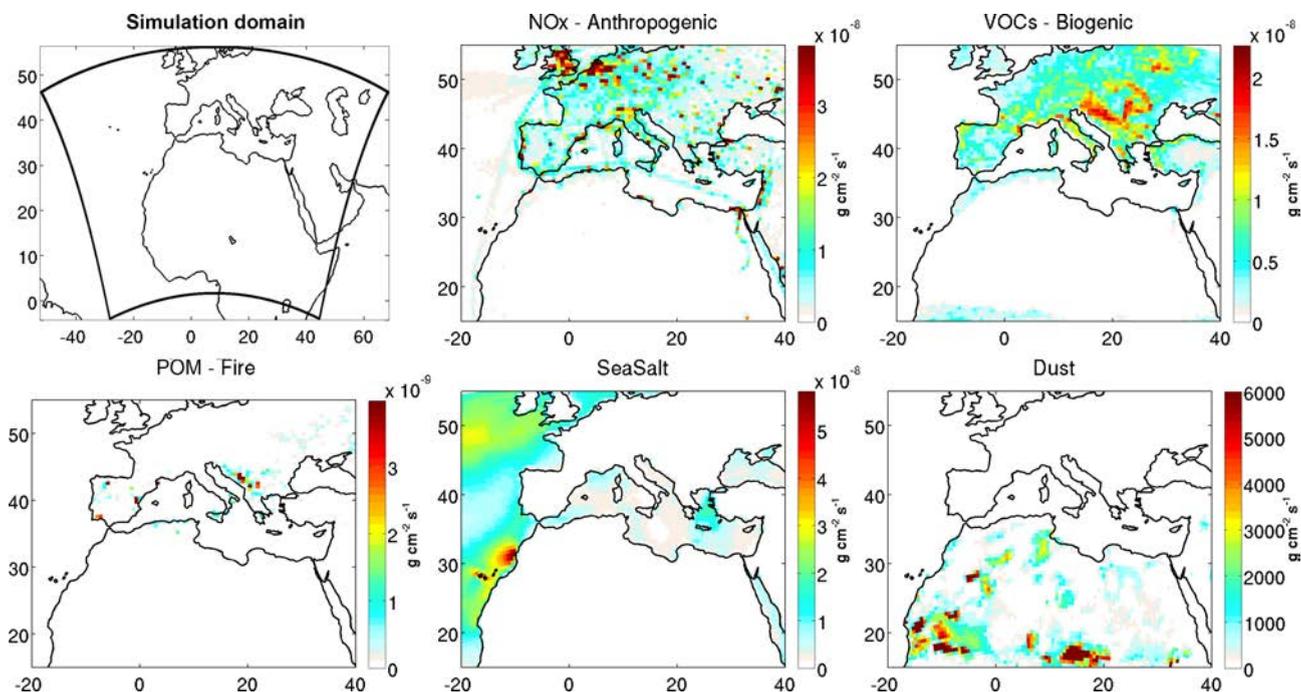
3.3 Emissions

This section briefly describes the databases used for both
primary particulate matter emissions and the emission of
gaseous precursors.

Anthropogenic emissions are the only emissions that can
be controlled; their inventories are updated constantly to

Table 1. Coordinates of the simulation domain and sub-domains used for further analysis.

Domain	Acronym	Longitude ($^{\circ}$ E)		Latitude ($^{\circ}$ N)	
		minimum	maximum	minimum	maximum
Full domain		-52.6	68.6	-4.3	56.4
Northern Europe - West	NEU-We	-10.0	10.0	45.0	55.0
Northern Europe - Centre	NEU-Ce	10.0	26.0	45.0	55.0
Northern Europe - East	NEU-Ea	26.0	40.0	45.0	55.0
Mediterranean Basin - West	MED-We	-10.0	10.0	30.0	45.0
Mediterranean Basin - Centre	MED-Ce	10.0	26.0	30.0	45.0
Mediterranean Basin - East	MED-Ea	26.0	40.0	30.0	45.0

**Fig. 5.** Total fluxes of different aerosol precursors or primary aerosol from each source averaged during the summer of 2012: anthropogenic emissions of nitrogen oxides (NO_x), biogenic emissions of volatile organic compounds (VOCs), fire emissions of primary organic matter (POM), mineral dust and sea salt emissions.

430 take into account precise emissions in scenario studies. In
 this paper, the EDGAR-HTAP_V2 inventory for the refer- 445
 ence year 2010 is used. It uses HTAP (Hemispheric Trans-
 port of Air Pollution) annual total masses which includes
 nationally reported emissions combined with regional sci-
 435 entific inventories, complemented with EDGARv4.3 data
 (http://edgar.jrc.ec.europa.eu/htap_v2). The inventory pro-
 450 vides global annual emissions for CH₄, NMVOC, CO, SO₂,
 NO_x, NH₃, PM₁₀, PM_{2.5}, BC and OC, with a resolution
 of $0.1^{\circ} \times 0.1^{\circ}$. The annual emitted masses are disaggre-
 440 gated into model species and mapped onto the specified
 grid. Hourly emissions are estimated by applying seasonal,
 daily and weekly factors depending on the SNAP (Selected
 455 Nomenclature for Air Pollution) sectors (Menut et al., 2012).

Anthropogenic emissions represent 90 to 100% (among all
 other sources) of the regional emissions of NO_x, NH₃ and
 SO₂, which are important precursors of inorganic aerosol
 formation. For example, the total fluxes of NO_x in the re-
 gion for the summer of 2012 are shown in Figure 5. An-
 435 thropogenic emissions (excluding forest fires) also amount
 to 53% of primary organic matter emissions, 81% of black
 carbon emissions, and 74% of other primary particulate mat-
 440 ter emissions.

Biogenic emissions fluxes are calculated using the global
 Model of Emissions of Gases and Aerosols from Nature
 (MEGAN; Guenther et al., 2006) and affect six CHIMERE
 species (isoprene, α -pinene, β -pinene, limonene, ocimene
 and NO). MEGAN is based on canopy-scale emission factors

depending on the species. In their analysis of isoprene emissions over Europe, Curci et al. (2010) compared CHIMERE simulation to satellite observations and found that MEGAN isoprene emissions might be 40% higher over the Balkans, 20% too high over southern Germany, and 20% too low over Iberian Peninsula, Greece and Italy. In Figure 5, showing the calculated total biogenic fluxes of VOCs in Europe and the Mediterranean Basin during the summer of 2012, we can see that the majority of the emissions fluxes are located in the Balkans and eastern Europe, and in general in the northern European part of the domain.

Mineral dust emissions use fluxes calculation with the Marticorena and Bergametti (1995) parametrisation for saltation and the optimized dust production model (Alfaro and Gomes, 2001; Menut et al., 2005) for sandblasting. The dust production model uses the model presented in Menut et al. (2013), which has been extended to be applicable to any region and not just North Africa (Briant et al., 2014). It uses new global soil and surface input datasets along with the global ASCAT/PARASOL aeolian roughness length dataset (Prigent et al., 2012). Parameterizations for humidity (Fecan et al., 1999) and seasonal vegetation variation were included. Since long-range transport from North Africa affects strongly the Mediterranean basin and Europe, the simulation domain was chosen in order to include western Africa and the Sahel, known to be active mineral dust sources (Israelevich et al., 2002; Prospero et al., 2002). On Figure 5, representing the mineral dust emissions computed for the study, the majority of them are located in this region. Transport from the Sahel band where the most active sources are found is mainly towards the Atlantic. Mineral dust particles are chemically inert in CHIMERE, but their size distribution is affected by wet and dry deposition. Dust emissions and deposition are strongly affected by meteorological fields, leading to large uncertainties (Menut et al., 2007, 2009).

Fire emissions are calculated using the APIFLAME v1.0 emissions model, described in Turquety et al. (2014), with a classical approach of multiplying the burned area by the fuel load consumed and the emission factors specific to the vegetation burned. Fire emissions are injected homogeneously onto the boundary layer for this study. This parametrization can lead to uncertainties on the results as it impacts the transport of polluted plumes. The uncertainties concerning fire emissions are high, due to the accumulation of uncertainties on the emission factors, the area burned, the type of vegetation, etc. The uncertainty on the daily carbon emission is estimated at 100% (Turquety et al., 2014), and using different inventories can lead to differences from -70% to 450% for outputs concentrations of CO (Daskalakis et al., 2014). The injection height can also be a source of uncertainty, as it can impact the transport pathway of a fire plume. Fires are the dominant source of primary organic matter, black carbon and other primary particulate matter in the MED-We (76, 34, and 58.6%, respectively) and MED-Ce (89.2, 46.4, and 69.9%, respectively) regions during the summer of 2012, where they

occurred mainly in the Balkans and in the Iberian Peninsula (Figure 5). A smaller fraction of gaseous precursors is also emitted by fires (between 9 and 15% for NO_x and NH₃ in MED-Ce). The distribution of primary organic matter fire emissions is shown in Figure 5. Regions affected by fires during this period are mostly located in the Balkans and in Spain.

The calculation of sea salt emissions is based on the Monahan (1986) scheme. Marine aerosols are produced from bubble bursting of whitecaps, generated by surface winds. Largest emissions occur over the Atlantic Ocean.

3.4 Sensitivity analysis

The CHIMERE CTM has been used to perform a number of sensitivity simulations, each with one source eliminated. The aim is to provide the approximate impact from the main different regional source types. A complete budget would require the consideration of transport from boundary conditions as an additional source as well as the different sinks (wet and dry deposition, outflow). However, our main objective is to quantify the relative contribution from natural sources (dust, sea salts, fires, biogenic emissions of precursors) inside the regional domain, since these emissions cannot be controlled by regulations. Only these sources and anthropogenic sources are thus considered.

All the results will be presented in terms of difference between the reference simulation (all sources included) and the simulation in which the specific source is removed. For instance, to obtain the contribution of fire emissions on the concentration of a pollutant $[X]$, called $[X]_{fire}$, we computed:

$$[X]_{fire} = [X]_{ref} - [X]_{without_fire_emissions}$$

The acronym associated with the sensitivity simulations undertaken for the study are ANTH, BIOG, FIRE, DUST, and SALT for the baseline simulation minus the simulation without anthropogenic, biogenic, fire, mineral dust and sea salt emissions, respectively.

Note that the sum of all individual sources may not amount to the reference concentrations of PM due to non-linearities in chemical processes. However, PM sensitivity studies show that the main conclusions do not change with other methods such as source apportionment or direct decoupled sensitivity, if the formation of secondary species is not significant (Koo et al., 2007, 2009; Burr et al., 2011).

In our study, the amount of PM_{2.5} and PM₁₀ formed by non-linear processes can be evaluated in the reference simulation. Therefore, the relative contribution from SOA and nitrates, which will be most impacted by non-linearities, to the total PM concentrations is calculated. On average over the domain and for the reference simulation during the summer of 2012, 2.5% of total PM_{2.5} is composed of SOA, and 1.3% of nitrates. Contributions to total PM_{2.5} from the sensitivity simulations have been evaluated to 1.3% and 1.1% of SOA and nitrates, respectively, from anthropogenic sources,

and 1.5% and maximum 0.01% of SOA and nitrates from biogenic emissions. Contributions are 0.04% and 0.02% of SOA and nitrates, respectively, from fire sources.

4 Evaluation of model results

This section presents the results of the reference simulation (all emissions included), evaluated against the observations presented in section 2, to quantify the model performance for aerosol modelling.

4.1 Comparison with in situ PM surface concentrations

Surface PM simulation is evaluated using the correlation, the mean fractional error (MFE) and the mean fractional bias (MFB) between observations and collocated modeled surface concentrations :

$$MFB = \frac{1}{N} \sum_{i=1}^N \frac{(C_{mod} - C_{obs})}{(C_{mod} + C_{obs})/2} \quad (1)$$

$$MFE = \frac{1}{N} \sum_{i=1}^N \frac{|C_{mod} - C_{obs}|}{(C_{mod} + C_{obs})/2} \quad (2)$$

These statistical indicators are widely used in PM performance evaluation studies. Proposed by Boylan and Russell (2006) for PM, both the MFE and MFB must be lower than or equal to 50% and $\pm 30\%$, respectively, to achieve the performance goals (level of accuracy considered to be close to the best a model can be expected to achieve), and must be lower than or equal to 75% and $\pm 60\%$ to meet the performance criteria (level of accuracy acceptable for standard modeling applications). The MFB and MFE are computed at each station, and averaged. Additionally, the absolute MFB for each station is averaged, and the correlation coefficient (R) and the root mean square error (RMSE) are computed:

$$RMSE = \sqrt{\frac{\sum_{i=1}^N (C_{mod} - C_{obs})^2}{N}} \quad (3)$$

Tables 2 and 3 summarize the hourly and daily statistical results averaged over the regions NEU-We (378 stations for PM_{10} and 155 for $PM_{2.5}$), NEU-Ce (280 and 95), MED-We (171 and 66), and MED-Ea (93 stations for PM_{10}). MED-Ce do not contain enough AirBase stations to allow statistically significant comparison (7 for PM_{10} and 1 for $PM_{2.5}$). For the time period and the entire domain of this study, the MFE and MFB on daily mean values are 46.25% and 29.28%, respectively, for PM_{10} , and 43.74% and 31.18% for $PM_{2.5}$. CHIMERE PM_{10} daily mean values meet thus the performance goal and $PM_{2.5}$ the performance criteria defined above. For hourly comparisons, the performance goal is not met on average over the region (MFE=56.41% and MFB=26.87% for PM_{10} , MFE=55.05% and MFB=30.99%

for $PM_{2.5}$), but the model performance criteria is met. Indeed, the performance criteria is met for more than 90% of all the stations, and the performance goal is met for more than 40% of them.

In the regional comparisons, highest differences are obtained in the MED-Ea region (26.9% of the stations meet the performance criteria and only 3.2% the performance goal for PM_{10}). A strong underestimation is noticed in this region with a MFB=-73.18%.

In the MED-We region, 82.5% of the stations meet the performance criteria and 25.7% the performance goal for PM_{10} . Peak concentrations are often overestimated by the model for both PM_{10} and $PM_{2.5}$, whereas levels are underestimated otherwise (MFB=-23.8% and -6.8%, respectively for PM_{10} and $PM_{2.5}$).

The MFB is relatively good for other regions (in general under 20% except for NEU-We), indicating that PM concentrations do not have an excessive bias. The correlation coefficient is lower in the NEU-Ce region than in other regions except MED-Ea (0.38 for PM_{10} on 280 stations) for hourly comparisons, but not for daily averages with a correlation coefficient of 0.54. This suggests an influence of local sources for which the diurnal profiles used for the simulations may not be appropriate for the region.

Figure 6 shows the temporal evolution of surface PM, averaged daily over the NEU-We, NEU-Ce and MED-We subregions, as well as MED-Ce and MED-Ea for PM_{10} . The levels of surface PM are consistent between observations and model, and the different peaks are well captured, especially in the northern part of the domain. In the Mediterranean Basin, model levels are underestimated between the 4 and the 24 of July when no peak is detected neither by observations nor by the model. Peaks of pollution during the end of July and August are slightly overestimated. For PM_{10} , in MED-We, NEU-We and NEU-Ce, a peak is overestimated by the model on 20 June by up to a factor of 4 ($80 \mu\text{g m}^{-3}$ instead of $20 \mu\text{g m}^{-3}$ in MED-We). High values are also observed for this date at some of the Mediterranean stations such as Miramas (Figure 3) but not at other stations where the model overestimates strongly the peak value, particularly in the South of France. are attributed to a dust transport event as discussed in 5.1. However, there is no associated overestimation of AOD values by the model compared to the observations (MODIS or AERONET). This suggests that the overestimation in surface PM may be due to an overestimated transport at low altitudes, i.e. a wrong vertical distribution of the dust plumes. However, it may also be explained by an excess in total mass and a shift in the aerosol size distribution towards finer particles, as highlighted by Menut et al. (submitted) through comparisons of CHIMERE simulations with AERONET retrievals of the size distribution. An excess in PM concentration would then result in a correct AOD due to the variation of the extinction efficiency with the size of the aerosol.

Table 2. Performance statistics for the simulation of hourly PM with CHIMERE (Mod.) compared to coincident surface station measurements (Obs.) during the summer of 2012.

Variable	Region	Number of stations	Mean ($\mu\text{g m}^{-3}$)		R	RMSE ($\mu\text{g m}^{-3}$)	MFB ($\mu\text{g m}^{-3}$)	MFB	MFE
			Obs.	Mod.					
PM ₁₀	NEU-We	378	16.05	16.70	0.40	12.54	1.24%	18.20%	49.41%
	NEU-Ce	280	17.84	15.83	0.38	13.32	-9.73%	18.70%	53.11%
	MED-We	171	23.31	20.23	0.47	31.46	-23.76%	29.64%	59.88%
	MED-Ce	7	29.09	22.47	0.30	20.90	-23.45%	26.11%	55.15%
	MED-Ea	93	54.43	21.99	0.19	54.41	-73.18%	80.20%	89.44%
	ALL	929	21.86	17.59	0.38	18.34	-14.14%	26.87%	56.41%
PM _{2.5}	NEU-We	155	9.38	11.84	0.51	7.78	22.97%	34.47%	54.82%
	NEU-Ce	95	11.64	11.75	0.40	8.48	12.10%	21.61%	53.40%
	MED-We	66	11.12	9.83	0.48	8.71	-6.81%	35.09%	58.18%
	MED-Ce	1	24.68	22.69	0.57	10.22	-28.09%	28.09%	53.29%
	ALL	317	10.46	11.40	0.47	8.14	13.55%	30.99%	55.05%

Table 3. Performance statistics for the simulation of daily PM with CHIMERE (Mod.) compared to coincident station measurements (Obs.) during the summer of 2012.

Variable	Region	Number of stations	Mean ($\mu\text{g m}^{-3}$)		R	RMSE ($\mu\text{g m}^{-3}$)	MFB ($\mu\text{g m}^{-3}$)	MFB	MFE
			Obs.	Mod.					
PM ₁₀	NEU-We	378	16.04	16.71	0.56	9.06	-1.15%	17.60%	36.31%
	NEU-Ce	280	17.84	15.85	0.54	9.82	-15.96%	22.74%	41.89%
	MED-We	171	23.27	20.24	0.62	15.92	-28.53%	33.41%	51.21%
	MED-Ce	7	29.36	22.45	0.46	15.77	-30.59%	31.67%	46.68%
	MED-Ea	93	54.75	22.04	0.39	44.55	-79.60%	86.88%	90.24%
	ALL	929	21.89	17.60	0.54	14.10	-18.73%	29.28%	46.25%
PM _{2.5}	NEU-We	155	9.33	11.80	0.65	5.84	22.27%	33.57%	44.39%
	NEU-Ce	95	11.61	11.75	0.55	5.81	4.71%	22.47%	39.10%
	MED-We	66	11.09	9.79	0.62	6.72	-12.09%	37.21%	48.59%
	MED-Ce	1	24.58	22.64	0.67	16.03	-26.95%	26.95%	50.21%
	ALL	317	10.43	11.37	0.61	6.01	9.70%	31.18%	43.74%

4.2 Comparison with Aerosol Optical Depth (AOD) measurements

To evaluate modeled AOD, we compare it to two datasets: MODIS satellite data and AERONET data at specific stations. For each statistic, we collocate in time and space the simulated AOD with the corresponding dataset.

Figure 7 illustrates the time series of observed AOD and corresponding simulated values for each sub-region, and table 4, the associated statistics. The modelled AOD is close to the observations in all regions except for NEU-We, with a correlation coefficient ranging from 0.56 (NEU-Ea) to 0.77 (MED-Ce) and a MFE of 34.3% for comparisons to AERONET and 27.6% for comparisons to MODIS. The simulated AOD is underestimated in the eastern and southern parts of the domain, with a MFB of -10% in MED-Ea for AERONET, -31.4% for MODIS. In MED-Ea, the evaluation with MODIS data is more robust as there is more information

than AERONET data in this sub-region (Figure 1). This underestimation is also seen in the time series of Figure 7 and coherent with the underestimation of PM₁₀ noticed in the previous section. The variability of observations is greater than in the model, and than in other regions. The fine fraction of AOD from MODIS (not shown) is low, indicating that the total AOD in this region is due to coarse particles. The model is thus missing some coarse particles sources in this area.

Highest values are seen in MED-We, and the model manages to reproduce these values at the right timing (highest correlation coefficient) even if it moderately underestimates them (MFB of -27.4% with respect to MODIS). Particularly, the peak at the beginning of July is underestimated by CHIMERE. The region with the lowest error and bias is MED-Ce, where the frequency and the intensity of peaks are lower.

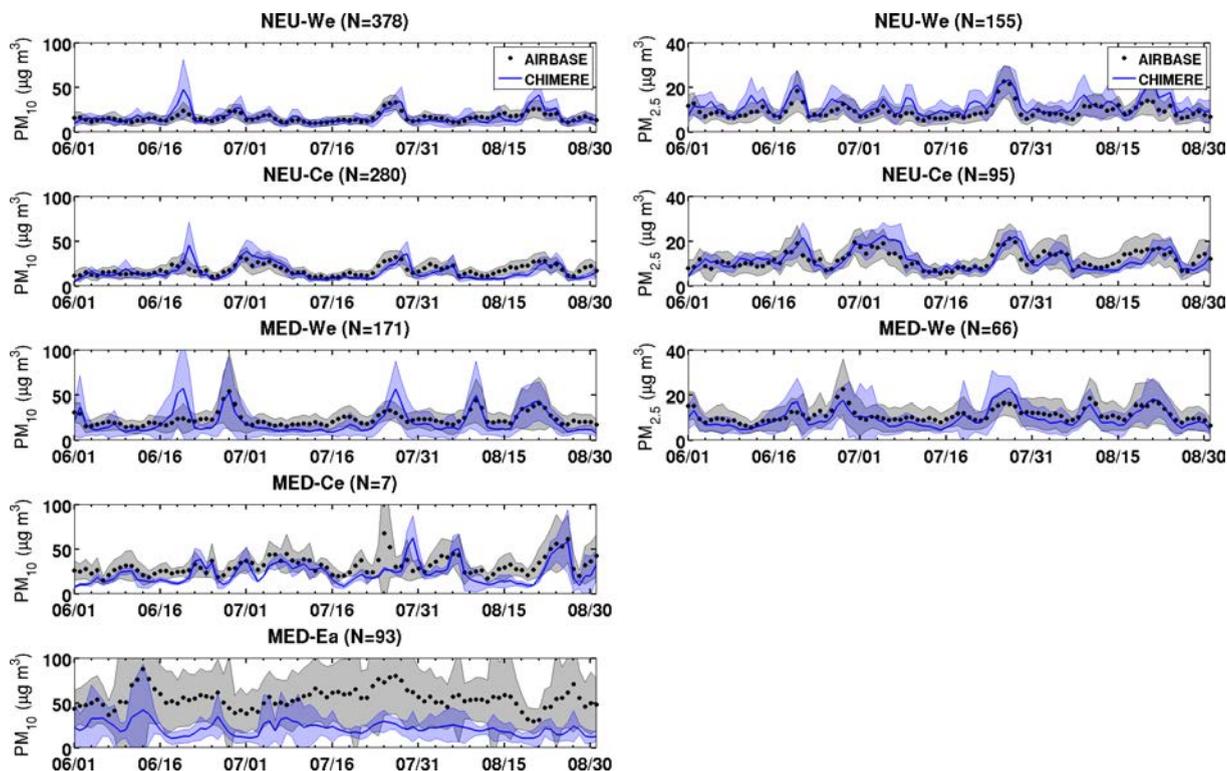


Fig. 6. Temporal evolution during the summer of 2012 of observed daily mean surface PM_{10} (left column) and surface $PM_{2.5}$ (right column) concentrations at AirBase and the two ChArMEx rural stations in Corsica (number in each region indicated by the value of N), in addition to corresponding and collocated simulated daily mean surface concentration from CHIMERE (blue line). The corresponding standard deviation is indicated by a shaded area.

Table 4. Performance statistics of hourly AOD simulated by CHIMERE (Mod.) during the summer of 2012, compared to the coincidentally observed AOD from AERONET at 500 nm and MODIS at 550 nm (Obs.).

Variable	Region	Number of stations	Number of pairs	Mean		R	RMSE	MFB	MFE
				Obs.	Mod.				
AOD AERONET (500 nm)	NEU-We	17	748	0.15	0.15	0.49	0.10	-1.63%	40.79%
	NEU-Ce	5	326	0.22	0.19	0.71	0.10	-15.22%	34.51%
	NEU-Ea	6	245	0.19	0.17	0.72	0.07	-14.53%	29.42%
	MED-We	25	1729	0.20	0.17	0.77	0.09	-6.46%	34.80%
	MED-Ce	7	427	0.22	0.21	0.69	0.08	-1.59%	27.84%
	MED-Ea	5	448	0.21	0.18	0.71	0.07	-9.96%	24.78%
	ALL	65	3923	0.19	0.17	0.68	0.09	-6.36%	34.33%
AOD MODIS (550 nm)	NEU-We		225	0.19	0.13	0.37	0.08	-27.40%	29.54%
	NEU-Ce		58	0.21	0.16	0.70	0.07	-15.08%	22.40%
	NEU-Ea		184	0.18	0.16	0.56	0.06	-8.31%	13.33%
	MED-We		537	0.30	0.22	0.74	0.10	-27.39%	31.64%
	MED-Ce		449	0.22	0.19	0.74	0.04	-6.10%	22.52%
	MED-Ea		327	0.25	0.16	0.67	0.10	-31.35%	38.59%
	ALL		3380	0.24	0.18	0.63	0.06	-18.75%	27.61%

5 Regional sensitivity to emission sources

the series of sensitivity simulations described in section 3.4.

690 In this section, the sensitivity of surface PM concentrations and total AOD to the different sources is analysed based on

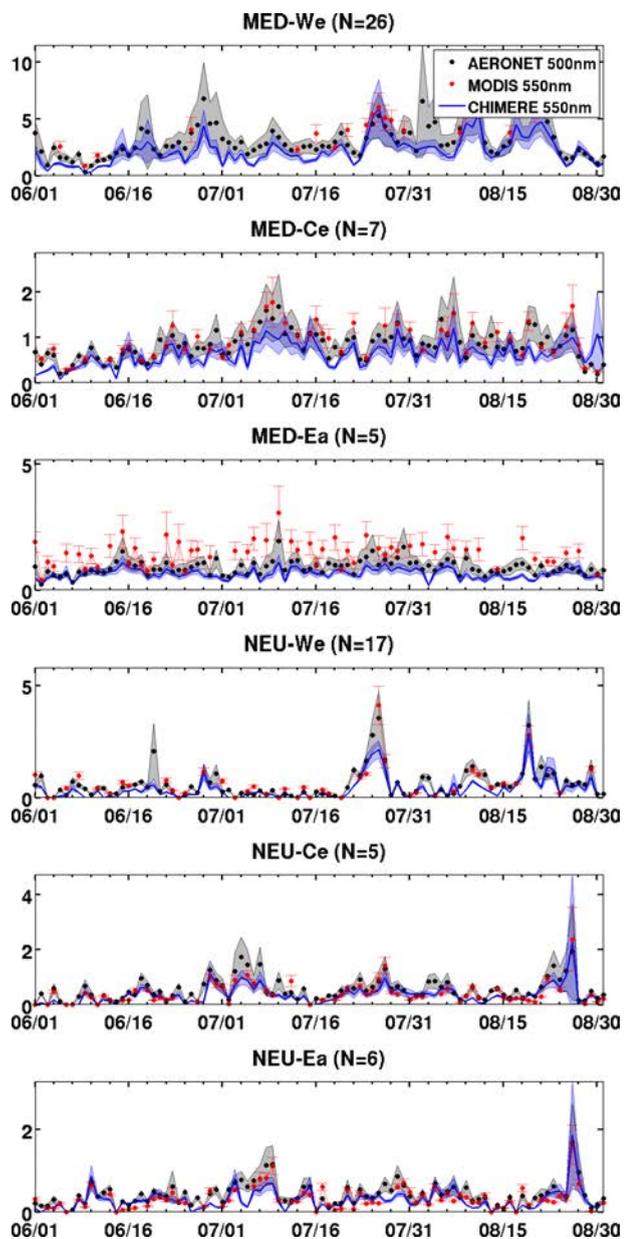


Fig. 7. Temporal evolution of the daily mean AOD observed at 500 nm at the AERONET stations (black dots) and at 550 nm from MODIS Aerosol Products (red dots), in addition to simulated AOD at 550 nm by the CHIMERE model (blue line) during the summer of 2012. The standard deviation among the stations is indicated in grey and blue shaded area for AERONET and CHIMERE, respectively, and with red bars for MODIS. Number of stations in each region is indicated by the value of N .

5.1 Surface particulate matter

Average relative contributions during the summer of 2012 to surface $PM_{2.5}$ and PM_{10} over the domain are presented in Figures 8 and 9. Table 5 summarizes the contributions from

the different source types in each sub-region of Table 1. As already highlighted in the general evaluation of the simulations, surface concentrations and total AOD are the largest over North Africa and the Mediterranean area, especially the western Mediterranean area.

Table 5 shows that concentrations of PM_{10} are about three time higher than those of $PM_{2.5}$ ($38.3 \mu\text{g m}^{-3}$ versus $13 \mu\text{g m}^{-3}$ on average over the total period and domains). Surface PM_{10} also presents a stronger spatial variability (concentrations of surface PM_{10} ranges on average from $13.2 \mu\text{g m}^{-3}$ in NEU-Ea to $88.2 \mu\text{g m}^{-3}$ in MED-We, whereas concentrations of surface $PM_{2.5}$ ranges from $9.5 \mu\text{g m}^{-3}$ in NEU-We to $15.7 \mu\text{g m}^{-3}$ in MED-Ce).

The two most important contributors in the domain are anthropogenic and mineral dust emissions, which account, on average, respectively for 52% and 17% of surface $PM_{2.5}$, and 19% and 62% of surface PM_{10} . Anthropogenic emissions clearly dominate both surface $PM_{2.5}$ and PM_{10} in the northern part of the domain (up to 90% and 75% in average) but are also the main contribution to surface $PM_{2.5}$ above the Mediterranean Basin ($\sim 50\%$) and most particularly, as expected, around populated coastal areas.

Since the main dust emissions are located in North Africa, dust dominate the aerosol budget in this region. They also represent the main contribution to surface PM_{10} concentrations in the western Mediterranean area (Spain, South of France and Italy). The average contribution of mineral dust in the MED-We region is estimated to 86% for surface PM_{10} and 44% for $PM_{2.5}$. In this region, the mean concentration of surface PM_{10} over the period is exceeding the European threshold of $50 \mu\text{g m}^{-3}$ ($88.17 \mu\text{g m}^{-3}$). The contribution of mineral dust alone in this region is exceeding this threshold ($75.63 \mu\text{g m}^{-3}$). Long-range transport also results in significant contributions in northern Europe (22% of surface PM_{10} on average in region NEU-Ce).

Fire emissions are more sporadic and thus represent a lower contribution to the average surface concentrations. However, significant increase during the summer of 2012 is obtained in Spain and the Balkans, close to the main fire events (Figure 5). The maps show an impact reaching up to 20% locally on average during the summer (Figs. 8 and 9). The largest regional contribution is obtained for the MED-Ce region, with 12% of $PM_{2.5}$ associated with fires.

As expected, sea salt emissions are the main contribution to PM above the Atlantic Ocean. However, their relative contribution above continents is low, except in the coastal areas and over northwestern Europe where it reaches 29% of surface PM_{10} . Over coastal cities, the impact of sea salts at the surface can be as large as that of anthropogenic emissions.

Biogenic emissions have an important contribution to PM in central Europe, where they are mainly located (figure 5). They account for almost 20% of surface $PM_{2.5}$ in the NEU-Ce region.

Figure 11 shows the temporal evolution of surface $PM_{2.5}$ and PM_{10} , and their associated source contributions, inte-

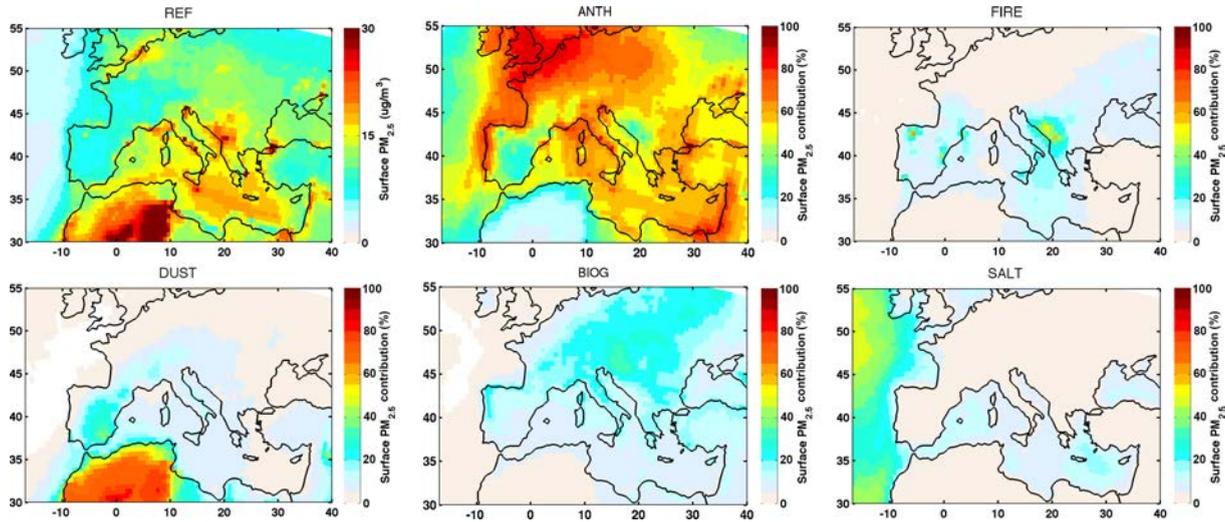


Fig. 8. Relative contribution of each source type (i.e. the baseline simulation minus the sensitivity simulation where the respective source has been eliminated) to the simulated surface $PM_{2.5}$, averaged over the period (1 June to 31 August 2012). The top left represents the reference surface concentration over the same period.

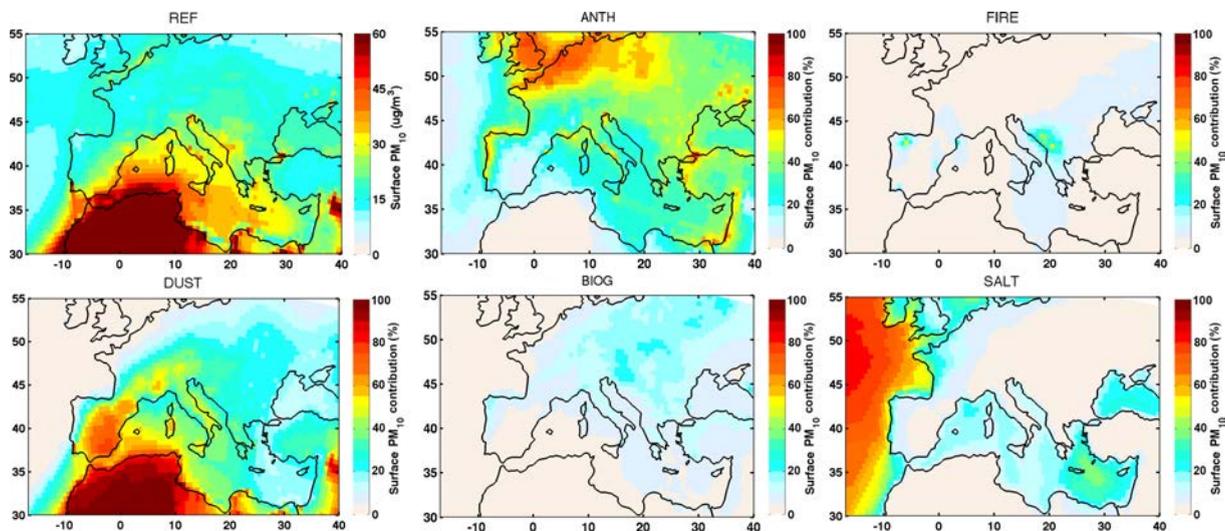


Fig. 9. Relative contribution of each source type (i.e. the baseline simulation minus the sensitivity simulation where the respective source has been eliminated) to the simulated surface PM_{10} , averaged over the period (1 June to 31 August 2012). The top left represents the reference surface concentration over the same period.

grated over the different sub-regions depicted in Table 1: NEU-We, NEU-Ce and NEU-Ea, MED-We, MED-Ce and MED-Ea. It shows that the daily variability above the chosen regions is large, especially for surface PM_{10} , with diverse contributions. The variability in the northern part of the domain is mainly controlled by anthropogenic emissions. However, surface PM_{10} concentrations in the NEU-We region are also frequently affected by mineral dust (20-21 June, 1 July, end of August) and by sea salts. In the NEU-Ce and NEU-

Ea regions, most of the high peaks in PM_{10} are attributed to mineral dust transport events.

Extreme concentrations are simulated in the western and central Mediterranean areas (MED-We and Ce), here again mainly due to large contributions from mineral dust emissions. These impact mainly surface PM_{10} , while $PM_{2.5}$ are often dominated by a more constant contribution from anthropogenic emissions. Fires are another significant contribution in these regions at the end of July and August for sur-

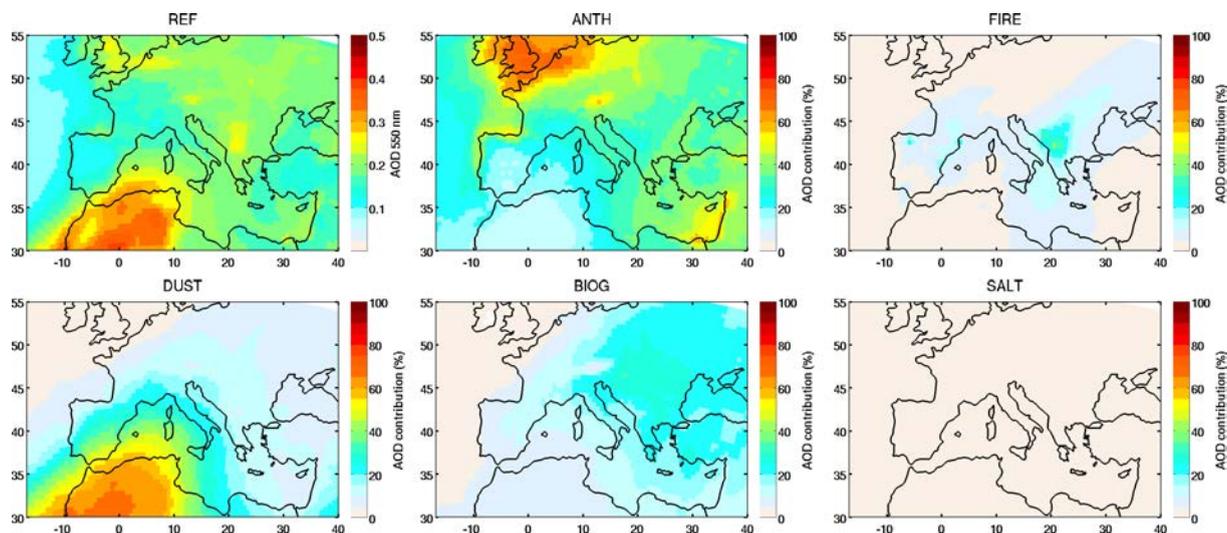


Fig. 10. Relative contribution of each source type (i.e. the baseline simulation minus the sensitivity simulation where the respective source has been eliminated) to the simulated AOD at 550 nm, averaged over the period (1 June to 31 August 2012). The top left represents the reference simulation of AOD over the same period.

770 face $PM_{2.5}$.

Comparisons to surface observations highlighted an over-⁸⁰⁰ estimate of the largest PM_{10} peaks in the simulations in the NEU-We, NEU-Ce and MED-We regions (Figure 11). This suggests that mineral dust transport at low altitudes is too large in the model.
775

5.2 Vertical distributions and AOD

Figure 12 presents the vertical distributions of PM in the simulations, averaged over each of the sub-regions. As already highlighted in the discussion above, surface concentrations are strongly affected by anthropogenic emissions, except in the western and central Mediterranean Basins, which are dominantly affected by mineral dust transport. The vertical structures of the simulated dust layers have been evaluated in Vuolo et al. (2009) with CALIOP LIDAR profiles during
780
785
790
795
800
805
810
815
820

Fires and biogenic emissions are also important contributions, particularly for $PM_{2.5}$. They often have maximum contributions in the lower troposphere. Sea salts contribute to PM_{10} in western Europe and the Mediterranean region, as well as in the central Mediterranean region, but are confined to the lower-most troposphere.
825

Contributions to the total AOD, which includes the signature of aerosols over the full vertical column, follow the same general patterns as the contributions to surface PM_{10} discussed above (average relative contributions in Figure 10 and Table 5). However, the contribution of sea salts remains very low ($<1\%$).

Temporal variability over the selected sub-regions (Figure 11, third column) shows that, similarly to what was obtained for surface PM, anthropogenic emissions control the variability in the NEU-We region, while mineral dust emissions are the main contribution in the MED-We region. The fire episodes of the end of August also contribute significantly to the total AOD in the NEU-Ea and MED-Ce regions. Compared to the total column (vertically integrated) concentrations of PM (not shown), source contributions to AOD follow contributions to $PM_{2.5}$ concentrations. At the considered wavelength (500 nm), fine particles from anthropogenic or local fire emissions, even concentrated in the first layers, contribute more significantly (34% for mean anthropogenic contribution) than larger mineral dust particles (23%) at the considered wavelength (500 nm) to the calculated AOD.

6 Contributions to air quality threshold exceedances

The European Union has developed legislations to establish health based standards for a number of atmospheric pollutants. For PM_{10} , the air quality limit value is set, for health based considerations, to a daily mean of $50 \mu g m^{-3}$ and an annual mean of $40 \mu g m^{-3}$. For $PM_{2.5}$, there is no regulation in Europe except for a quality aim of $25 \mu g m^{-3}$ in annual mean. In this section, the exceedances

Table 5. Contributions of each emission source type on surface $PM_{2.5}$ and PM_{10} concentrations and AOD for the full domain and the different sub-regions indicated in Table 1 over the period (1 June to 31 August 2012).

Region	Source	Surface $PM_{2.5}$		Surface PM_{10}		AOD	
		$\mu\text{g m}^{-3}$	%	$\mu\text{g m}^{-3}$	%	ad.	%
All domain	All sources	13.00		38.28		0.19	
	Anthropogenic	6.76	52.01%	7.10	18.56%	0.07	33.95%
	Fires	0.82	6.27%	0.92	2.39%	0.01	5.46%
	Dust	2.17	16.67%	23.87	62.35%	0.05	23.26%
	Biogenic	1.41	10.83%	1.43	3.75%	0.03	14.04%
	Sea Salt	0.59	4.53%	2.73	7.12%	0.0012	0.59%
NEU-We	All sources	9.46		15.10		0.18	
	Anthropogenic	7.11	75.13%	7.44	49.28%	0.10	54.87 %
	Fires	0.12	1.22 %	0.13	0.86 %	0.00	2.20%
	Dust	0.15	1.62 %	1.18	7.84%	0.01	4.83%
	Biogenic	0.68	7.24%	0.69	4.57%	0.01	5.01%
	Sea Salts	0.68	7.19%	4.33	28.70%	0.00	1.14%
NEU-Ce	All sources	11.36		15.86		0.20	
	Anthropogenic	7.16	62.98%	7.56	47.67 %	0.09	42.65%
	Fires	0.42	3.66 %	0.45	2.82%	0.01	4.62 %
	Dust	0.52	4.58%	3.45	21.78%	0.02	9.97 %
	Biogenic	2.48	21.83 %	2.51	15.82%	0.04	21.51 %
	Sea Salts	0.16	1.42%	0.58	3.68%	0.00	0.43 %
NEU-Ea	All sources	9.78		13.24		0.19	
	Anthropogenic	4.91	50.14%	5.30	40.00%	0.06	33.99%
	Fires	0.72	7.31%	0.75	5.64%	0.01	7.26%
	Dust	0.35	3.57%	2.28	17.19%	0.02	7.95%
	Biogenic	1.51	15.45%	1.53	11.57%	0.04	22.01%
	Sea Salts	0.12	1.27%	0.43	3.27%	0.00	0.26 %
MED-We	All sources	15.15		88.17		0.23	
	Anthropogenic	4.92	32.50%	5.17	5.86%	0.04	18.72%
	Fires	0.83	5.45%	0.95	1.08%	0.01	4.51 %
	Dust	6.54	43.19 %	75.63	85.78 %	0.11	49.20 %
	Biogenic	0.82	5.38%	0.84	0.95 %	0.02	7.12 %
	Sea Salts	0.62	4.12 %	2.96	3.36%	0.00	0.58 %
MED-Ce	All sources	15.66		33.22		0.20	
	Anthropogenic	8.54	54.55%	8.89	26.77 %	0.06	31.50%
	Fires	1.91	12.22%	2.16	6.51%	0.02	9.82 %
	Dust	1.36	8.66%	14.39	43.31 %	0.04	22.64 %
	Biogenic	1.84	11.77 %	1.90	5.70 %	0.03	16.75%
	Sea Salts	0.90	5.75 %	3.60	10.83 %	0.00	0.57%
MED-Ea	All sources	12.90		22.90		0.17	
	Anthropogenic	7.83	60.67%	8.24	35.98%	0.07	41.01 %
	Fires	0.45	3.48%	0.50	2.20%	0.01	3.81%
	Dust	0.78	6.06%	7.09	30.98%	0.02	10.88%
	Biogenic	1.42	11.02%	1.45	6.34%	0.03	18.64%
	Sea Salts	0.67	5.17%	2.84	12.40%	0.00	0.46%

of the daily mean limit for PM_{10} concentrations are analyzed. We also analyze $PM_{2.5}$ exceedances of a limit of $25 \mu\text{g m}^{-3}$ per 24 h (World Health Organisation recommendation, Krzyzanowski and Cohen, 2008). The number of sta-

830

tions in daily exceedances are calculated for both observations and co-located CHIMERE simulations. The simulations were undertaken at a regional scale, so that only exceedances at rural and background sites are considered.

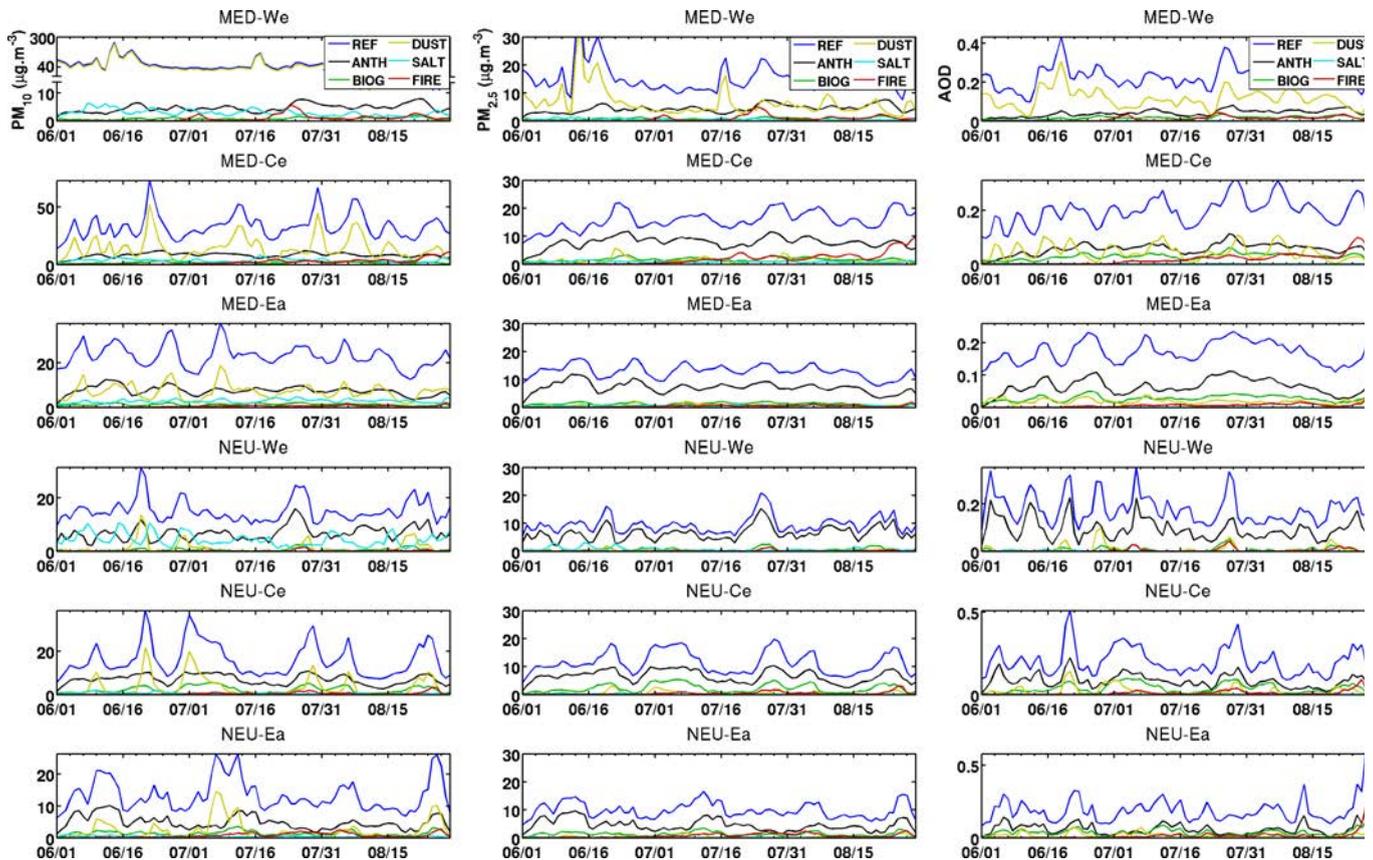


Fig. 11. Temporal evolution during the summer of 2012 (1 June to 31 August 2012) of the total daily simulated surface PM_{10} concentrations (left column), and surface $PM_{2.5}$ concentrations (central column), and AOD (right column), with the contributions from each source type (i.e. the baseline simulation minus the sensitivity simulation where the respective source has been eliminated), averaged within each sub-region indicated in Table 1.

6.1 Raw estimates

In total, 96.2% of the PM_{10} daily means are under the threshold of $50 \mu\text{g m}^{-3}$ in both observations and co-located simulation. The analysis will focus on the 3.8% other cases. Figure 13 presents the number of stations where the daily mean concentrations of PM_{10} and $PM_{2.5}$ are above $50 \mu\text{g m}^{-3}$ and $25 \mu\text{g m}^{-3}$, respectively, in the observations or the model simulations within each sub-region (only the sub-regions where there are stations to compare with).

It clearly shows that the model detects more exceedances than the observations in MED-We, NEU-We and NEU-Ce (in total 1964 versus 881 in the observations for PM_{10} , positive bias of 42.5%, 86.6% and 64.7%, respectively), and sometimes not at the same time (correlation coefficient of respectively 0.68, 0.42 and 0.43). In the MED-Ea region, several exceedances, particularly in the observations, are not reproduced in the model (MFB=-73.18%). The model only sees exceedances from anthropogenic emissions (80% of the cases). The global underestimation of PM_{10} certainly due to

missing coarse particles sources described in section 4.2 does not allow the analysis of exceedances in this region.

For PM_{10} , 52.7% of the 881 observed exceedances are correctly captured by the model, the majority of them located in MED-We. More particularly, the event of 27-28 June is well simulated (Figure 3) and is correctly detected in terms of number of stations in daily exceedances (29 exceedances for observations, 35 for the model, among the 92 stations). This is also the case for the two peaks in August (around 20-30 exceedances). For $PM_{2.5}$, only 23.5% of exceedances are correctly simulated, with the majority in NEU-We.

Figure 14 shows the contribution of each source when an exceedance is detected only by CHIMERE, and not in the observations. The peak of the 20-21 June is present in the model simulations at almost every stations so that the number of simulated exceedances is a lot larger than in the observational dataset. The model only exceedances associated with this peak is attributed to mineral dust in the three regions (mixed with anthropogenic and biogenic contributions). The model overestimates also the number of stations in daily ex-

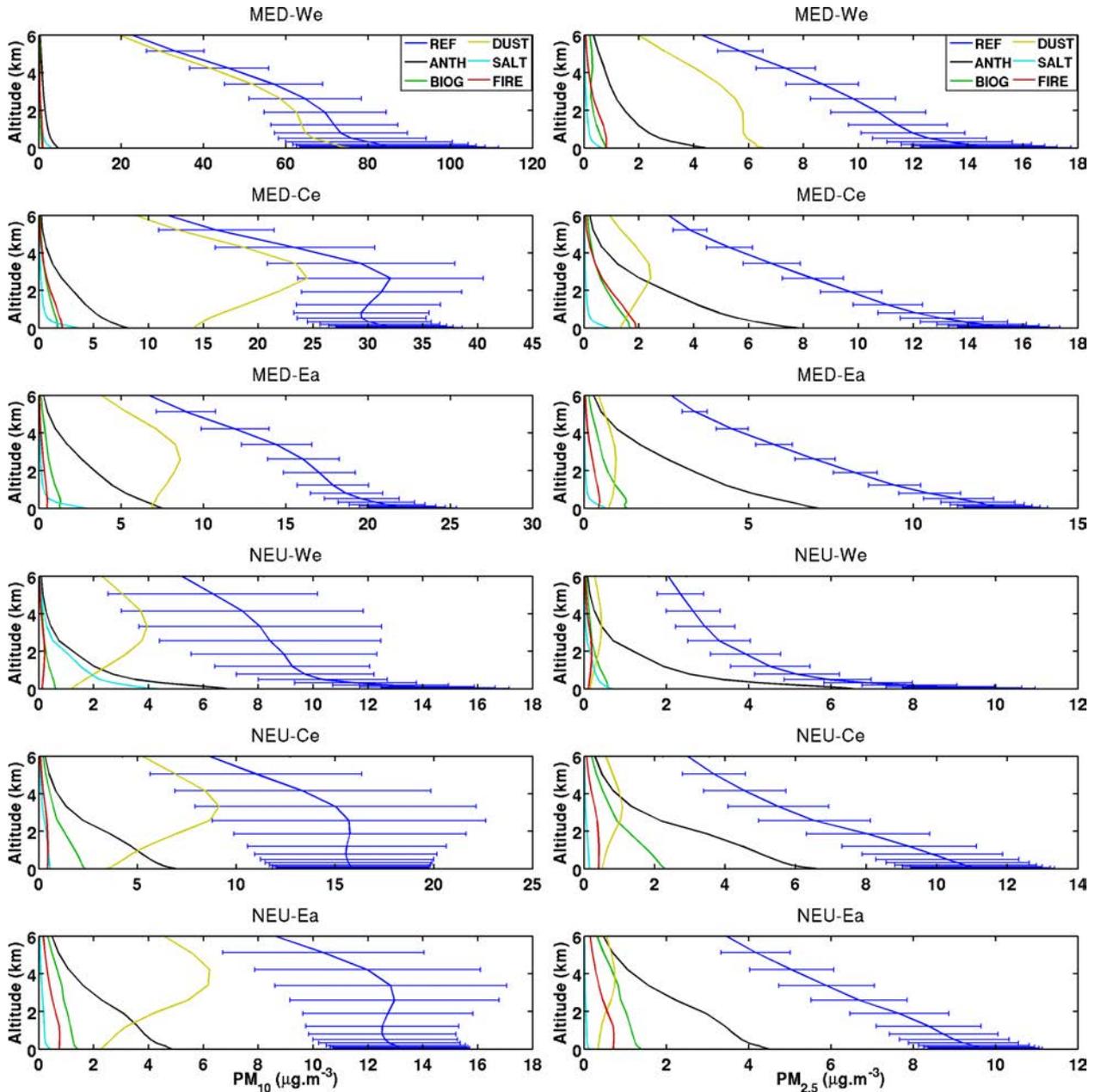


Fig. 12. Mean vertical profiles of PM_{10} (left column) and $PM_{2.5}$ (right column) for each sub-region indicated in Table 1 and for each source type. The standard deviation is represented only for the reference simulation by the horizontal bars.

875 exceedances at the end of July (37 versus 6 for observations in
MED-We, 82 versus 14 for NEU-We for PM_{10}), with contribu- 885
tions from mineral dust, anthropogenic sources, and fires
(stronger in MED-We and NEU-Ce).

880 Among the 464 PM_{10} exceedances detected by both the
model and the observations, 76.7% are due exclusively to
dust (i.e., the dust source contributes to the PM_{10} sur- 890
face concentration, when the exceedance is detected, for at
least the value of the threshold, independently of the other

sources), and 1.7% to fires. The other 100 exceedances are
due to a mix contribution of dust (from 78.1% in MED-We
to 85% in NEU-We), anthropogenic sources (about 15% in
the three regions), biogenic sources (from 5.5% in MED-We
to 11.2% in NEU-Ce) and fires (from 1.7% in NEU-Ce to
10.2% in MED-We). For $PM_{2.5}$, 176 on 1063 detections
are coherent between the model and the observations, and
33.5% and 7.3% are due exclusively to anthropogenic and
fires sources, respectively. The other 104 exceedances are

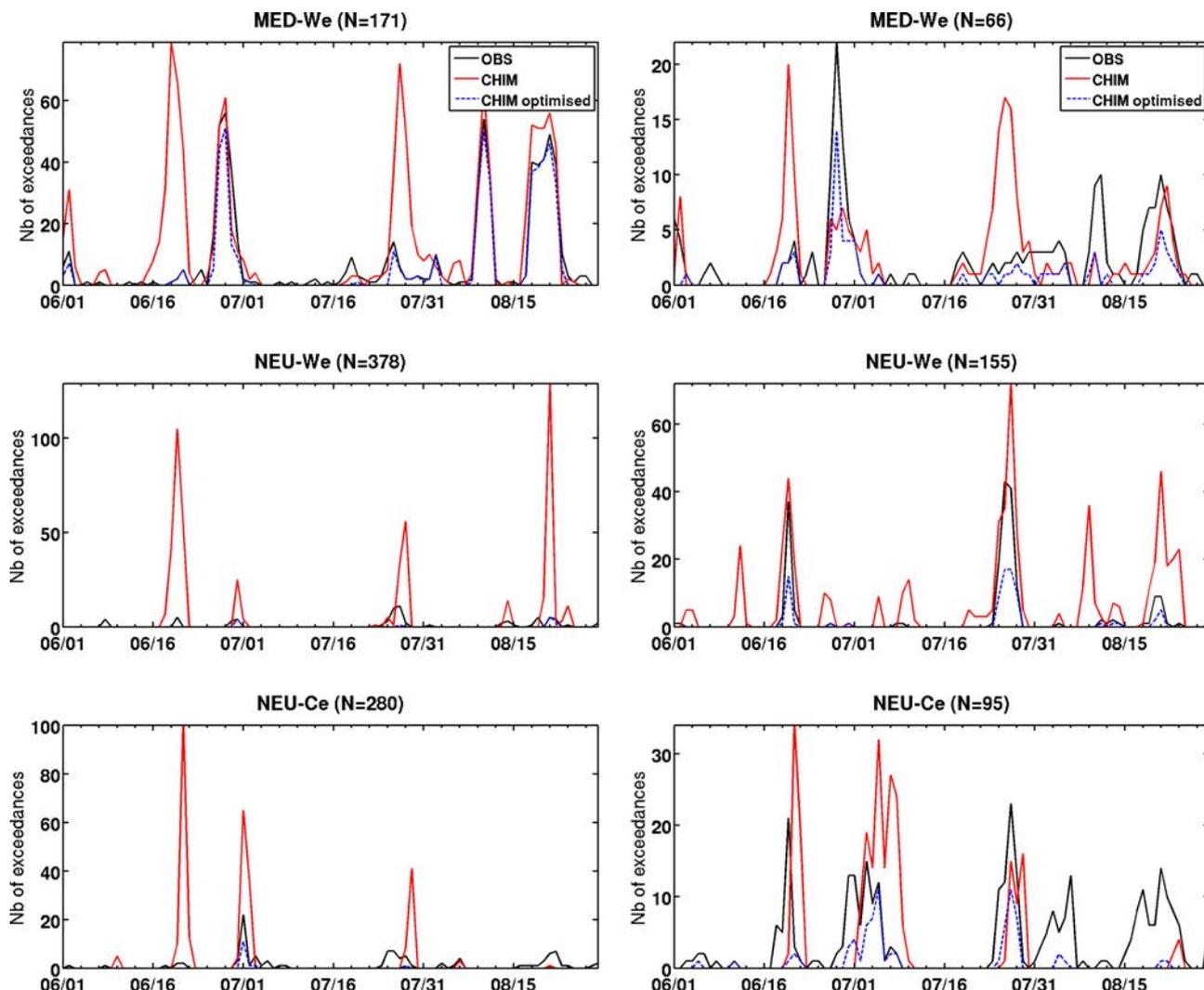


Fig. 13. Number of stations in daily exceedances of the European Union air quality threshold of $50 \mu\text{g m}^{-3}$ for daily mean PM_{10} concentrations (left panel), and in daily exceedances of the WHO recommendation of $25 \mu\text{g m}^{-3}$ for $\text{PM}_{2.5}$ concentrations (right panel). This time series is computed during the summer of 2012 (1 June to 31 August 2012), as observed at the rural and background stations (black line) and simulated by the CHIMERE model at the same locations (red line). The dashed blue line is the number of exceedances when the bias is removed for each point, as described in Section 6.

due to a mix between anthropogenic sources (from 64.2% in MED-We to 92.1% in NEU-We), biogenic sources (from 14.4% in NEU-We to 39.3% in NEU-Ce), fires (from 1% in NEU-We to 15.6% in MED-We) and dust (1.7% in NEU-We to 17.5% in MED-We).

6.2 Optimized estimates

These source contributions on daily exceedances might be uncertain due to the high overestimation of the model. An optimization is proposed to estimate more robust contributions of observed exceedances.

First, the bias on background levels is evaluated at each

measurement station. The background is defined as the baseline concentration, on days when no significant peak is measured. It is generally associated with anthropogenic and biogenic sources, which have relatively low variability during the summer compared to dust and fire emissions.

The average "background bias" is estimated to $-6.3 \mu\text{g m}^{-3}$ for PM_{10} and $-1.9 \mu\text{g m}^{-3}$ for $\text{PM}_{2.5}$ in MED-We, $-0.93 \mu\text{g m}^{-3}$ and $1.3 \mu\text{g m}^{-3}$ in NEU-We, and $-3.2 \mu\text{g m}^{-3}$ and $-0.2 \mu\text{g m}^{-3}$ in NEU-Ce, on average over all stations.

Then for sporadic sources, i.e. for the dust and fires, the resulting bias at each point of a peak is subtracted only for contribution concentrations of the corresponding source. This processing is applied only when the model overestimates the

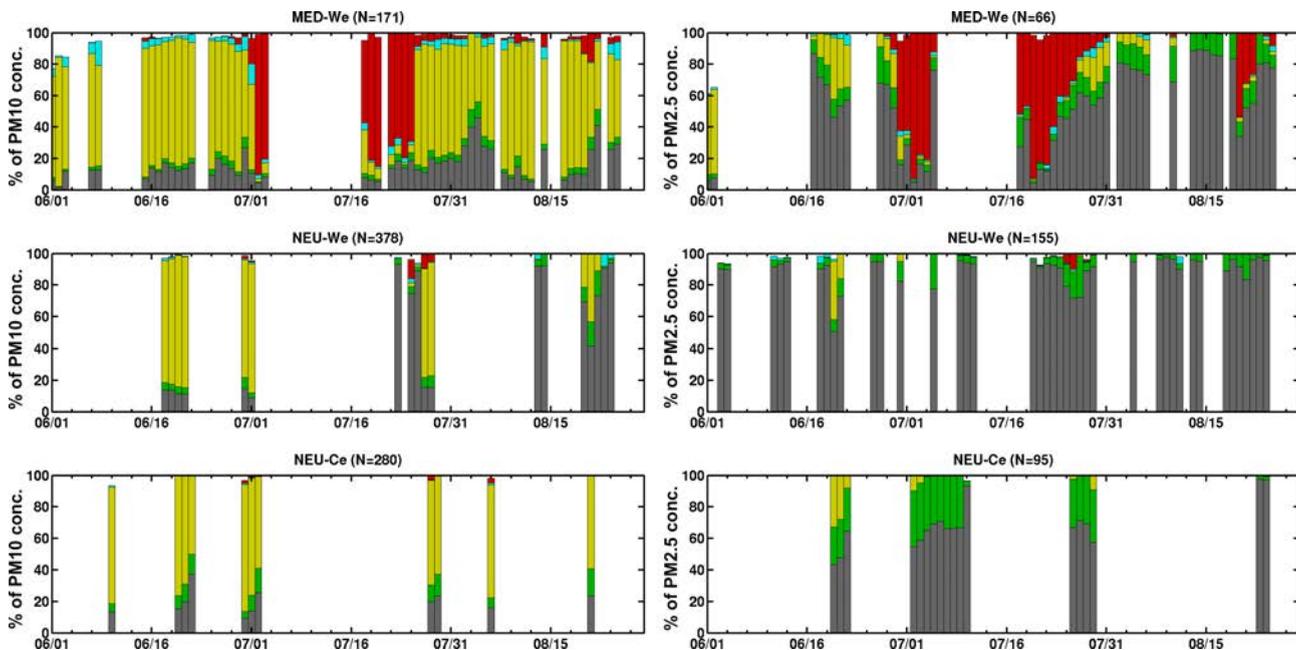


Fig. 14. Simulated relative contribution of each source type to surface PM_{10} and $PM_{2.5}$ concentrations during the summer of 2012 (1 June to 31 August 2012), on average when exceedances of the daily air quality threshold are detected only by the model at the stations (N is the number of stations in each region).

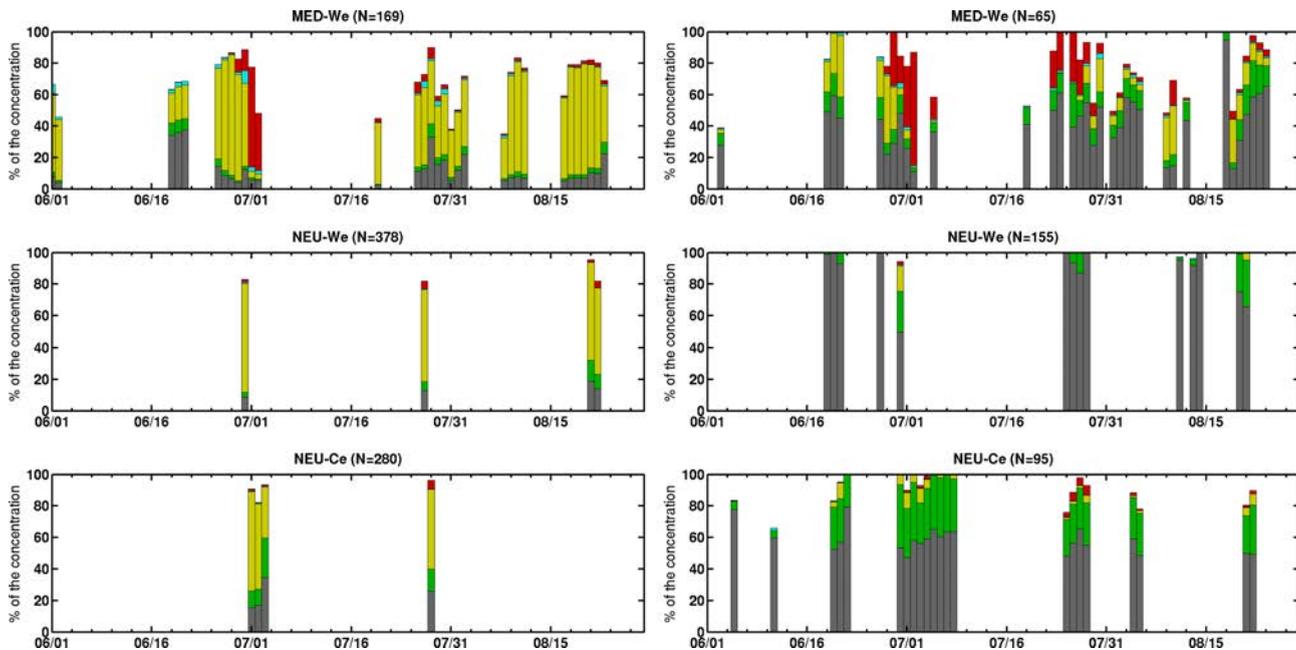


Fig. 15. Same as Fig. 14 but when exceedances of the daily air quality threshold are detected by both observations and model after optimization of the background concentration baseline at the considered stations.

concentrations with respect to observations, but not when a peak is detected only by the observations.

The corresponding new number of exceedances with this

calculation is shown on Figure 13 in dashed blue line. The total number of exceedances is then 549 and 256, respectively, for PM_{10} and $PM_{2.5}$ (instead of 1964 and 1063 initially) in

total for the three regions, all of them detected also in the observations.

For these "optimised" concentrations, Figure 15 shows the contribution of each source to the simulated exceedances. For the peaks at the end of June, the contribution of mineral dust to the exceedances is predominant particularly for PM_{10} , mixed with anthropogenic pollution and fires from 28 June to 3 July (fires alone contribute to 3 exceedances at that time), as well as biogenic emissions from 18 to 23 August. In total, the only sources that result exclusively (i.e. when their contribution alone on PM concentration is more than the threshold of $50 \mu\text{g m}^{-3}$) in an exceedance are dust (in 35.9% of the cases, i.e. 197 exceedances on the 549 observed and simulated) and fires (in 0.7% of the cases, i.e. 4 exceedances). The other 348 exceedances are due to a mixed contribution of several sources: anthropogenic sources contribute from 14.9% (NEU-We) to 24.2% (NEU-Ce) of the concentrations, biogenic from 4.1% (MED-We) to 15.7% (NEU-Ce), fires from 2.2% (NEU-Ce) to 7.2% (MED-We), and dust from 49.5% (MED-We) to 67% (NEU-We).

For $\text{PM}_{2.5}$ exceedances, the only sources that result exclusively in concentrations above $25 \mu\text{g m}^{-3}$ are anthropogenic sources (54 exceedances on the 256 observed and simulated at the same time, i.e. 21.1%) and fires (5 exceedances). The 197 other exceedances are a mix between anthropogenic sources (from 46.3% in MED-We to 80.6% in NEU-We), biogenic sources (12.6% in MED-We to 30% in NEU-Ce), fires (1.6% in NEU-We to 12.4% in MED-We) and mineral dust (4.4% in NEU-We to 13.8% in MED-We). The WHO $25 \mu\text{g m}^{-3}$ limit recommendation is more often exceeded because of high anthropogenic contributions than natural sources.

Compared to the results without optimization, the main differences are for PM_{10} , with less exceedances due exclusively to dust (197 vs 356) and with a lower proportion to the $50 \mu\text{g m}^{-3}$ limit (49.5%-67% vs 78.1%-85%). Contributions from the other sources (anthropogenic, biogenic, fires) are then lower than in the optimized results. This comparison means that the raw model simulation results are not robust enough to estimate contributions for an air quality purpose, for PM_{10} , but can be used as a valuable complement to observations to qualitatively attribute source types.

For $\text{PM}_{2.5}$ however, the differences between the contributions deduced from the model only and from the model optimized with the observations are lower (for instance, 64.2%-92.1% vs 46.3%-80.6% for anthropogenic contribution to the WHO $25 \mu\text{g m}^{-3}$ limit, 1.7%-17.5% vs 4.4%-13.8% for mineral dust contribution), in coherence with the better performance of the model in the simulation of $\text{PM}_{2.5}$ concentrations.

7 Conclusions

A sensitivity analysis was undertaken to estimate the contribution of anthropogenic, mineral dust, fire, biogenic and sea salt emissions on surface PM_{10} , surface $\text{PM}_{2.5}$ and total AOD during the summer of 2012 over Europe and the Mediterranean region. For this, simulations were performed using the CHIMERE regional CTM, including all sources (reference simulation) and removing one of these source at a time (sensitivity study).

The reference simulation has been evaluated against observations of surface PM from the AirBase network and two more stations in Corsica, and of AOD from the AERONET network and the MODIS space-based instrument. Although the density of the AirBase network is relatively high in parts of Europe, there are fewer observations around the Mediterranean Basin, which makes difficult the evaluation of surface PM concentration in those regions.

For the northern part of the domain and the western Mediterranean Basin, the comparison between CHIMERE simulations and the observations of $\text{PM}_{2.5}$ and PM_{10} surface concentrations has shown the ability of the model to simulate PM levels (the performance criteria are met for hourly values for more than 90% of the stations, i.e. both MFE and MFB are lower than or equal to 75% and $\pm 60\%$, respectively). However, the associated variability is not well established with the correlation ranging from 0.19 to 0.57 depending on the region. All the main peaks are though reproduced by the model. The MFB is under 20% over the area, with some overestimations of peaks in the south west of the domain. The correlation is the lowest in the south east of the domain, associated with a strong underestimation of the observations, due to missing coarse particles sources, probably mineral dust. In the center north, statistics give slightly lower coherence with the observations, strongly influenced by local sources. This influence cannot be captured at the resolution used for the simulation (50 km). On the contrary, some peak values are overestimated in the northern part of the domain by up to a factor of 4.

The comparison between simulated AOD and observations from AERONET and MODIS also shows good results with a correlation ranging from 0.37 to 0.77, and a reasonable MFE (34.33% with respect to AERONET and 27.61% with respect to MODIS). The underestimation is confirmed in the eastern and southern part of the domain (MFB up to about -31.4%).

Results of sensitivity simulations show that the Euro-Mediterranean domain is strongly influenced by mineral dust transport and anthropogenic emissions (62% and 19%, respectively, for surface PM_{10} and 17% and 52% for surface $\text{PM}_{2.5}$). For mineral dust, the contribution is particularly important in the western Mediterranean Basin (86% for surface PM_{10} and 44% for $\text{PM}_{2.5}$) where the concentrations are the highest. In this region, all the extreme peaks are attributed to this source. In the northern part of the domain, mineral dust affects mainly the free troposphere. At the surface, an-

thropogenic emissions are dominant, particularly for surface PM_{2.5} (up to 75%). However, surface peak concentrations attributed to mineral dust are observed. These peaks are generally strongly overestimated in the simulations. Fire emissions have also a significant contribution (12.2% in average in MED-Ce) over the Mediterranean Sea, as well as sea salts on surface PM₁₀ over coastal cities (29%). Biogenic emissions impact the central Europe mostly on PM_{2.5} (20%). Although levels of PM in MED-Ea are poorly reproduced in the model, the contribution of anthropogenic emissions on PM_{2.5} (60.7% in average) is coherent with Im and Kanakidou (2012).

Contributions to the total AOD show similar patterns, except for the contribution of sea salts which is weaker. Contributions to the total AOD are closer to the contributions of simulated fine particles (PM_{2.5} from anthropogenic and fire emissions) than coarse ones (PM₁₀) at the wavelength considered in this study (550 nm).

The same analysis was undertaken for the number of stations in daily exceedances of the European Union limit of 50 $\mu\text{g m}^{-3}$ for PM₁₀, and of the WHO recommendation of 25 $\mu\text{g m}^{-3}$ for PM_{2.5} (over the stations considered in the study). The number of exceedances is overestimated by the model, mainly because of dust and fire contributions, but exceedances are captured at the right time. An optimized number of exceedances and associated contributions was computed to estimate more robust contributions to PM₁₀ and PM_{2.5} concentrations exceedances. Results show that for PM₁₀, mineral dust and fires can be responsible exclusively of an exceedance (in 35.9% of the cases for mineral dust and 0.7% for fires), whereas it is anthropogenic sources (21.1%) and fires (0.02%) for PM_{2.5}. The other exceedances are induced by a mixed contribution between, mainly mineral dust (49.5%-67% for PM₁₀ exceedances contributions, 4.4%-13.8% for PM_{2.5}), anthropogenic sources (14.9%-24.2% and 46.3%-80.6%), biogenic sources (4.1%-15.7% and 12.6%-30%) and fires (2.2%-7.2% and 1.6%-12.4%). Those results are estimated on average over the western part of Europe and the central north.

Acknowledgements. The authors acknowledge financial support from EIT - Climate-KIC as well as from the Centre National d'Etudes Spatiales (CNES) and DGA (in the framework of the AP-PAD project). Authors are grateful to the EEA for maintaining and providing the AirBase database for surface concentrations of several pollutants over Europe. We thank for the availability of the ChArMEx data Wani Tamas for the Venaco station and José Nicolas for the Ers station. All investigators and staff who maintain and provide the AERONET data are also thanked. We finally wish to thank the National Aeronautics and Space Agency (NASA) for the availability of the MODIS data.

References

Alfaro, S. C. and Gomes, L.: Modeling mineral aerosol production by wind erosion: Emission intensities and aerosol size distribu-

- tions in source areas, *Journal of Geophysical Research: Atmospheres*, 106, 18 075–18 084, doi:10.1029/2000JD900339, 2001.
- Anttila, P., Stefanovska, A., Nestorovska-Krsteska, A., Grozdanovski, L., Atanasov, I., Golubov, N., Ristevski, P., Toveva, M., Lappi, S., and Walden, J.: Characterisation of extreme air pollution episodes in an urban valley in the Balkan Peninsula, *Air Quality, Atmosphere & Health*, pp. 1–13, doi:10.1007/s11869-015-0326-7, 2015.
- Barnaba, F., Angelini, F., Curci, G., and Gobbi, G. P.: An important fingerprint of wildfires on the European aerosol load, *Atmospheric Chemistry and Physics*, 11, 10 487–10 501, 2011.
- Bessagnet, B., Hodzic, A., Vautard, R., Beekmann, M., Cheinet, S., Honoré, C., Lioussé, C., and Rouil, L.: Aerosol modeling with CHIMERE: preliminary evaluation at the continental scale, *Atmospheric Environment*, 38, 2803–2817, doi:10.1016/j.atmosenv.2004.02.034, 2004.
- Bian, H., and Prather, M.: Fast-J2: accurate simulation of stratospheric photolysis in global chemical models, *J. Atmos. Chem.*, 41, 281–296, 2002.
- Boldo, E., Medina, S., Le Tertre, A., Hurley, F., Mücke, H.-G., Ballester, F., and Aguilera, I.: Apheis: Health impact assessment of long-term exposure to PM_{2.5} in 23 European cities, *European journal of epidemiology*, 21, 449–458, 2006.
- Boselli, A., Caggiano, R., Cornacchia, C., Madonna, F., Mona, L., Macchiato, M., Pappalardo, G., and Trippetta, S.: Multi year sun-photometer measurements for aerosol characterization in a Central Mediterranean site, *Atmospheric Research*, 104, 98–110, 2012.
- Boylan, J. W. and Russell, A. G.: PM and light extinction model performance metrics, goals, and criteria for three-dimensional air quality models, *Atmospheric Environment*, 40, 4946–4959, 2006.
- Briant, R., Menut, L., Siour, G., and Prigent, C.: Homogenized modeling of mineral dust emissions over Europe and Africa using the CHIMERE model, *Geoscientific Model Development Discussions*, 7, 3441–3480, doi:10.5194/gmdd-7-3441-2014, 2014.
- Burr, M., Zhang, Y., et al.: Source apportionment of fine particulate matter over the Eastern US Part II: source apportionment simulations using CAMX/PSAT and comparisons with CMAQ source sensitivity simulations., *Atmospheric Pollution Research*, 2, 318–336, doi:10.5094/APR.2011.037, 2011.
- Carslaw, K., Boucher, O., Spracklen, D., Mann, G., Rae, J., Woodward, S., and Kulmala, M.: A review of natural aerosol interactions and feedbacks within the Earth system, *Atmospheric Chemistry and Physics*, 10, 1701–1737, 2010.
- Chen, F. and Dudhia, J.: Coupling an advanced land surface-hydrology model with the Penn State-NCAR MM5 modeling system. Part I: Model implementation and sensitivity, *Monthly Weather Review*, 129, 569–585, doi:10.1175/1520-0493(2001)129<0569:CAALSH>2.0.CO;2, 2001.
- Curci, G., Palmer, P. I., Kurosu, T. P., Chance, K., and Visconti, G.: Estimating European volatile organic compound emissions using satellite observations of formaldehyde from the Ozone Monitoring Instrument, *Atmos. Chem. Phys.*, 10, 11 501–11 517, 2010.
- Curci, G., Hogrefe, C., Bianconi, R., Im, U., Balzarini, A., Baró, R., Brunner, D., Forkel, R., Giordano, L., Hirtl, M., et al.: Uncertainties of simulated aerosol optical properties induced by assumptions on aerosol physical and chemical properties: An AQMEII-2

- perspective, *Atmospheric Environment*, doi:10.1016/j.atmosenv.2014.09.009, 2014.
- 1140 Dall'Osto, M., Harrison, R. M., Highwood, E. J., O'Dowd, C., Ceburnis, D., Querol, X., and Achterberg, E. P.: Variation of the mixing state of Saharan dust particles with atmospheric transport, *Atmospheric Environment*, 44, 3135–3146, 2010.
- 1145 Daskalakis, N., Myriokefalitakis, S., and Kanakidou, M.: Sensitivity of tropospheric loads and lifetimes of short lived pollutants to fire emissions, *Atmospheric Chemistry and Physics Discussions*, 14, 22 639–22 676, 2014.
- 1150 Dubovik, O., Smirnov, A., Holben, B., King, M., Kaufman, Y., Eck, T., and Slutsker, I.: Accuracy assessments of aerosol optical properties retrieved from Aerosol Robotic Network (AERONET) Sun and sky radiance measurements, *Journal of Geophysical Research: Atmospheres* (1984–2012), 105, 9791–9806, 2000.
- 1155 Dudhia, J.: Numerical study of convection observed during the winter monsoon experiment using a mesoscale two-dimensional model, *Journal of the Atmospheric Sciences*, 46, 3077–3107, 1989.
- 1160 Fecan, F., Marticorena, B., and Bergametti, G.: Parameterization of the increase of aeolian erosion threshold wind friction velocity due to soil moisture for arid and semi-arid areas, *Annals of Geophysics*, 17, 149–157, 1999.
- 1165 Folberth, G. A., Hauglustaine, D. A., Lathière, J., and Brocheton, F.: Interactive chemistry in the Laboratoire de Météorologie Dynamique general circulation model: model description and impact analysis of biogenic hydrocarbons on tropospheric chemistry, *Atmos. Chem. Phys.*, 6, 2273–2319, 2006.
- 1170 Gerasopoulos, E., Kouvarakis, G., Babasakalis, P., Vrekoussis, M., Putaud, J.-P., and Mihalopoulos, N.: Origin and variability of particulate matter (PM₁₀) mass concentrations over the Eastern Mediterranean, *Atmospheric Environment*, 40, 4679–4690, 2006.
- 1175 Gerasopoulos, E., Amiridis, V., Kazadzis, S., Kokkalis, P., Eleftheratos, K., Andreae, M., Andreae, T., El-Askary, H., and Zerefos, C.: Three-year ground based measurements of aerosol optical depth over the Eastern Mediterranean: the urban environment of Athens, *Atmospheric Chemistry and Physics*, 11, 2145–2159, 2011.
- 1180 Ginoux, P., Chin, M., Tegen, I., Prospero, J. M., Holben, B., Dubovik, O., and Lin, S. J.: Sources and distributions of dust aerosols simulated with the GOCART model, *Journal of Geophysical Research*, 106, 20 255–20 273, 2001.
- 1185 Gobbi, G., Barnaba, F., and Ammannat, L.: Estimating the impact of Saharan dust on the year 2001 PM10 record of Rome, Italy, *Atmospheric Environment*, 41, 261–275, 2007.
- 1190 Gómez-Amo, J., Estellés, V., Segura, S., Marcos, C., Esteve, A., Pedrós, R., Utrillas, M., and Martínez-Lozano, J.: Analysis of a strong wildfire event over Valencia (Spain) during Summer 2012—Part I: Aerosol microphysics and optical properties, *Atmospheric Chemistry and Physics Discussions*, 13, 22 639–22 685, 2013.
- 1195 Guenther, A., Karl, T., Harley, P., Wiedinmyer, C., Palmer, P., and Geron, C.: Estimates of global terrestrial isoprene emissions using MEGAN (Model of Emissions of Gases and Aerosols from Nature), *Atmos. Chem. Phys.*, 6, 3181–3210, 2006.
- Hansen, J., Sato, M., and Ruedy, R.: Radiative forcing and climate response, *Journal of Geophysical Research: Atmospheres*, 102, 6831–6864, doi:10.1029/96JD03436, 1997.
- Hodzic, A., Madronich, S., Bohn, B., Massie, S., Menut, L., and Wiedinmyer, C.: Wildfire particulate matter in Europe during summer 2003: Meso-scale modeling of smoke emissions, transport and radiative effects, *Atmospheric Chemistry and Physics*, 7, 2007.
- Holben, B., Eck, T., Slutsker, I., Tanré, D., Buis, J., Setzer, A., Vermote, E., Reagan, J., Kaufman, Y., Nakajima, T., Lavenu, F., Jankowiak, I., and Smirnov, A.: AERONET - A federated instrument network and data archive for aerosol characterization, *Remote sensing of environment*, 66, 1–16, 1998.
- Hong, S.-Y. and Lim, J.-O. J.: The WRF single-moment 6-class microphysics scheme (WSM6), *J. Korean Meteor. Soc.*, 42, 129–151, 2006.
- Hong, S.-Y., Noh, Y., and Dudhia, J.: A new vertical diffusion package with an explicit treatment of entrainment processes, *Monthly Weather Review*, 134, 2318–2341, doi:10.1175/MWR3199.1, 2006.
- Iacono, M. J., Delamere, J. S., Mlawer, E. J., Shephard, M. W., Clough, S. A., and Collins, W. D.: Radiative forcing by long-lived greenhouse gases: Calculations with the AER radiative transfer models, *Journal of Geophysical Research: Atmospheres* (1984–2012), 113, 2008.
- Im, U. and Kanakidou, M.: Impacts of East Mediterranean megacity emissions on air quality, *Atmospheric Chemistry and Physics*, 12, 6335–6355, doi:10.5194/acp-12-6335-2012, 2012.
- Im, U., Bianconi, R., Solazzo, E., Kioutsioukis, I., Badia, A., Balzarini, A., Baró, R., Bellasio, R., Brunner, D., Chemel, C., Curci, G., Denier van der Gon, H., Flemming, J., Forkel, R., Giordano, L., Jiménez-Guerrero, P., Hirtl, M., Hodzic, A., Honzak, L., Jorba, O., Knote, C., Makar, P., Manders-Groot, A., Neal, L., Pérez, J., Pirovano, G., Pouliot, G., San Jose, R., Savage, N., Schroder, W., Sokhi, R., Syrakov, D., Torian, A., Tuccella, P., Wang, K., Werhahn, J., Wolke, R., Zabkar, R., Zhang, Y., Zhang, J., Hogrefe, C., and Galmarini, S.: Evaluation of operational online-coupled regional air quality models over Europe and North America in the context of AQMEII phase 2. Part II: Particulate matter, *Atmospheric Environment*, doi:10.1016/j.atmosenv.2014.08.072, 2014.
- Israelevich, P., Ganor, E., Alpert, P., Kishcha, P., and Stupp, A.: Predominant transport paths of Saharan dust over the Mediterranean Sea to Europe, *Journal of Geophysical Research: Atmospheres*, 117, n/a–n/a, doi:10.1029/2011JD016482, 2012.
- Israelevich, P. L., Levin, Z., Joseph, J. H., and Ganor, E.: Desert aerosol transport in the Mediterranean region as inferred from the TOMS aerosol index, *Journal of Geophysical Research: Atmospheres*, 107, AAC 13–1–AAC 13–13, doi:10.1029/2001JD002011, 2002.
- Janjic, Z.: The surface layer parameterization in the NCEP Eta Model, *WORLD METEOROLOGICAL ORGANIZATION-PUBLICATIONS-WMO TD*, pp. 4–16, 1996.
- Kain, J. S.: Convective parameterization for mesoscale models: The Kain–Fritsch scheme, *The representation of cumulus convection in numerical models*, *Meteor. Monogr.*, 46, 165–170, 1993.
- Kalnay, E., Kanamitsu, M., Kistler, R., Collins, W., Deaven, D., Gandin, L., Iredell, M., Saha, S., White, G., Woollen, J., Zhu, Y., Chelliah, M., Ebisuzaki, W., Higgins, W., Janowiak, J., Mo, K., Ropelewski, C., Wang, J., Leetmaa, A., Reynolds, R., Jenne, R., and Joseph, D.: The NCEP/NCAR 40-year reanalysis project, *Bull. Amer. Meteorol. Soc.*, pp. 437–471, 1996.

- Kaskaoutis, D., Kambezidis, H., Nastos, P., and Kosmopoulos, P.: Study on an intense dust storm over Greece, *Atmospheric Environment*, 42, 6884–6896, 2008.
- 1260 Katsouyanni, K., Touloumi, G., Spix, C., Schwartz, J., Balducci, F., Medina, S., Rossi, G., Wojtyniak, B., Sunyer, J., Bacharova,¹³²⁰ L., Schouten, J. P., Ponka, A., and Anderson, H. R.: Short term effects of ambient sulphur dioxide and particulate matter on mortality in 12 European cities: results from time series data from the APHEA project, *BMJ*, 314, 1658, doi:10.1136/bmj.314.7095.1658, 1997. ¹³²⁵
- Koçak, M., Mihalopoulos, N., and Kubilay, N.: Contributions of natural sources to high PM₁₀ and PM_{2.5} events in the eastern Mediterranean, *Atmospheric Environment*, 41, 3806–3818, ¹²⁷⁰ 2007.
- Koo, B., Dunker, A. M., and Yarwood, G.: Implementing the De-¹³³⁰coupled Direct Method for Sensitivity Analysis in a Particulate Matter Air Quality Model, *Environmental Science & Technology*, 41, 2847–2854, doi:10.1021/es0619962, PMID: 17533848, ¹²⁷⁵ 2007.
- Koo, B., Wilson, G. M., Morris, R. E., Dunker, A. M., and Yarwood,¹³³⁵ G.: Comparison of source apportionment and sensitivity analysis in a particulate matter air quality model, *Environmental science & technology*, 43, 6669–6675, doi:10.1021/es9008129, 2009.
- 1280 Krzyzanowski, M. and Cohen, A.: Update of WHO air quality guidelines, *Air Quality, Atmosphere & Health*, 1, 7–13, doi:¹³⁴⁰10.1007/s11869-008-0008-9, 2008.
- Lionello, P., Malanotte-Rizzoli, P., Boscolo, R., Alpert, P., Artale, V., Li, L., Luterbacher, J., May, W., Trigo, R., Tsimplis, M., ¹²⁸⁵ Ulbrich, U., and Xoplaki, E.: The Mediterranean climate: an overview of the main characteristics and issues, *Developments*¹³⁴⁵ in earth and environmental sciences, 4, 1–26, 2006.
- Mailler, S., Menut, L., di Sarra, A. G., Becagli, S., Di Iorio, T., Formenti, P., Bessagnet, B., Briant, R., Luis Gómez-Amo, J., ¹²⁹⁰ Mallet, M., Rea, G., Siour, G., Sferlazzo, D. M., Traversi, R., Udisti, R., and Turquety, S.: On the radiative impact of aerosols¹³⁵⁰ on photolysis rates: comparison of simulations and observations in the Lampedusa island during the ChArMEx/ADRIMED campaign, *Atmospheric Chemistry and Physics Discussions*, 15, 7585–7643, doi:10.5194/acpd-15-7585-2015, 2015.
- 1295 Marticorena, B. and Bergametti, G.: Modeling the atmospheric dust¹³⁵⁵ cycle: 1. Design of a soil-derived dust emission scheme, *Journal of Geophysical Research: Atmospheres*, 100, 16 415–16 430, doi:10.1029/95JD00690, 1995.
- 1300 Menut, L., Schmechtig, C., and Marticorena, B.: Sensitivity of the sandblasting fluxes calculations to the soil size distribution accu-¹³⁶⁰racy, *Journal of Atmospheric and Oceanic Technology*, 22, 1875–1884, doi:10.1175/JTECH1825.1, 2005.
- Menut, L., Foret, G., and Bergametti, G.: Sensitivity of mineral dust concentrations to the model size distribution accuracy, *Journal of Geophysical Research*, *Atmospheres*, 112, D10 210, doi:10.1365 ¹³⁰⁵ 1029/2006JD007766, 2007.
- Menut, L., Chiapello, I., and Moulin, C.: Previsibility of mineral dust concentrations: The CHIMERE-DUST forecast during the first AMMA experiment dry season, *J. Geophys. Res.*, 114, D07 202, doi:10.1029/2008JD010523, 2009. ¹³⁷⁰
- Menut, L., Goussebaile, A., Bessagnet, B., Khvorostiyannov, D., and Ung, A.: Impact of realistic hourly emissions profiles on air pollutants concentrations modelled with CHIMERE, *Atmospheric Environment*, 49, 233–244, doi:10.1016/j.atmosenv. ¹³¹⁵ 2011.11.057, 2012.
- Menut, L., Bessagnet, B., Khvorostyanov, D., Beekmann, M., Blond, N., Colette, A., Coll, I., Curci, G., Foret, G., Hodzic, A., Mailler, S., Meleux, F., Monge, J., Pison, I., Siour, G., Turquety, S., Valari, M., Vautard, R., and Vivanco, M.: CHIMERE 2013: a model for regional atmospheric composition modelling, *Geoscientific Model Development*, 6, 981–1028, doi:10.5194/gmd-6-981-2013, 2013.
- Menut, L., Mailler, S., Siour, G., Bessagnet, B., Turquety, S., G., R., Briant, R., Mallet, M., Sciare, J., and P., F.: Ozone and aerosols tropospheric concentrations variability analyzed using the ADRIMED measurements and the WRF-CHIMERE models, *Atmospheric Chemistry and Physics*, submitted.
- Millán, M. M., José Sanz, M., Salvador, R., and Mantilla, E.: Atmospheric dynamics and ozone cycles related to nitrogen deposition in the western Mediterranean, *Environmental Pollution*, 118, 167–186, 2002.
- Monahan, E. C.: In *The Role of Air-Sea Exchange in Geochemical Cycling*, chap. The ocean as a source of atmospheric particles, pp. 129–163, Kluwer Academic Publishers, Dordrecht, Holland, 1986.
- Monks, P., Granier, C., Fuzzi, S., Stohl, A., Williams, M., Aki- moto, H., Amann, M., Baklanov, A., Baltensperger, U., Bey, I., Blake, N., Blake, R., Carslaw, K., Cooper, O., Dentener, F., Fowler, D., Fragkou, E., Frost, G., Generoso, S., Ginoux, P., Grewe, V., Guenther, A., Hansson, H., Henne, S., Hjorth, J., Hofzumahaus, A., Huntrieser, H., Isaksen, I., Jenkin, M., Kaiser, J., Kanakidou, M., Klimont, Z., Kulmala, M., Laj, P., Lawrence, M., Lee, J., Liousse, C., Maione, M., McFiggans, G., Metzger, A., Mieville, A., Moussiopoulos, N., Orlando, J., O’Dowd, C., Palmer, P., Parrish, D., Petzold, A., Platt, U., Pschl, U., Prvt, A., Reeves, C., Reimann, S., Rudich, Y., Sellegri, K., Steinbrecher, R., Simpson, D., ten Brink, H., Theloke, J., van der Werf, G., Vautard, R., Vestreng, V., Vlachokostas, C., and von Glasow, R.: Atmospheric composition change - global and regional air quality, *Atmospheric Environment*, 43, 5268 – 5350, doi:10.1016/j.atmosenv.2009.08.021, 2009.
- Moulin, C., Lambert, C. E., Dayan, U., Masson, V., Ramonet, M., Bousquet, P., Legrand, M., Balkanski, Y. J., Guelle, W., Marticorena, B., Bergametti, G., and Dulac, F.: Satellite climatology of African dust transport in the Mediterranean atmosphere, *Journal of Geophysical Research: Atmospheres*, 103, 13 137–13 144, doi:10.1029/98JD00171, 1998.
- Nabat, P., Somot, S., Mallet, M., Chiapello, I., Morcrette, J. J., Solomon, F., Szopa, S., Dulac, F., Collins, W., Ghan, S., Horowitz, L. W., Lamarque, J. F., Lee, Y. H., Naik, V., Nagashima, T., Shindell, D., and Skeie, R.: A 4-D climatology (1979–2009) of the monthly tropospheric aerosol optical depth distribution over the Mediterranean region from a comparative evaluation and blending of remote sensing and model products, *Atmospheric Measurement Techniques*, 6, 1287–1314, doi:10.5194/amt-6-1287-2013, 2013.
- Nabat, P., Somot, S., Mallet, M., Michou, M., Sevault, F., Driouech, F., Meloni, D., di Sarra, A., Di Biagio, C., Formenti, P., Sicard, M., Léon, J.-F., and Bouin, M.-N.: Dust aerosol radiative effects during summer 2012 simulated with a coupled regional aerosol-atmosphere-ocean model over the Mediterranean, *Atmospheric Chemistry and Physics*, 15, 3303–3326, doi:10.5194/acp-15-3303-2015, 2015.

- 1375 Pace, G., Meloni, D., and di Sarra, A.: Forest fire aerosol over the Mediterranean basin during summer 2003, *Journal of Geophysical Research: Atmospheres*, 110, n/a–n/a, doi:10.1029/2005JD005986, 2005.
- 1380 Péré, J., Mallet, M., Pont, V., and Bessagnet, B.: Evaluation of an aerosol optical scheme in the chemistry-transport model CHIMERE, *Atmospheric Environment*, 44, 3688–3699, doi:10.1016/j.atmosenv.2010.06.034, 2010.
- 1385 Pope III, C. A. and Dockery, D. W.: Health effects of fine particulate air pollution: lines that connect, *Journal of the Air & Waste Management Association*, 56, 709–742, 2006.
- 1390 Prigent, C., Jiménez, C., and Catherinot, J.: Comparison of satellite microwave backscattering (ASCAT) and visible/near-infrared reflectances (PARASOL) for the estimation of aeolian aerodynamic roughness length in arid and semi-arid regions, *Atmos. Meas. Tech.*, 5, 2703–2712, 2012.
- 1395 Prospero, J. M., Ginoux, P., Torres, O., Nicholson, S. E., and Gill, T. E.: ENVIRONMENTAL CHARACTERIZATION OF GLOBAL SOURCES OF ATMOSPHERIC SOIL DUST IDENTIFIED WITH THE NIMBUS 7 TOTAL OZONE MAPPING SPECTROMETER (TOMS) ABSORBING AEROSOL PRODUCT, *Reviews of Geophysics*, 40, 2–1–2–31, doi:10.1029/2000RG000095, 2002.
- 1400 Putaud, J.-P., Van Dingenen, R., Alastuey, A., Bauer, H., Birmili, W., Cyrys, J., Flentje, H., Fuzzi, S., Gehrig, R., Hansson, H.-C., et al.: A European aerosol phenomenology–3: Physical and chemical characteristics of particulate matter from 60 rural, urban, and kerbside sites across Europe, *Atmospheric Environment*, 44, 1308–1320, 2010.
- 1405 Remer, L. A., Kaufman, Y. J., Tanré, D., Mattoo, S., Chu, D. A., Martins, J. V., Li, R.-R., Ichoku, C., Levy, R. C., Kleidman, R. G., Eck, T. F., Vermote, E., and Holben, B. N.: The MODIS Aerosol Algorithm, Products and Validation, Special Section, *Journal of the Atmospheric Sciences*, 62, 947–973, 2005.
- 1410 Remer, L. A., Tanre, D., Kaufman, Y. J., Levy, R., and Mattoo, S.: Algorithm for remote sensing of tropospheric aerosol from MODIS: Collection 005, National Aeronautics and Space Administration, 2006.
- 1415 Ripoll, A., Minguillón, M. C., Pey, J., Pérez, N., Querol, X., and Alastuey, A.: Joint analysis of continental and regional background environments in the western Mediterranean: PM₁ and PM₁₀ concentrations and composition, *Atmospheric Chemistry and Physics*, 15, 1129–1145, doi:10.5194/acp-15-1129-2015, 2015.
- 1420 Rodríguez, S., Querol, X., Alastuey, A., and de la Rosa, J.: Atmospheric particulate matter and air quality in the Mediterranean: a review, *Environmental Chemistry Letters*, 5, 1–7, doi:10.1007/s10311-006-0071-0, 2007.
- 1425 Roustan, Y., Sartelet, K., Tombette, M., Debry, É., and Sportisse, B.: Simulation of aerosols and gas-phase species over Europe with the POLYPHEMUS system. Part II: Model sensitivity analysis for 2001, *Atmospheric Environment*, 44, 4219–4229, 2010.
- 1430 Salvador, P., Alonso, S., Pey, J., Artíñano, B., de Bustos, J., Alastuey, A., and Querol, X.: African dust outbreaks over the western Mediterranean basin: 11 year characterization of atmospheric circulation patterns and dust source areas, *Atmospheric Chemistry and Physics Discussions*, 14, 5495–5533, 2014.
- 1435 Sartelet, K. N., Couvidat, F., Seigneur, C., and Roustan, Y.: Impact of biogenic emissions on air quality over Europe and North America, *Atmospheric Environment*, 53, 131–141, 2012.
- 1440 Sayer, A. M., Hsu, N. C., Bettenhausen, C., and Jeong, M.-J.: Validation and uncertainty estimates for MODIS collection 6 “Deep Blue” aerosol data, *J. Geophys. Res. Atmospheres*, 118, 7864–7872, 2013.
- 1445 Skamarock, W., Klemp, J., Dudhia, J., Gill, D., Barker, D., Duda, M., Huang, X., Wang, W., and Powers, J.: A description of the advanced research WRF version 3., NCAR Technical Note, p. 123pp, 2008.
- 1450 Solazzo, E., Bianconi, R., Pirovano, G., Matthias, V., Vautard, R., Moran, M. D., Appel, K. W., Bessagnet, B., Brandt, J., Christensen, J. H., Chemel, C., Coll, I., Ferreira, J., Forkel, R., Francis, X. V., Grell, G., Grossi, P., Hansen, A. B., Miranda, A. I., Nopmongkol, U., Prank, M., Sartelet, K. N., Schaap, M., Silver, J. D., Sokhi, R. S., Vira, J., Werhahn, J., Wolke, R., Yarwood, G., Zhang, J., Rao, S. T., and Galmarini, S.: Operational model evaluation for particulate matter in Europe and North America in the context of AQMEII, *Atmospheric Environment*, 53, 75–92, doi:10.1016/j.atmosenv.2012.02.045, 2012.
- 1455 Stocker, T., Qin, D., Plattner, G., Tignor, M., Allen, S., Boschung, J., Nauels, A., Xia, Y., Bex, V., and Midgley, P.: Climate change 2013: the physical science basis. Contribution of Working Group I to the Fifth Assessment Report of the Intergovernmental Panel on Climate Change, 2013.
- 1460 Textor, C., Schulz, M., Guibert, S., Kinne, S., Balkanski, Y., Bauer, S., Bernsten, T., Berglen, T., Boucher, O., Chin, M., Dentener, F., Diehl, T., Easter, R., Feichter, H., Fillmore, D., Ghan, S., Ginoux, P., Gong, S., Grini, A., Hendricks, J., Horowitz, L., Huang, P., Isaksen, I., Iversen, I., Kloster, S., Koch, D., Kirkevåg, A., Kristjánsson, J. E., Krol, M., Lauer, A., Lamarque, J. F., Liu, X., Montanaro, V., Myhre, G., Penner, J., Pitari, G., Reddy, S., Seland, Ø., Stier, P., Takemura, T., and Tie, X.: Analysis and quantification of the diversities of aerosol life cycles within AeroCom, *Atmospheric Chemistry and Physics*, 6, 1777–1813, doi:10.5194/acp-6-1777-2006, 2006.
- 1465 Turquet, S., Menut, L., Bessagnet, B., Anav, A., Viovy, N., Maignan, F., and Wooster, M.: APIFLAME v1.0: High resolution fire emission model and application to the Euro-Mediterranean region, *Geoscientific Model Development*, 7, 587–612, doi:10.5194/gmd-7-587-2014, 2014.
- 1470 Vuolo, M. R., Chepfer, H., Menut, L., and Cesana, G.: Comparison of mineral dust layers vertical structures modeled with CHIMERE-DUST and observed with the CALIOP lidar, *Journal of Geophysical Research: Atmospheres*, 114, doi:10.1029/2008JD011219, 2009.
- 1475 Wild, O., Zhu, X., and Prather, J.: Fast-J: accurate simulation of the in- and below-cloud photolysis in tropospheric chemical models, *J. Atmos. Chem.*, 37, 245–282, 2000.
- 1480 Yu, H., Kaufman, Y. J., Chin, M., Feingold, G., Remer, L. A., Anderson, T. L., Balkanski, Y., Bellouin, N., Boucher, O., Christopher, S., DeCola, P., Kahn, R., Koch, D., Loeb, N., Reddy, M. S., Schulz, M., Takemura, T., and Zhou, M.: A review of measurement-based assessments of the aerosol direct radiative effect and forcing, *Atmospheric Chemistry and Physics*, 6, 613–666, doi:10.5194/acp-6-613-2006, 2006.

5.3 Conclusions

L'analyse effectuée dans ce chapitre a permis dans un premier temps d'évaluer la simulation de l'AOD et des PM de surface par le modèle CHIMERE. Comparé aux concentrations en surface mesurées aux stations du réseau AIRBASE, dont les stations sont essentiellement situées au Nord de l'Europe, et aux deux stations CHARMEX, les performances horaires et journalières du modèle sont correctes. Plus de 90% des stations ont un MFE¹ et un MFB² inférieurs ou égaux à 75% and $\pm 60\%$, respectivement. Les corrélations avec l'AOD MODIS et AERONET vont de 0,37 à 0,77 et le MFE de 34,3% pour AERONET et 27,6% pour MODIS. Les principaux pics de concentration sont reproduits par le modèle, mais la variabilité est soumise à des incertitudes (coefficients de corrélation de 0,19 à 0,57 pour les PM selon la région). Des biais importants sont également notés avec certains pics surestimés d'un facteur 4, principalement des pics de poussières minérales. La modélisation des flux de poussières minérales nécessite une estimation de seuil de friction, qui permet le déclenchement des événements de poussière. Lorsque ces événements se déclenchent dans le modèle, celui-ci surestime la quantité libérée de PM. Cependant, dans le Sud Est, la comparaison suggère des sources manquantes de grosses particules (corrélation et biais bas pour la simulation des PM et de l'AOD).

Ces performances sont très correctes pour le modèle CHIMERE, comparé à l'état de l'art de la modélisation des particules. Par exemple, l'inter-comparaison de 10 modèles pour l'année 2006 en Europe et Amérique du Nord, par [Solazzo et al. \(2012\)](#), montre que les modèles actuels sous-estiment les PM₁₀ avec un MFE souvent supérieur à 75%. Cela est notamment dû aux erreurs dans les émissions et les données météorologiques comme la vitesse du vent.

Les résultats de l'étude de sensibilité montrent que la région Euro-Méditerranéenne est fortement influencée par le transport de poussières minérales et les émissions anthropiques (62% et 19% respectivement pour les PM₁₀ de surface, et 17% et 52% pour les PM_{2.5} de surface).

Pour les poussières désertiques, la contribution est la plus importante dans l'Ouest du bassin (86% pour les PM₁₀ et 44% pour les PM_{2.5}) et les concentrations de particules sont les plus élevées. Tous les pics dans cette région sont dus aux poussières minérales. Dans le Nord, les poussières désertiques affectent la troposphère libre, tandis que ce sont les sources anthropiques qui dominent en surface (jusqu'à 75% de contribution sur les PM_{2.5}). Des poussières minérales sont transportées loin au Nord dans les simulations, mais cette influence est surestimée comparé aux observations. Les émissions anthropiques influent aussi l'Est du bassin à hauteur de 61% en moyenne, ce qui est cohérent avec l'étude de [Im and Kanakidou \(2012\)](#) sur la même région.

Les émissions de sel marins impactent les villes côtières à hauteur de 29% sur les PM₁₀ de surface. Les émissions biogéniques contribuent au centre Nord surtout sur les PM_{2.5} (20%).

Enfin, les feux de végétation sont une source significative dans le bassin, avec 12.2% en moyenne pour le centre du bassin méditerranéen.

1. Mean fractional error
2. Mean fractional bias

Une analyse similaire a été menée pour déterminer les sources responsables des dépassements de seuils détectés par les stations de surface. Ces seuils sont en moyenne journalière de $50 \mu\text{g m}^{-3}$ pour les PM_{10} (réglementation de l'Union Européenne), et de $25 \mu\text{g m}^{-3}$ for $\text{PM}_{2.5}$ (recommandation de l'OMS). Le nombre de dépassements est surestimé par le modèle à cause des contributions de poussières minérales et de feux, mais ces dépassements sont modélisés au bon moment. Pour des contributions plus robustes, nous avons optimisé les résultats du modèle corrigeant les biais de fond systématiques par rapport aux stations de surface. Les résultats ainsi obtenus, pour l'Ouest et le centre Nord du domaine (là où il y a le plus de stations) montrent que les sources qui contribuent à elles seules aux dépassements (c'est-à-dire lorsque la concentration de PM due à cette source dépasse le seuil) sont les poussières désertiques et les feux pour les PM_{10} (dans 36% et près de 1% des dépassements respectivement), et les sources anthropiques et les feux pour les $\text{PM}_{2.5}$ (dans 21% et 5 des 256 dépassements). Les autres dépassements sont provoqués par un mélange des différentes sources.

Cette étude a permis de confirmer l'influence très forte des poussières minérales sur la région, déjà pointée par des études antérieures limitées à certains sites spécifiques (Escudero et al., 2007). La part des sources naturelles dans les dépassements de seuil au Nord et à l'Ouest du bassin est important : 21% des dépassements de $\text{PM}_{2.5}$ sont dû uniquement aux émissions anthropiques.

Outre leur significative contribution en moyenne sur l'été dans certaines régions (12,2%), les feux peuvent être responsables de dépassements de seuils de PM_{10} et de $\text{PM}_{2.5}$ (9 dépassements pour les stations situées dans l'ouest du bassin) lors des épisodes.

Une analyse plus détaillée de ces contributions par les feux est entreprise dans le chapitre suivant.

6 | Impact des feux sur la qualité de l'air en Europe : cas de l'été 2012

Sommaire

6.1	Introduction	100
6.2	Les feux pendant l'été 2012	100
6.3	Evaluation de l'impact des feux avec CHIMERE	102
6.3.1	AOD	102
6.3.2	PM de surface	105
6.3.3	Dépassements de seuils	107
6.3.4	Spéciation	107
6.3.5	Influence de la variation de la hauteur d'injection et de la variabilité diurne des émissions de feux	108
6.4	Conclusions	110

6.1 Introduction

Les résultats présentés dans le Chapitre 4 ont montré que plusieurs régions se démarquent pendant l'année 2012 en terme de surfaces brûlées : l'Espagne, le Portugal, l'Afrique du Nord et l'Europe de l'Est. Une première approche du bilan des feux sur la qualité de l'air au Chapitre 5 a permis de déterminer que la contribution des feux sur les concentrations de $PM_{2,5}$ en surface était de 12% sur la région Euro-Méditerranéenne et 20% localement, en moyenne sur l'été. Le présent chapitre vise à analyser plus en détail ces contributions pendant les événements de feux, pour répondre aux objectifs de thèse : quelle est la contribution et l'influence spécifique des feux de végétation sur la qualité de l'air en Europe ? Quels manques de connaissances sont les plus limitants dans le calcul des aérosols provenant des feux de végétation ?

Le rapport de l'EFFIS de 2012 (Schmuck et al., 2013) reporte un total d'aire brûlée de 519424 ha pour les pays du sud de l'Europe, parmi les plus hauts depuis l'année 2000. L'Espagne a été le pays d'Europe du Sud le plus affecté par les feux de végétation, 40% du total soit 207770 ha environ ont été incendiés. Pendant la dernière semaine de juin, une vague de chaleur a affecté l'ensemble du pays, et a contribué à la propagation des feux dans la région de Valence, totalisant 47631 ha sur une période de 4 jours (du 28 juin au 1er juillet). Le Nord des Balkans a également connu une saison de feux intense, la pire depuis l'été 2007 d'après le même rapport (avec 214 km² brûlés en République de Macédoine) entre le 21 et le 28 août 2012.

Dans ce chapitre, ces différents événements sont caractérisés et leur impact évalué avec le modèle CHIMERE. Dans un premier temps, les feux sont caractérisés en terme de type de végétation brûlée et d'émissions correspondantes. L'évaluation de leur impact sur les concentrations en aérosols est ensuite détaillée à l'aide du modèle CHIMERE et des observations de PM de surface et d'AOD.

6.2 Les feux pendant l'été 2012

La Figure 6.1 montre la répartition spatiale du flux d'émission total de matière organique primaire provenant des feux sur la région Euro-Méditerranéenne. Deux zones se détachent : la péninsule Ibérique et les Balkans.

La série temporelle de ce flux est présentée sur la Figure 6.2. Les principaux événements qui se sont déroulés en Espagne (courbe MED-We) se situent entre le 28 juin et le 4 juillet, et entre le 19 et 22 août. Un feu s'est également déclaré le 22 juillet ponctuellement au nord de Barcelone. Des feux au Portugal se sont déclarés entre le 18 et 23 juillet. Dans les Balkans (courbe MED-Ce), l'épisode le plus intense de l'été a eu lieu du 21 au 31 août. Ces dates sont cohérentes avec ce qui a été reporté dans le rapport de l'EFFIS, grâce à la localisation des feux avec MODIS. Le Tableau 6.1 résume le total en surface brûlée et le pourcentage des trois principaux types de végétation impliqués. Les totaux utilisés ont été comparés dans la limite du possible avec les rapports de surface brûlée de l'EFFIS. Pour la valeur dans les Balkans par exemple, la surface brûlée dans APIFLAME est de 518 km². Pour cette épisode, le rapport indique que 214 km² ont brûlé en République de Macédoine, et donne des totaux de surface brûlée pour le mois d'août entier pour les pays voisins, rendant difficile la comparaison (la Bosnie-Herzégovine à elle seule a vu brûler 626 km² au

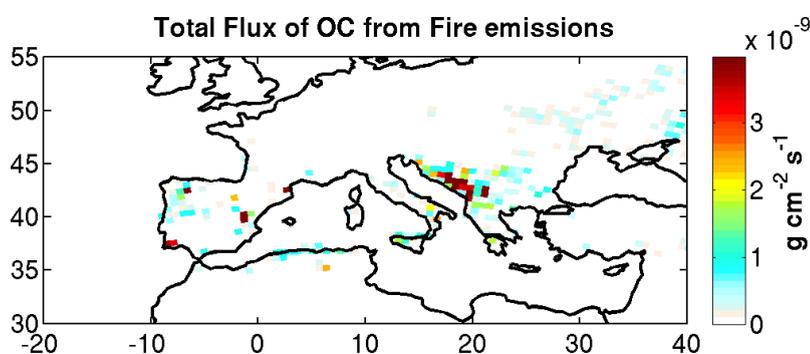


Figure 6.1 – Flux total des émissions de matière organique primaire provenant des feux de végétation pendant l'été 2012 en Europe (juin-juillet-août), selon l'inventaire APIFLAME.

total en août d'après le rapport). Pour les autres régions considérées (Espagne et Portugal), les surfaces brûlées sont cohérentes avec le rapport, bien qu'en général sous-estimées (de 10 à 30%).

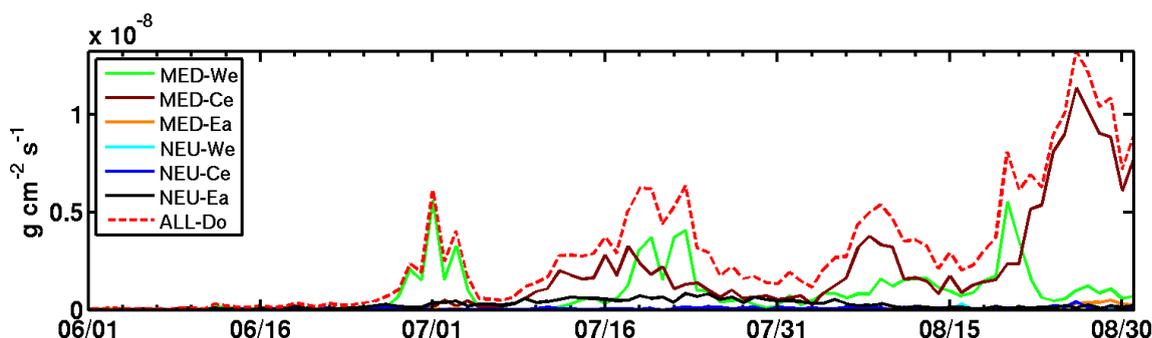


Figure 6.2 – Série temporelle du flux total des émissions de matière organique primaire provenant des feux de végétation pendant l'été 2012 en Europe (Juin-Juillet-Août), selon l'inventaire APIFLAME. La région Euro-Méditerranéenne et ses sous-régions sont représentées par les différentes courbes.

La hauteur des panaches est également un paramètre de la modélisation des feux pouvant impacter les concentrations d'aérosols en surface et leur transport. On cherche donc à la caractériser pour ces événements, grâce à l'instrument MISR (Chapitre 2). MISR n'observe pas la plupart de ces épisodes au moment le plus intense du fait de son manque de couverture temporelle. Néanmoins, 2 jours exploitables ont été retenus : le 20 juillet pour les feux au Sud du Portugal (le pic de surface brûlée étant le 18 juillet), et le 30 août dans les Balkans. Au Sud du Portugal, la hauteur ne dépasse pas 2 km, et est basse proche de la source (700 m). Dans les Balkans en revanche, le panache atteint entre 3 et 4 km. Le profil d'injection déterminé avec MINX le 30 août est représenté sur la Figure 6.3. L'instrument CALIOP passe sur cette région le 24 août, et indique des panaches atteignant les 5 km.

Tableau 6.1 – Surface brûlée totale utilisée pour la modélisation des émissions de feux dans l’inventaire APIFLAME, et proportion des trois principaux types de végétation correspondants. La surface brûlée reportée par l’EFFIS est également indiquée.

Episodes	Surface brûlée (km ²)		Végétation		
	APIFLAME	EFFIS	Agr.	Forêt	Maquis
Espagne					
27 juin-4 juillet	416,6	476	18%	10,2%	12,4%
19-22 août	107,7	122	9,7%	63,3%	20,4%
Portugal					
18-23 juillet	153,7	214,4	25%	32,5%	29,5%
Balkans					
21-31 août	518	214 ^a	11,2%	49,4%	19,5%

^a Seulement pour la République de Macédoine

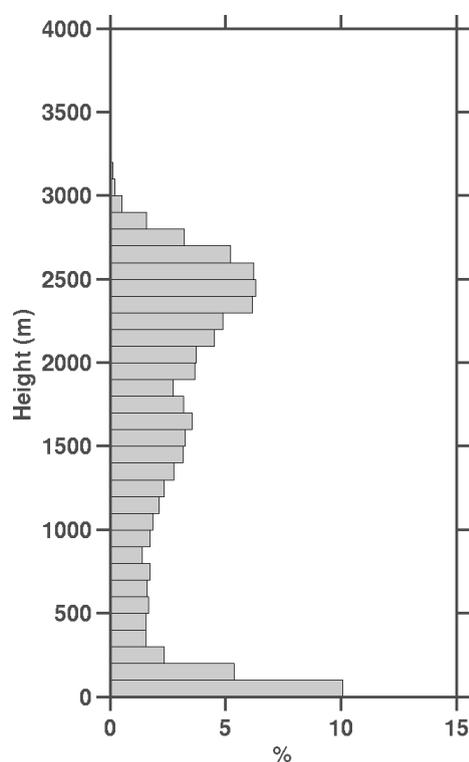


Figure 6.3 – Profil de hauteurs d’injection déterminé avec le logiciel MINX pour les feux dans les Balkans, le 30 août 2012.

6.3 Evaluation de l’impact des feux avec CHIMERE

6.3.1 AOD

Les cartes d’AOD à 550 nm pour les 4 événements sont représentées sur la [Figure 6.4](#). Les trois premiers épisodes en Espagne sont difficiles à distinguer dans les observations d’épaisseur optique. La principale difficulté est le mélange avec les pou-

sières minérales transportées depuis l'Afrique du Nord (Rea et al., 2015). Le mode fin de MODIS ne présente pas de données valides pendant ces épisodes. L'épisode dans les Balkans fin août est au contraire nettement observable, avec une moyenne de l'épaisseur optique d'environ 1 pendant la période, et une contribution du mode fin importante.

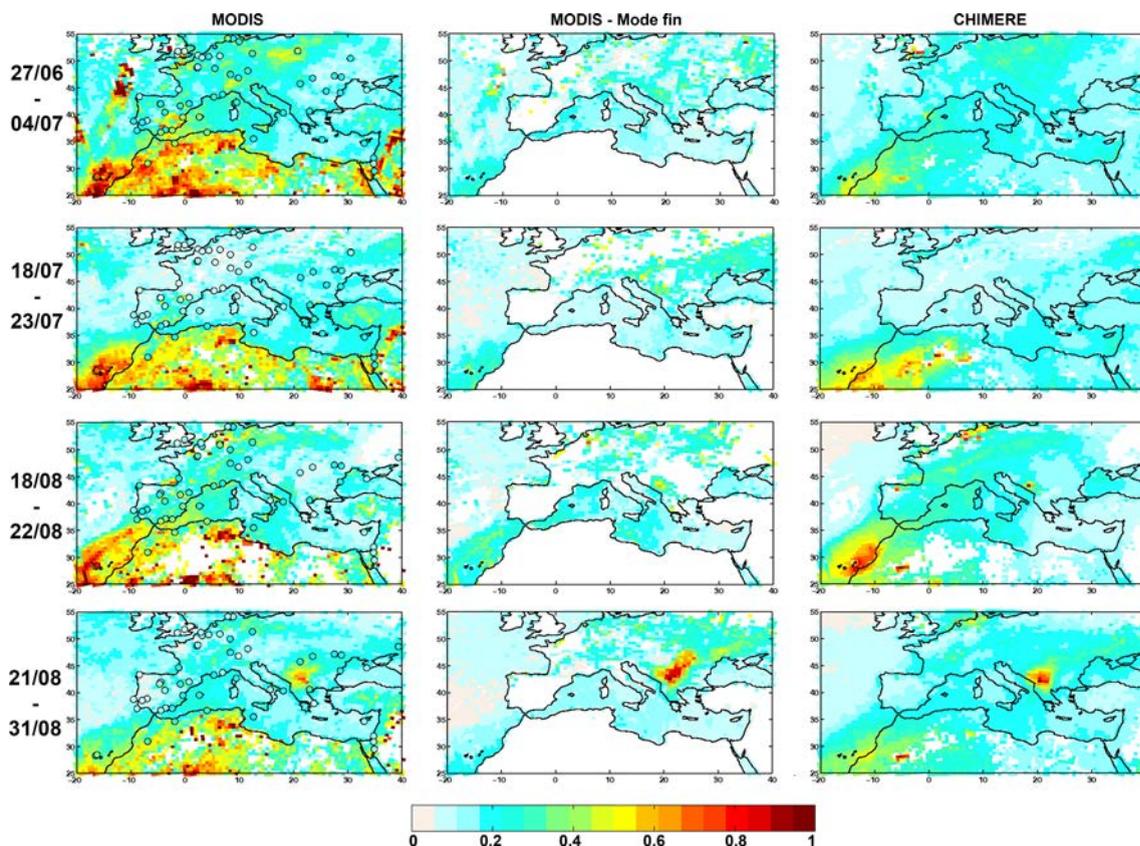


Figure 6.4 – Cartes d'épaisseur optiques pour les 4 événements notables de feux de l'été 2012 (27 juin-4 juillet, 18-23 juillet, 19-22 août et 21-31 août). La première colonne représente l'AOD MODIS à 550 nm, la deuxième colonne l'AOD mode fin de MODIS, et la dernière colonne l'AOD modélisé par CHIMERE à la même heure que le passage de MODIS.

Les séries temporelles de l'AOD MODIS en moyenne régionale pour chaque événement sont représentées sur la Figure 6.10 (pour le mode fin). Les stations AERONET proches des épisodes ont également été sélectionnées. Les données d'AOD à 500 nm et l'exposant d'Angström (440-870 nm) sont visibles sur la Figure 6.10 (pour les 4 épisodes sélectionnés), avec les résultats de la simulation CHIMERE. Comme l'a montré le Chapitre 5, le modèle est très cohérent en moyenne journalière avec les observations d'épaisseur optique pendant l'ensemble de la période. La corrélation se dégrade pour certaines stations pendant les épisodes de feux, dû à la difficulté à simuler la variabilité jour à jour (incertitude sur la détection des surfaces brûlées par MODIS). De plus, les hypothèses de simple diffusion et de particules sphériques dans le calcul de l'AOD dans CHIMERE peuvent aussi entraîner des

incertitudes plus grandes (jusqu'à 20% pour l'hypothèse de simple diffusion) dans le cas de panaches denses (Liu et al., 2011; Stromatas et al., 2012).

Tableau 6.2 – *Statistiques journalières et horaires des comparaisons entre l'AOD simulé par le modèle (Mod.) et mesuré aux stations AERONET (Obs.), pour les événements de feux de l'été 2012 : 27 juin-4 juillet et 19-22 août en Espagne, 18-23 juillet au Portugal, et 21-31 août dans les Balkans.*

Episodes	Nb points	Moyenne		R	RMSE	MNB
		Mod.	Obs.			
Burjassot (23.8 ° E ; 38 ° N)						
27 juin-4 juillet						
journalier	7	0.41	0.45	0.05	0.18	3.6%
horaire	49	0.40	0.45	0.43	0.21	-0.5%
Arcachon (1.2 ° W ; 44.7 ° N)						
19-22 août						
journalier	4	0.35	0.36	-0.70	0.15	14.4%
horaire	35	0.38	0.31	-0.65	0.20	51.0%
Sagres (3.1 ° E ; 45.8 ° N)						
18-23 juillet						
journalier	5	0.15	0.17	0.99	0.08	25.5%
horaire	40	0.17	0.20	0.92	0.09	19.6%
Timisoara (4.6 ° W ; 42 ° N)						
21-31 août						
journalier	10	0.29	0.28	0.95	0.08	0.3%
horaire	114	0.29	0.29	0.89	0.13	0.4%

A Burjassot, pour l'épisode du 27 juin au 4 juillet, les valeurs d'AOD vont de 0,3 à 0,7. La valeur du coefficient d'Angström (entre 0,1 et 0,3) indique que le début de l'épisode est marqué par une teneur en grosses particules (poussières minérales). Ce coefficient atteint une valeur proche de 2 le 1^{er} juillet puis supérieure à 1 ensuite. L'AOD modélisé par CHIMERE se distingue par 2 pics, le deuxième dû aux feux (d'après la simulation sans les feux). Ce deuxième pic est sous-estimé d'un facteur 2 (0,3 pour CHIMERE vs 0,6 pour les observations). Bien que les valeurs soient proches pour cette station (biais et erreur faibles), la corrélation est de 0,05.

Le pic de l'épisode au sud du Portugal du 18 au 23 juillet est quant à lui sous-estimé à Sagres (observé en moyenne journalière à 0,4 vs 0,2 pour CHIMERE le 19 juillet). Le coefficient d'Angström indique là encore un mélange avec des particules grossières (le 20 juillet).

La station Arcachon est la seule située à proximité des feux du 19 au 22 août au Nord de l'Espagne et avec des données pendant la période. Le début de l'épisode se mélange avec des grosses particules (coefficient d'Angström inférieur à 0,5) avec un AOD sous-estimé puis surestimé (14,4%) lorsque l'épisode CHIMERE prend en compte les feux.

Enfin, le dernier épisode des Balkans est le plus visible dans les observations, grâce à sa localisation (loin des panaches transportés d'Afrique du Nord). L'AOD

ici est correctement modélisé par CHIMERE avec un coefficient de corrélation de 0,95 et un biais de 0,03%. La prise en compte des feux permet de réaliser cette performance (AOD allant jusqu'à 0,8).

6.3.2 PM de surface

La Figure 6.5 représente la modélisation des $PM_{2.5}$ de surface pour ces quatre épisodes. Sur les simulations, les différents cas de feux se démarquent bien. Ce n'est pas forcément le cas dans les observations disponibles. Parmi les stations AIRBASE, nous avons sélectionné celles à proximité de chaque épisode de feux et dont la contribution des feux simulée pendant ces épisodes est supérieure à 20%. Les statistiques de la comparaison modèle-observations pour ces stations lors de ces événements sont indiquées dans le Tableau 6.3.

Tableau 6.3 – Statistiques journalières des concentrations de PM_{10} et $PM_{2.5}$ de surface simulés par le modèle (Mod.) et mesurés aux stations AirBase (Obs.), pour les événements de feux de l'été 2012 : 27 juin-4 juillet et 19-22 août en Espagne, 18-23 juillet au Portugal, et 21-31 août dans les Balkans. Pour les PM_{10} , la statistique sur toutes les stations et uniquement sur les stations mesurant simultanément les $PM_{2.5}$ est notée. Le nombre de dépassements de seuils de qualité de l'air ($50 \mu g m^{-3}$ pour les PM_{10} et $25 \mu g m^{-3}$ pour les $PM_{2.5}$) est également indiqué.

Episodes	Nombre stations/points	Moyenne		R	RMSE	MNB	Dépassements		
		Mod.	Obs.				Mod.	noF	Obs.
Espagne									
27 juin-4 juillet									
PM_{10}	20/159	38.8	40.5	0.84	22.9	1.0%	42	32	36
PM_{10}^a	11/87	46.0	43.2	0.78	27.5	19.4%	26	18	21
$PM_{2.5}$	11/87	22.0	17.8	0.48	14.4	33.9%	23	0	17
19-22 août									
PM_{10}	32/126	28.2	22.5	0.47	14.8	51.1%	19	5	11
PM_{10}^a	13/42	29.7	19.6	0.35	16.0	66.6%	10	3	7
$PM_{2.5}$	13/49	18.7	9.4	0.36	15.0	160.8%	10	0	2
Portugal									
18-23 juillet									
PM_{10}	8/48	33.7	23.7	0.69	20.4	48.8%	9	0	2
PM_{10}^a	6/36	26.3	24.7	0.81	14.1	10.6%	2	0	2
$PM_{2.5}$	6/36	18.8	10.7	0.80	13.6	111.4%	4	0	1
Balkans									
21-31 août									
PM_{10}	5/55	34.5	46.4	0.85	18.4	-30.1%	10	0	19
PM_{10}^a	1/11	60.9	79.6	0.79	26.5	-25.9%	7	0	10
$PM_{2.5}$	1/11	49.5	37.9	0.76	23.9	22.6%	8	0	10

^a aux stations mesurant aussi la concentration en $PM_{2.5}$

La concentration en $PM_{2.5}$ de surface est surestimée pour tous les épisodes (de

22,6% dans les Balkans à 160,8% pour le Nord de l'Espagne fin août). Les PM_{10} de surface sont également surestimés mais avec une amplitude plus petite (jusqu'à 51,1% pour le Nord de l'Espagne fin août). Les concentrations de PM_{10} sont en revanche sous-estimées dans les Balkans (-30,1%).

Les stations représentées sur la Figure 6.10 montrent toutes une contribution nécessaire des feux dans le modèle pour reproduire les valeurs observées, excepté pour l'évènement au Nord de l'Espagne pendant lequel le modèle est plus cohérent dans sa configuration sans les feux. Cet épisode est très local dans les observations, malgré l'ampleur du feu (122 km² selon l'EFFIS), et CHIMERE transporte ici trop loin les émissions, en plus d'une quantité trop importante de PM modélisé (confirmée par la surestimation de l'AOD). Pour ce feu, on remarque que le type de végétation assigné à de la forêt est beaucoup plus important (63,3%) comparé aux autres épisodes.

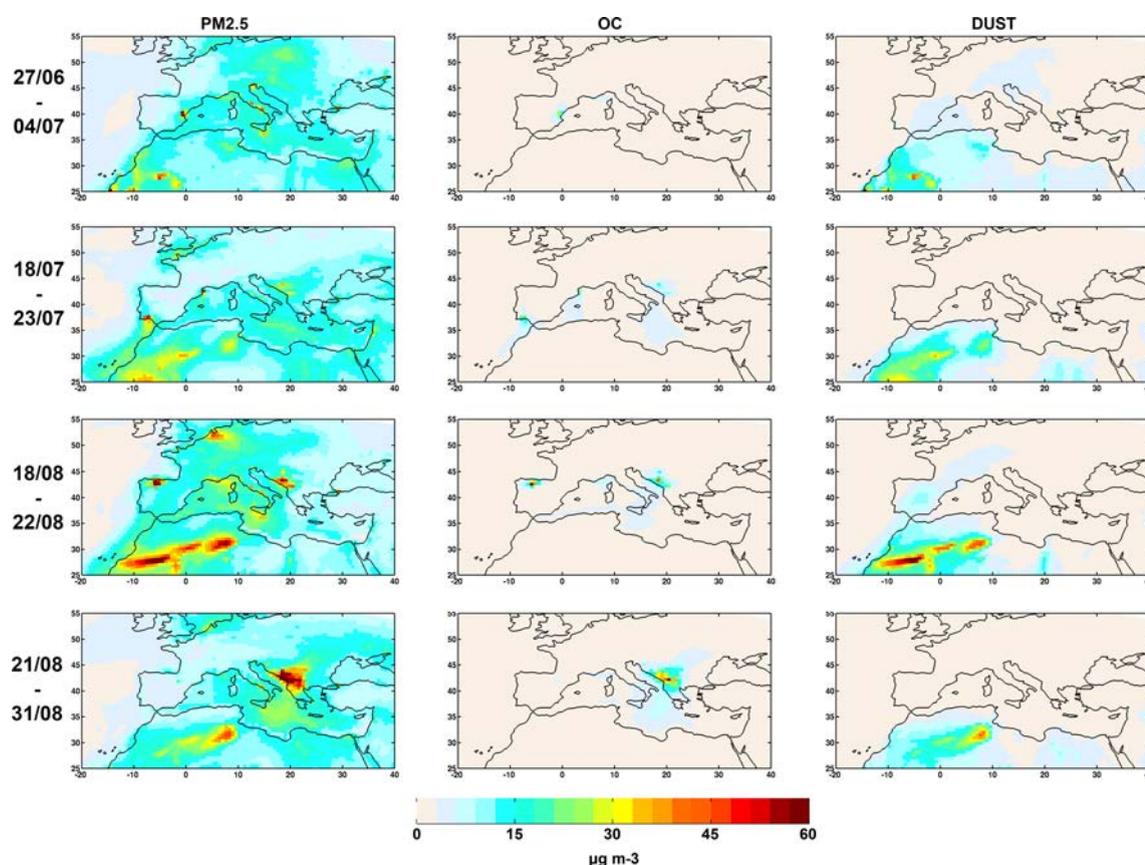


Figure 6.5 – Cartes de $PM_{2.5}$ de surface modélisé par CHIMERE pour les 4 évènements notables de feux de l'été 2012 (28 juin-4 juillet, 19-23 juillet, 20-22 août et 24-31 août). La première colonne représente la concentration en $PM_{2.5}$, la deuxième colonne la concentration de carbone organique (OC) qui y contribue, et la dernière colonne la concentration en poussière minérale qui y contribue.

6.3.3 Dépassements de seuils

Le [Tableau 6.3](#) indique le nombre de dépassements observé. Globalement, le nombre de dépassements observés est le plus élevé pour l'épisode des Balkans (par rapport au nombre de stations), avec 19 dépassements de PM_{10} sur 5 stations et 10 dépassements pour la seule station mesurant les $PM_{2.5}$. La série temporelle du nombre de dépassements pour les observations et le modèle avec et sans feux est montrée sur la [Figure 6.11](#), sur les deux dernières lignes.

Que ce soit pour les $PM_{2.5}$ ou les PM_{10} , ce nombre de dépassements est systématiquement surestimé en Espagne et au Portugal, et sous-estimé pour celui des Balkans. Cependant le modèle sans les feux sous-estime les dépassements, surtout pour les $PM_{2.5}$ (pour l'épisode du 27 juin en Espagne par exemple, 17 dépassements sont détectés dans les observations, contre 0 pour la simulation sans feux et 23 pour celle avec feux). En Espagne, beaucoup de dépassements du seuil de PM_{10} sont dus aux poussières minérales (les 27, 28 et 29 juin, tous les dépassements sont dus aux poussières minérales, et les 19 et 20 août, 50% sont dus aux événements de feux). Le nombre de jours avec des dépassements est largement surestimé en Espagne et au Portugal (4 jours contre 1 seul dans les observations pour l'épisode au Portugal par exemple), traduisant une quantité trop importante d'émissions (ou une hauteur d'injection trop basse, mais la vue de MISR le 20 juillet indique que le panache était plutôt bas ce jour là).

Pour l'épisode dans les Balkans, le nombre de jours présentant des dépassements est bien modélisé (10 jours observés pour 8 et 7 simulés pour les dépassements de $PM_{2.5}$ et PM_{10} respectivement).

6.3.4 Spéciation

Les feux peuvent émettre une forte concentration d'OC¹, et de POM². Mais ils peuvent aussi entraîner la formation de SOA³ en raison de l'émission de gaz précurseurs réagissant dans l'atmosphère. Pendant les épisodes sélectionnés, la part d'OC sur la concentration en $PM_{2.5}$ de surface va de 9-14% dans la péninsule Ibérique, à 27% dans les Balkans. Cela est similaire pour les POM. Les poussières minérales contribuent fortement à cette concentration dans la péninsule Ibérique (de 40 à 60% contre 26% dans les Balkans), comme déjà constaté pour le nombre de dépassements qui n'est pas dû aux feux.

Les SOA quant à eux contribuent de 3 à 6% en Espagne et au Portugal, et 10% dans les Balkans. Il est difficile pour les SOA de connaître la contribution des différentes sources, dû à la non-linéarité de leur processus de formation.

Ces chiffres ne peuvent malheureusement pas être comparés à des mesures de surface, mais la production de SOA dans le trajet des panaches de feux peut être sous-estimée.

1. Carbone organique
2. Particule primaire organique
3. Aérosol secondaire organique

6.3.5 Influence de la variation de la hauteur d'injection et de la variabilité diurne des émissions de feux

Une série de simulations est réalisée pour l'épisode dans les Balkans du 21 au 30 août 2012 afin d'analyser l'impact de la hauteur d'injection et de la variabilité diurne des émissions sur les résultats du modèle :

- Trois simulations sont effectuées pour faire varier la hauteur d'injection : une où les émissions sont injectées en dessous de 500 m de façon homogène, une en dessous de 4 km, et une dernière en prenant le profil obtenu grâce au logiciel MINX sur ces feux (Figure 6.3).
- Une dernière simulation teste l'injection des émissions selon un profil diurne. Ce profil est déterminé à partir des profils de vent au dessus des feux : le pic de variabilité se situe à 10h UTC.

La Figure 6.6 montre les séries temporelles de ces simulations et des observations, pour la station AIRBASE localisée à Skopje (code MK0048A) en République de Macédoine, l'unique station mesurant les PM_{10} et $PM_{2.5}$ ensemble. La première ligne représente la série temporelle journalière sur l'ensemble de l'été 2012, et la deuxième ligne la série temporelle horaire du 21 au 31 août 2012. De même, la Figure 6.7 représente la même chose pour les 4 autres stations dans la région mesurant les PM_{10} uniquement. Les stations AIRBASE ainsi que la station AERONET de Timisoara sont localisées sur la Figure 6.8.

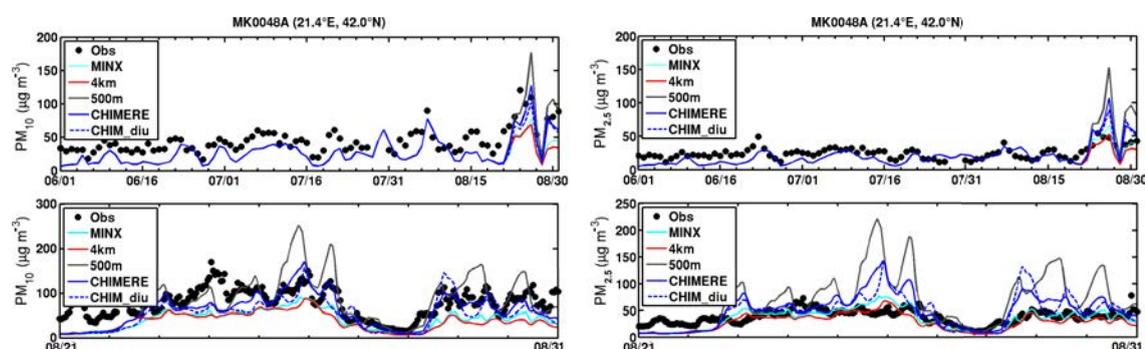


Figure 6.6 – Séries temporelles de la station Skopje en République de Macédoine, mesurant les PM_{10} et $PM_{2.5}$. La série temporelle en moyenne journalière sur toute la période de l'été 2012 est représentée avec un zoom horaire entre le 21 et 31 août 2012. Les simulations avec différentes hauteurs d'injection sont indiquées en bleu (émissions dans la couche limite, rouge (injection de la surface à 8 km) et gris (de la surface à 500 m).

Dans les observations, un cycle diurne se distingue clairement pour les particules, caractéristiques d'une pollution urbaine. Le niveau de $PM_{2.5}$ est d'environ $40 \mu\text{g m}^{-3}$ avant la période de feux, et les niveaux s'élèvent pendant cette période jusqu'à environ $80 \mu\text{g m}^{-3}$ à Skopje. Le modèle CHIMERE à cette résolution ne permet pas de représenter les influences urbaines, les niveaux de pollution sont donc très bas avant la période de feux, avec l'absence de cycle diurne. Cependant, l'amplitude de la concentration en PM_{10} pendant les feux est correctement modélisée. Cette amplitude

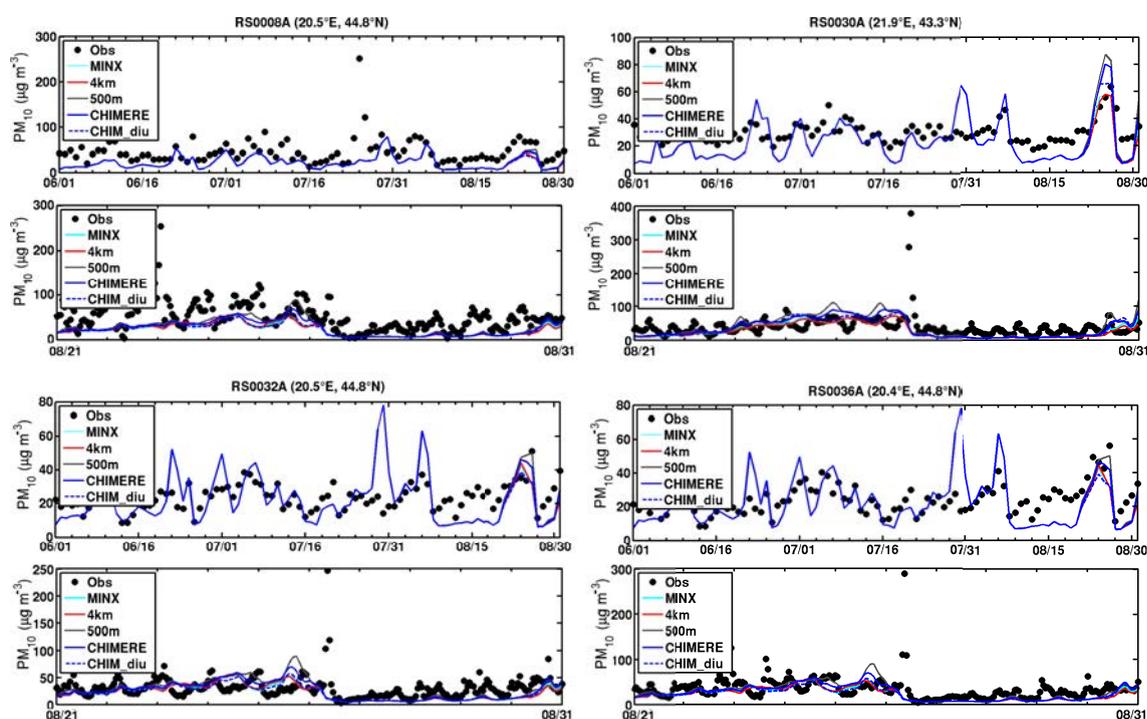


Figure 6.7 – Séries temporelles des 4 stations de PM_{10} présentes dans MED-Ce et impactées par les feux dans les Balkans entre le 21 et 31 août 2012. Pour chaque station, la série temporelle en moyenne journalière sur toute la période de l'été 2012 est représentée avec un zoom horaire entre le 21 et 31 août 2012.

simulée peut donc être trop forte en réalité si les valeurs de fond sont trop faibles. L'amplitude est en revanche clairement surestimée pour la concentration en $PM_{2.5}$, sauf pour les injections en hauteur pour la station proche des sources uniquement (la corrélation horaire passe de 0,61 à 0,70 avec un RMSE de 28% à 14% pour la simulation avec le profil MINX). Les différences s'uniformisent pour les stations plus éloignées.

Un pic de concentration de PM_{10} (jusqu'à $400 \mu\text{g m}^{-3}$ environ pour la station RS0030A) présent dans les observations aux stations éloignées des sources est manqué par le modèle le 26 août. Le transport du modèle en surface ne s'effectue pas assez vers le nord, où les fortes concentrations (jusqu'à plus de $200 \mu\text{g m}^{-3}$) restent localisées près des sources dans le modèle, probablement à cause des vents de surface de faible amplitude ce jour-là d'après la [Figure 6.8](#).

La simulation où les émissions ont une variabilité diurne permet d'avoir des pics plus prononcés à Skopje, mais les performances statistiques horaires sont comparables avec la simulation de référence (0,57 et 0,61 pour les $PM_{2.5}$).

Ces différents paramètres n'ont aucune influence sur l'AOD simulé ([Figure 6.9](#)). Ces simulations suggèrent que l'utilisation de cette grandeur n'est pas pertinente pour étudier l'impact de la hauteur d'injection et la variabilité diurne.

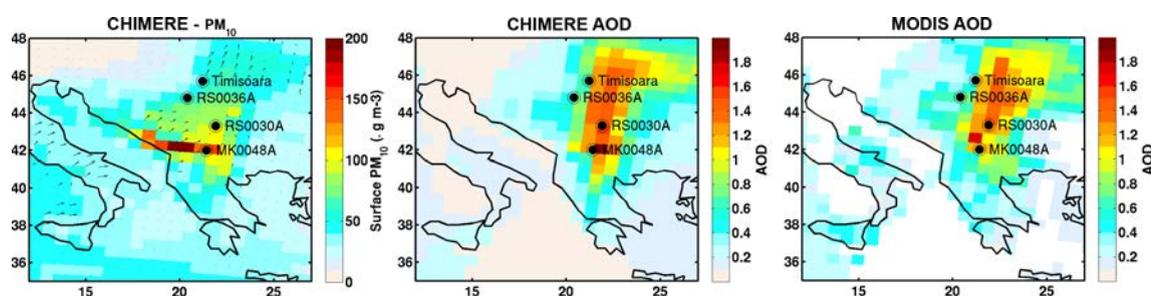


Figure 6.8 – Cartes de la concentration de surface en PM_{10} simulée par CHIMERE, l'AOD simulé correspondant, et l'AOD MODIS pour le 26 août 2012. La localisation des stations AirBase et AERONET est également indiquée.

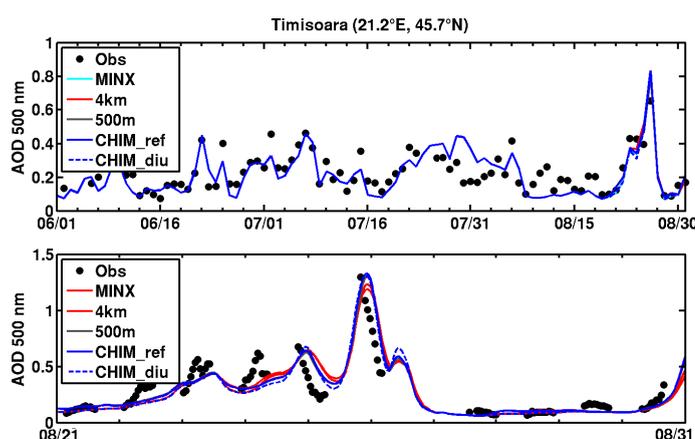


Figure 6.9 – Série temporelle de l'AOD à la station AERONET de Timisoara (Roumanie). La première figure est la série temporelle journalière pour l'été 2012, la deuxième la série temporelle horaire du 21 au 31 août 2012.

6.4 Conclusions

Les évènements de feux de l'été 2012 en région Euro-Méditerranéenne ont été analysés dans ce chapitre, plus précisément trois épisodes en Espagne et au Portugal, et un dans le Nord des Balkans. Cela permet d'évaluer l'impact des feux plus précisément et également d'évaluer le modèle dans la simulation des évènements de feux, qui constitue un des objectifs de la thèse. Pour les PM, le modèle parvient à reproduire la variabilité journalière de ces épisodes (corrélation de 0,35 pour l'Espagne à 0,85 pour le Nord des Balkans), avec cependant une dégradation lorsque les poussières minérales sont présentes (jusqu'à 60% de contribution à la concentration de $PM_{2.5}$ en Espagne). C'est le cas également pour l'AOD, où la corrélation va de pas de corrélation à 0,99 au Portugal, et un biais faible en général. Le biais sur les PM est plus important, avec une surestimation en Espagne et au Portugal allant jusqu'à 160% pour les $PM_{2.5}$, 66% pour les PM_{10} . Pour ces cas, la proportion de forêt est importante.

L'impact sur la qualité de l'air se traduit par des jours observés de pollution, où le seuil légal de PM est dépassé. Ce nombre de jours de pollution dû aux feux

(d'après le modèle) est de 1 à 6 pour la péninsule Ibérique, et d'une dizaine de jours pour l'épisode du Nord des Balkans.

Différents tests sur les paramètres de modélisation des feux (variabilité diurne des émissions et hauteur d'injection) ont été effectués pour l'épisode du Nord des Balkans fin août, afin de déterminer les paramètres les plus critiques dans la simulation des aérosols de feux de végétation. Pour les stations loin des sources, les résultats sont très proches de la simulation de référence. Pour l'unique station proche de la source, le biais est sensiblement amélioré pour les $PM_{2.5}$ pour la simulation avec un profil d'injection plus étalé en hauteur et passe de 28 à 14%. La simulation testant la variabilité diurne n'a pas de meilleur accord aux observations sur ce cas d'étude.

Ces résultats montrent les incertitudes liées aux nombreux paramètres (type de végétation, quantité émise, hauteur d'injection) nécessaires à la modélisation correcte de l'impact des feux. Proche des sources, le modèle parvient à reproduire la variabilité des feux, et l'amplitude des concentrations est dictée par la quantité émise et la hauteur d'injection. Plus loin des sources, le transport est déterminant et les incertitudes liées à l'advection horizontale sont fortes. De plus, l'évolution chimique au court du transport à partir des composés organiques volatiles (VOCs) n'est pas toujours bien représentée dans les modèles. Dans le modèle CHIMERE, les SOA sont formés à partir de l'absorption des semi-VOCs, eux mêmes produits par oxydation des VOCs. [Konovalov et al. \(2015\)](#) ont montré que la prise en compte de la semi-volatilité des aérosols organiques primaires émis par le feux, qui peuvent ainsi former eux aussi des SOA par leur oxydation, permet de mieux modéliser le panache de feux dans le transport en terme d'AOD et du ratio $\Delta PM_{10}/\Delta CO$.

Globalement, le modèle réalise une bonne performance pour diagnostiquer l'impact des feux sur la qualité de l'air, étant donné l'incertitude inhérente au calcul des émissions.

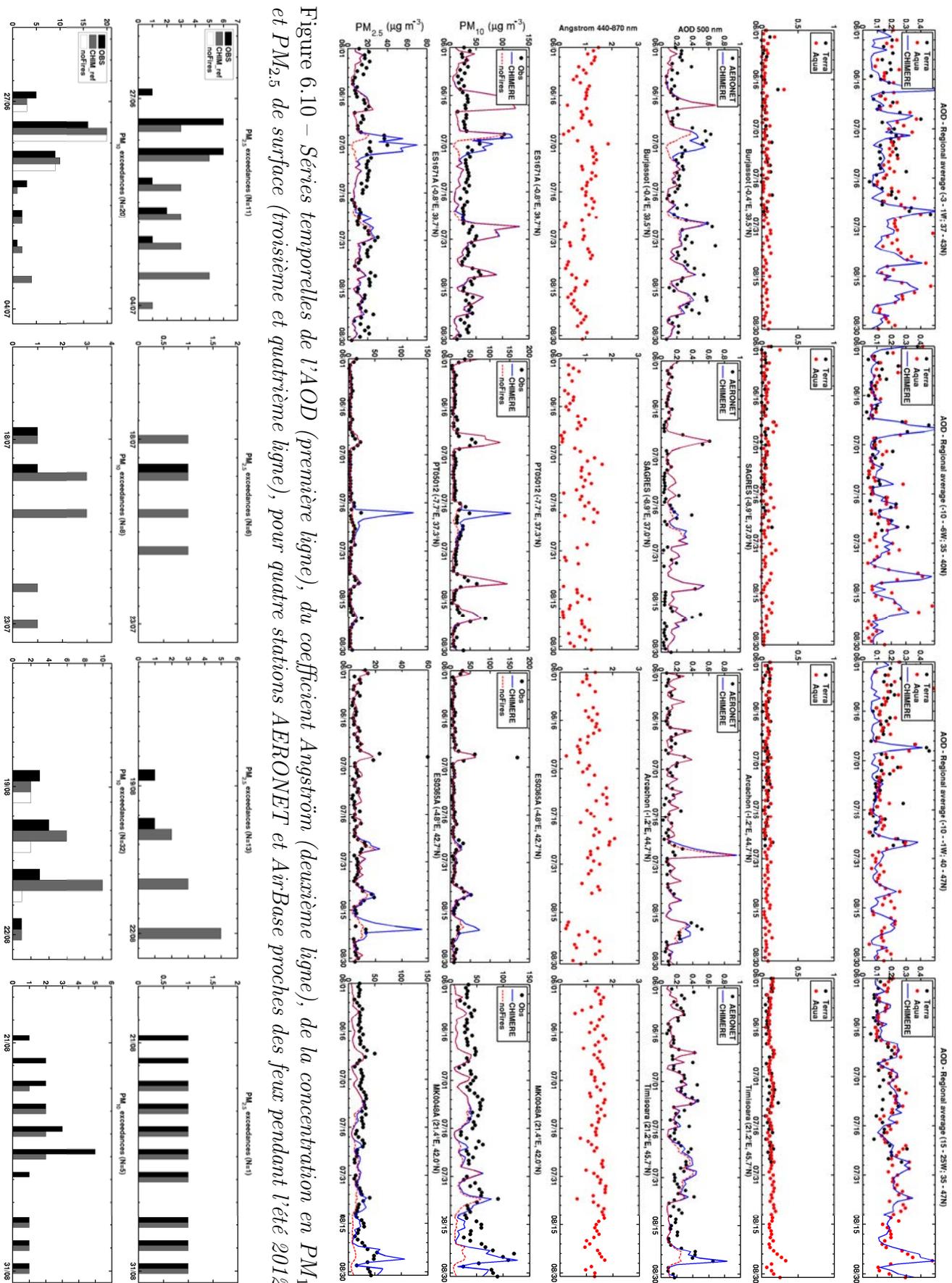


Figure 6.10 – Séries temporelles de l’AOD (première ligne), du coefficient Angström (deuxième ligne), de la concentration en PM_{10} et $PM_{2.5}$ de surface (troisième et quatrième ligne), pour quatre stations AERONET et AirBase proches des feux pendant l’été 2012.

Figure 6.11 – Séries temporelles du nombre de dépassements de seuils pour la totalité des stations présentant des mesures pour chaque événement de feu. Les différentes barres indiquent le nombre de dépassements détecté dans les observations (noir), dans le modèle (gris), et dans le modèle sans les feux (blanc).

7 | Impact des feux sur la qualité de l'air en Australie : étude de cas des feux d'Octobre 2013 à Sydney

Sommaire

7.1	Introduction	114
7.2	Article : <i>Impact of the New South Wales Fires of October 2013 on regional air quality in eastern Australia</i>	114
7.3	Conclusions	130

7.1 Introduction

Dans les Chapitres 5 et 6, nous avons pu analyser l'impact des feux de végétation dans la région Euro-Méditerranéenne avec une analyse des sources d'aérosols, nécessaire au vu de la complexité de la composition atmosphérique dans cette région.

En Australie, des épisodes de feux très intenses se produisent chaque année et se détachent clairement du point de vue de la composition atmosphérique locale, et parfois globale. Dans ce chapitre, nous nous intéressons à un cas d'étude dans la région de Sydney, afin d'étudier l'impact d'un tel feu sur la qualité de l'air dans une ville densément peuplée. Comme pour l'Europe, les observations fournissent une contrainte pour le modèle (pour l'inventaire d'émission de feux) et un outil pour évaluer ses résultats. Un des avantages de la région de Sydney est la présence de stations de mesure de concentration proche des feux. D'autre part, les paramètres déjà testés sur l'Europe, tels que la variabilité diurne des émissions et la hauteur d'injection, sont également analysés dans ce chapitre.

Ce cas d'étude a été choisi dans le cadre d'une collaboration à un projet australien ayant pour finalité une plateforme de prévision. Cette collaboration a été effectuée grâce au financement de la thèse, avec un séjour de 5 mois à l'Université de Wollongong (cf. Annexe 1).

La section ci-dessous est constituée d'un article soumis à Atmospheric Environment, et est par conséquent en anglais.

7.2 Article : *Impact of the New South Wales Fires of October 2013 on regional air quality in eastern Australia*

Impact of the New South Wales Fires of October 2013 on regional air quality in eastern Australia

Géraldine Rea^{a,*}, Clare Paton-Walsh^b, Solène Turquety^a, Martin Cope^c, David Griffith^b

^aLaboratoire de Météorologie Dynamique, UMR CNRS 8539, Université Pierre et Marie Curie - Paris 6, Ecole Polytechnique, Palaiseau, France

^bSchool of Chemistry, University of Wollongong, Wollongong, NSW 2522, Australia

^cCSIRO Marine and Atmospheric Research, Aspendale, VIC 3125, Australia

Abstract

Smoke plumes from fires can transport many chemicals and pollutants that affect air quality into populated areas. Concentrations of those pollutants have to be assessed for health impacts studies, for example by atmospheric modeling.

A major fire event in October 2013 in NSW in Australia is analyzed in this paper, to assess the fire characteristics that are needed for models and to evaluate the capability of a regional model to simulate the resulting atmospheric composition, depending on several parameterizations.

For the NSW episode, emission factors calculated with the measurements from an FTIR spectrometer at the University of Wollongong, are: 1640 g kg⁻¹ of carbon dioxide (i.e. 1640 g of carbon dioxide per kg of dry fuel burned); 107 g kg⁻¹ of carbon monoxide; 7.8 g kg⁻¹ of methane; and 0.16 g kg⁻¹ of nitrous oxide, in agreement for most of them with previous emission factors measured from the ecosystem considered. Many characteristics of the fires have been used for simulations with the regional CTM CHIMERE. Three parameterizations have been analyzed: CHIM_ref with all the fire emissions homogeneously mixed into the boundary layer and with a daily resolution (default CHIMERE configuration), CHIM_1km with all the emissions under 1 km and CHIM_diu with a diurnal profile for fire emissions. It is shown that when compared to NSW air quality stations, the correlation coefficients (R) for the default configuration are 0.44 for PM₁₀, 0.60 for PM_{2.5} and 0.79 for CO, with a negative bias for CO (-14%) and a positive bias for PM_{2.5} (64%). The model performs well when the boundary layer and the winds are low. CHIM_1km displays less bias and root mean square error in this fire case, where the injection height was low in average. CHIM_diu presents a good agreement for hourly statistics where peaks are well captured, but enhances the differences when a peak is overestimated by the model.

The model managed to predict 5 days of 7 that exceed the air quality standards for PM₁₀, with 1 day incorrectly predicted, and for PM_{2.5} 8 days of 10 with no false detection. Inner Sydney is affected during 5 days by PM exceedances, mainly from organic carbon and primary particulate matter.

1. Introduction

Emissions from fires have a significant influence on atmospheric composition, due to the quantity of trace gases and aerosols injected during combustion (Andreae and Merlet, 2001). The contribution of biomass burning has a local, regional and global impact on air quality, radiative budget and meteorology (Bowman et al., 2009; Langmann et al., 2009; IPCC, 2013).

Bushfires are well known natural hazards in Australia. Less well known is that the death toll from air quality impacts may exceed those killed directly in the fires (Johnston et al., 2011, 2013). It is predicted that wildfire incidence will increase with higher temperatures as a consequence of climate change (Pitman et al., 2007) which is likely to lead to significant negative impacts on local

air quality and respiratory morbidity (Reisen and Brown, 2006; Morgan et al., 2010). Among many pollutants released in smoke plumes from fires, fine particles (as PM₁₀ and PM_{2.5}, particles with an aerodynamical diameter smaller than 10 and 2.5 μm respectively) are particularly studied to estimate their health impacts (Pope III and Dockery, 2006; Johnston et al., 2012). The precise estimation of atmospheric composition in terms of key pollutants resulting from fires is thus essential. Model simulations including fires are used for this purpose, as chemistry-transport models (CTM) can provide 4D fields of pollutant concentrations. They need to include several characteristics of fires, used by inventories of emissions which are developed on regional and global scales (van der Werf et al., 2006; Wiedinmyer et al., 2011; Mieville et al., 2010; Turquety et al., 2014). However, uncertainty on these emissions remains high, between 25% to a factor 5 for total carbon release (Schultz et al., 2008), due to estimations and assumptions on several of the method steps and to uncertainties in characterizing fires. Other studies pointed out the uncer-

*Corresponding author

Email address: geraldine.rea@lmd.polytechnique.fr (Géraldine Rea)

tainty linked to the use of daily emissions computed with polar-orbiting satellite fire products (Wang et al., 2006; Sessions et al., 2011). Another key input for modeling fires is the injection height, which has an impact on the fire plume transport (Sessions et al., 2011; Paugam et al., 2015).

The purpose of this study is to evaluate the capacity of a regional CTM, to model the air pollution that results from a major bushfire event in New South Wales, and to assess fire characteristics and composition of smoke from this fire.

The New South Wales bushfires of 2013 were a series of wildfires that burned in rural New South Wales in October 2013 and brought thick smoke plumes over population centres in Sydney and Wollongong. The fires followed the warmest September on record for New South Wales, according to the Australian Bureau of Meteorology. The first of the fires started around the 13th October, but serious fires broke out in the Greater Blue Mountains Area to the west of Sydney on the 17th October and 18th October and were largely extinguished by 28th October 2013. During this time, high fuel loads and hot, dry and windy conditions led to large fires with a total burned area of 118 thousand hectares, two fatalities and 248 properties lost, making these fires the worst in New South Wales for decades.

Two of the most significant fires during this time were the State Mine fire, which started during explosives training in a military area near Marrangaroo on the 16th October 2013, and the Hall Road fire, which was ignited by power-lines near Balmoral in the Southern Highlands.

The State Mine fire grew into a major fire by 17th October and the smoke plume from this fire blanketed the densely populated Sydney metropolitan area on the afternoon of the 17th October causing poor air quality including highly elevated PM₁₀ values (see Figure 1). The fire burnt out an estimated area of 56500 hectares.

The Hall Road fire broke containment lines on 17th October and the resulting smoke plume extended over large parts of the Illawarra region, including Wollongong, nearly obscuring the sun at times (see Figure 1). Wollongong was impacted by the fires again in the early hours of 19th October, when a temperature inversion trapped smoke plumes close to the ground for several hours, resulting in peak concentrations of carbon monoxide (CO) in excess of 4 $\mu\text{mol mol}^{-1}$ (ppm). By the time the Hall Road fire was extinguished, the New South Wales Rural Fire Service estimated that over 15600 hectares had been burnt.

In this paper we analyze this series of bushfires that burned within the Australian state of New South Wales in October 2013. We present measurements made of the resulting smoke pollution over the regions of Sydney and Wollongong to the south and compare the measured concentrations of key pollutants to those predicted by the regional atmospheric model CHIMERE. The air quality impairment associated with these fires are analyzed. In addition, we derive emission factors for a specific fire us-

ing smoke transported to Wollongong and measured using a trace gas analyser based on Fourier transform spectroscopy.

2. Measurements of the chemical composition of smoke from the NSW fires of 2013

A number of measurements of different trace gases and aerosols within the smoke plumes were made when the smoke plumes travelled over the Sydney metropolitan region and over the University of Wollongong. For surface concentrations in NSW, stations from the Office of Environment and Heritage (OEH) air quality monitoring network provide measurements of O₃, CO, NO, NO₂, NO_x, SO₂, PM₁₀ and PM_{2.5}. In addition to these measurements, data from a Fourier transform infrared trace gas analyser (Griffith et al., 2012) provides precise measurements of CO₂, CO, N₂O and CH₄ at the University of Wollongong.

2.1. Measurements from the University of Wollongong

The Fourier transform infrared trace gas analyser located at the University of Wollongong measures carbon dioxide (CO₂), methane (CH₄), carbon monoxide (CO) and nitrous oxide (N₂O) in air. The measurements meet the precision and accuracy requirements for World Meteorological Organisation - Global Atmosphere Watch standards for baseline air (Griffith et al., 2012).

The time-series of CO, N₂O, CH₄ and CO₂ measured using the FTIR trace gas analyser at Wollongong from late on the 18th October to midnight on the 23rd October 2013 are shown in Figure 2. The pollution caused by the NSW 2013 bushfires is most evident in the CO time-series, which peaks during the early hours of the 19th October 2013, with concentrations of CO above 4 ppm for more than an hour. Strong simultaneous enhancements are also seen at this time in CO₂, N₂O and CH₄. Large night-time enhancements of CH₄ occur quite regularly at Wollongong, due to the combination of local sources of CH₄ from nearby mining activities and commonplace night-time inversion layers. In fact there is clear indication of such an enhancement in CH₄ (see Figure 2) in the form of two large CH₄ peaks late on the 18th October and again in the first hour or two of 19th October 2013. These peaks exceed the CH₄ peak that is coincident with the CO peak and indicates potentially mixing of high CH₄ air with the air carrying smoke pollution from the fires.

Several other pollution events associated with the fires are seen in the CO record shown in Figure 2. On the 20th October CO concentrations were above 500 ppb for 4 hours from 4am to 8am, with peak concentrations exceeding 1 ppm of CO for approximately 15 minutes around 6am. On October 21st CO reached 400 ppb before 1am and remained above this concentration until after 2pm, with concentrations peaking above 1 ppm from 05:35 to after 07:15.

Nevertheless the most significant smoke pollution event recorded at the University of Wollongong is on the 19th

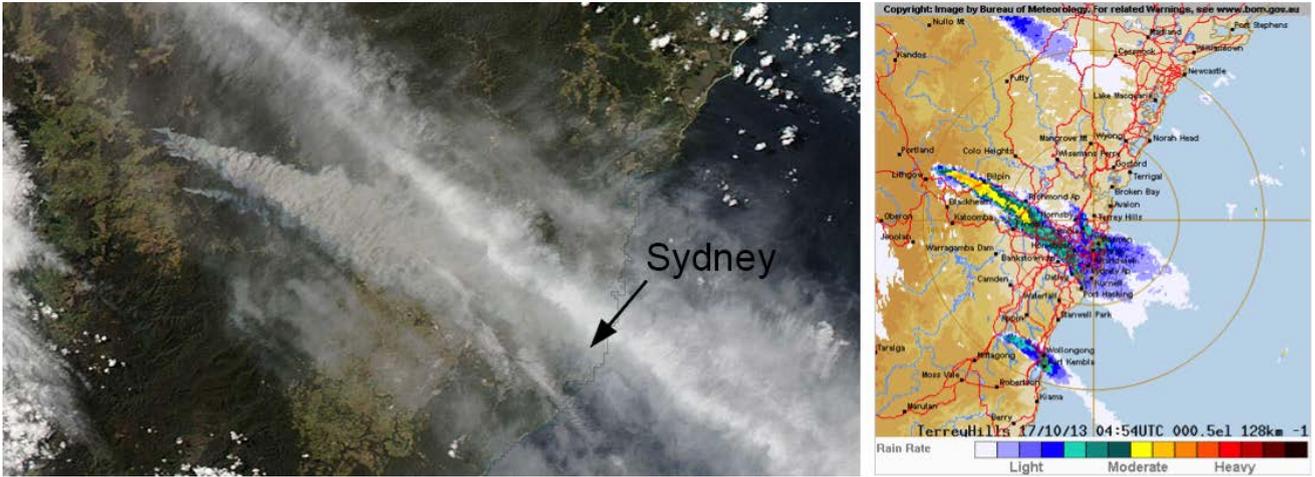


Figure 1: Satellite image courtesy of MODIS Rapide Response Project (NASA/GSFC) with a view of the Blue Mountains fires and the Sydney metropolitan area on 17 October. Image on the right is compiled from the Australian Bureau of Meteorology rain radar at Wollongong for the same day (<http://www.bom.gov.au/australia/radar/>).

October. The FTIR trace gas analyser measures the main carbonaceous species emitted by biomass burning, (90-95% is in the form of CO_2 and CO , with the remaining as CH_4 or other volatile organic carbon compounds and particulate matter (Akagi et al., 2011)) This means that the measurements may be used to calculate emission factors from the fires, following the method previously used by (Ward and Radke, 1993) :

$$EF_i = F_c 1000 \frac{MM_i}{12} \frac{C_i}{C_T} \quad 155$$

where EF_i is the mass in grams of species i emitted per kilogram of dry fuel consumed, (g kg^{-1}); F_c is the fractional carbon content of the fuel (assumed here to be 0.50 ± 0.05 for all hazard reduction burns (Yokelson et al., 1999)); MM_i is the molecular mass of species i and 12 is the atomic mass of carbon; C_i/C_T is the number of moles of species i emitted divided by the total number of moles of carbon emitted, and may be calculated using emission ratios with respect to a reference species (usually CO_2) via equations 2:

$$\frac{C_i}{C_T} = \frac{ER(i/\text{CO}_2)}{\sum_{j=1}^n (NC_j ER(j/\text{CO}_2))} \quad 170$$

The emission ratios (or enhancement ratios¹) may be determined from the gradient of the linear best fit to a plot

¹Note that when the measurements are made downwind of the fire in aged smoke, then these same ratios are commonly referred to as "enhancement ratios", to highlight the fact that chemical and physical processing may have altered the ratio of species from that which was originally emitted from the fire (this adds additional uncertainty to the emission factors calculated from these measurements, compared to similar measurements made close to the fires).

of the abundance of species i against the abundance of reference species CO_2 , thereby removing the requirement for accurate knowledge of the background mole fractions. Use of only CO_2 , CO and CH_4 in this mass balance equation has been estimated to artificially inflate the emission factors by 1-2% (Yokelson et al., 2007).

Using only data from 19th October from 03:00 to 07:45, (in an attempt to avoid the interference from other sources of CH_4 enhancements), we determined the following enhancement ratios to CO_2 : $\text{CO}/\text{CO}_2 = 0.102$ ($R^2=0.96$); $\text{CH}_4/\text{CO}_2 = 0.013$ ($R^2=0.94$) and $\text{N}_2\text{O}/\text{CO}_2 = 0.000095$ ($R^2 = 0.98$). These enhancement ratios are equivalent to 89.7% of the emitted carbon detected as CO_2 , 9.1% as CO and 1.2% as CH_4 and yield a modified combustion efficiency (Hao and Ward, 1993) for the fires of 0.91.

Emission factors for the fires calculated from these measurements (in grams of gas emitted per kilogram of dry fuel burned) are 1640 g kg^{-1} of carbon dioxide; 107 g kg^{-1} of carbon monoxide; 7.8 g kg^{-1} of methane; and 0.16 g kg^{-1} of nitrous oxide. This compares with emission factors measured at controlled burns in New South Wales of $1620 \pm 160 \text{ g kg}^{-1}$ of carbon dioxide; $120 \pm 20 \text{ g kg}^{-1}$ of carbon monoxide; $3.6 \pm 1.1 \text{ g kg}^{-1}$ of methane; and $0.15 \pm 0.09 \text{ g kg}^{-1}$ of nitrous oxide (Paton-Walsh et al., 2014).

Thus the results are in good agreement with previous emission factors measured from this ecosystem, except for the emission factor calculated here for CH_4 . The much larger emission factor determined for CH_4 could indicate residual interference from alternative sources of CH_4 , as described above, or possibly result from direct influence from the State Mine fire, which could emit more CH_4 than a typical fire.

2.2. Measurements from the New South Wales air quality monitoring network: Air quality in inner Sydney during fires

41 sites across NSW are maintained by the Office Environment and Heritage and provide concentrations of many pollutants, depending on the site. Figure 3 shows the localization of the stations near Sydney, and figure 4 the time series for CO and PM₁₀ at a station located in Sydney-East close within the urban environment (Chullora), and at Campbelltown West.

Influences of fires are clearly seen in the urban areas and in inner Sydney, where the daily mean level of pollution for CO is a factor of two higher than normal from 16 to 28 October (200 ppb the 15th and up to 600 the 21st).

Fires located to the north west of Sydney are present continuously from 17 to 27 October and reach Sydney with peak values on the 17-18th and 21st in the observations. On the 18 and 19 October, fires are additionally detected to the south of Sydney at Wollongong and surrounding stations, in agreement with the measurements from the University of Wollongong described previously.

During these episodes, pollutants strongly impact the air quality in the area. Air quality standards from the National Environment Protection Measure (NEPM) are set for key pollutants as CO, NO₂, O₃, SO₂, PM₁₀ and PM_{2.5}. For CO, the maximum concentration allowed in a 8 hours averaging period is 9 ppm, and the maximum allowable exceedance is 1 day a year. For particles, the average is on a 1 day basis and the maximum is set at 50 and 25 $\mu\text{g m}^{-3}$ respectively for PM₁₀ and PM_{2.5} concentrations.

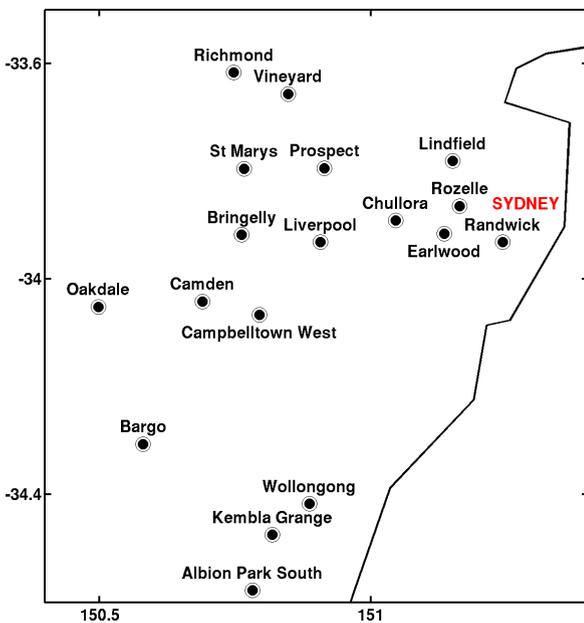


Figure 3: Localization of OEH air quality monitoring stations in the Sydney area. Source: Office of Environment and Heritage.

From the concentrations measured at the OEH sta-

tions, no exceedances are reported for CO. For particles however, air quality standards are exceeded on many days. Figure 5 shows the time series of the number of stations where an exceedance is detected for PM₁₀ (from 19 stations) and PM_{2.5} (from 7 stations) by day, the number for the observations at the OEH stations is represented in black bars. There are 7 days with a daily mean concentration of PM₁₀ exceeding 50 $\mu\text{g m}^{-3}$, and 9 days with a daily mean concentration of PM_{2.5} exceeding 25 $\mu\text{g m}^{-3}$, from 16 to 30 October 2013. The most significant number of exceedances of the smoke plumes regarding air quality standards is seen on the 20 and 21, where a large majority of the stations measure an exceedance, corresponding to the most severe fire day. In the next section we evaluate if a regional model can simulate this same overview of the air quality exceedances during this strong fire episode, with a particular focus on CO and particles.

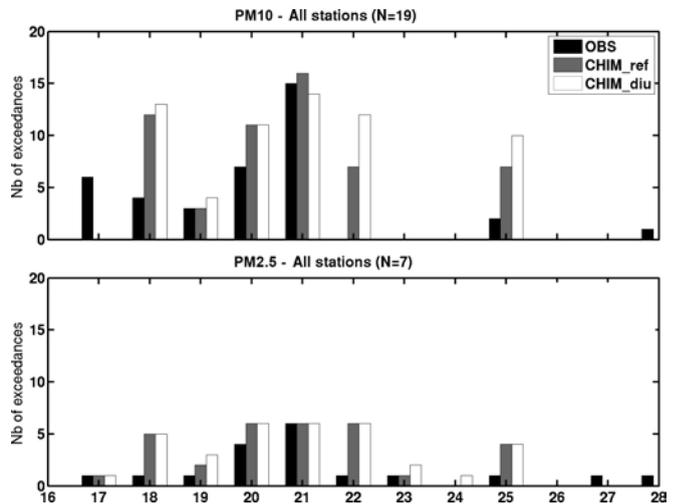


Figure 5: Number of exceedances of the air quality standards (concentrations greater than 50 $\mu\text{g m}^{-3}$ for PM₁₀ and greater than 25 $\mu\text{g m}^{-3}$ for PM_{2.5}) depending on the day of October 2013. Black bars represents the exceedances detected in the observations, grey and white bars the one detected in the CHIM_ref (reference) and CHIM_diu (with a diurnal variability of fire emissions) simulations.

3. Regional modeling of the fire case

This section describes the CHIMERE regional CTM setup used to analyse the impact of the 2013 fires, more particularly the fire emissions calculation.

3.1. The CHIMERE model

The version 2014b (Menut et al., 2013) of the off-line regional CTM CHIMERE is used. It is driven by meteorological fields computed with the WRF model version 3.5.1 (Skamarock et al., 2008) including nudging above the boundary layer from NCEP global meteorological analysis

data (Kalnay et al., 1996). These fields are provided on a regular $1.125^\circ \times 1.125^\circ$ grid.

The boundary conditions for aerosols and trace gases are from simulations by the global model LMDZ-INCA, and from GOCART for dust. The simulations are undertaken using the reduced chemical mechanism MELCHIOR2 which includes 44 species and 120 reactions (a complete list of species and reactions is provided in (Menut et al., 2013)). The aerosol module (Bessagnet et al., 2004) allows the simulation of primary particulate matter and secondary species, with the size distribution simulated using a sectional representation.

The simulations are conducted for three nested domains, represented in Figure 6. The Australian domain is the largest and has a 90 km resolution; it was chosen to ensure all the most important remote sources were captured, which can impact air quality in the smaller domains (e.g. fires from Indonesia, sea salts from south of Australia). The second and third domains are the South East Australian domain, with 27 km of resolution, and the Greater Sydney Region with 9 km of resolution. The vertical discretization is 18 uneven levels, from the surface up to 200 hPa. Chemical concentration output fields are provided at 1 hour time intervals.

Anthropogenic emissions from the Emissions Database for Global Atmospheric Research (EDGAR) prepared for the Hemispheric Transport of Air Pollution (HTAP) program are used. The HTAP-v2 database provides global $0.1^\circ \times 0.1^\circ$ annual emissions for CH_4 , NMVOC, CO, SO_2 , NOx, NH_3 , PM_{10} , $\text{PM}_{2.5}$, BC and OC and for 7 source sectors, depending on the species (air, ships, energy, industry, transport, residential, agriculture). These are disaggregated into hourly model species and mapped onto the specied model grid by applying seasonal, daily and weekly factors depending on the source sectors.

Biogenic emissions fluxes are calculated using the global Model of Emissions of Gases and Aerosols from Nature (MEGAN, Guenther et al., 2006) and affect six CHIMERE species (isoprene, α -pinene, β -pinene, limonene, ocimene and NO). MEGAN is based on canopy-scale emission factors depending on the species.

Dust emissions are calculated using the (Marticorena and Bergametti, 1995) parametrisation for saltation and the optimized dust production model (Alfaro and Gomes, 2001; Menut et al., 2005) for sandblasting. The dust production model is presented in (Menut et al., 2013) and (Briant et al., 2014), and it is adaptable in different regions. However, it was primarily developed for Africa and Europe and has not been specifically evaluated over Australia.

3.2. Fire emissions

Daily fire emissions were calculated using the API-FLAME fire emissions' model v1.0 (Turquety et al., 2014). APIFLAME calculates carbon emissions by multiplying the area burned with the fuel available for burning specific

to the vegetation type burned, and then derives trace gas and aerosol emissions using vegetation-dependant emission factors. Finally, the inventory species are converted to model species using an aggregation matrix.

Here, the area burned was estimated using the MODIS active fire detection at 1km resolution (MOD14, Giglio et al. (2010)). Only the fraction of MODIS pixel covered by vegetation is allowed to burn, as described in Turquety et al. (2014). Figure 7 shows the daily area burned over the NSW region during October 2013 estimated using this MODIS product, and reported by the NSW Rural Fire Service (RFS). The two data sets present a similar temporal variability, with the higher peaks on the same day (17th of October), although area burnt from RFS is higher by almost a factor of 2 for this day. In total, RFS reported a total area burnt of 1432.52 km², whereas the total derived from the MODIS hotspots is 1486.05 km², being almost 5% higher. Regarding the high uncertainty related to fire emissions, we consider that the area burned computed as explained above from MODIS is consistent for NSW and for this case study, and that is a consistent input for the inventory used.

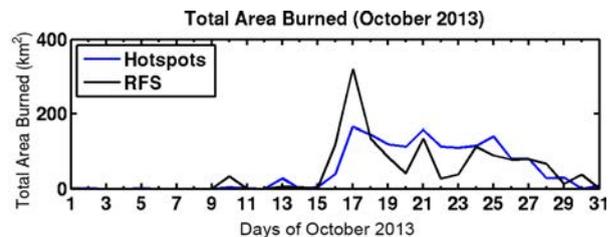


Figure 7: Total area burned during NSW fires from 1 to 30 October 2013, reported by the Rural Fire Service (black line), and computed with the active fire products from MODIS (blue line).

For each detected fire, the vegetation is attributed using the MODIS MCD12Q1 collection 5 land cover type product (Friedl et al., 2010). The fraction of vegetation cover burned during the fire episode is shown on Figure 8. The main types of vegetation burned, according to this product, are savanna (65% in mean) and forest (33%). The default classification in the MODIS landcover is not adapted to the NSW specific vegetation types. The combination of savanna and forest in MODIS corresponds to low density forest, woodland and pasture.

The fuel load is derived from simulations output from the ORCHIDEE carbon cycle and vegetation model (Krinner et al., 2005; Maignan et al., 2011), allowing the calculation of carbon emissions. In the NSW region, the average fuel load for savanna is estimated to 6.99 kg m⁻², and for forests 5.56 kg m⁻³. For savanna, it is greater than the one reported by (Hoelzemann et al., 2004) (1.3 kg m⁻² for wooded savanna).

Finally, APIFLAME uses emission factors taken from (Akagi et al., 2011) and modified for this study, following the work of (Paton-Walsh et al., 2014) and (Smith et al.,

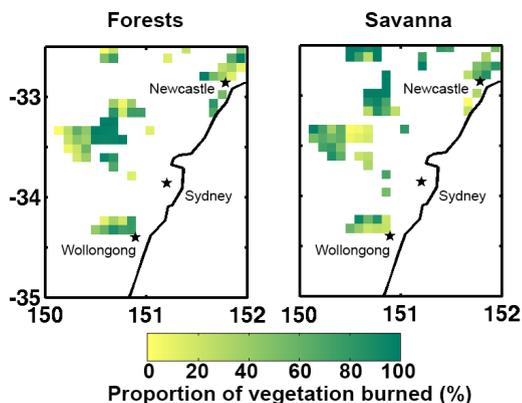


Figure 8: *Spatial partitioning of the proportion of vegetation burned during October 2013, according to the MODIS Vegetation Continuous Fields, for Forests and Savannas.*

2014) (new values for savanna and temperate forest fires in Australia), in agreement with the measurements presented in section 2.1. The emission factors used in the simulation, for the main types of vegetation burned in 2013 Forest and Savanna, are indicated in Table 1.

Table 1: *Emission factors used for the calculation of fire emissions in the APIFLAME inventory, for savanna and temperate forest, for the species that differ from (Akagi et al., 2011).*

Species	Savanna g kg ⁻¹	Temperate forest g kg ⁻¹
CO ₂	1674	1620
CO	87	120
CH ₄	2.1	3.6
C ₂ H ₂	0.11	1.3
C ₂ H ₄	0.49	1.7
C ₂ H ₆	0.08	2.4
HCHO	1.57	3.8
CH ₃ OH	1.06	0.4
H ₃ COOH	1.70	1.6
HCN	0.53	0.15
NH ₃	0.70	0.5

Although APIFLAME was initially designed and evaluated for the Euro-Mediterranean region (Turquety et al., 2014), it uses global datasets (described above) and can thus be applied to any region. An ensemble analysis over the Euro-Mediterranean region showed that uncertainty on daily carbon emissions is close to 100%, with a dominant contribution from the area burned and the vegetation map used.

Total emissions of CO from fires are shown on Figure 9. Comparing to CO anthropogenic emissions, CO fire emissions are more important for this period (almost a factor of 20), as well as Organic Carbon, Black Carbon and Primary Organic Matter emissions (Table 2). The spa-

tial distribution of fire emissions follows the main events described above.

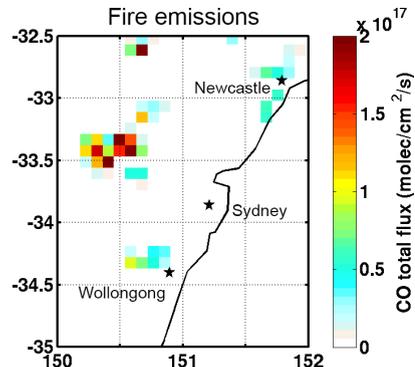


Figure 9: *Total fire emission flux of CO from 16 to 28 October 2013, calculated with the APIFLAME inventory.*

Table 2: *Total amount of CO, Organic Carbon (OC), Black Carbon (BC) and Primary Organic Matter (POM) according to the fire emission inventory APIFLAME, and the anthropogenic inventory EDGAR-HTAP.*

Species	Anthropogenic 10 ⁻⁶ kg	Fire 10 ⁻⁶ kg
CO	28.35	529.47
OC	0.32	64.39
BC	0.23	2.48
POM	1.29	49.51

3.3. Injection heights

In addition to the total mass emitted, the smoke's injection height is a critical parameter for the modeling of these events. The energy released by these intense events may trigger or reinforce convection (so-called *pyro-convection*), sometimes injecting trace gases and aerosols directly into the free troposphere (Mims et al., 2010).

Figure 10 shows the plume heights from the MISR level 2 MIL2TCSP product (Kahn et al., 2007), providing heights of aerosol plumes and clouds. For this specific day (20th October), the heights attributed visually to fire smoke have been determined manually. Although only one day of measurement is available from MISR for the NSW fires, it suggests that fires were injected at relatively low altitudes (685 m in average above fires, with a maximum at 2830 m).

In CHIMERE, the default parameterization injects emissions throughout the planetary boundary layer (PBL). The simulated PBL heights at the same time as MISR overpass is also shown on Figure 10. The PBL height is consistent with MISR maximum heights, but is higher over the area of the fire plume (1630 m on average above fires at the same time as the MISR overpass, with a maximum at

2440 m). The simulated PBL heights reach more than 4 km in the following hours.

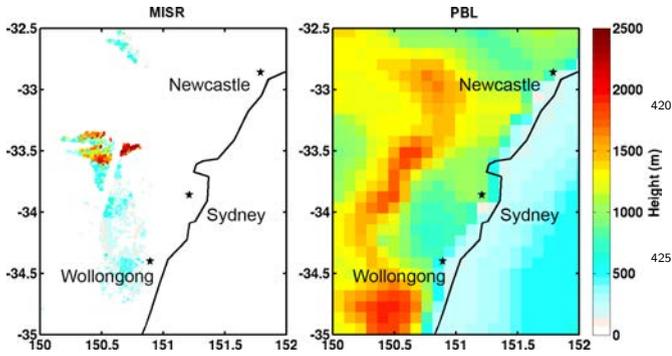


Figure 10: Top heights of the fire plume on the 20th of October, seen by the MISR instrument onboard Terra satellite, from the Level 2 "TOA/Cloud heights and Winds" product

Sensitivity of the simulations to the chosen injection heights will be described in the following section.

3.4. Simulations performed

For the purpose of this study, three simulations have been computed over the period of fires, restricted to the Sydney region domain. The first one is referred to as the "reference" simulation (CHIM_ref), with the initial parametrization of the CHIMERE model for fires, i.e. daily resolution emissions and emissions injected homogeneously onto the boundary layer.

The second one is performed using a simple diurnal profile applied to fire emissions (CHIM_diu). The diurnal profile is chosen as a Gaussian distribution, with the mean at 1pm local time (according to the surface concentration observations).

The third simulation is computed with fire emissions injected homogeneously under 1 km above the surface (CHIM_1km) to look at the influence of the injection heights parameter.

4. Comparison of simulations to measurements

4.1. Overview of the CHIMERE simulations and evaluation of the fire case

Figure 6 shows the mean concentration of PM_{2.5} and CO over the Australian domain from 16 to 28 October obtained with the CHIMERE simulation. The fire episode in NSW is clearly seen, with mean concentrations of PM_{2.5} up to 60 $\mu\text{g m}^{-3}$. Organic carbon is the dominating contributor to PM_{2.5} with primary organic matter (not shown), and the fire plume is transported to the south over the Tasman sea. Note that the strong PM_{2.5} levels around -50° in CHIMERE are due to sea salt (with a contribution up to 20 $\mu\text{g m}^{-3}$).

Modeled surface concentrations in the Sydney region domain during the fire period are compared with measurements from the OEH stations (described in Section

2.2) for PM and CO. A comparison is also done with the FTIR (Section 2.1) for CO. This paper is focused on particles' impacts on air quality, but CO, as a signature of fires, is also evaluated in this section.

Modeled (CHIM_ref) and observed daily mean and max concentrations for CO and PM at OEH stations are shown on Figure 11. The simulation shows high levels of pollution close to fire sources, but decreasing rapidly as the distance from the fire increases, in good agreement with the observations, the majority of which are located at some distance from the fires. Concentrations of CO reached up to 2.5 ppm at the source according to the model, but only reach 1.5 ppm near urban areas. However, the stations measured high values (above 1.7 ppm at two stations). For particles, the concentration close to the fires are also very high according to CHIMERE, reaching more than 600 $\mu\text{g m}^{-3}$ for fine particles. At the stations, the 1-hour mean levels are under 50 $\mu\text{g m}^{-3}$ with a maximum up to 350 for PM_{2.5}. The spatial patterns shows good agreement with the locations of the fire, with the most important being the State Mine fire as described above.

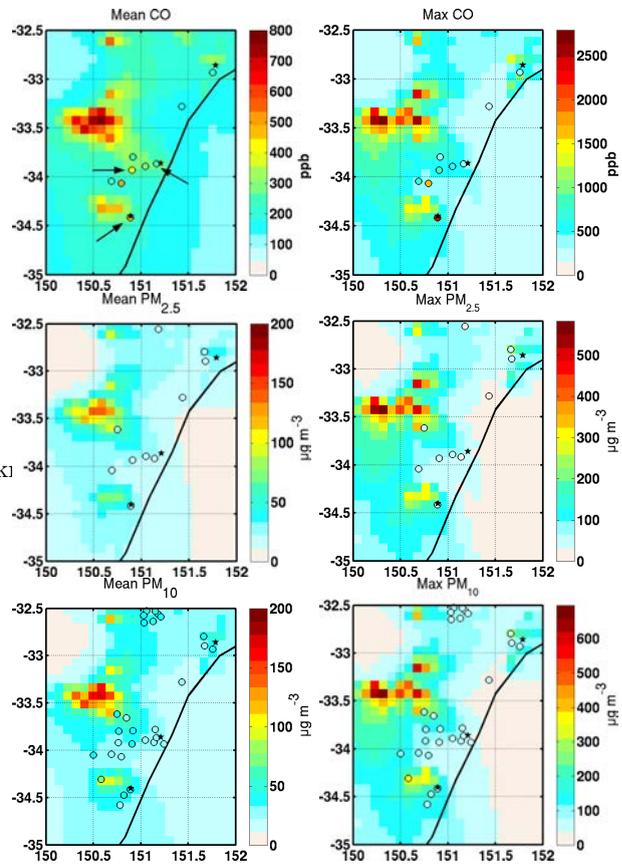


Figure 11: Modelled daily mean and max of CO, PM_{2.5} and PM₁₀, averaged over the fire event (16 to 28 October 2013). Observations from OEH stations are represented by the dots. The daily maximum is shown on the second column (with a different color scale).

Table 3 summarizes the statistics over all the stations, for CO, PM₁₀ and PM_{2.5} concentrations. The model in its reference parametrization shows good performances with correlation coefficients of 0.44 for PM₁₀ and 0.79 for CO in mean values at all the stations. The model tends to overestimate PM_{2.5} (mean bias of 64%) and underestimate CO (-14%).

The comparison shows correlations from 0.49 (Newcastle) to 0.99 (Wollongong) for CO, so that the temporality of daily emissions are well represented by the model. The root mean square error (RMSE) is high (183) due to a strong underestimation at Campbelltown West and Liverpool, where the strong peak detected on 21 October is totally missed by the model, and at Wollongong where the fire peak is underestimated. For simulated particles, correlations range from 0.25 (Beresfield) to 0.93 (Wollongong) for PM_{2.5} and -0.29 (Warkworth) to 0.91 (Kembla Grange) for PM₁₀. 90% of the PM_{2.5} stations and 75% of the PM₁₀ stations meet the performance criteria defined by (Boylan and Russell, 2006) (both the mean fractional bias and the mean fractional error are lower than or equal to 75% and $\pm 60\%$ respectively).

Stations located near Singleton, in the extreme north of the domain are poorly simulated (no correlation associated with high RMSE). The fire that occurred in this area is the weakest (see Figure 1) and is relatively far from the stations compared to others. Large mines are also present in this area that are not captured by the EDGAR inventory, additionally to a complex topography that need higher spatial resolution.

Figure 4 shows the time series of pollutants (for the model simulations and the observations), at Chullora and Campbelltown West. The time series of CO from the FTIR in Wollongong near Balmoral fire is also shown on Figure 2 (first plot). The three stations are indicated with arrows in Figure 11.

The peak observed on the 17th of October in Sydney is missed by the model for the three simulations. A significant amount of emissions is however released that day in the model, although underestimated compare to the RFS report (Figure 7), but it is not transported toward Sydney.

At Wollongong, the 18th is the main day affected by fires (Balmoral fires), and is underestimated by the model (1.5 ppm for CO instead of 4.5 ppm and $380 \mu\text{g m}^{-3}$ instead of $570 \mu\text{g m}^{-3}$ for PM) but not missed. On that day, RFS reported also area burned underestimated by our calculation from MODIS (Figure 7), due to less of the vegetation burned attributed to forest and more to savanna on that day in the model. For PM however, the daily mean value is in good agreement with the observations. The CHIM_diu simulation gives a better representativity of the hourly values as the CHIM_ref simulation spread fire emissions evenly over the day.

On the 18-19 October, levels of PM are correctly simulated by CHIMERE for all the simulations in Sydney (PM

up to $100 \mu\text{g m}^{-3}$ for both observations and model and $200 \mu\text{g m}^{-3}$ at Campbelltown West).

On 21 October, the strongest peak in Sydney is underestimated by CHIM_ref, up to 1 ppm for CO versus 1.5 ppm in the observations, and $200 \mu\text{g m}^{-3}$ versus almost $300 \mu\text{g m}^{-3}$ for PM₁₀. The simulated peak is also more spread, due to the fact that the fire emissions have no diurnal variability in this version of the model, thus all the emissions are release evenly during a day. This is confirmed by the CHIM_diu simulation that improves the modelled peak significantly. In Campbelltown West however, the peak is missed by CHIMERE. Observations shows concentrations up to 9 ppm for CO and $900 \mu\text{g m}^{-3}$ for PM₁₀, and although simulations show similar values very close to the fire source, it is not transported to the south (the transport of the plume follows a south-east direction that day) and concentrations rapidly decrease.

Finally, a strong peak is seen in the model on the 25 October at Sydney stations, but the peak is overestimated by a factor of around 3 compared to CO and PM observations.

The differences between CHIM_ref and CHIM_1km are relatively low. Figure 12, which represents the daily mean of the PBL heights averaged above the fire grid cells only, shows that there is a minimum in the model on the 18-19-20-21 October, corresponding to the time when the peaks are not missed by the model. In addition, the wind speed is lower on these days. The mixing into the BL is thus relatively quick in the model at the scale of the fire, and the meteorological conditions drives the main transport of the plume. However, the bias of the CHIM_1km is lower, particularly for CO (-9.5% instead of -14%, with a RMSE of 186 instead of 194).

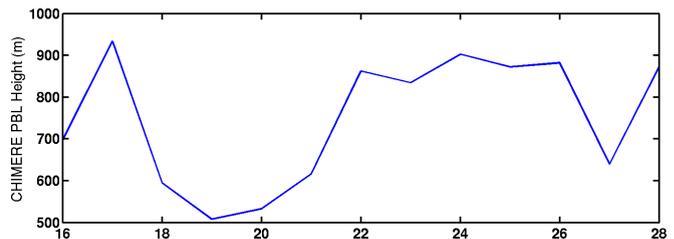


Figure 12: Averaged simulated planetary boundary layer height above fires, from 16 to 28 October 2013.

Applying a diurnal profile to the emissions has a direct impact on the peak hourly values, that are higher than the baseline simulation, increasing hourly correlation coefficients (0.39 to 0.45 for CO, 0.35 to 0.40 for PM_{2.5}). Particularly, PM concentrations in Wollongong and Chullora for the 18th and the 21st of October are better simulated with diurnal variability of fire emissions (Figure 4). However, peaks that are only seen by the model are also higher and so that the total bias is not improved.

This analysis suggests that a regional model is able

to reproduce the variability of a fire event, but predicting the correct amplitude is challenged by various uncertainties: from the magnitude and diurnal variation of the fire emissions and from the transport pathways of the fire plumes, influenced itself by the meteorological conditions which can confine fire emissions closer to the surface.

4.2. Simulation of the fires' impact on air quality

Air quality impact was evaluated by analyzing the number of threshold exceedances. The national ambient air quality standards are 50 and 25 $\mu\text{g m}^{-3}$ for PM_{10} and for $\text{PM}_{2.5}$ respectively, both for a 24-hour average.

Table 3 shows the number of exceedances detected at each station for observed and modeled concentrations. These exceedances are also plotted on Figure 5 for the CHIM_ref and CHIM_diu simulations (where the higher differences are noticed) and the observations during the NSW fire episode. The CHIMERE model assigns all the exceedances of PM to fires. CHIM_ref and CHIM_diu present similar results for the daily average of concentrations, with slightly more exceedances in CHIM_diu on each day, due to the higher hourly peak that can be spread over more stations at a given time.

For $\text{PM}_{2.5}$, the number of exceedances detected by the model is overestimated by a factor of 2 (46 versus 22), whereas it is better represented for PM_{10} (94 versus 75). In general the model manages to detect the number of days where an exceedance is observed (for all the stations in Sydney area and Wollongong, 5 days from 7 show PM_{10} exceedances in agreement with observations, whereas 2 days are missed and 1 is only seen by CHIMERE, and 8 days of 10 for $\text{PM}_{2.5}$ exceedances with no false detections). This is particularly the case for stations near the Baltimore fire.

In total from 16 to 28 October, almost all days had exceedances due to fires in the entire Sydney region grid, with a maximum of 25% of the domain with $\text{PM}_{2.5}$ concentration over 25 $\mu\text{g m}^{-3}$ (and 20% of the domain with PM_{10} concentration over 50 $\mu\text{g m}^{-3}$) on the 19 October. The majority of exceedances are concentrated over 50 km around the fire sources, and inner Sydney is affected during 5 days with thresholds exceeded.

During these exceedances, $\text{PM}_{2.5}$ is composed mainly of organic carbon (53.5%, with 53.2% due to fires), primary organic matter (23.6%, with 23.1% due to fires), secondary organic aerosols (7.6%, with 5.6% due to fires) and sea salt (7.8%). The composition of PM_{10} during exceedances is similar, with in proportion more sea salt (9.5%) and slightly more primary organic carbon (33%) and secondary organic aerosols (6.2%), and less OC (45%).

5. Summary and Conclusions

A detailed analysis has been undertaken for the New South Wales bushfires of 2013 that burned in rural New South Wales in October 2013 and produced smoke plumes transported over populated areas in Sydney and Wollongong.

Measurements from the Fourier Transform infrared trace gas analyser in University of Wollongong allowed the retrieval of concentrations of CO , CO_2 , CH_4 and N_2O , allowing several characteristics of the studied fires to be determined. The calculation of emissions factors from enhancements ratios have been made from these data, and are (in grams of gas emitted per kilogram of dry fuel burned) : 1640 g kg^{-1} of carbon dioxide; 107 g kg^{-1} of carbon monoxide; 7.8 g kg^{-1} of methane; and 0.16 g kg^{-1} of nitrous oxide, although interfering methane sources cause doubt on the emission factor for methane. These values are in agreement (except for methane) with other studies on the main types of vegetation and have been used as an input for the fire inventory used in the chemistry-transport model CHIMERE.

Measurements from the NSW air quality monitoring network have also been used to analyse the fires' impact on Sydney.

Three simulations have been computed with the CHIMERE model, to evaluate the influence of key parameters. A simulation (CHIM_ref) has been computed with initial parametrization of the model (daily fire emissions from the APIFLAME inventory, and pollutants injected homogeneously into the PBL). Two additional simulations, one with a gaussian diurnal profile for fire emissions (CHIM_diu) and one with pollutants injected below 1 km (CHIM_1km) have also been computed and compared to the observations.

The simulated concentrations of CO and particulate matter from CHIMERE have been compared to the stations and the FTIR. The model in the three simulations generally captures the variability of the levels of concentrations well, with correlation coefficients ranging from 0.44 for PM_{10} to 0.79 for CO . Results of CHIM_1km is very close to CHIM_ref, but with less bias and RMSE. CHIM_diu does not improve the daily statistics but influence hourly values.

The model in its initial configuration underestimates the largest smoke impact in Sydney on 21 October (1 ppm for CO versus 1.5 ppm, and 200 versus 300 $\mu\text{g m}^{-3}$ for PM_{10} at the station Chullora), whereas CHIM_diu managed to reproduce the peak, so that diurnal variability for fire emissions influences peak values initially modeled at the right location.

The transport pathway of the fire plume is a source of uncertainty, leading to an inconsistency with the observations for instance on the 21 October in Campbelltown West (where a peak is missing although large fire emissions are released this day). The transport is correctly simulated when the meteorological conditions favors the confinement of the fire emissions closer to the surface (boundary layer and winds lower than average).

Even though there are discrepancies between observed and modelled concentration peaks, the levels and the consistent variability of the simulated surface concentrations allows a good overview of the number of days that exceed the air quality standards defined by the NEPM, particularly for PM_{10} : 5 days from 7 in agreement with observa-

645 tions, with 2 days missed and 1 false alarm. All the simu-
lations detect the same number of days with exceedances
for this episode. A maximum of 20% of the Sydney region
domain is affected by PM₁₀ exceedances, 25% for PM_{2.5}710
exceedances, with a composition mainly of organic carbon
650 (53.5%) and primary organic matter (23.6%).

These results show that a regional model can simulate
reasonably the impact on air quality of a fire episode, when
the emission inventory is adapted to the region, even if the
uncertainties linked to the amount of pollutants released
655 and the transport of the plume play a key role on the levels
of modeled surface concentrations. 720

Acknowledgement

We wish to thank financial support for this project725
from EIT - Climate-KIC. Authors are grateful to the National
Aeronautics and Space Agency (NASA) for the avail-
ability of the MODIS and MISR data. The Office of Envi-
ronment and Heritage is thanked for providing data from
the NSW air quality monitoring network. The Rural Fire
Service is also thanked for the database concerning the
665 reported burned area. 735

References

- Akagi, S. K., Yokelson, R. J., Wiedinmyer, C., Alvarado, M. J.,
Reid, J. S., Karl, T., Crouse, J. D., Wennberg, P. O., 2011.740
Emission factors for open and domestic biomass burning for use in
atmospheric models. *Atmospheric Chemistry and Physics* 11 (9),
670 4039–4072.
- Alfaro, S. C., Gomes, L., 2001. Modeling mineral aerosol production
by wind erosion: Emission intensities and aerosol size distributions,
in source areas. *Journal of Geophysical Research: Atmospheres*
675 106 (D16), 18075–18084.
- Andreae, M. O., Merlet, P., 2001. Emission of trace gases and
aerosols from biomass burning. *Global Biogeochemical Cycles*
15 (4), 955–966. 750
- Bessagnet, B., Hodzic, A., Vautard, R., Beekmann, M., Cheinet,
S., Honoré, C., Liousse, C., Rouil, L., 2004. Aerosol modeling
with CHIMERE: preliminary evaluation at the continental scale.
680 *Atmospheric Environment* 38 (18), 2803–2817.
- Bowman, D. M., Balch, J. K., Artaxo, P., Bond, W. J., Carlson,
J. M., Cochrane, M. A., D’Antonio, C. M., DeFries, R. S., Doyle,
685 J. C., Harrison, S. P., et al., 2009. Fire in the earth system. *science*
324 (5926), 481–484.
- Boylan, J. W., Russell, A. G., 2006. Pm and light extinction model
performance metrics, goals, and criteria for three-dimensional air,
690 quality models. *Atmospheric Environment* 40 (26), 4946–4959.
- Briant, R., Menut, L., Siour, G., Prigent, C., 2014. Homogenized
modeling of mineral dust emissions over europe and africa using
the CHIMERE model. *Geoscientific Model Development Discus-*
695 *sions* 7 (3), 3441–3480.
- Friedl, M. A., Sulla-Menashe, D., Tan, B., Schneider, A., Ram-
ankutty, N., Sibley, A., Huang, X., 2010. MODIS collection 5
global land cover: Algorithm refinements and characterization of
695 new datasets. *Remote Sensing of Environment* 114 (1), 168–182.
- Giglio, L., Randerson, J. T., van der Werf, G. R., Kasibhatla, P. S.,
700 Collatz, G. J., Morton, D. C., DeFries, R. S., 2010. Assessing vari-
ability and long-term trends in burned area by merging multiple
satellite fire products. *Biogeosciences* 7 (3), 1171–1186.
- Griffith, D. W. T., Deutscher, N. M., Caldow, C., Kettlewell, G.,
Riggenbach, M., Hammer, S., 2012. A fourier transform infrared,
705 trace gas and isotope analyser for atmospheric applications. *At-
mospheric Measurement Techniques* 5 (10), 2481–2498.
- Guenther, A., Karl, T., Harley, P., Wiedinmyer, C., Palmer, P.,
Geron, C., 2006. Estimates of global terrestrial isoprene emissions
using MEGAN (Model of Emissions of Gases and Aerosols from
Nature). *Atmos. Chem. Phys.* 6, 3181–3210.
- Hao, W. M., Ward, D. E., 1993. Methane production from global
biomass burning. *Journal of Geophysical Research: Atmospheres*
98 (D11), 20657–20661.
- Hoelzemann, J. J., Schultz, M. G., Brasseur, G. P., Granier, C.,
Simon, M., 2004. Global wildland fire emission model (gwem):
Evaluating the use of global area burnt satellite data. *Journal of*
Geophysical Research: Atmospheres 109 (D14).
- IPCC, 2013. Climate change 2013: The physical science basis. con-
tribution of working group i to the fifth assessment report of the
intergovernmental panel on climate change [stocker, t.f., d. qin,
g.-k. plattner, m. tignor, s.k. allen, j. boschung, a. nauels, y. xia,
v. bex and p.m. midgley (eds.)].
- Johnston, F., Hanigan, I., Henderson, S., Morgan, G., Bowman, D.,
2011. Extreme air pollution events from bushfires and dust storms
and their association with mortality in sydney, australia 1994-
2007. *Environmental research* 111 (6), 811–816.
- Johnston, F. H., Hanigan, I. C., Henderson, S. B., Morgan, G. G.,
2013. Evaluation of interventions to reduce air pollution from
biomass smoke on mortality in launceston, australia: retrospective
analysis of daily mortality, 1994-2007. *BMJ* 346.
- Johnston, F. H., Henderson, S. B., Chen, Y., Randerson, J. T., Mar-
lier, M., DeFries, R. S., Kinney, P., Bowman, D. M., Brauer, M.,
2012. Estimated global mortality attributable to smoke from land-
scape fires. *Environmental health perspectives* 120 (5).
- Kahn, R. A., Garay, M. J., Nelson, D. L., Yau, K. K., Bull, M. A.,
Gaitley, B. J., Martonchik, J. V., Levy, R. C., 2007. Satellite-
derived aerosol optical depth over dark water from MISR and
MODIS: Comparisons with AERONET and implications for cli-
matological studies. *Journal of Geophysical Research: Atmo-*
spheres 112 (D18).
- Kalnay, E., Kanamitsu, M., Kistler, R., Collins, W., Deaven, D.,
Gandin, L., Iredell, M., Saha, S., White, G., Woollen, J., Zhu, Y.,
Chelliah, M., Ebisuzaki, W., Higgins, W., Janowiak, J., Mo, K.,
Ropelewski, C., Wang, J., Leetmaa, A., Reynolds, R., Jenne, R.,
Joseph, D., 1996. The NCEP/NCAR 40-year reanalysis project.
735 *Bull. Amer. Meteorol. Soc.* 77, 437–471.
- Krinner, G., Viovy, N., de Noblet-Ducoudré, N., Ogée, J., Polcher,
J., Friedlingstein, P., Ciais, P., Sitch, S., Prentice, I. C., 2005.
A dynamic global vegetation model for studies of the cou-
pled atmosphere-biosphere system. *Global Biogeochemical Cycles*
19 (1), gB1015.
- Langmann, B., Duncan, B., Textor, C., Trentmann, J., van der Werf,
G. R., 2009. Vegetation fire emissions and their impact on air
pollution and climate. *Atmospheric Environment* 43 (1), 107–116.
- Maignan, F., Bréon, F.-M., Chevallier, F., Viovy, N., Ciais, P., Gar-
rec, C., Trules, J., Mancip, M., 2011. Evaluation of a global vege-
tation model using time series of satellite vegetation indices. *Geo-*
scientific Model Development 4 (4), 1103–1114.
- Martcorena, B., Bergametti, G., 1995. Modeling the atmospheric
dust cycle: 1. Design of a soil-derived dust emission scheme.
740 *Journal of Geophysical Research: Atmospheres* 100 (D8), 16415–
16430.
- Menut, L., Bessagnet, B., Khvorostyanov, D., Beekmann, M., Blond,
N., Colette, A., Coll, I., Curci, G., Foret, G., Hodzic, A., Mailler,
S., Meleux, F., Monge, J., Pison, I., Siour, G., Turquety, S., Valari,
M., Vautard, R., Vivanco, M., 2013. CHIMERE 2013: a model for
regional atmospheric composition modelling. *Geoscientific Model*
Development 6, 981–1028.
- Menut, L., Schmechtig, C., Martcorena, B., 2005. Sensitivity of the
sandblasting fluxes calculations to the soil size distribution accu-
racy. *Journal of Atmospheric and Oceanic Technology* 22, 1875–
1884.
- Mieville, A., Granier, C., Liousse, C., Guillaume, B., Mouillot, F.,
Lamarque, J., Grégoire, J., Pétron, G., 2010. Emissions of gases
and particles from biomass burning during the 20th century us-
ing satellite data and an historical reconstruction. *Atmospheric*
Environment 44 (11), 1469–1477.

- Mims, S., Kahn, R., Moroney, C., Gaitley, B., Nelson, D., Garay, M., Jan 2010. MISR stereo heights of grassland fire smoke plumes in australia. *Geoscience and Remote Sensing, IEEE Transactions* 48 (1), 25–35.
- 780 Morgan, G., Sheppard, V., Khalaj, B., Ayyar, A., Lincoln, D., Jalaludin, B., Beard, J., Corbett, S., Lumley, T., 2010. Effects of bushfire smoke on daily mortality and hospital admissions in sydney, australia. *Epidemiology* 21 (1), 47–55.
- 785 Paton-Walsh, C., Smith, T. E. L., Young, E. L., Griffith, D. W. T., Guérette, E.-A., 2014. New emission factors for australian vegetation fires measured using open-path fourier transform infrared spectroscopy - part 1: Methods and australian temperate forest fires. *Atmospheric Chemistry and Physics* 14 (20), 11313–11333.
- 790 Paugam, R., Wooster, M., Freitas, S. R., Val Martin, M., 2015. A review of approaches to estimate wildfire plume injection height within large scale atmospheric chemical transport models part 1. *Atmospheric Chemistry and Physics Discussions* 15 (6), 9767–9813.
- 795 Pitman, A., Narisma, G., McAneney, J., 2007. The impact of climate change on the risk of forest and grassland fires in australia. *Climatic Change* 84 (3-4), 383–401.
- Pope III, C. A., Dockery, D. W., 2006. Health effects of fine particulate air pollution: lines that connect. *Journal of the Air & Waste Management Association* 56 (6), 709–742.
- 800 Reisen, F., Brown, S. K., 2006. Implications for community health from exposure to bushfire air toxics. *Environmental Chemistry* 3 (4), 235–243.
- Schultz, M. G., Heil, A., Hoelzemann, J. J., Spessa, A., Thonicke, K., Goldammer, J. G., Held, A. C., Pereira, J. M. C., van het Bolscher, M., 2008. Global wildland fire emissions from 1960 to 2000. *Global Biogeochemical Cycles* 22 (2).
- Sessions, W. R., Fuelberg, H. E., Kahn, R. A., Winker, D. M., 2011. An investigation of methods for injecting emissions from boreal wildfires using WRF-Chem during ARCTAS. *Atmospheric Chemistry and Physics* 11 (12), 5719–5744.
- 810 Skamarock, W., Klemp, J., Dudhia, J., Gill, D., Barker, D., Duda, M., Huang, X., Wang, W., Powers, J., 2008. A description of the advanced research WRF version 3. NCAR Technical Note, 123pp.
- 815 Smith, T. E. L., Paton-Walsh, C., Meyer, C. P., Cook, G. D., Maier, S. W., Russell-Smith, J., Wooster, M. J., Yates, C. P., 2014. New emission factors for australian vegetation fires measured using open-path fourier transform infrared spectroscopy - part 2: Australian tropical savanna fires. *Atmospheric Chemistry and Physics* 14 (20), 11335–11352.
- 820 Turquet, S., Menut, L., Bessagnet, B., Anav, A., Viovy, N., Maignan, F., Wooster, M., 2014. APIFLAME v1.0: High resolution fire emission model and application to the Euro-Mediterranean region. *Geoscientific Model Development* 7, 587–612.
- 825 van der Werf, G. R., Randerson, J. T., Giglio, L., Collatz, G. J., Kasibhatla, P. S., Arellano Jr., A. F., 2006. Interannual variability in global biomass burning emissions from 1997 to 2004. *Atmospheric Chemistry and Physics* 6 (11), 3423–3441.
- Wang, J., Christopher, S. A., Nair, U. S., Reid, J. S., Prins, E. M., Szykman, J., Hand, J. L., 2006. Mesoscale modeling of central american smoke transport to the united states: 1. top-down assessment of emission strength and diurnal variation impacts. *Journal of Geophysical Research: Atmospheres* 111 (D5), d05S17.
- 830 Ward, D., Radke, L., 1993. Emissions measurements from vegetation fires: A comparative evaluation of methods and results. *Fire in the Environment: The Ecological, Atmospheric and Climatic Importance of Vegetation Fires* 13, 53–76.
- 835 Wiedinmyer, C., Akagi, S. K., Yokelson, R. J., Emmons, L. K., Al-Saadi, J. A., Orlando, J. J., Soja, A. J., 2011. The fire inventory from ncar (finn): a high resolution global model to estimate the emissions from open burning. *Geoscientific Model Development* 4 (3), 625–641.
- 840 Yokelson, R. J., Goode, J. G., Ward, D. E., Susott, R. A., Babbitt, R. E., Wade, D. D., Bertschi, I., Griffith, D. W. T., Hao, W. M., 1999. Emissions of formaldehyde, acetic acid, methanol, and other trace gases from biomass fires in north carolina measured by airborne fourier transform infrared spectroscopy. *Journal of Geophysical Research: Atmospheres* 104 (D23), 30109–30125.
- 845 Yokelson, R. J., Karl, T., Artaxo, P., Blake, D. R., Christian, T. J., Griffith, D. W. T., Guenther, A., Hao, W. M., 2007. The tropical forest and fire emissions experiment: overview and airborne fire emission factor measurements. *Atmospheric Chemistry and Physics* 7 (19), 5175–5196.

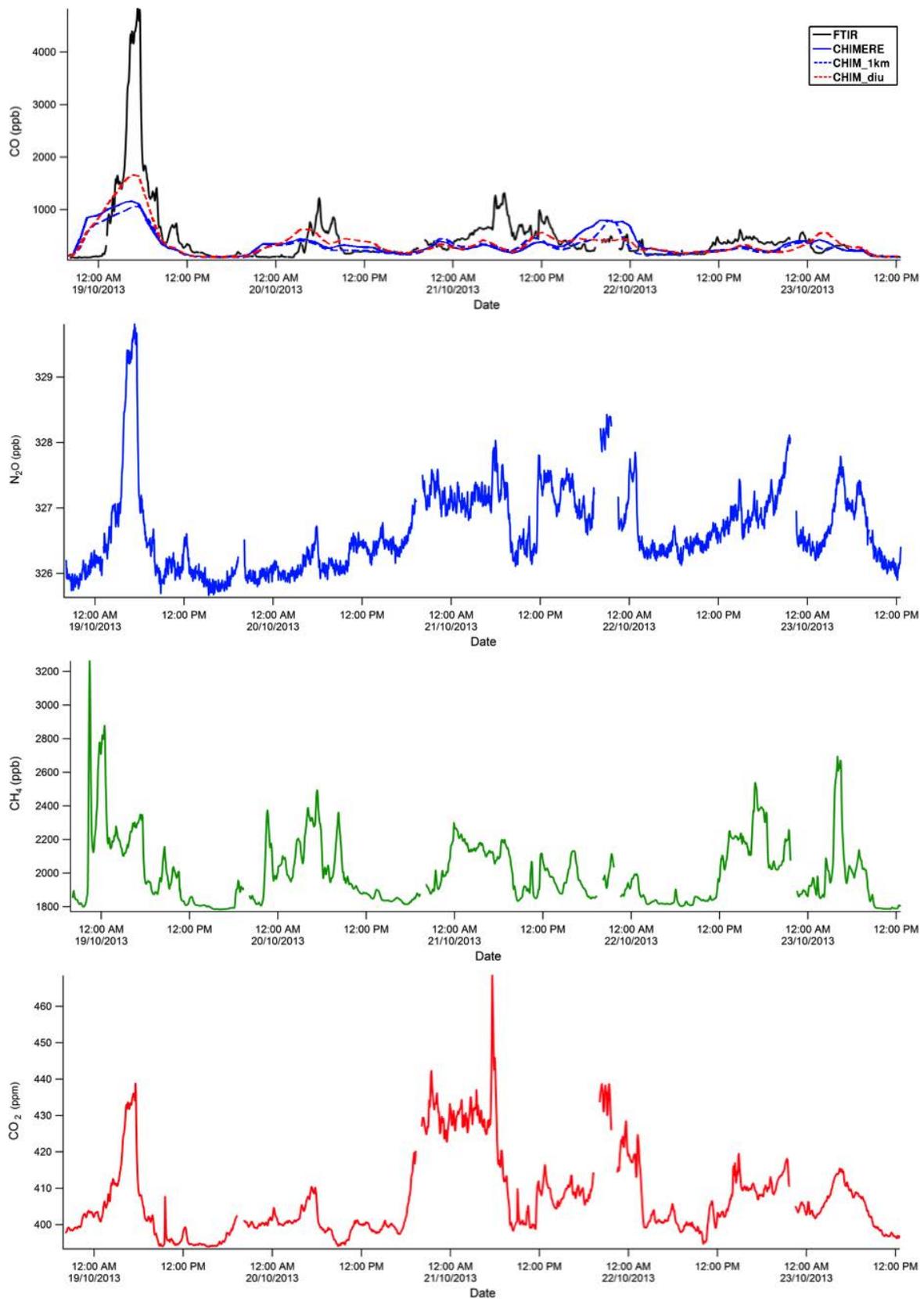


Figure 2: Time-series of CO , N_2O , CH_4 and CO_2 measured using the FTIR trace gas analyser at Wollongong during the NSW 2013 bushfires.

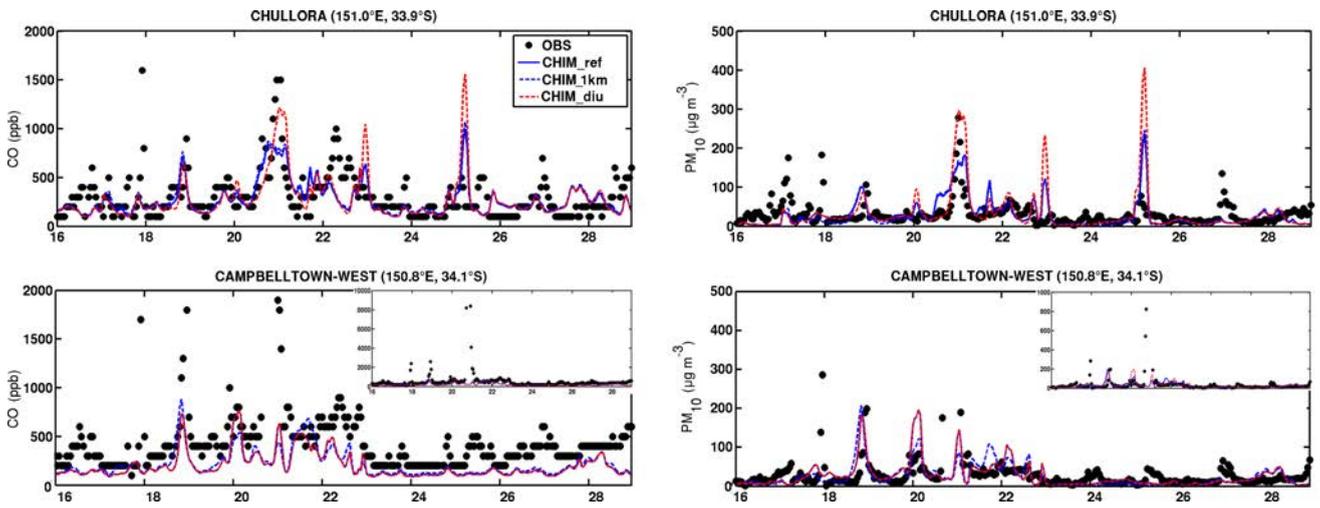


Figure 4: Time series of CO and PM₁₀ surface concentrations for Chullora (Sydney east) and Campbelltown West and stations, for observations (black dots) and the CHIMERE model co-located (blue line). Results for two other CHIMERE simulations are also shown: in dashed blue, with all the fire emissions injected homogeneously under 1 km, and in dashed red with a diurnal profile for the amount of fire emissions. For Campbelltown-West, time series with the y-axis going to 10 ppm for CO and 500 $\mu\text{g m}^{-3}$ is also shown to represent the peak values.

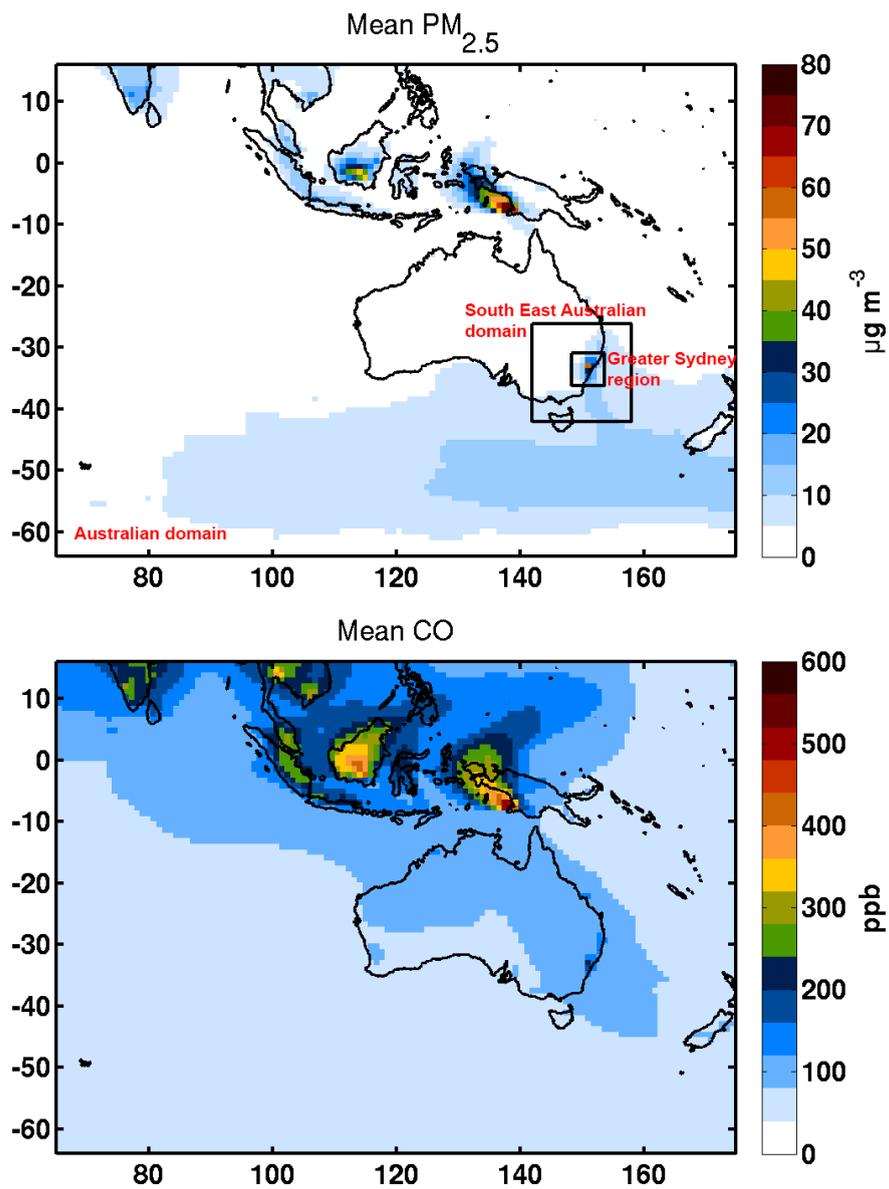


Figure 6: Daily mean $PM_{2.5}$ and CO, averaged from 16 to 28 October 2013. Nested domains for the CHIMERE model are highlights with boxes on the top figure: the Australian domain, the South East Australian domain and the Greater Sydney Region.

Table 3: Daily performance statistics for CO and PM concentrations simulated with CHIMERE (Mod.) compared to OEH measurements and the FTIR of Wollongong (Obs.) from 16 to 28 October 2013. The number of exceedances corresponds to the number of time that the threshold defined by NEPC is exceeded: $50 \mu\text{g m}^{-3}$ for PM_{10} and $25 \mu\text{g m}^{-3}$ for $\text{PM}_{2.5}$ both on a daily average, and 9 ppm for CO on a 8-hour period average. Also shown is the correlation coefficient R between observations and model; the mean bias (MB) and the root mean square error (RMSE).

Variable	Station	Mean		R	MB	RMSE	Number of exceedances	
		Obs.	Mod.				Obs.	Mod.
PM_{10} ($\mu\text{g m}^{-3}$)	Albion Park South	27	42	0.78	28%	40	2	4
	Bargo	73	36	0.21	-29%	109	3	3
	Beresfield	39	39	0.58	-6%	30	2	2
	Bringelly	33	41	0.61	18%	27	2	4
	Bulga	41	40	-0.05	2%	36	2	5
	Camden	32	30	0.71	-8%	18	2	2
	Campbelltown West	32	26	0.83	-21%	16	1	2
	Chullora	31	33	0.58	5%	22	2	4
	Earlwood	32	31	0.44	-1%	21	2	2
	Kembla Grange	37	50	0.91	6%	43	4	5
	Lindfield	22	32	0.53	37%	27	0	3
	Liverpool	34	37	0.85	-1%	17	2	5
	Maison Dieu	52	32	-0.15	-34%	43	7	3
	Mount Thorley	52	34	-0.23	-19%	40	7	4
	Newcastle	39	32	0.67	-17%	15	3	3
	Oakdale	36	35	0.83	-9%	19	4	3
	Prospect	34	46	0.84	16%	32	1	5
	Randwick	29	25	0.48	-10%	14	1	1
	Richmond	44	75	0.68	50%	64	5	5
	Rozelle	26	33	0.50	24%	26	1	3
Singleton	42	33	-0.33	-14%	34	3	4	
Singleton NW	47	32	-0.32	-21%	37	7	4	
Singleton South	39	32	-0.41	-5%	36	2	3	
St Marys	35	47	0.82	20%	29	2	5	
Vineyard	32	66	0.92	70%	62	1	5	
Wallsend	31	34	0.55	14%	16	1	3	
Warkworth	42	37	-0.29	-3%	41	3	4	
Wollongong	38	38	0.79	-1%	21	3	3	
	All	38	38	0.44	3%	33	75	99
$\text{PM}_{2.5}$ ($\mu\text{g m}^{-3}$)	Beresfield	19	31	0.25	73%	31	1	5
	Camden	18	23	0.63	54%	17	2	5
	Chullora	17	28	0.76	56%	21	1	5
	Earlwood	14	25	0.54	82%	21	1	4
	Liverpool	19	30	0.85	47%	19	2	5
	Richmond	30	62	0.72	85%	57	8	8
	Singleton	14	26	0.27	89%	27	0	6
	Wallsend	20	26	0.46	60%	17	3	5
	Wollongong	22	28	0.93	33%	15	4	5
		All	19	31	0.60	64%	25	22
CO (ppb)	Camden	251	207	0.79	-6%	132	0	0
	Campbelltown West	511	203	0.86	-58%	402	0	0
	Chullora	307	285	0.72	-4%	93	0	0
	Liverpool	404	267	0.92	-36%	152	0	0
	Newcastle	202	207	0.49	8%	83	0	0
	Prospect	237	306	0.92	24%	116	0	0
	Rozelle	259	232	0.58	-7%	99	0	0
	Wollongong	473	267	0.99	-35%	386	0	0
	Wollongong FTIR	362	284	0.97	-20%	84	0	0
	All	330	247	0.79	-14%	183	0	0

7.3 Conclusions

Une analyse détaillée a été entreprise pour les feux de végétation d'octobre 2013 dans la région de Sydney. Les observations du FTIR de l'Université de Wollongong ont permis de caractériser ces feux en terme de facteurs d'émissions et de niveaux de concentration des polluants tels que le CO, le CO₂, le CH₄ et le N₂O. Le réseau de mesures de concentration de PM de surface a permis de déterminer la qualité de l'air dans la région. Au total, il y a eu pour le mois d'octobre 7 jours de dépassements du seuil de PM₁₀ (50 $\mu\text{g m}^{-3}$) et 9 jours pour le seuil de PM_{2.5} (25 $\mu\text{g m}^{-3}$), la totalité étant due aux feux de végétation qui se sont déclarés à cette période.

La modélisation de ce cas de feux avec CHIMERE a permis de mettre en évidence la bonne temporalité des émissions de feux, malgré le fait que l'amplitude des concentrations horaires soit sous-estimée globalement. Deux simulations complémentaires, une avec des émissions injectées selon un profil diurne, une autre avec une hauteur d'injection à 1 km, ont été réalisées et comparées à la simulation de référence. La simulation avec la hauteur d'injection à 1 km donne sensiblement de meilleurs résultats avec un biais moins important pour le CO par exemple (-9,5% au lieu de -14% et un RMSE de 186 au lieu de 194). La simulation où la variabilité des émissions est diurne accentue fortement les pics de concentrations dans la journée et a un réel impact, contrairement à ce qui a été montré pour l'Europe. Ici, les pics sous-estimés sont mieux modélisés par CHIMERE avec la variabilité diurne. Cependant, lorsqu'un pic de feux est déjà surestimé, cela accentue l'erreur du modèle.

Une des principales conclusions de cette analyse est que le transport joue un rôle important, notamment le vent et la hauteur de couche limite. En effet, la modélisation est la meilleure très près des feux, et quand les vents sont faibles et la couche limite basse, limitant les erreurs de transport qui peuvent amener à sous-estimer ou surestimer les concentrations lorsque le panache n'est pas transporté au bon endroit, selon les mesures des stations. Les paramètres de la modélisation des feux tels que ceux étudiés (variabilité et hauteur d'injection) peuvent affecter de manière significative les performances du modèle, mais ils sont conditionnés par un bon transport et mélange des émissions dans le modèle.

Cette analyse montre également l'utilité de la modélisation des feux et leur prise en compte dans les prévisions de qualité de l'air, encore très rare en Australie. Le modèle a en effet une bonne performance avec les feux actifs, qui sont utilisés pour le temps réel (Section 3.6).

8 | Conclusion et perspectives

Quantifier l'impact sanitaire et climatique des particules fines nécessite un suivi précis de l'évolution de leurs concentrations, ainsi qu'une bonne connaissance de leurs différentes sources. Parmi celles-ci, les feux de végétation représentent une source très sporadique encore mal prise en compte dans les modèles de chimie transport, et rarement observable dans toute sa complexité. De nombreux paramètres influencent en effet leur émission puis le transport des panaches associés.

La recherche menée dans cette thèse avait pour but une meilleure compréhension de l'impact des sources d'aérosols, en particulier des feux de végétation, sur la pollution régionale en Euro-Méditerranée et en Australie. Ces deux régions sont régulièrement affectées par des épisodes de feux de végétation. La région Méditerranéenne présente une disposition géographique complexe et diverses sources d'aérosols influencent directement sa composition atmosphérique, notamment les émissions anthropiques, biogéniques, les soulèvements de poussières minérales et les sels marins, les feux de végétation en été. En Australie, les feux sont souvent très intenses et constituent une source de particules majoritaire pendant les saisons de feux. Le travail sur les feux en Australie a été réalisé en collaboration avec l'université de Wollongong, plus spécifiquement le groupe de Clare Paton-Walsh dans lequel j'ai effectué un séjour de 5 mois pendant ma 2e année de thèse (mobilité associée à mon financement de thèse KIC-Climat).

La méthodologie utilisée dans ces deux régions repose sur une analyse conjointe des observations disponibles et de résultats de modélisation. Les observations par les réseaux de surface (concentrations de surface mesurées aux stations du réseau AIRBASE et aux stations CHARMEX en Europe, aux stations du réseau OEH et au FTIR en Australie, et épaisseur optique aux stations AERONET) apportent une observation précise avec une bonne couverture temporelle, mais ces mesures sont ponctuelles et ne couvrent pas l'ensemble des régions de manière homogène. Les observations satellitaires (d'épaisseur optique par exemple) offrent une meilleure couverture spatiale et permettent l'analyse de mesures cohérente sur l'ensemble des domaines d'étude. Elles manquent cependant souvent de précision et de résolution. Pour les caractéristiques des feux (surface, intensité), ces mesures sont indispensables pour permettre une étude régionale. Malgré la richesse de ces observations, la modélisation est nécessaire pour comprendre les processus en jeu, via des études de sensibilité par exemple, pour évaluer l'impact relatif d'une source particulière, les feux ici, et pour prévoir l'évolution de la pollution. Observations et modélisation sont ici utilisées conjointement. Les observations des concentrations ou de l'épaisseur optique sont utilisées pour évaluer la qualité des simulations et analyser les incertitudes. Le déclenchement des feux étant fortement aléatoire, la simulation d'événements passés ou la prévision à court terme nécessite l'intégration d'observations dans le calcul des émissions.

Les principaux résultats répondant à chacun des objectifs de ma thèse sont résumés ci-dessous.

- **Quelles sont les caractéristiques des feux de végétation dans les deux régions d'étude ? La variabilité des feux et des profils d'injection associés dépend-t-elle de chaque région ?**

Pour répondre à cet objectif, le type de végétation brûlée et la surface brûlée ont été analysés à partir des observations de 2006 à 2014. D'après l'instrument MODIS, la végétation brûlée en Europe est principalement constituée de surfaces agricoles (70%), et les feux de forêt peuvent atteindre 13% de la végétation brûlée sur le pourtour méditerranéen. En Australie, les feux de savane et de maquis (feux de bush) sont majoritaires (50% et 40%), avec plus de contraste entre les régions (jusqu'à 65% de forêts brûlées dans la région de Sydney). Comparé à des bases de données plus fines, MODIS a tendance à attribuer plus de surfaces agricoles en Europe.

Les profils de hauteur de panaches observés par satellite (instruments MISR et CALIOP) montrent une accumulation en surface et à 2 km environ, ainsi qu'une certaine proportion en altitude dans les deux régions (4,6-6,4% au dessus de 4 km en moyenne pour l'Europe, 8,9-11% pour l'Australie). La proportion au dessus de la couche limite est plus importante (43-61% pour l'Australie, 46-70% pour l'Europe). Cependant, le lien avec les paramètres d'intensité du feu, tel que la puissance radiative du feu observée par satellite (FRP), ou de hauteur de couche limite est difficile à établir, traduisant la complexité dans la détermination de ce profil vertical adapté à chaque feu.

Bien que peu d'études similaires aient été réalisées sur l'Europe et l'Australie en particulier, la proportion des hauteurs injectées au dessus de la couche limite est plus élevée que pour les études existantes (avec l'instrument CALIOP, cette proportion est de 48% en Europe de l'Est (Amiridis et al., 2010) ; avec l'instrument MISR, elle est de 4 à 12% en Amérique du Nord (Val Martin et al., 2010) et 26% sur une dizaine de panaches en Australie (Mims et al., 2010)). Ceci peut être dû à la hauteur de couche limite en elle-même, provenant de différentes bases de données pour chacune des études.

La caractérisation des caractéristiques des feux dans chacune des régions est déterminante pour le calcul des émissions, étape indispensable à la modélisation de leur impact sur la composition atmosphérique. Mon étude met en évidence la diversité des situations qu'il est nécessaire de pouvoir prendre en compte.

- **Quelle est la contribution relative des sources d'émissions d'aérosols anthropiques et naturelles sur la pollution particulaire régionale en Europe (en surface et sur toute la colonne atmosphérique) et sur les dépassements des seuils de pollution ?**

Cette deuxième étape vise à comprendre l'importance relative des feux en moyenne sur une saison des feux, c'est-à-dire sur un été, et sur l'ensemble de la région Euro-Méditerranée.

Une série de simulations a été réalisée pour l'été 2012 (du 1er juin au 31 août). Dans chacune d'elle, chaque processus d'émission (anthropiques, biogéniques, feux, poussières minérales et sels marins) a été éliminé pour évaluer son impact sur le bilan de particules fines.

Les résultats de cette étude de sensibilité montrent que la région Euro-Méditerranéenne est fortement influencée par le transport de poussières minérales et par les émissions anthropiques (62% et 19% respectivement pour les PM_{10} de surface, et 17% et 52% pour les $PM_{2.5}$ de surface). La contribution des poussières est la plus importante dans l'Ouest du bassin (86% pour les PM_{10} et 44% pour les $PM_{2.5}$). C'est aussi dans cette région que les concentrations de PM sont les plus élevées. Dans le Nord, les sources anthropiques dominent le bilan de particules fines en surface (jusqu'à 75% de contribution sur les $PM_{2.5}$).

Les émissions de sel marins impactent les villes côtières à hauteur de 29% sur les PM_{10} de surface. Les émissions biogéniques contribuent au centre nord surtout sur les $PM_{2.5}$ (20%).

Enfin, les feux de végétation sont une source significative dans le bassin, avec 20% en moyenne locale (Balkans). En revanche, sur l'ensemble du bassin et en moyenne sur l'été, l'importance des feux est relativement faible (contribution de 6% sur les $PM_{2.5}$).

Les contributions sur les dépassements observés (aux stations situées en grande majorité au Nord et à l'Ouest) montrent que les sources qui contribuent à elles seules aux dépassements sont les poussières désertiques et les feux pour les PM_{10} (dans 35,9% (197) et 0,7% (4) des 549 dépassements respectivement), et les sources anthropiques et les feux pour les $PM_{2.5}$ (dans 21% (54) et 2% (5) des 256 dépassements). Les autres dépassements sont provoqués par un mélange des différentes sources.

Cette étude a permis de confirmer la forte influence des poussières minérales sur l'Europe, déjà observée localement ([Escudero et al., 2007](#)). Cependant, 21% des dépassements de $PM_{2.5}$ sont dû uniquement aux émissions anthropiques au Nord et à l'Ouest de l'Europe. D'autre part, bien que l'influence des feux soit faible en moyenne pendant l'été en Europe, j'ai montré qu'ils représentent une perturbation importante dans les régions d'émission. Cette perturbation a donc été analysée en détail afin d'évaluer notre capacité à la prendre en compte.

- **Quelle est la contribution et l'influence spécifique des feux de végétation sur la qualité de l'air en Europe et en Australie ?**

Afin de répondre à cette question, une étude plus spécifique des feux pendant l'été 2012 a été menée. J'ai par ailleurs analysé un cas de feux intenses en Australie en octobre 2013. En Europe, où la présence de nombreuses sources d'aérosols rend difficile la signature nette des feux dans les observations, les feux de végétation sont responsables de plusieurs jours de dépassements de seuils de PM dans la péninsule Ibérique et dans les Balkans.

En Australie, où la saison annuelle des feux dégrade fortement la qualité de l'air, il a été montré que pour les feux d'octobre 2013 dans la région de Sydney, jusqu'à 25% de la région comportait des concentrations de $PM_{2.5}$ supérieures aux

réglementations pendant l'épisode. Au total, il y a eu pour le mois d'octobre 7 jours de dépassements du seuil de PM_{10} ($50 \mu\text{g m}^{-3}$) et 9 jours pour le seuil de $PM_{2.5}$ ($25 \mu\text{g m}^{-3}$), la totalité étant due aux feux de végétation qui se sont déclarés à cette période.

L'évaluation des performances générales du modèle et de notre capacité à simuler l'impact d'un feu sont discutées dans les points suivants.

- **Quelle est la performance dans la modélisation des PM et de leurs sources ?**

Une évaluation détaillée de la simulation de référence des particules en Euro-Méditerranée pendant l'été 2012 a été réalisée. Les comparaisons aux réseaux de surface (stations AIRBASE, CHARMEX et AERONET) et aux observations satellitaires (MODIS) ont été analysées.

Comparé aux concentrations en surface (essentiellement situées au Nord et à l'Ouest de l'Europe), plus de 90% des stations ont une erreur moyenne fractionnée (MFE) et un biais moyen fractionné (MFB) inférieurs ou égaux à 75% and $\pm 60\%$ respectivement. Les corrélations avec l'AOD MODIS et AERONET vont de 0,37 à 0,77 et le MFE de 34% pour AERONET et 28% pour MODIS. Les principaux pics de concentration sont reproduits par le modèle, mais la variabilité est soumise à des incertitudes (coefficients de corrélation de 0,19 à 0,57 pour les PM selon la région). Dans le Sud Est, la comparaison suggère des sources manquantes de grosses particules.

La variabilité est affectée par les événements sporadiques de poussières minérales et de feux de végétation. Les poussières minérales en particulier s'avèrent systématiquement surestimées (jusqu'à un facteur 4).

Pour les feux de végétation, le modèle reproduit la variabilité des épisodes (corrélation de 0.35 pour l'Espagne à 0.85 pour le Nord des Balkans), mais avec une dégradation lorsque les poussières minérales sont présentes. C'est le cas également pour l'AOD (de non corrélé à 0.99 au Portugal, et un biais faible). Le biais sur les PM est plus important, avec une surestimation en Espagne et au Portugal allant jusqu'à 160% pour les $PM_{2.5}$, 66% pour les PM_{10} .

- **Quels manques de connaissances sont les plus limitants dans le calcul des aérosols provenant des feux de végétation ?**

Les études de cas sur l'Europe et sur l'Australie ont permis de mettre en valeur plusieurs points critiques dans la modélisation des feux de végétation :

- **La quantité de polluants émis par les feux de végétation** : l'inventaire utilisé a été adapté à chaque région d'étude pour se rapprocher au maximum des observations. Une attention particulière a été portée à la quantité de surface brûlée et le type de végétation. Globalement, les concentrations de PM provenant des feux sont surestimées dans la péninsule Ibérique, où la quantité de forêt est importante. En Australie, les campagnes de mesure dédiées et les instruments adaptés proche des sources permettent une meilleure caractérisation des feux. De plus, la composition atmosphérique relativement propre

rend plus facile cette caractérisation. Le cas en Australie a aussi mis en évidence une incertitude sur les surfaces brûlées (différente selon que l'on utilise le produit de surface brûlée de MODIS ou qu'on la redétermine directement à partir des hotspots).

- **La variabilité diurne des émissions de feux de végétation** : les émissions de feux calculées dans l'inventaire APIFLAME sont déterminées de manière journalière. On suppose par défaut une émission constante sur la journée, donc pas de variabilité diurne. Une variation de ce paramètre, notamment par l'application d'un profil diurne en gaussienne, est effectuée pour évaluer l'influence de la variabilité journalière. Les résultats montrent en Europe que cela n'améliore pas la modélisation des feux dans le Nord des Balkans par rapport aux observations. Le cas d'étude, modélisé à une résolution de 50 km, ne permet pas de conclure sur l'effet de cette variabilité, étant donné le désaccord initial entre les observations et le modèle pour la variabilité diurne sans les feux (pollution urbaine). En Australie, où les émissions anthropiques de particules sont faibles par rapport aux émissions de feux, la variabilité diurne a un réel impact sur les pics de pollution, compensant la sous-estimation initiale de ces feux dans la région.

La variabilité diurne peut être améliorée à l'aide de satellites géostationnaires (Wang et al., 2006; Sessions et al., 2011), par exemple l'instrument SEVIRI pour l'Europe, malgré leur précision moindre comparé à l'instrument MODIS. Une des perspectives serait d'utiliser les profils diurnes de SEVIRI afin de déterminer un cycle diurne plus réaliste.

- **La hauteur d'injection des émissions de feux de végétation** : elle a un impact local en surface, y augmentant les concentrations lorsque la hauteur est très faible, les diluant sur la verticale lorsque la hauteur est élevée. Elle peut jouer également un rôle sur le transport à longue distance lorsque cette hauteur est supérieure à la hauteur de couche limite. L'analyse statistique menée sur l'Europe et l'Australie a permis de conclure sur le profil vertical d'injection, qui est plus complexe qu'un mélange homogène dans la couche limite. Mais les différentes études de cas de cette thèse, dont la hauteur d'injection observée par satellite est dans la limite basse pour l'Australie (2 km), et 4 km pour le feu dans les Balkans, montrent une influence relativement faible sur la modélisation des PM. Les performances sont améliorées proche des sources (en Europe, le biais $PM_{2.5}$ passe de 28 à 14%, et de -9 à 14% pour le CO en Australie), mais similaires loin de celles-ci. Il est intéressant de noter que la hauteur d'injection n'a aucune influence sur l'AOD simulé. Il apparaît donc que, dans ce cas, la quantité intégrée ne soit pas modifiée par l'altitude d'injection, donc que l'altitude d'injection n'influence pas le transport du panache. Une comparaison à des mesures intégrées, type AOD ou colonne totale de monoxyde de carbone, n'est pas a priori un moyen pertinent pour évaluer l'intérêt de l'implémentation d'un modèle de pyro-convection. En effet, Gonzi et al. (2015) ont montré que la différence sur la colonne totale de CO, si la hauteur d'injection est modifiée selon l'intensité du feu, est de -9 à 6% par rapport à une simulation où l'injection s'effectue en dessous de la couche limite. La comparaison à des mesures satellitaires montre que l'incertitude est

beaucoup plus grande que cette différence. Ce résultat serait peut-être plus contrasté pour une comparaison à des observations de surface. Celles-ci sont cependant souvent peu nombreuses dans les zones de feux intenses.

La hauteur d'injection pourrait être déterminée pour chaque feu avec un modèle de pyro-convection (Freitas et al., 2007; Rio et al., 2010; Sofiev et al., 2012), utilisant les conditions météorologiques et la FRP du feu. Ce type de modèle est déjà implémenté dans certains CTMs, mais nécessite une validation plus robuste et globale (Paugam et al., 2015).

Perspectives

Mon travail de thèse a permis de montrer la capacité de CHIMERE à simuler l'impact sur la pollution particulaire de différents événements de feux en Méditerranée et en Australie. L'incertitude liée au calcul des émissions, à leur variabilité diurne et leur altitude d'injection a été discutée. Ces points devront être mieux pris en compte pour améliorer la simulation des feux.

Or ce sont des points d'émission liés une surface généralement faible par rapport à la taille des mailles, mais émettant des panaches denses. Une meilleure approche serait donc de considérer la variabilité sous maille afin d'éviter la dilution des panaches. Valari and Menut (2010) ont développé dans CHIMERE une approche sous maille des émissions, appliquée aux émissions anthropiques en région parisienne. Des concentrations sous maille différentes sont calculées pour chaque environnement sous maille identifié (routes, quartiers résidentiels, etc.). Cette approche permettrait de conserver des panaches denses dans les mailles d'émission et ainsi de mieux représenter la variabilité des concentrations. Une méthodologie similaire pourrait être envisagée pour les feux. Cependant elle ne permet pas le transport d'une maille à l'autre des panaches en évitant la dilution. Pour cela, un modèle de "plume-in-grid" plus complexe serait intéressant. Ce type de modèle est développé depuis de nombreuses années (mais surtout sur les polluants gazeux) afin de mieux représenter la dynamique de développement d'un panache de polluants. Peu de modèles de chimie-transport utilisent ces modèles pour les particules, et encore moins pour les feux de végétation. Pourtant, certaines études montrent que cela pourraient améliorer les résultats par rapport aux observations des panaches (Liu et al., 2010; Karamchandani et al., 2006).

Plusieurs autres perspectives se dégagent. En particulier, j'ai peu parlé de l'évolution de la composition chimique des panaches au cours du transport, un point que je n'ai pas pu travailler par manque de temps. L'émission de composés organiques volatiles (COV) et semi-volatiles (COSV) par les feux conduit à la formation d'aérosols organiques secondaires (AOS) qui est encore mal comprise et modélisée. Konovalov et al. (2015) ont implémenté le schéma d'aérosols organiques VBS (volatility basis set) dans CHIMERE et ont mis en évidence une augmentation significative de la production de AOS dans les panaches de feux. Une sous-estimation des PM par le modèle dans sa configuration actuelle pourrait donc être liée à une sous-estimation de la production chimique et non pas à une sous-estimation des sources.

Il serait par ailleurs important d'évaluer la formation d'ozone au cours du transport, ce composé secondaire faisant partie des espèces surveillées pour la qualité de l'air. Plusieurs études ont montré que l'ozone dans les panaches de feux était formé non pas proche des sources mais plus loin au cours du transport (Mauzerall et al., 1998; Real et al., 2007; Arnold et al., 2015). Ces études pointent l'importance de la prise en compte de l'effet des aérosols sur le rayonnement qui induit une limitation de la photochimie dans les panaches denses (réduction de la production d'ozone jusqu'à 18% pour un panache de feu transporté depuis l'Alaska). Cet effet a récemment été intégré dans CHIMERE avec l'implémentation du modèle FastJX (Mailler et al., 2015) qui calcule les flux actiniques à chaque pas de temps à partir de la couverture

nuageuse et des concentrations en aérosols de la colonne atmosphérique. La concentration en oxydes d'azotes joue également un rôle important qu'il serait intéressant de mieux quantifier et modéliser : une concentration trop importante en NOx induit une diminution de l'ozone proche des sources (régime limité en NOx) alors que la réactivation des réservoirs de NOx peu conduire à une production loin des sources (Arnold et al., 2015).

Enfin, l'étude sur l'Europe présentée dans cette thèse montre que les contributions des sources d'aérosols sur l'AOD total à 500 nm présente des résultats similaires aux contributions de PM_{2.5} de surface, excepté pour les sels marins (contribution plus faible sur l'AOD). Ce résultat est intéressant, car cela indique que l'AOD pourrait être utilisé comme un proxy pour les concentrations de PM_{2.5} de surface dans les régions où les réseaux d'observations sont plus rares (Sibérie, Afrique centrale, etc.). Cela est d'autant plus intéressant pour l'étude de l'impact des feux de végétation, où les observations sont souvent absentes proche des sources. Plusieurs études ont établi un lien quantitatif entre l'AOD et les PM_{2.5} de surface (van Donkelaar et al., 2006; Lee et al., 2011), mais cela est soumis à des hypothèses sur la colonne atmosphérique (comme l'absence de panaches en altitude). Dans leur étude, Liu et al. (2009b) montrent que la variabilité spatiale et temporelle des concentrations journalières de PM_{2.5} de surface peuvent être diagnostiquées par l'AOD obtenu à partir d'observations satellitaires, combiné à des données météorologiques et de landuse.

De manière très générale, beaucoup d'analyses menées pendant ma thèse se sont heurtées à un manque de contrainte sur les caractéristiques des feux (pour estimer les émissions) et des panaches émis (pour analyser leur évolution chimique). La mise en place de campagnes de terrain interdisciplinaires ou de mesures systématiques par les intervenants de terrain (pompiers par exemples) permettrait de confronter l'ensemble des hypothèses à des cas réels.

A | Contribution aux projets de recherche

Ce travail de thèse a contribué à plusieurs projets, ils sont détaillés dans cette annexe.

Le projet **APIFLAME** (*Analysis and Prediction of the Impact of Fires on Air Quality Modeling*, PI : S. Turquety) est un projet français financé par le programme PRIMEQUAL, qui a débuté en 2010 pour une durée de 3 ans. Le principal objectif était d'obtenir une meilleure compréhension de l'évolution des panaches de feux à la source afin d'améliorer la simulation du transport à longue distance de ces panaches. Pour cela, l'intégration des feux de végétation dans les CTM CHIMERE et Polyphemus a été effectuée, pour l'analyse d'évènements passés et pour prévoir en temps réel l'impact sur la qualité de l'air. L'approche utilisée était de coupler modélisation et observations. Le travail effectué dans le cadre de cette thèse pour ce projet fut toute la statistique concernant les hauteurs d'injection des panaches en Europe (Chapitre 4) ainsi que l'analyse des sorties d'un modèle de pyro-convection pour des cas d'étude spécifiques.

Le projet **APPAD** (*Analyse et Prévisibilité de Panaches Atmosphériques Denses*, PI : L. Menut) financé par une convention X/DGA a pour objectif de mieux comprendre les émissions et le transport de panaches denses d'aérosols de sources naturelles de feux, d'aérosols minéraux et des volcans dans la troposphère. Ce projet est focalisé sur l'Europe et l'Afrique, et réalisé en utilisant des données de surface et satellitaires, ainsi que de la modélisation (CHIMERE). L'étude des sources d'aérosols de l'été 2012 (Chapitre 5) de cette thèse a contribué à ce projet, ainsi que son complément spécifiques aux feux de végétation.

Le programme **ChArMeX**¹ (*Chemistry-Aerosol Mediterranean Experiment*) fait partie des projets de l'initiative régionale et multidisciplinaire MISTRALS (INSU) et la fédération des agences françaises (ALLENVI). Il a pour but de comprendre le futur de la région Méditerranéenne dans un contexte de pressions anthropiques et climatiques fortes. Le programme se focalise sur les espèces troposphériques particulières et gazeuses à faible durée de vie afin de déterminer leur budget régional, leurs tendances, et leurs impacts sur la qualité de l'air et le climat. Ce programme a donné lieu à des campagnes de mesures intensives depuis 2012. L'étude de cette thèse sur l'été 2012 (Chapitre 5) en Europe contribue également à ce programme, avec une publication dans le numéro spécial ChArMeX du journal Atmospheric Chemistry and Physics (Rea et al., 2015). Par ailleurs, j'ai pu participer à la campagne de juillet 2013 pour la partie modélisation en contribuant à fournir des prévisions de concentrations atmosphériques avec CHIMERE (Menut et al., 2015b). Je n'ai

1. <http://charmex.lsce.ipsl.fr>

cependant pas eu la chance d'être présente physiquement pendant la campagne à cause d'un problème technique survenu peu avant mon arrivée sur l'avion contenant les instruments.

Le projet **EECLAT** (*Expecting Earth-Care, Learning from A-Train*) concerne l'analyse des observations satellitaires, spécialement des instruments actifs, pour l'étude des nuages et des aérosols. Il est financé par le CNES et l'INSU. Cette thèse a contribué à ce projet pour la partie aérosols (utilisation des données de l'instrument CALIOP sur l'A-Train).

Cette thèse a été financée par le programme Européen **EIT - KIC-Climat**², créé en 2010 par l'European Institute of Innovation and Technology (EIT), et dont le but est d'intégrer l'éducation, l'entrepreneuriat et l'innovation dans la recherche de projets visant à atténuer ou ralentir le changement climatique. Le financement de la thèse par ce programme impliquait, entre autres, une mobilité internationale de 3 à 6 mois dans un laboratoire étranger.

De nouvelles collaborations ont donc pu être établies grâce à cette opportunité, à travers le projet australien "**Smoke Emission and Transport Modelling**" (PI : Martin Cope, CSIRO), dont la fin est prévue en juin 2016. Ce projet a pour objectif final une plateforme de prévision optimisée pour la région du Victoria, et prévoit 2 grands axes, le premier concernant des mesures de terrain permettant de mieux définir les flux d'émission, les taux de combustions, ainsi que d'autres caractéristiques nécessaires à une bonne caractérisation des feux. Le deuxième axe prévoit la mise en place de la prévision par des simulations préalables, avec plusieurs cas de prévision mais également une analyse des paramètres importants dans la simulation des feux de végétation, comme par exemple la hauteur d'injection. Le cas d'étude spécifique d'octobre 2013 à Sydney réalisé dans cette thèse (Chapitre 7) fait partie des cas d'étude considérés dans le projet. Grâce au financement KIC-Climat, j'ai pu effectué un séjour de 5 mois en 2014 afin de travailler au sein du Centre de Chimie Atmosphérique de l'Université de Wollongong, ainsi qu'avec le CSIRO basé à Melbourne. Ce séjour a permis d'étendre le domaine d'étude de l'Europe à l'Australie.

2. <http://www.climate-kic.org/>

B | Publications et communications

Publications

Rea, G., Murphy, C., Turquety, S., Cope, M., Griffith, D.: Impact of the New South Wales Fires of October 2013 on regional air quality in eastern Australia, *Atmospheric Environment*, *submitted*.

Rea, G., Turquety, S., Menut, L., Briant, R., Mailler, S., and Siour, G.: Source contributions to 2012 summertime aerosols in the Euro-Mediterranean region, *Atmospheric Chemistry and Physics Discussions*, 15, 8191–8242, doi:10.5194/acpd-15-8191-2015, *2015*.

Menut, L., **Rea, G.**, Mailler, S., Khvorostyanov, D., and Turquety, S.: Variability of aerosols forecast over the Mediterranean area during July 2013 (ADRMED/CHARMEX), *Atmospheric Chemistry and Physics Discussions*, 15, 10 341–10 388, doi:10.5194/acpd-15-10341-2015, *2015*.

Mailler, S., Menut, L., di Sarra, A. G., Becagli, S., Di Iorio, T., Formenti, P., Bessagnet, B., Briant, R., Luis Gómez-Amo, J., Mallet, M., **Rea, G.**, Siour, G., Sferlazzo, D. M., Traversi, R., Udisti, R., and Turquety, S.: On the radiative impact of aerosols on photolysis rates: comparison of simulations and observations in the Lampedusa island during the ChArMEX/ADRMED campaign, *Atmospheric Chemistry and Physics Discussions*, 15, 7585–7643, doi:10.5194/acpd-15-7585-2015, *2015*.

Menut, L., Mailler, S., Siour, G., Bessagnet, B., Turquety, S., **Rea, G.**, Briant, R., Mallet, M., Sciare, J., Formenti, P., and Meleux, F.: Ozone and aerosol tropospheric concentrations variability analyzed using the ADRMED measurements and the WRF and CHIMERE models, *Atmos. Chem. Phys.*, 15, 6159-6182, doi:10.5194/acp-15-6159-2015, *2015*.

Mallet, M., Dulac, F., Formenti, P., Nabat, P., Sciare, J., Roberts, G., Pelon, J., Ancellet, G., Tanré, D., Parol, F., di Sarra, A., Alados, L., Arndt, J., Auriol, F., Blarel, L., Bourriane, T., Brogniez, G., Chazette, P., Chevaillier, S., Claeys, M., D’Anna, B., Denjean, C., Derimian, Y., Desboeufs, K., Di Iorio, T., Doussin, J-F., Durand, P., Feron, A., Freney, E., Gaimoz, C., Goloub, P., Gomez-Amo, J.L., Granados Muñoz, M., Grand, N., Hamonou, E., Jankowiak, I., Jeannot, M., Léon, J-F., Maillé, M., Mailler, S., Meloni, D., Menut, L., Momboisse, G., Nicolas, J., Podvin, T., Pont, V., **Rea, G.**, Renard, J-B, Roblou, L., Schepanski, K., Schwarzenboeck, A., Sellegri, K., Sicard, M., Solmon, F., Somot, S., Torres, B., Totems, J., Triquet, S., Verdier, N., Verwaerde, C., Wenger, J., and Zapf, P.: Overview of the Chemistry-Aerosol Mediterranean Experiment/Aerosol Direct Radiative Forcing on the Mediterranean Climate (ChArMEX/ADRMED) summer 2013 campaign, *Atmos. Chem. Phys.*, *submitted*.

Conférences

Rea G., S. Turquety, L. Menut, Y. Kim, S. Mailler, S. Stromatas: Relative contributions to the budget of particulate matter in the Euro-Mediterranean region, EGU Vienna, *avril 2014*.

Rea G., S. Turquety, L. Menut, Y. Kim, S. Mailler, S. Stromatas : Contribution à la variabilité des aérosols des différentes sources dans la région Euro-Méditerranéenne avec le modèle CHIMERE, Atelier de Modelisation de l'Atmosphere, Toulouse, *janvier 2014*.

Briant R., L. Menut, S. Turquety, **G. Rea**, S. Mailler, C. Prigent : Homogénéisation du calcul des émissions de poussières minérales entre l'Europe et l'Afrique dans CHIMERE, Atelier de Modelisation de l'Atmosphere, Toulouse, *janvier 2014*.

Mailler S., L. Menut, S. Turquety, Y.-S. Kim, R. Briant, **G. Rea** : Modélisation de l'effet radiatif des aérosols sur la photolyse dans le modèle CHIMERE : développement et application à la SOP CHARMEX (juin-aout 2013), Atelier de Modelisation de l'Atmosphere, Toulouse, *janvier 2014*.

Menut L., **G. Rea**, R. Briant, S. Turquety, S. Mailler : Prévisibilité de la modélisation des aérosols pendant ChArMEx 2013, Atelier de Modelisation de l'Atmosphere, Toulouse, *janvier 2014*.

Turquety S., Y. Long, **G. Rea**, D. Khvorostyanov, L. Menut, S. Mailler: Quantifying the impact of boreal fire emissions on atmospheric composition in the Arctic, Arctic change conference, Ottawa, Canada, *December 2014*.

Turquety S., L. Menut, C. Rio, S. Mailler, H. Chepfer, A. Anav, P. Messina, S. Stromatas, **G. Rea**, F. Meleux, B. Bessagnet, JC Péré, D. Tanré, F. Ducos, J-L Deuzé, O. Dubovik, C. Lioussé, K. Sartelet, M. George, C. Clerbaux : Feux de forêt et qualité de l'air : le projet APIFLAME, colloque de restitution PRIMEQUAL, Lille, *novembre 2014*.

Bibliographie

- Akagi, S. K., Yokelson, R. J., Wiedinmyer, C., Alvarado, M. J., Reid, J. S., Karl, T., Crouse, J. D., and Wennberg, P. O.: Emission factors for open and domestic biomass burning for use in atmospheric models, *Atmospheric Chemistry and Physics*, 11, 4039–4072, doi:10.5194/acp-11-4039-2011, 2011.
- Alfaro, S. C. and Gomes, L.: Modeling mineral aerosol production by wind erosion: Emission intensities and aerosol size distributions in source areas, *Journal of Geophysical Research: Atmospheres*, 106, 18 075–18 084, doi:10.1029/2000JD900339, 2001.
- Amiridis, V., Giannakaki, E., Balis, D. S., Gerasopoulos, E., Pytharoulis, I., Zanis, P., Kazadzis, S., Melas, D., and Zerefos, C.: Smoke injection heights from agricultural burning in Eastern Europe as seen by CALIPSO, *Atmospheric Chemistry and Physics*, 10, 11 567–11 576, doi:10.5194/acp-10-11567-2010, 2010.
- Anttila, P., Stefanovska, A., Nestorovska-Krsteska, A., Grozdanovski, L., Atanasov, I., Golubov, N., Ristevski, P., Toceva, M., Lappi, S., and Walden, J.: Characterisation of extreme air pollution episodes in an urban valley in the Balkan Peninsula, *Air Quality, Atmosphere & Health*, pp. 1–13, doi:10.1007/s11869-015-0326-7, 2015.
- Arnold, S. R., Emmons, L. K., Monks, S. A., Law, K. S., Ridley, D. A., Turquety, S., Tilmes, S., Thomas, J. L., Bouarar, I., Flemming, J., Huijnen, V., Mao, J., Duncan, B. N., Steenrod, S., Yoshida, Y., Langner, J., and Long, Y.: Biomass burning influence on high-latitude tropospheric ozone and reactive nitrogen in summer 2008: a multi-model analysis based on POLMIP simulations, *Atmospheric Chemistry and Physics*, 15, 6047–6068, doi:10.5194/acp-15-6047-2015, 2015.
- Barbosa, P., Camia, A., Kucera, J., Liberta, G., Palumbo, I., San-Miguel-Ayanz, J., and Schmuck, G.: Assessment of forest fire impacts and emissions in the European Union based on the European Forest Fire Information System, *Developments in Environmental Science*, 8, 197–208, doi:10.1016/S1474-8177(08)00008-9, 2008.
- Barnaba, F., Angelini, F., Curci, G., and Gobbi, G. P.: An important fingerprint of wildfires on the European aerosol load, *Atmospheric Chemistry and Physics*, 11, 10 487–10 501, doi:10.5194/acp-11-10487-2011, 2011.
- Bessagnet, B., Hodzic, A., Vautard, R., Beekmann, M., Cheinet, S., Honoré, C., Liousse, C., and Rouil, L.: Aerosol modeling with CHIMERE: preliminary evaluation at the continental scale, *Atmospheric Environment*, 38, 2803–2817, doi:10.1016/j.atmosenv.2004.02.034, 2004.
- Bian, H. and Prather, M.: Fast-J2: Accurate Simulation of Stratospheric Photolysis in Global Chemical Models, *Journal of Atmospheric Chemistry*, 41, 281–296, doi:10.1023/A:1014980619462, 2002.
- Boselli, A., Caggiano, R., Cornacchia, C., Madonna, F., Mona, L., Macchiato, M., Pappalardo, G., and Trippetta, S.: Multi year sun-photometer measurements for aerosol characterization in a Central Mediterranean site, *Atmospheric Research*, 104, 98–110, doi:10.1016/j.atmosres.2011.08.002, 2012.

- Bowman, D. M. J. S., Balch, J. K., Artaxo, P., Bond, W. J., Carlson, J. M., Cochrane, M. A., D'Antonio, C. M., DeFries, R. S., Doyle, J. C., Harrison, S. P., Johnston, F. H., Keeley, J. E., Krawchuk, M. A., Kull, C. A., Marston, J. B., Moritz, M. A., Prentice, I. C., Roos, C. I., Scott, A. C., Swetnam, T. W., van der Werf, G. R., and Pyne, S. J.: Fire in the Earth System, *Science*, 324, 481–484, doi:10.1126/science.1163886, 2009.
- Bradstock, R. A., Hammill, K., Collins, L., and Price, O.: Effects of weather, fuel and terrain on fire severity in topographically diverse landscapes of south-eastern Australia, *Landscape Ecology*, 25, 607–619, doi:10.1007/s10980-009-9443-8, 2010.
- Briant, R., Menut, L., Siour, G., and Prigent, C.: Homogenized modeling of mineral dust emissions over Europe and Africa using the CHIMERE model, *Geoscientific Model Development Discussions*, 7, 3441–3480, doi:10.5194/gmdd-7-3441-2014, 2014.
- Damoah, R., Spichtinger, N., Servranckx, R., Fromm, M., Eloranta, E. W., Razenkov, I. A., James, P., Shulski, M., Forster, C., and Stohl, A.: A case study of pyro-convection using transport model and remote sensing data, *Atmospheric Chemistry and Physics*, 6, 173–185, doi:10.5194/acp-6-173-2006, 2006.
- Diner, D., Beckert, J., Reilly, T., Bruegge, C., Conel, J., Kahn, R., Martonchik, J., Ackerman, T., Davies, R., Gerstl, S., Gordon, H., Muller, J.-P., Myneni, R., Sellers, P., Pinty, B., and Verstraete, M.: Multi-angle Imaging SpectroRadiometer (MISR) instrument description and experiment overview, *Geoscience and Remote Sensing, IEEE Transactions on*, 36, 1072–1087, doi:10.1109/36.700992, 1998.
- Dirksen, R. J., Folkert Boersma, K., de Laat, J., Stammes, P., van der Werf, G. R., Val Martin, M., and Kelder, H. M.: An aerosol boomerang: Rapid around-the-world transport of smoke from the December 2006 Australian forest fires observed from space, *Journal of Geophysical Research: Atmospheres*, 114, doi:10.1029/2009JD012360, 2009.
- Dowdy, A. J. and Mills, G. A.: Atmospheric and fuel moisture characteristics associated with lightning-attributed fires, *Journal of Applied Meteorology and Climatology*, 51, 2025–2037, doi:10.1175/JAMC-D-11-0219.1, 2012.
- Escudero, M., Querol, X., Ávila, A., and Cuevas, E.: Origin of the exceedances of the European daily PM limit value in regional background areas of Spain, *Atmospheric Environment*, 41, 730–744, doi:10.1016/j.atmosenv.2006.09.014, 2007.
- Folberth, G. A., Hauglustaine, D. A., Lathière, J., and Brocheton, F.: Interactive chemistry in the Laboratoire de Météorologie Dynamique general circulation model: model description and impact analysis of biogenic hydrocarbons on tropospheric chemistry, *Atmospheric Chemistry and Physics*, 6, 2273–2319, doi:10.5194/acp-6-2273-2006, 2006.
- Forster, P., Ramaswamy, V., Artaxo, P., Berntsen, T., Betts, R., Fahey, D., Haywood, J., Lean, J., Lowe, D., Myhre, G., Nganga, J., Prinn, R., Raga, G., Schulz, M., and Dorland, R. V.: Changes in Atmospheric Constituents and in Radiative Forcing. In: *Climate Change 2007: The Physical Science Basis. Contribution of Working Group I to the Fourth Assessment Report of the Intergovernmental Panel on Climate Change*, 2007.
- Freitas, S. R., Longo, K. M., Chatfield, R., Latham, D., Silva Dias, M. A. F., Andreae, M. O., Prins, E., Santos, J. C., Gielow, R., and Carvalho Jr., J. A.: Including the sub-grid scale plume rise of vegetation fires in low resolution atmospheric transport models, *Atmospheric Chemistry and Physics*, 7, 3385–3398, doi:10.5194/acp-7-3385-2007, 2007.
- Friedl, M. A., Sulla-Menashe, D., Tan, B., Schneider, A., Ramankutty, N., Sibley, A., and Huang, X.: MODIS Collection 5 global land cover: Algorithm refinements and characterization of new datasets, *Remote Sensing of Environment*, 114, 168–182, doi:10.1016/j.rse.2009.08.016, 2010.

- Fromm, M. D. and Servranckx, R.: Transport of forest fire smoke above the tropopause by supercell convection, *Geophysical Research Letters*, 30, doi:10.1029/2002GL016820, 1542, 2003.
- Gelbard, F. and Seinfeld, J. H.: Simulation of multicomponent aerosol dynamics, *Journal of colloid and Interface Science*, 78, 485–501, doi:10.1016/0021-9797(80)90587-1, 1980.
- Gerasopoulos, E., Kouvarakis, G., Babasakalis, P., Vrekoussis, M., Putaud, J.-P., and Mihalopoulos, N.: Origin and variability of particulate matter (PM₁₀) mass concentrations over the Eastern Mediterranean, *Atmospheric Environment*, 40, 4679–4690, doi:10.1016/j.atmosenv.2006.04.020, 2006.
- Gerboles, M. and Reuter, H. I.: Estimation of the measurement uncertainty of ambient air pollution datasets using geostatistical analysis, doi:10.2788/44902, URL <http://publications.jrc.ec.europa.eu/repository/handle/JRC59441>, 2010.
- Giglio, L., Descloitres, J., Justice, C. O., and Kaufman, Y. J.: An enhanced contextual fire detection algorithm for MODIS, *Remote sensing of environment*, 87, 273–282, doi:10.1016/S0034-4257(03)00184-6, 2003.
- Giglio, L., Csiszar, I., and Justice, C. O.: Global distribution and seasonality of active fires as observed with the Terra and Aqua Moderate Resolution Imaging Spectroradiometer (MODIS) sensors, *Journal of Geophysical Research: Biogeosciences*, 111, doi:10.1029/2005JG000142, g02016, 2006.
- Giglio, L., Randerson, J. T., van der Werf, G. R., Kasibhatla, P. S., Collatz, G. J., Morton, D. C., and DeFries, R. S.: Assessing variability and long-term trends in burned area by merging multiple satellite fire products, *Biogeosciences*, 7, 1171–1186, doi:10.5194/bg-7-1171-2010, 2010.
- Ginoux, P., Chin, M., Tegen, I., Prospero, J. M., Holben, B., Dubovik, O., and Lin, S.-J.: Sources and distributions of dust aerosols simulated with the GOCART model, *Journal of Geophysical Research: Atmospheres*, 106, 20 255–20 273, doi:10.1029/2000JD000053, 2001.
- Gobbi, G., Barnaba, F., and Ammannat, L.: Estimating the impact of Saharan dust on the year 2001 PM₁₀ record of Rome, Italy, *Atmospheric Environment*, 41, 261–275, doi:10.1016/j.atmosenv.2006.08.036, 2007.
- Gómez-Amo, J. L., Estellés, V., Segura, S., Marcos, C., Esteve, A. R., Pedrós, R., Utrillas, M. P., and Martínez-Lozano, J. A.: Analysis of a strong wildfire event over Valencia (Spain) during Summer 2012 - Part 1: Aerosol microphysics and optical properties, *Atmospheric Chemistry and Physics Discussions*, 13, 22 639–22 685, doi:10.5194/acpd-13-22639-2013, 2013.
- Gonzi, S., Palmer, P. I., Paugam, R., Wooster, M., and Deeter, M. N.: Quantifying pyroconvective injection heights using observations of fire energy: sensitivity of spaceborne observations of carbon monoxide, *Atmospheric Chemistry and Physics*, 15, 4339–4355, doi:10.5194/acp-15-4339-2015, 2015.
- Grell, G., Freitas, S. R., Stuefer, M., and Fast, J.: Inclusion of biomass burning in WRF-Chem: impact of wildfires on weather forecasts, *Atmospheric Chemistry and Physics*, 11, 5289–5303, doi:10.5194/acp-11-5289-2011, 2011.
- Guenther, A., Karl, T., Harley, P., Wiedinmyer, C., Palmer, P. I., and Geron, C.: Estimates of global terrestrial isoprene emissions using MEGAN (Model of Emissions of Gases and Aerosols from Nature), *Atmospheric Chemistry and Physics*, 6, 3181–3210, doi:10.5194/acp-6-3181-2006, 2006.
- Gupta, P., Christopher, S. A., Box, M. A., and Box, G. P.: Multi year satellite remote sensing of particulate matter air quality over Sydney, Australia, *International Journal of Remote Sensing*, 28, 4483–4498, doi:10.1080/01431160701241738, 2007.

- Hänninen, O. O., Salonen, R. O., Koistinen, K., Lanki, T., Barregard, L., and Jantunen, M.: Population exposure to fine particles and estimated excess mortality in Finland from an East European wildfire episode, *Journal of Exposure Science and Environmental Epidemiology*, 19, 414–422, doi:10.1038/jes.2008.31, 2009.
- Hernandez, C., Drobinski, P., Turquety, S., and Dupuy, J.-L.: Size of wildfires in the Euro-Mediterranean region: observations and theoretical analysis, *Natural Hazards and Earth System Sciences Discussions*, 3, 1203–1230, doi:10.5194/nhessd-3-1203-2015, 2015.
- Hodzic, A., Madronich, S., Bohn, B., Massie, S., Menut, L., and Wiedinmyer, C.: Wildfire particulate matter in Europe during summer 2003: meso-scale modeling of smoke emissions, transport and radiative effects, *Atmospheric Chemistry and Physics*, 7, 4043–4064, doi:10.5194/acp-7-4043-2007, URL <http://www.atmos-chem-phys.net/7/4043/2007/>, 2007.
- Hodzic, A., Jimenez, J. L., Prévôt, A. S. H., Szidat, S., Fast, J. D., and Madronich, S.: Can 3-D models explain the observed fractions of fossil and non-fossil carbon in and near Mexico City?, *Atmospheric Chemistry and Physics*, 10, 10997–11016, doi:10.5194/acp-10-10997-2010, 2010.
- Hoelzemann, J. J., Schultz, M. G., Brasseur, G. P., Granier, C., and Simon, M.: Global Wildland Fire Emission Model (GWEM): Evaluating the use of global area burnt satellite data, *Journal of Geophysical Research: Atmospheres*, 109, doi:10.1029/2003JD003666, d14S04, 2004.
- Hoerling, M. P., Hurrell, J. W., Xu, T., Bates, G. T., and Phillips, A.: Twentieth century North Atlantic climate change. Part II: Understanding the effect of Indian Ocean warming, *Climate Dynamics*, 23, 391–405, doi:10.1007/s00382-004-0433-x, 2004.
- Holben, B., Eck, T., Slutsker, I., Tanre, D., Buis, J., Setzer, A., Vermote, E., Reagan, J., Kaufman, Y., Nakajima, T., et al.: AERONET - A federated instrument network and data archive for aerosol characterization, *Remote sensing of environment*, 66, 1–16, doi:10.1016/S0034-4257(98)00031-5, 1998.
- Hunt, W. H., Winker, D. M., Vaughan, M. A., Powell, K. A., Lucker, P. L., and Weimer, C.: CALIPSO lidar description and performance assessment, *Journal of Atmospheric and Oceanic Technology*, 26, 1214–1228, doi:10.1175/2009JTECHA1223.1, 2009.
- Ichoku, C., Kahn, R., and Chin, M.: Satellite contributions to the quantitative characterization of biomass burning for climate modeling, *Atmospheric Research*, 111, 1–28, doi:10.1016/j.atmosres.2012.03.007, 2012.
- Im, U. and Kanakidou, M.: Impacts of East Mediterranean megacity emissions on air quality, *Atmospheric Chemistry and Physics*, 12, 6335–6355, doi:10.5194/acp-12-6335-2012, 2012.
- IPCC: Climate Change 2007: The Physical Science Basis. Contribution of Working Group I to the Fourth Assessment Report of the Intergovernmental Panel on Climate Change [Solomon, S., D. Qin, M. Manning, Z. Chen, M. Marquis, K.B. Averyt, M. Tignor and H.L. Miller (eds.)], 2007.
- IPCC: Climate Change 2013: The Physical Science Basis. Contribution of Working Group I to the Fifth Assessment Report of the Intergovernmental Panel on Climate Change [Stocker, T.F., D. Qin, G.-K. Plattner, M. Tignor, S.K. Allen, J. Boschung, A. Nauels, Y. Xia, V. Bex and P.M. Midgley (eds.)], 2013.
- Johnston, F., Hanigan, I., Henderson, S., Morgan, G., and Bowman, D.: Extreme air pollution events from bushfires and dust storms and their association with mortality in Sydney, Australia 1994–2007, *Environmental research*, 111, 811–816, doi:10.1016/j.envres.2011.05.007, 2011a.
- Johnston, F., Hanigan, I., Henderson, S., Morgan, G., Portner, T., Williamson, G., and Bowman, D.: Creating an integrated historical record of extreme particulate air pollution events in Australian cities from 1994 to 2007, *Journal of the Air & Waste Management Association*, 61, 390–398, doi:10.3155/1047-3289.61.4.390, 2011b.

Bibliographie

- Johnston, F. H., Henderson, S. B., Chen, Y., Randerson, J. T., Marlier, M., DeFries, R. S., Kinney, P., Bowman, D. M., and Brauer, M.: Estimated global mortality attributable to smoke from landscape fires, *Environmental health perspectives*, 120, 695–701, doi:10.1289/ehp.1104422, 2012.
- Kahn, R. A., Chen, Y., Nelson, D. L., Leung, F.-Y., Li, Q., Diner, D. J., and Logan, J. A.: Wildfire smoke injection heights: Two perspectives from space, *Geophysical Research Letters*, 35, doi:10.1029/2007GL032165, 104809, 2008.
- Kaiser, J. W., Heil, A., Andreae, M. O., Benedetti, A., Chubarova, N., Jones, L., Morcrette, J.-J., Razinger, M., Schultz, M. G., Suttie, M., and van der Werf, G. R.: Biomass burning emissions estimated with a global fire assimilation system based on observed fire radiative power, *Biogeosciences*, 9, 527–554, doi:10.5194/bg-9-527-2012, 2012.
- Kalnay, E., Kanamitsu, M., Kistler, R., Collins, W., Deaven, D., Gandin, L., Iredell, M., Saha, S., White, G., Woollen, J., Zhu, Y., Chelliah, M., Ebisuzaki, W., Higgins, W., Janowiak, J., Mo, K., Ropelewski, C., Wang, J., Leetmaa, A., Reynolds, R., Jenne, R., and Joseph, D.: The NCEP/NCAR 40-year reanalysis project, *Bulletin of the American meteorological Society*, 77, 437–471, doi:10.1175/1520-0477(1996)077<0437:TNYRP>2.0.CO;2, 1996.
- Karamchandani, P., Vijayaraghavan, K., Chen, S.-Y., Seigneur, C., and Edgerton, E. S.: Plume-in-grid modeling for particulate matter, *Atmospheric Environment*, 40, 7280–7297, doi:10.1016/j.atmosenv.2006.06.033, 2006.
- Kaufman, Y. J., Justice, C. O., Flynn, L. P., Kendall, J. D., Prins, E. M., Giglio, L., Ward, D. E., Menzel, W. P., and Setzer, A. W.: Potential global fire monitoring from EOS-MODIS, *Journal of Geophysical Research: Atmospheres*, 103, 32 215–32 238, doi:10.1029/98JD01644, 1998.
- Kim, P. S., Jacob, D. J., Mickley, L. J., Koplitz, S. N., Marlier, M. E., DeFries, R. S., Myers, S. S., Chew, B. N., and Mao, Y. H.: Sensitivity of population smoke exposure to fire locations in Equatorial Asia, *Atmospheric Environment*, 102, 11–17, doi:10.1016/j.atmosenv.2014.09.045, 2015.
- Koçak, M., Mihalopoulos, N., and Kubilay, N.: Contributions of natural sources to high PM₁₀ and PM_{2.5} events in the eastern Mediterranean, *Atmospheric Environment*, 41, 3806–3818, doi:10.1016/j.atmosenv.2007.01.009, 2007.
- Konovalov, I. B., Beekmann, M., Berezin, E. V., Petetin, H., Mielonen, T., Kuznetsova, I. N., and Andreae, M. O.: The role of semi-volatile organic compounds in the mesoscale evolution of biomass burning aerosol: a modelling case study of the 2010 mega-fire event in Russia, *Atmospheric Chemistry and Physics Discussions*, 15, 9107–9172, doi:10.5194/acpd-15-9107-2015, 2015.
- Krinner, G., Viovy, N., de Noblet-Ducoudré, N., Ogée, J., Polcher, J., Friedlingstein, P., Ciais, P., Sitch, S., and Prentice, I. C.: A dynamic global vegetation model for studies of the coupled atmosphere-biosphere system, *Global Biogeochemical Cycles*, 19, GB1015, doi:10.1029/2003GB002199, 2005.
- Kulmala, M., Laaksonen, A., and Pirjola, L.: Parameterizations for sulfuric acid/water nucleation rates, *Journal of Geophysical Research: Atmospheres*, 103, 8301–8307, doi:10.1029/97JD03718, 1998.
- Labonne, M., Bréon, F.-M., and Chevallier, F.: Injection height of biomass burning aerosols as seen from a spaceborne lidar, *Geophysical Research Letters*, 34, doi:10.1029/2007GL029311, 111806, 2007.
- Le Page, Y., Pereira, J. M. C., Trigo, R., da Camara, C., Oom, D., and Mota, B.: Global fire activity patterns (1996–2006) and climatic influence: an analysis using the World Fire Atlas, *Atmospheric Chemistry and Physics*, 8, 1911–1924, doi:10.5194/acp-8-1911-2008, 2008.

- Lee, H. J., Liu, Y., Coull, B. A., Schwartz, J., and Koutrakis, P.: A novel calibration approach of MODIS AOD data to predict PM_{2.5} concentrations, *Atmospheric Chemistry and Physics*, 11, 7991–8002, doi:10.5194/acp-11-7991-2011, 2011.
- Lelieveld, J., Berresheim, H., Borrmann, S., Crutzen, P. J., Dentener, F. J., Fischer, H., Feichter, J., Flatau, P. J., Heland, J., Holzinger, R., Kormann, R., Lawrence, M. G., Levin, Z., Markowicz, K. M., Mihalopoulos, N., Minikin, A., Ramanathan, V., de Reus, M., Roelofs, G. J., Scheeren, H. A., Sciare, J., Schlager, H., Schultz, M., Siegmund, P., Steil, B., Stephanou, E. G., Stier, P., Traub, M., Warneke, C., Williams, J., and Ziereis, H.: Global Air Pollution Crossroads over the Mediterranean, *Science*, 298, 794–799, doi:10.1126/science.1075457, 2002.
- Leys, J. F., Heidenreich, S. K., Strong, C. L., McTainsh, G. H., and Quigley, S.: PM 10 concentrations and mass transport during "Red Dawn" - Sydney 23 September 2009, *Aeolian Research*, 3, 327–342, doi:10.1016/j.aeolia.2011.06.003, 2011.
- Lionello, P., Malanotte-Rizzoli, P., Boscolo, R., Alpert, P., Artale, V., Li, L., Luterbacher, J., May, W., Trigo, R., Tsimplis, M., et al.: The Mediterranean climate: an overview of the main characteristics and issues, *Developments in earth and environmental sciences*, 4, 1–26, doi:10.1016/j.gloplacha.2007.09.005, 2006.
- Liu, L., Achtemeier, G. L., Goodrick, S. L., Jackson, W., et al.: Important parameters for smoke plume rise simulation with Daysmoke, *Atmospheric Pollution Research*, 1, 250–259, doi:10.5094/APR.2010.032, 2010.
- Liu, Y., Kahn, R. A., Chaloulakou, A., and Koutrakis, P.: Analysis of the impact of the forest fires in August 2007 on air quality of Athens using multi-sensor aerosol remote sensing data, meteorology and surface observations, *Atmospheric Environment*, 43, 3310–3318, doi:10.1016/j.atmosenv.2009.04.010, 2009a.
- Liu, Y., Paciorek, C. J., and Koutrakis, P.: Estimating regional spatial and temporal variability of PM_{2.5} concentrations using satellite data, meteorology, and land use information, *Environmental Health Perspectives*, 117, 886–892, doi:10.1289/ehp.0800123, 2009b.
- Liu, Z., Winker, D., Omar, A., Vaughan, M., Treppe, C., Hu, Y., Powell, K., Sun, W., and Lin, B.: Effective lidar ratios of dense dust layers over North Africa derived from the CALIOP measurements, *Journal of Quantitative Spectroscopy and Radiative Transfer*, 112, 204–213, doi:10.1016/j.jqsrt.2010.05.006, 2011.
- Maignan, F., Bréon, F.-M., Chevallier, F., Viovy, N., Ciais, P., Garrec, C., Trules, J., and Mancip, M.: Evaluation of a Global Vegetation Model using time series of satellite vegetation indices, *Geoscientific Model Development*, 4, 1103–1114, doi:10.5194/gmd-4-1103-2011, 2011.
- Mailler, S., Menut, L., di Sarra, A. G., Becagli, S., Di Iorio, T., Formenti, P., Bessagnet, B., Briant, R., Luis Gómez-Amo, J., Mallet, M., Rea, G., Siour, G., Sferlazzo, D. M., Traversi, R., Udisti, R., and Turquety, S.: On the radiative impact of aerosols on photolysis rates: comparison of simulations and observations in the Lampedusa island during the ChArMEx/ADRIMED campaign, *Atmospheric Chemistry and Physics Discussions*, 15, 7585–7643, doi:10.5194/acpd-15-7585-2015, 2015.
- Marchand, R. T., Ackerman, T. P., and Moroney, C.: An assessment of Multiangle Imaging Spectroradiometer (MISR) stereo-derived cloud top heights and cloud top winds using ground-based radar, lidar, and microwave radiometers, *Journal of Geophysical Research: Atmospheres*, 112, doi:10.1029/2006JD007091, d06204, 2007.
- Martcorena, B. and Bergametti, G.: Modeling the atmospheric dust cycle: 1. Design of a soil-derived dust emission scheme, *Journal of Geophysical Research: Atmospheres*, 100, 16 415–16 430, doi:10.1029/95JD00690, 1995.

Bibliographie

- Mauzerall, D. L., Logan, J. A., Jacob, D. J., Anderson, B. E., Blake, D. R., Bradshaw, J. D., Heikes, B., Sachse, G. W., Singh, H., and Talbot, B.: Photochemistry in biomass burning plumes and implications for tropospheric ozone over the tropical South Atlantic, *Journal of Geophysical Research: Atmospheres*, 103, 8401–8423, doi:10.1029/97JD02612, 1998.
- Mazzoni, D., Garay, M. J., Davies, R., and Nelson, D.: An operational MISR pixel classifier using support vector machines, *Remote Sensing of Environment*, 107, 149–158, doi:10.1016/j.rse.2006.06.021, 2007.
- Menut, L., Coll, I., and Cautenet, S.: Impact of meteorological data resolution on the forecasted ozone concentrations during the ESCOMPTE IOP2a and IOP2b, *Atmospheric Research*, 74, 139–159, doi:10.1016/j.atmosres.2004.04.008, 2005a.
- Menut, L., Schmechtig, C., and Marticorena, B.: Sensitivity of the sandblasting fluxes calculations to the soil size distribution accuracy, *Journal of Atmospheric and Oceanic Technology*, 22, 1875–1884, doi:10.1175/JTECH1825.1, 2005b.
- Menut, L., Chiapello, I., and Moulin, C.: Previsibility of mineral dust concentrations: The CHIMERE-DUST forecast during the first AMMA experiment dry season, *Journal of Geophysical Research : Atmospheres*, doi:10.1029/2008JD010523, URL <https://hal.archives-ouvertes.fr/hal-00360125>, 2009.
- Menut, L., Bessagnet, B., Khvorostyanov, D., Beekmann, M., Blond, N., Colette, A., Coll, I., Curci, G., Foret, G., Hodzic, A., Mailler, S., Meleux, F., Monge, J., Pison, I., Siour, G., Turquety, S., Valari, M., Vautard, R., and Vivanco, M.: CHIMERE 2013: a model for regional atmospheric composition modelling, *Geoscientific Model Development*, 6, 981–1028, doi:10.5194/gmd-6-981-2013, 2013.
- Menut, L., Mailler, S., Siour, G., Bessagnet, B., Turquety, S., Rea, G., Briant, R., Mallet, M., Sciare, J., Formenti, P., and Meleux, F.: Ozone and aerosol tropospheric concentrations variability analyzed using the ADRIMED measurements and the WRF and CHIMERE models, *Atmospheric Chemistry and Physics*, 15, 6159–6182, doi:10.5194/acp-15-6159-2015, 2015a.
- Menut, L., Rea, G., Mailler, S., Khvorostyanov, D., and Turquety, S.: Variability of aerosols forecast over the Mediterranean area during July 2013 (ADRIMED/CHARMEX), *Atmospheric Chemistry and Physics Discussions*, 15, 10 341–10 388, doi:10.5194/acpd-15-10341-2015, 2015b.
- Mieville, A., Granier, C., Lioussé, C., Guillaume, B., Mouillot, F., Lamarque, J., Grégoire, J., and Pétron, G.: Emissions of gases and particles from biomass burning during the 20th century using satellite data and an historical reconstruction, *Atmospheric Environment*, 44, 1469–1477, doi:10.1016/j.atmosenv.2010.01.011, 2010.
- Mims, S., Kahn, R., Moroney, C., Gaitley, B., Nelson, D., and Garay, M.: MISR stereo heights of grassland fire smoke plumes in Australia, *Geoscience and Remote Sensing, IEEE Transactions on*, 48, 25–35, doi:10.1109/TGRS.2009.2027114, 2010.
- Monahan, E. C.: In *The Role of Air-Sea Exchange in Geochemical Cycling*, chap. The ocean as a source of atmospheric particles, pp. 129–163, Kluwer Academic Publishers, Dordrecht, Holland, doi:10.1007/978-94-009-4738-2, 1986.
- Monks, P., Granier, C., Fuzzi, S., Stohl, A., Williams, M., Akimoto, H., Amann, M., Baklanov, A., Baltensperger, U., Bey, I., Blake, N., Blake, R., Carslaw, K., Cooper, O., Dentener, R., Fowler, D., Fragkou, E., Frost, G., Generoso, S., Ginoux, P., Grewe, V., Guenther, A., Hansson, H., Henne, S., Hjorth, J., Hofzumahaus, A., Huntrieser, H., Isaksen, I., Jenkin, M., Kaiser, J., Kanakidou, M., Klimont, Z., Kulmala, M., Laj, P., Lawrence, M., Lee, J., Lioussé, C., Maione, M., McFiggans, G., Metzger, A., Mieville, A., Moussiopoulos, N., Orlando, J., O’Dowd, C., Palmer, P., Parrish, D., Petzold, A., Platt, U., Pöschl, U., Prévôt, A., Reeves, C., Reimann, S., Rudich, Y., K., S., Steinbrecher, R., Simpson, D., ten Brink, H., Theloke, J., van der

- Werf, G., Vautard, R., Vestreng, V., Vlachokostas, C., and von Glasow, R.: Atmospheric composition change - global and regional air quality, *Atmospheric Environment*, 43, 5268–5350, doi:10.1016/j.atmosenv.2009.08.021, 2009.
- Morgan, G., Sheppard, V., Khalaj, B., Ayyar, A., Lincoln, D., Jalaludin, B., Beard, J., Corbett, S., and Lumley, T.: Effects of bushfire smoke on daily mortality and hospital admissions in Sydney, Australia, *Epidemiology*, 21, 47–55, doi:10.1097/EDE.0b013e3181c15d5a, 2010.
- Moroney, C., Davies, R., and Muller, J.-P.: Operational retrieval of cloud-top heights using MISR data, *Geoscience and Remote Sensing, IEEE Transactions on*, 40, 1532–1540, doi:10.1109/TGRS.2002.801150, 2002.
- Moulin, C., Lambert, C. E., Dayan, U., Masson, V., Ramonet, M., Bousquet, P., Legrand, M., Balkanski, Y. J., Guelle, W., Marticorena, B., Bergametti, G., and Dulac, F.: Satellite climatology of African dust transport in the Mediterranean atmosphere, *Journal of Geophysical Research: Atmospheres*, 103, 13 137–13 144, doi:10.1029/98JD00171, 1998.
- Muller, J.-P., Mandanayake, A., Moroney, C., Davies, R., Diner, D., and Paradise, S.: MISR stereoscopic image matchers: techniques and results, *Geoscience and Remote Sensing, IEEE Transactions on*, 40, 1547–1559, doi:10.1109/TGRS.2002.801160, 2002.
- Nabat, P., Somot, S., Mallet, M., Michou, M., Sevault, F., Driouech, F., Meloni, D., di Sarra, A., Di Biagio, C., Formenti, P., Sicard, M., Léon, J.-F., and Bouin, M.-N.: Dust aerosol radiative effects during summer 2012 simulated with a coupled regional aerosol–atmosphere–ocean model over the Mediterranean, *Atmospheric Chemistry and Physics*, 15, 3303–3326, doi:10.5194/acp-15-3303-2015, 2015.
- Nelson, D. L., Chen, Y., Kahn, R. A., Diner, D. J., and Mazzoni, D.: Example applications of the MISR Interactive eXplorer (MINX) software tool to wildfire smoke plume analyses, *Proc. SPIE*, 7089, 708 909–708 909–11, doi:10.1117/12.795087, 2008.
- Nenes, A., Pandis, S., and Pilinis, C.: ISORROPIA: A New Thermodynamic Equilibrium Model for Multiphase Multicomponent Inorganic Aerosols, *Aquatic Geochemistry*, 4, 123–152, doi:10.1023/A:1009604003981, 1998.
- Pace, G., Meloni, D., and di Sarra, A.: Forest fire aerosol over the Mediterranean basin during summer 2003, *Journal of Geophysical Research: Atmospheres*, 110, doi:10.1029/2005JD005986, 2005.
- Paton-Walsh, C., Emmons, L. K., and Wilson, S. R.: Estimated total emissions of trace gases from the Canberra Wildfires of 2003: a new method using satellite measurements of aerosol optical depth & the MOZART chemical transport model, *Atmospheric Chemistry and Physics*, 10, 5739–5748, doi:10.5194/acp-10-5739-2010, 2010.
- Paton-Walsh, C., Smith, T. E. L., Young, E. L., Griffith, D. W. T., and Guérette, E.-A.: New emission factors for Australian vegetation fires measured using open-path Fourier transform infrared spectroscopy - Part 1: Methods and Australian temperate forest fires, *Atmospheric Chemistry and Physics*, 14, 11 313–11 333, doi:10.5194/acp-14-11313-2014, 2014a.
- Paton-Walsh, C., Smith, T. E. L., Young, E. L., Griffith, D. W. T., and Guérette, E.-A.: New emission factors for Australian vegetation fires measured using open-path Fourier transform infrared spectroscopy - Part 1: Methods and Australian temperate forest fires, *Atmospheric Chemistry and Physics*, 14, 11 313–11 333, doi:10.5194/acp-14-11313-2014, 2014b.
- Paugam, R., Wooster, M., Freitas, S. R., and Val Martin, M.: A review of approaches to estimate wildfire plume injection height within large scale atmospheric chemical transport models : Part 1, *Atmospheric Chemistry and Physics Discussions*, 15, 9767–9813, doi:10.5194/acpd-15-9767-2015, 2015.

- Péré, J. C., Bessagnet, B., Mallet, M., Waquet, F., Chiapello, I., Minvielle, F., Pont, V., and Menut, L.: Direct radiative effect of the Russian wildfires and its impact on air temperature and atmospheric dynamics during August 2010, *Atmospheric Chemistry and Physics*, 14, 1999–2013, doi:10.5194/acp-14-1999-2014, 2014.
- Pereira, M. G., Trigo, R. M., da Camara, C. C., Pereira, J. M., and Leite, S. M.: Synoptic patterns associated with large summer forest fires in Portugal, *Agricultural and Forest Meteorology*, 129, 11–25, doi:10.1016/j.agrformet.2004.12.007, 2005.
- Pitman, A., Narisma, G., and McAneney, J.: The impact of climate change on the risk of forest and grassland fires in Australia, *Climatic Change*, 84, 383–401, doi:10.1007/s10584-007-9243-6, 2007.
- Pope III, C. A. and Dockery, D. W.: Health effects of fine particulate air pollution: lines that connect, *Journal of the Air & Waste Management Association*, 56, 709–742, doi:10.1080/10473289.2006.10464485, 2006.
- Pope III, C. A., Burnett, R. T., Thun, M. J., Calle, E. E., Krewski, D., and Thurston, K. I. G. D.: Lung cancer, cardiopulmonary mortality, and long-term exposure to fine particulate air pollution, *JAMA*, 287, 1132–1141, doi:10.1001/jama.287.9.1132, 2002.
- Prigent, C., Jiménez, C., and Catherinot, J.: Comparison of satellite microwave backscattering (ASCAT) and visible/near-infrared reflectances (PARASOL) for the estimation of aeolian aerodynamic roughness length in arid and semi-arid regions, *Atmospheric Measurement Techniques*, 5, 2703–2712, doi:10.5194/amt-5-2703-2012, 2012.
- Rea, G., Turquety, S., Menut, L., Briant, R., Mailler, S., and Siour, G.: Source contributions to 2012 summertime aerosols in the Euro-Mediterranean region, *Atmospheric Chemistry and Physics Discussions*, 15, 8191–8242, doi:10.5194/acpd-15-8191-2015, 2015.
- Real, E., Law, K. S., Weinzierl, B., Fiebig, M., Petzold, A., Wild, O., Methven, J., Arnold, S., Stohl, A., Huntrieser, H., Roiger, A., Schlager, H., Stewart, D., Avery, M., Sachse, G., Browell, E., Ferrare, R., and Blake, D.: Processes influencing ozone levels in Alaskan forest fire plumes during long-range transport over the North Atlantic, *Journal of Geophysical Research: Atmospheres*, 112, doi:10.1029/2006JD007576, d10S41, 2007.
- Remer, L. A., Kaufman, Y., Tanré, D., Mattoo, S., Chu, D., Martins, J. V., Li, R.-R., Ichoku, C., Levy, R., Kleidman, R., et al.: The MODIS aerosol algorithm, products, and validation, *Journal of the atmospheric sciences*, 62, 947–973, doi:10.1175/JAS3385.1, 2005.
- Rio, C., Hourdin, F., and Chédin, A.: Numerical simulation of tropospheric injection of biomass burning products by pyro-thermal plumes, *Atmospheric Chemistry and Physics*, 10, 3463–3478, doi:10.5194/acp-10-3463-2010, 2010.
- Ripoll, A., Minguillón, M. C., Pey, J., Pérez, N., Querol, X., and Alastuey, A.: Joint analysis of continental and regional background environments in the western Mediterranean: PM₁ and PM₁₀ concentrations and composition, *Atmospheric Chemistry and Physics*, 15, 1129–1145, doi:10.5194/acp-15-1129-2015, 2015.
- Roustan, Y., Sartelet, K., Tombette, M., Debry, É., and Sportisse, B.: Simulation of aerosols and gas-phase species over Europe with the POLYPHEMUS system. Part II: Model sensitivity analysis for 2001, *Atmospheric Environment*, 44, 4219–4229, doi:10.1016/j.atmosenv.2010.07.005, 2010.
- Salvador, P., Alonso-Pérez, S., Pey, J., Artíñano, B., de Bustos, J. J., Alastuey, A., and Querol, X.: African dust outbreaks over the western Mediterranean Basin: 11-year characterization of atmospheric circulation patterns and dust source areas, *Atmospheric Chemistry and Physics*, 14, 6759–6775, doi:10.5194/acp-14-6759-2014, 2014.

- San-Miguel-Ayanz, J., Moreno, J. M., and Camia, A.: Analysis of large fires in European Mediterranean landscapes: lessons learned and perspectives, *Forest Ecology and Management*, 294, 11–22, doi:10.1016/j.foreco.2012.10.050, 2013a.
- San-Miguel-Ayanz, J., Schulte, E., Schmuck, G., and Camia, A.: The European Forest Fire Information System in the context of environmental policies of the European Union, *Forest Policy and Economics*, 29, 19–25, doi:10.1016/j.forpol.2011.08.012, 2013b.
- Sartelet, K. N., Couvidat, F., Seigneur, C., and Roustan, Y.: Impact of biogenic emissions on air quality over Europe and North America, *Atmospheric Environment*, 53, 131–141, doi:10.1016/j.atmosenv.2011.10.046, 2012.
- Sayer, A. M., Hsu, N. C., Bettenhausen, C., and Jeong, M.-J.: Validation and uncertainty estimates for MODIS Collection 6 "Deep Blue" aerosol data, *Journal of Geophysical Research: Atmospheres*, 118, 7864–7872, doi:10.1002/jgrd.50600, 2013.
- Schmuck, G., San-Miguel-Ayanz, J., Camia, A., Houston Durrant, T., Boca, R., Libertá, G., Schulte, E., Benchikha, A., Abbas, M., Humer, F., Konstantinov, V., Szabo, N., Rožić, R., Papageorgiou, K., Kütt, V., Kõiv, K., Ruuska, R., Timovska, M., Michaut, P., Deblonde, P., Lachmann, M., Alexiou, E., Debreceni, P., Nagy, D., Nugent, C., Capone, M., Di Liberto, F., Colletti, L., Leisavnieks, E., Mitri, G., Glazko, Z., Assali, F., Alaoui M'harzi, H., Botnen, D., Piwnicki, J., Szczygieł, R., Janeira, M., Borges, A., Mara, S., Sbirnea, R., Longauerová, V., Eritsov, A., Jakša, J., Enriquez, E., Sandahl, L., Reinhard, M., Conedera, M., Pezzatti, B., and Kisa, A.: Forest fires in Europe, Middle East and North Africa 2012, *JCR Tech Rep.*, 26048, 109 pp., doi:10.2788/58397, 2013.
- Schultz, M. G., Heil, A., Hoelzemann, J. J., Spessa, A., Thonicke, K., Goldammer, J. G., Held, A. C., Pereira, J. M. C., and van het Bolscher, M.: Global wildland fire emissions from 1960 to 2000, *Global Biogeochemical Cycles*, 22, doi:10.1029/2007GB003031, 2008.
- Seiler, W. and Crutzen, P.: Estimates of gross and net fluxes of carbon between the biosphere and the atmosphere from biomass burning, *Climatic Change*, 2, 207–247, doi:10.1007/BF00137988, 1980.
- Sessions, W. R., Fuelberg, H. E., Kahn, R. A., and Winker, D. M.: An investigation of methods for injecting emissions from boreal wildfires using WRF-Chem during ARCTAS, *Atmospheric Chemistry and Physics*, 11, 5719–5744, doi:10.5194/acp-11-5719-2011, 2011.
- Skamarock, W., Klemp, J., Dudhia, J., Gill, D., Barker, D., Duda, M., Huang, X., Wang, W., and Powers, J.: A description of the advanced research WRF version 3, *NCAR Technical Note*, p. 123pp, 2008.
- Smith, T. E. L., Paton-Walsh, C., Meyer, C. P., Cook, G. D., Maier, S. W., Russell-Smith, J., Wooster, M. J., and Yates, C. P.: New emission factors for Australian vegetation fires measured using open-path Fourier transform infrared spectroscopy - Part 2: Australian tropical savanna fires, *Atmospheric Chemistry and Physics*, 14, 11 335–11 352, doi:10.5194/acp-14-11335-2014, 2014.
- Sofiev, M., Ermakova, T., and Vankevich, R.: Evaluation of the smoke-injection height from wild-land fires using remote-sensing data, *Atmospheric Chemistry and Physics*, 12, 1995–2006, doi:10.5194/acp-12-1995-2012, 2012.
- Solazzo, E., Bianconi, R., Pirovano, G., Matthias, V., Vautard, R., Moran, M. D., Appel, K. W., Bessagnet, B., Brandt, J., Christensen, J. H., et al.: Operational model evaluation for particulate matter in Europe and North America in the context of AQMEII, *Atmospheric Environment*, 53, 75–92, doi:10.1016/j.atmosenv.2012.02.045, 2012.

- Sportisse, B.: *Pollution atmosphérique: des processus à la modélisation*, Springer Science & Business Media, 2008.
- Stromatas, S., Turquety, S., Menut, L., Chepfer, H., Péré, J. C., Cesana, G., and Bessagnet, B.: Lidar signal simulation for the evaluation of aerosols in chemistry transport models, *Geoscientific Model Development*, 5, 1543–1564, doi:10.5194/gmd-5-1543-2012, 2012.
- Stroppiana, D., Brivio, P. A., Grégoire, J.-M., Lioussé, C., Guillaume, B., Granier, C., Mieville, A., Chin, M., and Pétron, G.: Comparison of global inventories of CO emissions from biomass burning derived from remotely sensed data, *Atmospheric Chemistry and Physics*, 10, 12 173–12 189, doi:10.5194/acp-10-12173-2010, 2010.
- Tosca, M. G., Randerson, J. T., Zender, C. S., Nelson, D. L., Diner, D. J., and Logan, J. A.: Dynamics of fire plumes and smoke clouds associated with peat and deforestation fires in Indonesia, *Journal of Geophysical Research: Atmospheres*, 116, doi:10.1029/2010JD015148, d08207, 2011.
- Tsyro, S.: First estimates of the effect of aerosol dynamics in the calculation of PM₁₀ and PM_{2.5}, EMEP report, 4, 2002.
- Turquety, S., Hurtmans, D., Hadji-Lazaro, J., Coheur, P.-F., Clerbaux, C., Josset, D., and Tsamalis, C.: Tracking the emission and transport of pollution from wildfires using the IASI CO retrievals: analysis of the summer 2007 Greek fires, *Atmospheric Chemistry and Physics*, 9, 4897–4913, doi:10.5194/acp-9-4897-2009, 2009.
- Turquety, S., Menut, L., Bessagnet, B., Anav, A., Viovy, N., Maignan, F., and Wooster, M.: API-FLAME v1.0: High resolution fire emission model and application to the Euro-Mediterranean region, *Geoscientific Model Development*, 7, 587–612, doi:10.5194/gmd-7-587-2014, 2014.
- Urbanski, S. P., Hao, W. M., and Nordgren, B.: The wildland fire emission inventory: western United States emission estimates and an evaluation of uncertainty, *Atmospheric Chemistry and Physics*, 11, 12 973–13 000, doi:10.5194/acp-11-12973-2011, 2011.
- Val Martin, M., Logan, J. A., Kahn, R. A., Leung, F.-Y., Nelson, D. L., and Diner, D. J.: Smoke injection heights from fires in North America: analysis of 5 years of satellite observations, *Atmospheric Chemistry and Physics*, 10, 1491–1510, doi:10.5194/acp-10-1491-2010, 2010.
- Val Martin, M., Kahn, R. A., Logan, J. A., Paugam, R., Wooster, M., and Ichoku, C.: Space-based observational constraints for 1-D fire smoke plume-rise models, *Journal of Geophysical Research: Atmospheres*, 117, doi:10.1029/2012JD018370, d22204, 2012.
- Valari, M. and Menut, L.: Transferring the heterogeneity of surface emissions to variability in pollutant concentrations over urban areas through a chemistry-transport model, *Atmospheric Environment*, 44, 3229–3238, doi:10.1016/j.atmosenv.2010.06.001, 2010.
- Valari, M., Menut, L., and Chatignoux, E.: Using a chemistry transport model to account for the spatial variability of exposure concentrations in epidemiologic air pollution studies, *Journal of the Air & Waste Management Association*, 61, 164–179, doi:10.3155/1047-3289.61.2.164, 2011.
- van der Werf, G. R., Randerson, J. T., Giglio, L., Collatz, G. J., Kasibhatla, P. S., and Arellano Jr., A. F.: Interannual variability in global biomass burning emissions from 1997 to 2004, *Atmospheric Chemistry and Physics*, 6, 3423–3441, doi:10.5194/acp-6-3423-2006, 2006.
- van Donkelaar, A., Martin, R. V., and Park, R. J.: Estimating ground-level PM_{2.5} using aerosol optical depth determined from satellite remote sensing, *Journal of Geophysical Research: Atmospheres*, 111, doi:10.1029/2005JD006996, d21201, 2006.
- Van Leer, B.: Towards the ultimate conservative difference scheme. V. A second-order sequel to Godunov's method, *Journal of Computational Physics*, 32, 101–136, doi:10.1016/0021-9991(79)90145-1, 1979.

- Wahlquist, A.: *Thirsty Country*, Allen and Unwin, 2008.
- Wang, J., Christopher, S. A., Nair, U. S., Reid, J. S., Prins, E. M., Szykman, J., and Hand, J. L.: Mesoscale modeling of Central American smoke transport to the United States: 1. "Top-down" assessment of emission strength and diurnal variation impacts, *Journal of Geophysical Research: Atmospheres*, 111, doi:10.1029/2005JD006416, d05S17, 2006.
- Wesely, M.: Parameterization of surface resistances to gaseous dry deposition in regional-scale numerical models, *Atmospheric Environment* (1967), 23, 1293–1304, doi:10.1016/0004-6981(89)90153-4, 1989.
- Whitby, K. and Cantrell, B.: Atmospheric aerosols : characteristics and measurements., in: *Proceedings of International Conference on Environmental Sensing and Assessments*, Las Vegas, NV, USA, September 1975, 1995.
- Wiedinmyer, C., Akagi, S. K., Yokelson, R. J., Emmons, L. K., Al-Saadi, J. A., Orlando, J. J., and Soja, A. J.: The Fire INventory from NCAR (FINN): A high resolution global model to estimate the emissions from open burning, *Geoscientific Model Development*, 4, 625–641, doi:10.5194/gmd-4-625-2011, 2011.
- Wild, O., Zhu, X., and Prather, M.: Fast-J: Accurate Simulation of In- and Below-Cloud Photolysis in Tropospheric Chemical Models, *Journal of Atmospheric Chemistry*, 37, 245–282, doi:10.1023/A:1006415919030, 2000.
- Wilkins, E. T.: Air pollution aspects of the London fog of December 1952, *Quarterly Journal of the Royal Meteorological Society*, 80, 267–271, doi:10.1002/qj.49708034420, 1954.
- Winker, D. M., Vaughan, M. A., Omar, A., Hu, Y., Powell, K. A., Liu, Z., Hunt, W. H., and Young, S. A.: Overview of the CALIPSO mission and CALIOP data processing algorithms, *Journal of Atmospheric and Oceanic Technology*, 26, 2310–2323, doi:10.1175/2009JTECHA1281.1, 2009.
- Zhang, L., Gong, S., Padro, J., and Barrie, L.: A size-segregated particle dry deposition scheme for an atmospheric aerosol module, *Atmospheric Environment*, 35, 549–560, doi:10.1016/S1352-2310(00)00326-5, 2001.

Bibliographie
