

Etude de la qualité de l'air dans un contexte d'évolution des émissions (naturelles et anthropiques) et de changement climatique.



Numéro du projet DARI : A0090107232

Responsable scientifique : Guillaume Siour

Responsable technique : Adriana Coman

Laboratoire : *Laboratoire Interuniversitaire des Systèmes Atmosphériques (LISA).*

Nombre d'heures initiales sur le projet :

Joliot-Curie/Irene SKL (TGCC) : 2 285 kheures cœurs initialement demandées

Joliot-Curie/Irene SKL (TGCC) : 700 kheures cœurs initialement attribués

Joliot-Curie/Irene Rome (TGCC) : 1 705 kheures cœurs initialement demandées

Joliot-Curie/Irene Rome (TGCC) : 1 705 kheures cœurs initialement attribués

Nombre d'heures complémentaires demandé sur le projet :

Joliot-Curie/Irene SKL (TGCC) : 450 kheures cœurs demandées

Joliot-Curie/Irene Rome (TGCC) : 2 455 kheures cœurs demandées

1. Collaborateurs

Nom	E-mail	Statut	Labo
Matthias Beekmann	Matthias.Beekmann@lisa.ipsl.fr	DR	LISA
Taos Benoussaid	Taos.Benoussaid@lisa.ipsl.fr	Doctorant	LISA
Axel Bense	Axel.Bense@lisa.ipsl.fr	AI	LISA
Christel Bouet	Christel.Bouet@lisa.ipsl.fr	CR	LISA
Audrey Cheiney	Audrey.Cheiney@lisa.ipsl.fr	Post Doctorant	LSCE
Arineh Cholakian	Arineh.Cholakian@lisa.ipsl.fr	IE	LMD
Isabelle Coll	Isabelle.Coll@lisa.ipsl.fr	Professeur	LISA
Adriana Coman	Adriana.Coman@lisa.ipsl.fr	IR	LISA
Juan Custa	Juan.Cuesta@lisa.ipsl.fr	MC	LISA
Ludovico Di Antonio	Ludovico.DiAntonio@lisa.ipsl.fr	Doctorant	LISA
Gaëlle Dufour	Gaelle.Dufour@lisa.ipsl.fr	DR	LISA
Arthur Elessa	Arthur.Elessa@lisa.ipsl.fr	Post Doctorant	LISA
Maxim Eremenko	Maxim.Eremenko@lisa.ipsl.fr	IR	LISA
Gilles Foret	Gilles.Foret@lisa.ipsl.fr	MC	LISA
Sunny Kumar	Sunny.Kummar@lisa.ipsl.fr	Doctorant	LISA
Ines Makni	Ines.Makni@lisa.ipsl.fr	Doctorant	LISA
Dilek Savas	Dilek.Savas@lisa.ipsl.fr	Doctorant	LISA
Guillaume Siour	Guillaume.Siour@lisa.ipsl.fr	IR	LISA
Sachiko Okamoto	Sachiko.Okamoto@lisa.ipsl.fr	IR CDD	LISA
Matthieu Vida	Matthieu.Vida@lisa.ipsl.fr	Doctorant	LISA

Tableau 1 : Liste des collaborateurs

2. Résumé

Ce projet s'articule autour de travaux portant sur l'étude de la composition de l'atmosphère et de son évolution. De façon générale, nous nous intéressons aux processus physico-chimiques contrôlant les concentrations de polluants et donc la qualité de l'air. Les espèces ciblées sont à la fois sous forme gazeuse (l'ozone et ses précurseurs mais aussi l'ammoniac et le dioxyde de soufre) et sous forme particulaire (de différentes natures et origines). Les études proposées dans ce projet visent généralement à mieux comprendre et quantifier les processus qui déterminent les concentrations des polluants ciblés (projets ACROSS, WIND-O-V).

Certaines applications sont de natures plus opérationnelles puisqu'elles ont pour objectif l'amélioration des systèmes de surveillance de la qualité de l'air à travers l'assimilation des observations satellitaires, l'inversion des sources (ARGONAUT) de polluants ou encore la mise en place de futures politiques de contrôle des émissions notamment dans les environnements urbains.

Un outil de modélisation commun est utilisé dans tous ces projets : le modèle de chimie transport régional CHIMERE couplé au modèle météorologique WRF. Ce modèle est un outil national (développé par le consortium LMD/INERIS/LISA) utilisé pour des applications de recherche mais aussi pour des applications opérationnelles. Les autres codes utilisés sont également développés ou co-développés au LISA : PYVAR-CHIMERE et sa version plus évoluée CIF (Community Inversion Framework), CHIMERE-EnKF, des codes d'inversion des données satellitaires des instruments IASI et GOME-2, incluant leur synergie multispectrale, ainsi qu'un code multi-agents

d'émissions de polluants atmosphériques et de Gaz à Effet Serre (GES) à l'échelle urbaine OLYMPUS.

3. Utilisation des heures initiales

Lors de la demande initiale, nous avons demandé 2285 kh sur skylake et 1705 kh sur rome. Si la totalité des heures demandées sur rome nous a été attribuée, nous n'avons obtenu que 700 kh sur skylake. Pour rationaliser notre consommation, nous avons mis en place avec Eliot Dupont de l'IPSL un monitoring disponible ici : https://vesg.ipsl.upmc.fr/thredds/fileServer/IPSLFS/igcmg/IRENE/ConsoGENCMIP6/bokeh_plots/gen7232_cpu_timeseries.html

La Figure 1 extraite de ce monitoring représente l'évolution de notre consommation depuis le début du projet 01/11/2020 sur les partitions rome (à gauche) et skylake (à droite). Comme on peut le voir, nous sommes en surconsommation sur skylake depuis le début du projet. Nous sommes également en surconsommation sur la partition Rome depuis fin janvier 2021.

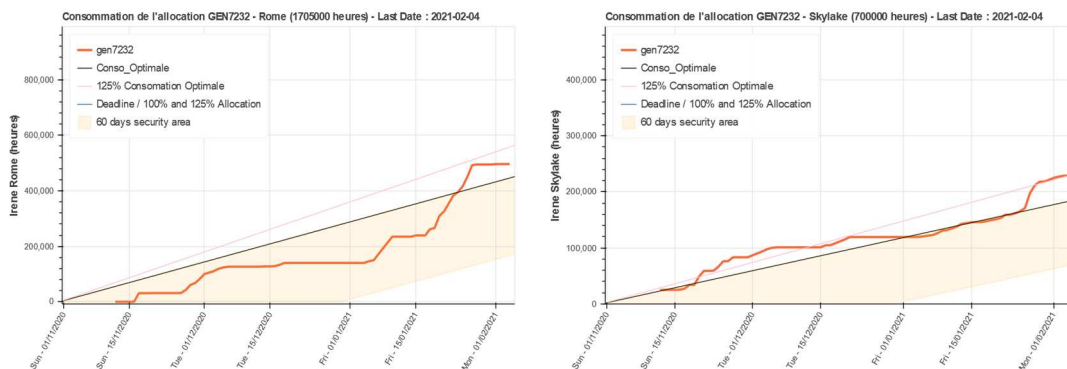


Figure 1 : Evolution de notre consommation. A gauche la partition Rome et à droite skylake

4. Présentation générale

Cette demande complémentaire a pour objectif de compléter la demande initiale. Elle est organisée autour des 5 thèmes décrits dans la demande initiale.

- Étude de la pollution aux échelles continentales par synergie de la modélisation et des observations satellitaires
- Scénarios urbains d'aménagement et de politiques énergétiques
- Modélisation d'un nouvel indicateur de l'impact sanitaire des particules, le potentiel oxydant
- Simulation des sources de pollution de l'air en Afrique
- Interaction entre émissions biogéniques et anthropiques

Certains des projets ont sous-évalué leur nombre d'heures de calcul nécessaire lors de la demande initiale (modélisation inverse des émissions, modélisation du potentiel oxydant), et de nouveaux projets sont venus s'ajouter à la demande initiale (Afrique du Sud, ACROSS, IASI-GOME2).

4.1. Etude de la pollution aux échelles continentales par synergie modélisation/observations satellitaires

4.1.1 Modélisation inverse des émissions des précurseurs de polluants photo-oxydants et particulaires

Les incertitudes sur les émissions de polluants font partie des sources importantes d'erreur des modèles de chimie transport et limitent les capacités des modèles à reproduire les pics de pollution. Avec les données satellitaires, disponibles depuis une dizaine d'année et de bonne qualité, l'utilisation des méthodes d'assimilation ou de modélisation inverse, contraintes par les observations satellitaires, ouvre une nouvelle ère pour la prescription d'inventaires d'émissions « dynamiques » en entrée des modèles, du fait de leur couverture spatio-temporelle sans précédent. Cette activité de recherche prometteuse est développée depuis plusieurs années au LISA. Comme précisé dans la demande initiale, le choix de migrer vers un outil d'assimilation variationnel plus flexible a été pris en 2020. Il s'agit du CIF (Community Inversion Framework) toujours basé sur CHIMERE. Ce nouvel outil a été déployé au TGCC et est fonctionnel depuis novembre 2020. Au moment de la demande principale, nous n'avons pas encore d'expérience suffisante pour estimer les temps de calcul nécessaires pour effectuer les inversions. Ces temps de calcul avaient été estimés sur une configuration du modèle CHIMERE et des observations satellitaires (instrument OMI) ayant une faible résolution spatiale sur un domaine européen (voir la Figure 2). Pour ce domaine l'inversion avec pyCIF fonctionne comme on peut le voir en comparant les colonnes troposphériques de NO₂ avant l'inversion, observées par le satellite (omi) et après l'inversion pour le 1 Mai 2019.

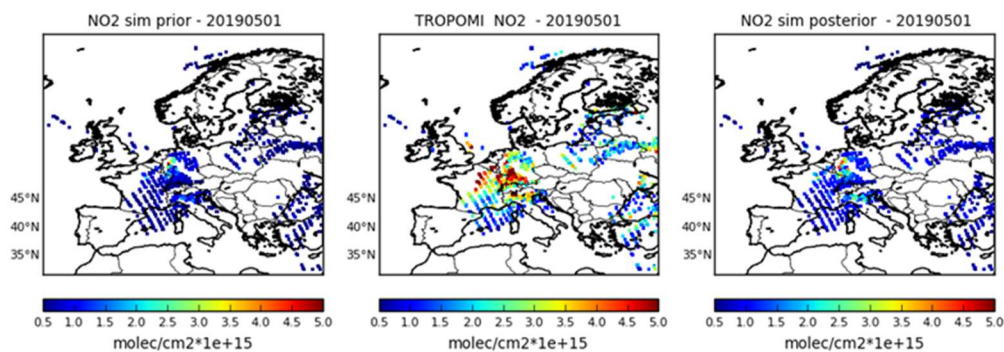


Figure 2 : Comparaison de colonnes troposphériques de NO₂ avant l'inversion (à gauche), observées par satellite (OMI) (au milieu) et après l'inversion (à droite) pour 1 Mai 2019 sur le domaine européen.

Dans le cadre du projet ANR ARGONAUT (pollutAnts and gReenhouse Gases emissiOns moNitoring from spAce at high resoluTion), l'objectif est de fournir des estimations des émissions anthropiques françaises à haute résolution pour les principaux polluants (oxydes d'azote - NO_x, monoxyde de carbone - CO et composés organiques volatils non méthaniques - NMVOCs) et le dioxyde de carbone (CO₂) en s'appuyant sur l'inversion atmosphérique et la nouvelle génération de satellites (Sentinel-5P/TROPOMI, CO2M) permettant d'avoir des observations de la composition atmosphérique à haute résolution. Au moment de la demande d'heures initiales, nous n'avons pas pu tester le système dans cette configuration à haute résolution (<10km) et nous avons fait une estimation minimaliste pour ne pas sur demander d'heures. Ceci nous a amené à réévaluer le nombre d'heures nécessaires

afin de réaliser une étude sur l'impact du confinement sur les émissions de NO_x en France. Pour cela, nous avons besoin d'inverser la période de printemps 2020 et de printemps 2019 (pour comparaison) soit 2 fois 4 mois d'inversion (environ 400 kheures). Avant cela, quelques heures sont encore nécessaires pour caler le système et s'assurer de sa convergence (on estime à 50 kheures, le nombre d'heures nécessaires pour cela en plus des 75 kheures déjà accordées). Pour illustrer notre besoin, pour des cas test de Mars 2020 (période de confinement pour la France) ce qu'on peut observer en comparant les colonnes de NO₂ simulées initialement par le modèle, les données TROPOMI et les concentrations à la fin de l'optimisation (voir la Figure 3) est que l'inversion ne conduit pas pour l'instant à la convergence. Le temps nécessaire pour inverser un seul jour, issu de nos tests sur le domaine à haute résolution, est d'environ 35-40 heures sur 40 processeurs (approximativement 1600h). Plusieurs paramètres sont testés actuellement, le nombre d'itérations nécessaires, le pas de descente du gradient et, dans une autre catégorie, les erreurs dans les émissions utilisées dans le modèle ou dans les observations satellitaires (matrices B et R) pour trouver une configuration qui va conduire à la convergence du système.

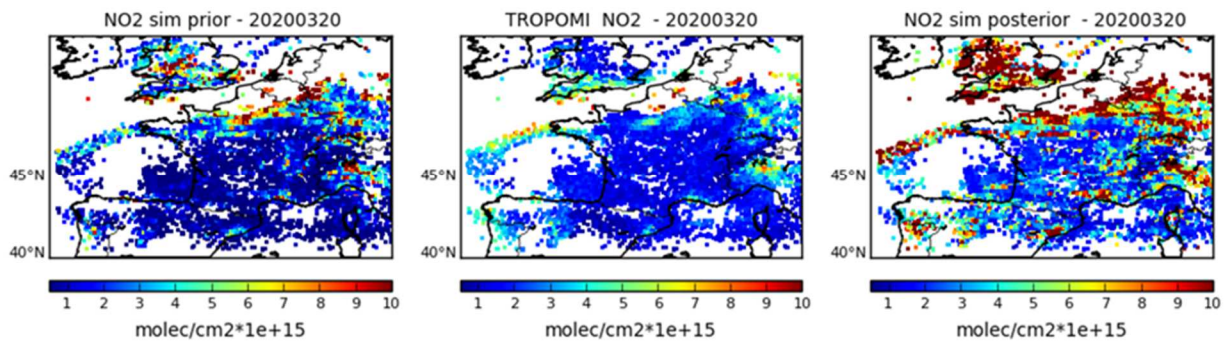


Figure 3 : Comparaison de colonnes troposphériques de NO₂ avant l'inversion (à gauche), observées par satellite (TROPOMI) (au milieu) et après l'inversion (à droite) pour 20 mars 2020.

- Heures précédemment demandées : 75.000 heures sur skylake
- Heures précédemment accordées : 75.000 heures sur skylake
- Heures complémentaires demandées : 450.000 heures sur skylake

4.1.2 Processing de données satellitaires d'ozone de IASI+GOME-2

Le LISA développe des approches innovantes d'observation satellitaire de l'ozone troposphérique. La première méthode mise en œuvre utilise les mesures satellitaires de l'instrument IASI dans l'infrarouge. Elle a permis la première observation de l'ozone dans la basse troposphère (Eremenko *et al.*, 2008) et des nombreuses études dans différentes régions du globe (*e.g.* Dufour *et al.*, 2010, 2015). La seconde est une approche innovante de synergie des observations IASI avec celles de GOME-2 dans l'ultraviolet. Cette méthode multispectrale unique à l'heure actuelle a permis l'observation de la pollution à l'ozone dans la très basse troposphère pour la première fois depuis l'espace (Cuesta *et al.*, 2013) et d'autres études permettant par exemple la première quantification de la production photochimique d'ozone dans la très basse troposphère (Cuesta *et al.*, 2018).

Les données globales IASI+GOME2 sont produites en routine au centre de données atmosphériques ESPRI du portail AERIS (www.aeris-data.fr) depuis 2017. Dans le cadre du TOAR (www.igacproject.org/activities/TOAR), nous avons été sollicités pour fournir la base de données complète depuis la mise en orbite des instruments satellitaires 2009).

Cette demande d'heures de calcul sera donc une contribution majeure pour compléter la base de données de IASI+GOME-2 à l'échelle globale, en mettant en œuvre la chaîne de calcul de ce produit satellitaire au TGCC. Basé sur les estimations des heures utilisées par le traitement de IASI, nous aurions besoin de 500 kheures.

→ Heures complémentaires demandées : 500.000 heures sur rome

4.2. Scénarios urbains d'aménagement et de politiques énergétiques

Ce sous-projet repose sur la construction commune d'une représentation de la région Île-de-France à l'horizon 2030-2050, par la mise en œuvre des différentes étapes d'une plate-forme de modélisation urbaine par des groupes thématiques transversaux. L'objectif est d'étudier l'effet de différents leviers structurels, politiques et technologiques sur la qualité de l'air et l'exposition de la population. L'un des résultats attendus est l'analyse socio-environnementale des scénarios simulés et des inégalités qu'ils mettront potentiellement en évidence. Les ambitions du projet sont présentées sous 5 grands axes : (1) Analyser les effets de différents scénarios d'organisation urbaine pensés pour la transition énergétique, sur la qualité de l'air et l'exposition en zone urbaine. (2) Ouvrir une réflexion sur le paradoxe de la densité urbaine, à la fois source d'économie énergétique et à l'origine d'un confinement excessif des individus dans des espaces hautement émetteurs de polluants. (3) Proposer une analyse quantitative des impacts du transport de marchandise en ville sur la santé des populations urbaines. (4) Caractériser de l'exposition dynamique et cumulée des individus à la pollution de l'air par une approche hautement résolue (à l'échelle de quelques mètres) (5) Caractériser l'exposition dynamique et proposer une analyse socio-spatiale de l'exposition (mise en évidence des inégalités environnementales). Ces travaux se déroulent dans le cadre de l'ANR VITE!, du projet PRIMEQUAL POLL-EXPO et du labex Futurs-Urbains. Ce projet met en œuvre une plateforme de modélisation innovante et transdisciplinaire, qui vise à simuler à l'échelle de l'agglomération (résolution kilométrique) les relations entre aménagement urbain, contraintes politiques, socio-économiques et énergétiques, mobilité et pratiques de consommation et qualité de l'air à l'échelle de l'individu. Nous pourrions proposer en sortie de ce calcul une estimation de l'exposition des individus, a minima par une approche classique de croisement avec les densités de population. Notre projet s'appuie sur la mise en commun de compétences complémentaires permettant de proposer à la fois une vision systémique de l'exposition urbaine aux polluants atmosphériques, et une approche compréhensive et quantitative des déterminants de cette exposition, la plus équilibrée possible entre disciplines.

Au cours des derniers mois, nous avons réalisé les simulations intégrées de la qualité de l'air, dont principalement le scénario tendanciel pour 2030. En parallèle, nous avons finalisé un travail sur une méthode d'extrapolation statistique des données issues du modèle de chimie-transport CHIMERE. Nous travaillons actuellement à la modélisation d'un scénario intégrant les émissions du transport de marchandises en ville. Nous sommes actuellement en surconsommation au vu du nombre d'heures qui nous ont été attribuées.

→ Heures précédemment demandées : 1.880.000 heures sur skylake

→ Heures précédemment accordées : 150.000 heures sur skylake

→ Heures complémentaires demandées : 1.580.000 heures sur Rome

4.3. Modélisation d'un nouvel indicateur de l'impact sanitaire des particules, le potentiel oxydant

La masse des particules d'un diamètre inférieur à 2,5 μm ($\text{PM}_{2.5}$) a été traditionnellement utilisée comme indicateur de l'impact de la pollution particulaire sur la santé. Néanmoins, il est reconnu que l'impact sanitaire de l'aérosol dépend de sa taille et de sa spéciation chimique. En particulier, des espèces carbonées à fort pouvoir oxydant et certains métaux de transition peuvent exercer ou favoriser un stress oxydant sur les cellules, et entraîner des réactions inflammatoires. Le potentiel oxydant (PO) mesure de façon intégrative cette capacité des particules à apporter ou produire des espèces réactives oxydantes. L'objectif du projet qui fait l'objet de la présente demande est d'implanter ce nouvel indicateur dans le modèle CHIMERE (Menut et *al.*, 2013 ; Mailler et *al.* 2017).

Nous avons commencé, dans le cadre de la thèse de M. Vida (débutée en Septembre 2020 suite à son stage de Master2), à développer cette modélisation du PO. L'objectif est de modéliser le PO sur une période d'un an (année 2014). Différents tests de sensibilité à la résolution et aux émissions ont été réalisés afin de simuler le plus précisément possible les concentrations des particules. Nous avons finalement choisi d'utiliser un domaine européen de 9 km de résolution pour forcer un domaine français de 3 km en utilisant les émissions EMEP (www.ceip.at) spatialisées avec les émissions de l'Inventaire National Spatialisé (<http://emissions-air.developpement-durable.gouv.fr>). Une comparaison des concentrations simulées et observées de PM_{10} (particules d'un diamètre inférieur à 10 μm) est représentée sur la Figure 4. Pour cette station, les deux simulations représentent de façon satisfaisante les concentrations de

PM₁₀ en janvier 2014. Nous n'avons cependant pas observé d'amélioration significative entre les deux simulations sur cette période.

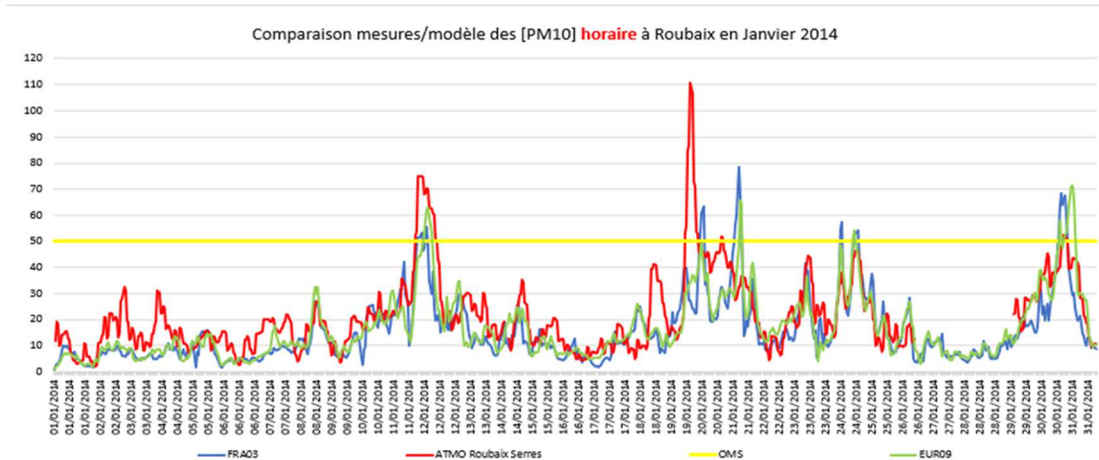


Figure 4 : Evolution temporelle des concentration de PM₁₀ à Roubaix en $\mu\text{g.m}^{-3}$ pour le mois de janvier 2014 : en rouge les données mesurés, en vert les données simulés sur le domaine continental, en bleu celles du domaine nésté et en jaune la norme réglementaire de l'OMS.

Ces tests de configurations ont consommé 140 kheures sur les 200 prévues initialement. Nous estimons que pour lancer un an de simulation sur le plus grand domaine, nous aurions besoin de 200 kheures supplémentaires.

- Heures précédemment demandées : 200.000 heures sur rome
- Heures précédemment accordées : 200.000 heures sur rome
- Heures complémentaires demandées : 200.000 heures sur rome

4.4. Simulation des sources de pollution de l'air en Afrique

4.4.1 Simulation de la qualité de l'air en Afrique du Sud

L'Afrique du Sud possède une économie développée avec des activités industrielles intensives concentrées dans la région de Highveld du Vaal Triangle, définie par les recherches par satellite les plus modernes comme l'un des « hot spots » mondiaux de la pollution atmosphérique. Les autres régions sources majeures comprennent les grandes zones urbaines de Johannesburg, Le Cap, Rustenburg, Richards Bay, Durban et Port Elizabeth, où la densité de la population, leurs pratiques domestiques et l'omniprésence du trafic routier contribuent à maintenir des concentrations élevées de polluants. En outre, le brûlage saisonnier de la végétation génère ponctuellement des densités optiques très élevées, affectant le climat et contribuant à une dégradation majeure de la qualité de l'air locale. Pour s'attaquer à ces problèmes, il est fondamental de bien décrire et quantifier les problématiques propres à la région.

Nous développons ces travaux au LISA dans le cadre de la thèse de Sunny Kumar (début octobre 2020), financée par l'Ecole Universitaire de Recherche LIVE de l'UPEC portant sur les vulnérabilités environnementales, et en collaboration avec le Pr Stuart Pikheth (North-West University of South Africa, Unit for Environmental Sciences and

Management). Nous n'avons pas intégré ces travaux à la précédente demande d'heures de calcul. Le projet de doctorat porte sur deux axes de travail :

- D'une part, le modèle CHIMERE de qualité de l'air sera mis en place et exploité, afin de fournir des champs chimiques de qualité de l'air. Le pourcentage de la population concernée par le dépassement de la concentration de polluants ainsi que la géographie de la pollution, en relation avec la répartition des individus sur le territoire, seront étudiés. Nous visons sur ce semestre la mise en place d'une première simulation régionale sur une année, de résolution horizontale de 5x5 km forcée par une simulation semi-continentale de résolution horizontale de 25x25 km.

- En second lieu, la question de l'impact climatique régional des aérosols sera abordée en sortie de CHIMERE. CHIMERE sera ainsi couplé avec le module radiatif RRTM, un outil pour les modèles climatiques de pointe, pour évaluer l'effet radiatif des aérosols dans les situations de pollution grave sous divers régimes météorologiques. L'effet radiatif atmosphérique sera évalué en fonction de la qualité des aérosols, et en particulier de leurs propriétés d'absorption, qui peuvent influencer la hauteur de la couche limite, favorisant ou inhibant ainsi la dispersion des panaches de pollution, affectant en retour la qualité de l'air.

→ **Heures complémentaires demandées : 75.000 heures sur rome**

4.5. Interaction entre émissions biogéniques et anthropiques

4.5.1 Modélisation des propriétés et de l'effet radiatif des aérosols en Ile de France dans le cadre de la campagne ACROSS

Les aérosols atmosphériques demeurent parmi les composantes clés du système climatique et sont des acteurs majeurs de la pollution atmosphérique (e.g., Shiraiwa et al., 2017). Les aérosols peuvent être à la fois primaires, c'est-à-dire issues directement de sources d'émissions notamment anthropiques (transport, industrie, chauffage au bois, agriculture, etc....) mais aussi naturelles (déserts, volcans), ou secondaires, c'est-à-dire provenant de transformations chimiques initiées par le rayonnement solaire et/ou les oxydants atmosphériques.

Les interactions entre aérosols et rayonnement (effets directs et semi-direct) et entre les aérosols et la formation des nuages (effet indirects des aérosols) sont mis en avant comme l'une des incertitudes climatiques principales dans les derniers rapports d'évaluation du Groupe d'experts Intergouvernemental sur l'Évolution du Climat (GIEC, e.g. IPCC, 2013). Ces interactions perturbent les profils de température, d'humidité et de teneur en eau des nuages, ce qui affecte in fine la dynamique de la couche limite, les températures extrêmes (épisodes caniculaires) et les taux et distribution géographique des précipitations (Ramanathan and Carmichael, 2008). Quantitativement, l'interaction aérosol-rayonnement représente un forçage effectif global moyen de $-0,50 \pm 0,40 \text{ W.m}^{-2}$, qui contrebalance ainsi une fraction potentiellement très importante, mais à ce jour encore peu contrainte, du réchauffement climatique par les gaz à effet de serre ($2,83 \pm 0,29 \text{ W.m}^{-2}$). Notre capacité à fournir des projections climatiques fiables est réduite à l'échelle régionale où notamment les aérosols jouent un rôle central. En Ile de France, les émissions anthropiques urbaines et biogéniques en milieu forestier autour de Paris donnent lieu à la coexistence des plusieurs espèces particulaires et gazeuses, favorisant la

formation des mélanges complexes et influençant le vieillissement physico-chimique des panaches d'aérosols.

Représenter les propriétés, la distribution granulométrique et spatiale ainsi que l'effet radiatif des aérosols à l'échelle régionale constitue un défi pour les modèles. La représentation de la distribution verticale des aérosols et aussi de leur distribution en taille restent des challenges important pour leur modélisation (Menut et al., 2016). Les sources de particules et de précurseurs gazeux sont nombreuses et restent incertaines (e.g. Belis et al., 2019). Les processus de vieillissement physico-chimique pris en compte dans les modèles ont été affinés en implémentant des nouveau schémas d'aérosols (Zhang et al. 2013, Cholakian et al., 2018) pendant les projets MEGAPOLI (centré sur Paris), LANDEX (sur la méditerranée) et enfin durant le projet LANDEX (centré sur une zone biogénique). Dans la continuité, le projet ACROSS propose d'étudier le vieillissement des aérosols dans un milieu forestier impacté par des panaches urbain (Forêt de Rambouillet).

Dans ce projet, nous avons obtenu un financement de thèse tardif pour L. Di Antonio début Janvier 2021 et pour lequel nous n'avons pas prévu d'heures de calcul dans la précédente demande. Nous proposons, dans ce cadre d'étudier l'impact radiatif des aérosols sur la région IDF. Nous comparerons les simulations aux mesures de terrain (stations fixes au sol, stations mobiles, avions) de distribution en taille, hygroscopicité et propriétés optiques spectrales des aérosols acquises pendant les campagnes intensives du programme ACROSS prévues en été 2022 (financé par le programme MOPGA, l'ANR et le LEFE). Pour cela, nous devons réaliser une simulation multi-échelle (de l'échelle continentale jusqu'à un zoom sur la région IDF avec des résolutions spatiales entre 3 et 1km). L'objectif est de simuler l'été 2022 mais nous proposons de préparer cette simulation en ciblant un autre été (le mieux documenté possible) pour lequel nous effectuerons des tests de sensibilité aux paramètres clés qui pilotent les propriétés des aérosols aux échelles locales afin d'estimer la gamme du forçage radiatif en IDF et d'identifier les principaux paramètres à évaluer et éventuellement à mieux contraindre.

→ **Heures complémentaires demandées : 100.000 heures sur rome**

5 Méthode

5.1 Méthode numérique

La présente demande porte donc largement sur des simulations réalisées avec le modèle CHIMERE/WRF mais également sur l'utilisation de codes développés au LISA (PYVAR-CHIMERE, CHIMERE-EnKF, un code d'inversion des données satellitaires de l'instrument IASI et un code multi-agents d'émissions de polluants atmosphériques et de GES à l'échelle urbaine OLYMPUS).

5.1.1 Le modèle CHIMERE

CHIMERE (Menut et al., 2013, Mailler et al. 2016) est un modèle multi-échelle de chimie-transport atmosphérique qui a été conçu pour des prévisions journalières des principaux polluants, des espèces gazeuses et particulaires, ainsi que pour des simulations à long-terme. Il est continuellement développé par un consortium de trois laboratoires (LMD, INERIS et LISA). CHIMERE peut être utilisé à l'échelle spatiale de l'urbain (résolution de 1-5 km) à régionale (jusqu'à 100 km de résolution). Le modèle

permet des simulations imbriquées permettant de prendre en compte l'impact des processus à l'échelle plus large sur un domaine concerné. CHIMERE a été labellisé comme un outil national du CNRS en 2007, et il est utilisé pour des prévisions opérationnelles en France et en Europe par le projet Prev'Air (www2.prevail.org) et par des AASQA (Associations Agréées de Surveillance de la Qualité de l'Air).

Le code est écrit entièrement en Fortran90 et les scripts de lancement en shell (avec utilisation de awk pour certaines données d'entrées). Différents compilateurs peuvent donc être utilisés : g95, gfortran, ifort... La plupart des fichiers d'entrées et de sorties sont au format netcdf et au format grib pour les données d'entrée issues du modèle météorologique ECMWF.

Le modèle est parallélisé en découpant le maillage en sous domaines géographiques. Chaque sous domaine est traité par un processeur qui échange des données via la librairie MPI aux limites avec les autres processeurs. Un processeur maître supplémentaire est utilisé pour gérer les données d'entrées et l'écriture des fichiers de sorties.

Le modèle CHIMERE est déjà utilisé dans plusieurs projets GENCI et dans de nombreuses configurations et sa scalabilité reste très bonne (Colette et *al.*, 2014). Le code a été installé sur cette machine depuis plusieurs années par l'INERIS puis le LSCE, le LISA et plus récemment par le LMD et est donc largement utilisé sur les machines du TGCC par plusieurs utilisateurs.

5.1.2 Le modèle PYVAR-CHIMERE – évolution vers le CIF

La méthode inverse variationnelle utilisée dans ce projet pour inverser les sources de polluants est basée sur le système d'inversion PYVAR-CHIMERE (Fortems-Cheiney et *al.*, soumis). Lors de l'inversion, on cherche à minimiser ε , l'écart entre les concentrations simulées par le modèle de chimie-transport et les observations. L'expression d'un problème inverse bayésien est la recherche de la distribution spatiale et temporelle des flux qui est la plus probable compte tenu des flux a priori, des observations, du modèle utilisé et des erreurs associées, et nécessite la minimisation d'une fonction de coût.

Le système d'inversion est basé sur le modèle CHIMERE (code direct, code tangent-linéaire et code adjoint, ce dernier ayant été développé en collaboration avec le LSCE). Ce code est donc écrit en Fortran90 et les scripts de lancement en shell (avec utilisation de awk pour certaines données d'entrées). Une interface en PYTHON est également utilisée notamment pour la minimisation de la fonction de coût. La plupart des fichiers d'entrées et de sorties sont au format netcdf.

Comme CHIMERE, le système d'inversion est parallélisé en découpant le maillage en sous domaines géographiques. Chaque sous domaine est traité par un processeur qui échange des données via la librairie MPI aux limites avec les autres processeurs. Un processeur maître supplémentaire est utilisé pour gérer les données d'entrées et l'écriture des fichiers de sorties.

Les limites de cet outil ont été mises en évidence lors du projet PolEAsia et elles ont été annoncées dans la partie bilan 2019. Pour pallier les nombreux problèmes de convergence et pour plus de flexibilité, nous avons décidé conjointement avec le LSCE de migrer vers un nouvel outil de modélisation inverse, toujours basé sur le modèle de chimie-transport CHIMERE, mais beaucoup plus flexible, l'outil CIF (Community Inversion Framework – développé au LSCE dans le cadre du projet européen

VERIFY). L'outil a été porté sur les machines du TGCC au cours des 6 derniers mois mais avec quelques ralentissements compte tenu de la crise sanitaire.

Pas très différent d'un point de vue technique par rapport au PYVAR-CHIMERE (on utilise toujours fortran90 pour CHIMERE et python3 – petite évolution pour l'enveloppe d'inversion) ce nouvel outil est plus versatile, avec un nombre infini de configurations possible, faciles à tester et une optimisation en terme de temps de calcul et transfère d'informations/fichiers entre les diverses parties. Le format des fichiers reste inchangé.

5.1.3 Le modèle CHIMERE-EnKF

Le principe général de l'assimilation de données en chimie atmosphérique consiste à utiliser les observations in-situ et/ou satellitaires pour contraindre les champs simulés par un modèle de chimie-transport (champs qui peuvent être entachés d'erreurs) à rester proche de la réalité des observations.

Le système CHIMERE-EnKF (Coman *et al.*, 2012, Gaubert *et al.*, 2014), développé au LISA, combine une méthode d'assimilation de données : le Filtre de Kalman d'Ensemble avec un modèle de chimie-transport, dans notre cas le modèle CHIMERE. L'application du filtre de Kalman étendu classique étant trop coûteuse en temps de calcul pour une modélisation 3D, il est nécessaire de simplifier le calcul de la matrice de covariance de l'erreur du modèle nécessaire dans l'algorithme d'assimilation. Dans le cas du Filtre de Kalman d'Ensemble, cette matrice est calculée en utilisant une approche de type Monte-Carlo (Evensen, 1994); l'idée principale est d'utiliser un ensemble d'estimations d'état (obtenues en perturbant le champ d'ozone par exemple), à la place d'une seule, et de calculer la matrice de covariance d'erreur sur cet ensemble, en sachant que la taille de cet ensemble peut rester assez faible selon nos tests de sensibilité de l'ordre de 40 membres. On obtient de cette façon un ensemble d'états du modèle qui évoluent dans le temps. La « meilleure » estimation est calculée comme la moyenne de l'ensemble. A chaque pas de temps, (dans notre cas il s'agit d'une échelle horaire), l'ensemble est « corrigé » en utilisant l'ensemble d'observations disponibles à ce moment-là par un calcul matriciel assez complexe, produisant ainsi de champs « analysés ».

Comme le modèle CHIMERE, CHIMERE-EnKF est écrit entièrement en Fortran90 et les scripts de lancement en shell. Comme compilateur on utilise ifort et les fichiers d'entrées et de sorties sont au format netcdf. Pour les inversions matricielles et les perturbations des champs on utilise des bibliothèques comme LAPACK, BLAS et FFTW (<http://fftw.org/>).

5.1.4 Le modèle d'inversion des données IASI et GOME2

Les observations satellitaires de l'ozone IASI et IASI+GOME2 du LISA sont restituées en utilisant les codes de transfert radiatif KOPRA [9] et VLIDORT [Spurr et al., 2006], respectivement pour IASI et pour GOME-2, ainsi que le module d'inversion KOPRAFIT http://www.imk-asf.kit.edu/downloads/sat/kopra_docu_part01.pdf.

i) Code de transfert radiatif KOPRA

Le code de transfert radiatif KOPRA a été développé par l'IMK (Institut für Meteorologie und Klimaforschung, Karlsruhe, Allemagne). Il permet de résoudre l'équation du transfert radiatif dans le domaine spectral de l'infrarouge pour des instruments de type spectromètres et ainsi de calculer la radiance vue par ce type d'instrument pour différentes géométries d'observation (limbe, nadir). Pour le calcul du transfert radiatif,

l'atmosphère est découpée en couches concentriques (100m d'épaisseur) dites homogènes, c'est-à-dire dans lesquels température, pression et concentration de chaque espèce moléculaire présente dans la couche sont considérées constantes. Les processus d'interactions matière-rayonnement (absorption, émission etc) sont résolus et la radiance à la sortie de la couche considérée est calculée en fonction du trajet optique dans cette même couche. Par une procédure itérative la radiance au niveau de l'observateur (le satellite) est ainsi calculée et convoluée par les caractéristiques instrumentales (résolution, bruit etc).

Les entrées nécessaires pour le code sont :

- Les paramètres atmosphériques : pression, température et concentrations en fonction de l'altitude
- Les paramètres géométriques : position relative de la source et de l'observateur afin de calculer le trajet optique du rayonnement
- Les paramètres instrumentaux : région spectrale, résolution et échantillonnage spectral, fonction d'appareil, bruit radiométrique, etc.
- Les paramètres spectroscopiques : position, intensité, largeur des raies pour calculer l'interaction matière-rayonnement.

En sortie du code, nous obtenons un spectre observé en radiance pour la région spectrale sélectionnée.

ii) Code de transfert radiatif VLIDORT

Le code VLIDORT est un modèle de transfert radiatif d'ordonné discrète vectoriel à l'état de l'art utilisé par des nombreuses applications de télédétection satellitaire de la composition atmosphérique à partir des mesures de l'ultraviolet à l'infrarouge. Il est conçu pour calculer par linéarisation des solutions vectorielles du transfert radiatif les champs de rayonnement en fonction du vecteur de Stokes et leurs dérivées analytiques. Il calcule les contributions non seulement l'absorption et l'émission du rayonnement, mais aussi la diffusion simple et multiples des photons. Les paramètres et les données d'entrée de VLIDORT sont similaires à ceux de KOPRA, mais incluant également l'albédo de diffusion de la surface et les sections efficaces d'absorption des gaz.

iii) Code d'inversion KOPRAFIT

Le code d'inversion KOPRAFIT permet via la minimisation de la distance entre le spectre observé et le spectre calculé (par KOPRA) de restituer la concentration de l'espèce cible en fonction de l'altitude. Le problème étant non linéaire, une procédure itérative est nécessaire.

Ces trois codes sont écrits en langage FORTRAN. Ils sont compilables avec un des compilateurs suivants (et leurs bibliothèques associées) : ifort, g95, SUN fortran. Nous disposons également d'un exécutable statique du code KOPRAFIT. Le temps de calcul estimé pour restituer une observation ozone est d'environ 1 minute pour l'approche IASI seul et 2 minutes pour IASI+GOME2. Dans le cas du traitement satellitaire, le nombre de tâches à effectuer est égale au nombre d'observations à analyser. L'exécution du code maître KOPRAFIT, qui fait appel aux codes KOPRA et VLIDORT lors de son exécution, est gérée par des scripts shell qui permettent de lancer le calcul sur plusieurs processeurs en parallèle.

5.1.5 Le modèle OLYMPUS

Le modèle OLYMPUS est un modèle de modélisation numérique d'émissions de polluants atmosphériques et de gaz à effet de serre à l'échelle urbaine. Ce modèle a été développé pour la simulation de scénarios de planification urbaine. Le développement d'OLYMPUS est le fruit d'un effort d'une thèse au LISA (Elessa Etuman, 2017) ainsi que d'un projet ANR (<https://anr.fr/Projet-ANR-14-CE22-0013>) pour construire une nouvelle génération de modèle d'émissions de polluants atmosphériques à l'échelle de l'individu et faire progresser la compréhension et la prévision des impacts de politiques publiques sur les émissions de polluants en zone urbaines. OLYMPUS convient à un large éventail d'applications allant de la simulation à l'échelle d'un quartier à l'échelle de régions. Les applications d'OLYMPUS comprennent des simulations réelles sur des territoires tels que l'Île-de-France ou encore les Pays de la Loire et Barcelone, du prospectif à 10-30 ans, des études de paramétrisation et des simulations idéalisées de formes urbaines. Les principales composantes du modèle sont illustrées ci-après (Figure 5).

Structure/Modèles

Un ensemble de différents sous-modèles sont inclus dans la structure d'OLYMPUS pour saisir les l'interaction des agents (ménages, particuliers) leurs choix de mobilité et les émissions de polluants associées (Elessa Etuman & Coll, 2018). La liste de ces modèles/modules comprend :

- Modèles de génération de population synthétique : Modélisation d'une population d'agents synthétiques aux attributs sociodémographiques semblables à ceux de la population d'une agglomération.
- Modèle d'accessibilité locale et régionale : Détermine la valeur d'accessibilité de chaque quartier de la zone d'étude, en tenant compte de l'accessibilité des résidents et les employés vers leur destination (emploi, école, loisirs, achats, etc.)
- Modèles de demande de déplacements basés sur l'activité : Les modèles basés sur les activités sont basés sur des théories comportementales concernant la façon dont les gens prennent des décisions sur la participation à des activités en présence de contraintes, y compris des décisions sur le lieu de participation aux activités, le moment de la participation aux activités et la façon de se rendre à ces activités.
- Modèles mésoscopiques de trafic routier : Modélisation des flux de déplacements par catégories d'usagers, description des conditions de fonctionnement du réseau étudié (temps de parcours, vitesses, charges, niveau de saturation...)
- Demande en énergie des bâtiments : Modèles statistiques de relation entre l'utilisation finale et la consommation d'énergie, pour déterminer la consommation énergétique de bâtiments (résidentiels, tertiaire, institutionnel...).
- Modèles d'émissions de polluants atmosphériques : Quantification des émissions dues au trafic routier, à la combustion dans le secteur résidentiel/tertiaire. Intégration de paramètres clés tel que la vitesse, la pente, la flotte, la température.

Pour une métropole comme Paris, le modèle définit près de 12 millions d'agents de population synthétique et pour chaque agent, OLYMPUS pour générer la demande de mobilité journalière soit près de 40 millions de déplacements et 15 millions de déplacements pour le transport individuel motorisé. Le modèle intègre un calcul d'itinéraire pour chaque déplacement basé sur la théorie des graphes et l'algorithme de Dijkstra soit près de 2 millions de brins de routes. Les simulations de flux de trafic produisent des informations sur l'emplacement et le type d'activité de chaque agent à une heure précise. Chaque agent génère pour chacune de ses actions (début/fin d'une activité, entrée/sortie d'un lien) un événement localisé temporellement et spatialement. Le modèle intègre également un processus itératif d'optimisation de la mobilité (Wardrop & Whitehead, 1952). En fonction des trajectoires de déplacements et de l'état du réseau routier, le modèle produit des émissions de polluants qui seront utilisés dans le modèle de qualité de l'air CHIMERE. Le modèle est calibré sur la base de données historiques. La Figure 5 montre comment les sous-modèles décrits précédemment interagissent en tant que parties du système OLYMPUS.

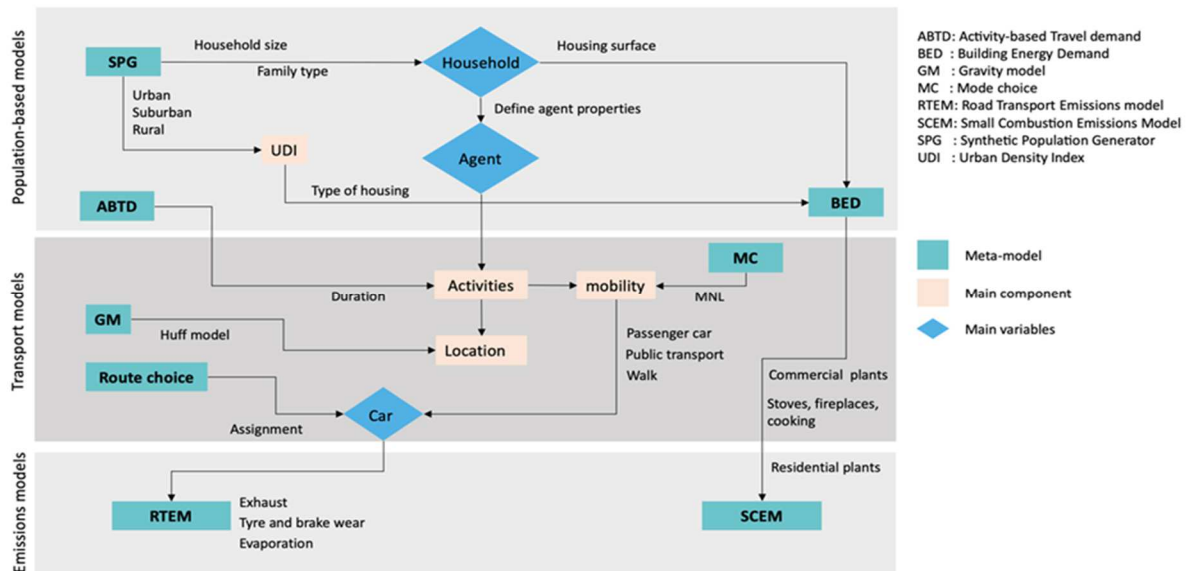


Figure 5 : Diagramme de fonctionnement de la plateforme de modélisation OLYMPUS

Demande d'heures complémentaires à mi-parcours de l'allocation A9
Description scientifique du projet A009017232

5.2 Justification de l'emploi de la machine demandée

Le Tableau 2 ci-dessous rappelle les caractéristiques des simulations à réaliser pour chaque projet, et le coût correspondant en heures CPU.

Thématique/Projet	Objectifs	Simulation	Coût en kh irene skylake	Final skl	Complément	Coût en kh irene rome	Final rome	Complément
Etude de la pollution aux échelles continentales	Modélisation inverse des émissions des précurseurs de polluants photo-oxydants et particulaires	PoIEASIA	25	25				
		ARGONAUT	75	75	450			
		AMP AIR	30	30				
	Modélisation atmosphérique : déterminants de la tendance d'ozone	Chine	200	200				
		Reprocessing IASI	2020 MetopA Asie				25	25
	2020 MeropB Asie					25	25	
	2018-2020 MetopC Asie					75	75	
	2020 MetopA Europe					25	25	
	2013-2020 MetopB Europe					200	200	
	Assimilation IASI Reprocessing IASI- GOME2	2018-2020 Metop C Europe				75	75	
Chine		25	25				500	
Scenarios urbains	Production, analyse et exploitation de scénarios énergétiques et d'aménagement urbains	Ile de France 2030	960	150				810
		Villes compactes et étalées				480	480	
		Transport de marchandises	320	51				270
		Pollution de proximité	300	47				250
		Analyse socio-économique	300	47				250
Modélisation des émissions d'aérosols terrigènes	Tester des nouvelles paramétrisations d'émissions de DUST	Tunisie	50	50				
Modélisation d'un nouvel indicateur de l'impact sanitaire des particules, le potentiel oxydant	Simulation du potentiel oxydant	1 an simulation Europe/France				200	200	200
Simulation des sources de pollution de l'air en Afrique	Simulation des sources de pollution de l'air en Afrique de l'Est Simulation de la qualité de l'air en Afrique du Sud	1 an de simulation sur l'Afrique				200	200	
		1 an de simulation sur l'Afrique						75
Interaction entre émissions biogéniques et anthropiques	Etudier la qualité de l'air future de la forêt des Landes Modélisation des propriétés et de l'effet radiatif des aérosols en Ile de France dans le cadre de la campagne ACROSS	4 séries de scenario futurs de 5 ans				400	400	
		Simulations Ile de France						100
Total			2285	700	450	1705	1705	2455

Tableau 2 : Justification des heures de calcul demandées

6. Bibliographie

C.A. Belis, D. Pernigotti, G. Pirovano, O. Favez, J.L. Jaffrezo, J. Kuenen, H. Denier van Der Gon, M. Reizer, V. Riffault, L.Y. Alleman, M. Almeida, F. Amato, A. Angyal, G. Argyropoulos, S. Bande, I. Beslic, J.-L. Besombes, M.C. Bove, P. Brotto, G. Calori, D. Cesari, C. Colombi, D. Contini, G. De Gennaro, A. Di Gilio, E. Diapouli, I. El Haddad, H. Elbern, K. Eleftheriadis, J. Ferreira, M. Garcia Vivanco, S. Gilardoni, B. Golly, S. Hellebust, P.K. Hopke, Y. Izadmanesh, H. Jorquera, K. Krajsek, R. Kranenburg, P. Lazzeri, F. Lenartz, F. Lucarelli, K. Maciejewska, A. Manders, M. Manousakas, M. Masiol, M. Mircea, D. Mooibroek, S. Nava, D. Oliveira, M. Paglione, M. Pandolfi, M. Perrone, E. Petralia, A. Pietrodangelo, S. Pillon, P. Pokorna, P. Prati, D. Salameh, C. Samara, L. Samek, D. Saraga, S. Sauvage, M. Schaap, F. Scotto, K. Segal, G. Siour, R. Tauler, G. Valli, R. Vecchi, E. Venturini, M. Vestenius, A. Waked and E. Yubero: Evaluation of receptor and chemical transport models for PM10 source apportionment, *Atmospheric Environment: X*, 5, 2019.

Cholakian, A., Beekmann, M., Colette, A., Coll, I., Siour, G., Sciare, J., Marchand, N., Couvidat, F., Pey, J., Gros, V., Sauvage, S., Michoud, V., Sellegri, K., Colomb, A., Sartelet, K., Langley DeWitt, H., Elser, M., Prévot, A. S. H., Szidat, S., Dulac, F.: Simulation of fine organic aerosols in the western Mediterranean area during the ChArMEx 2013 summer campaign, *Atmos. Chem. Phys.*, 18, 7287-7312, 2018.

Colette, A., B. Bessagnet, F. Meleux, E. Terrenoire, and L. Rouil, *Frontiers in air quality modelling, Geoscientific Model Development*, 7, 1, 203-210, 2014.

Coman, A. G. Foret, M. Beekmann, M. Eremenko, G. Dufour, B. Gaubert, A. Ung, C. Schmechtig, J.-M. Flaud, and G. Bergametti, Assimilation of IASI partial tropospheric columns with an Ensemble Kalman Filter over Europe, *Atmos. Chem. Phys.*, 12, 2513–2532, 2012.

Cuesta, J., Y. Kanaya, M. Takigawa, G. Dufour, M. Eremenko, G. Foret, K. Miyazaki, and M. Beekmann, Transboundary ozone pollution across East Asia: daily evolution and photochemical production analysed by IASI+GOME2 multispectral satellite observations and models, *Atmos. Chem. Phys.*, 18, 9499-9525, <https://doi.org/10.5194/acp-18-9499-2018>, 2018.

Dufour, G., Eremenko, M., Orphal, J., and Flaud, J.-M.: IASI observations of seasonal and day-to-day variations of tropospheric ozone over three highly populated areas of China: Beijing, Shanghai, and Hong Kong, *Atmospheric Chemistry and Physics*, 10, 3787–3801, doi:10.5194/acp-10-3787-2010, 2010.

Dufour G., M. Eremenko, M. Beekmann, J. Cuesta, G. Foret, A. Cheiney, M. Lachatre, Lin, W., Liu, Y., Xu, X., and Zhang, Y., Lower tropospheric ozone over the North China Plain: variability and trends revealed by IASI satellite observations for 2008–2016, *Atmos. Chem. Phys.*, 18, 16439-1645, <https://doi.org/10.5194/acp-18-16439-2018>, 2018.

Elessa Etuman, A., 2017. Analyse des impacts des politiques énergétiques et de déplacements urbains sur la pollution de l'air : modélisation intégrée pour un espace urbain soutenable. These de doctorat, Paris Est.

Elessa Etuman, A. and I. Coll, OLYMPUS v1.0: development of an integrated air pollutant and GHG urban emissions model – methodology and calibration over greater

Paris, *Geosci. Model Dev.*, 11, 5085–5111, <https://doi.org/10.5194/gmd-11-5085-2018>, 2018.

Eremenko, M., Dufour, G., Foret, G., Keim, C., Orphal, J., Beekmann, M., Bergametti, G., and Flaud, J.-M.: Tropospheric ozone distributions over Europe during the heat wave in July 2007 observed from infrared nadir spectra recorded by IASI, *Geophysical Research Letters*, 35, L18 805, 2008.

Evensen, G., Sequential data assimilation with a nonlinear quasi-geostrophic model using Monte Carlo methods to forecast error statistics, *J. Geophys. Res.*, (99), pp 10,143-10,162, 1994.

Fortems-Cheiney, A., Pison, I., Dufour, G., Broquet, G., Berchet, A., Potier, E., Coman, A., Siour, G., and Costantino, L.: Variational regional inverse modeling of reactive species emissions with PYVAR-CHIMERE, *Geosci. Model Dev. Discuss.*, <https://doi.org/10.5194/gmd-2019-186>, in review, 2019.

Gaubert, B., A. Coman, G. Foret, F. Meleux, A. Ung, L. Rouil, A. Ionescu, Y. Candau, and M. Beekmann, Regional scale ozone data assimilation using an ensemble Kalman filter and the CHIMERE chemical transport model, *Geosci. Model Dev.*, 7, 283–302, 2014.

IPCC, fifth assessment report—the physical science basis, <http://www.ipcc.ch>, 2013

Mailler, S., L. Menut, D. Khvorostiyannov, M. Valari, F. Couvidat, G. Siour, S. Turquety, R. Briant, P. Tuccella, B. Bessagnet, A. Colette, and F. Meleux, CHIMERE-2017: from urban to hemispheric chemistry-transport modeling, *Geosci. Model Dev.*, 10, 2397-2423, 2017.

Menut, L., B. Bessagnet, D. Khvorostyanov, M. Beekmann, N. Blond, A. Colette, I. Coll, G. Curci, G. Foret, A. Hodzic, S. Mailler, F. Meleux, J.-L. Monge, I. Pison, G. Siour, S. Turquety, M. Valari, R. Vautard, and M. G. Vivanco, CHIMERE 2013: a model for regional atmospheric composition modeling, *Geosci. Model Dev.*, 6, 981–1028, 2013.

Ramanathan, V., and Carmichael, G., Global and regional climate changes due to black carbon, *Nat. Geosci.*, 1 (4), 221-227, 2008

Manabu Shiraiwa, Kayo Ueda, Andrea Pozzer, Gerhard Lammel, Christopher J. Kampf, Akihiro Fushimi, Shinichi Enami, Andrea M. Arangio, Janine Fröhlich-Nowoisky, Yuji Fujitani, Akiko Furuyama, Pascale S. J. Lakey, Jos Lelieveld, Kurt Lucas, Yu Morino, Ulrich Pöschl, Satoshi Takahama, Akinori Takami, Haijie Tong, Bettina Weber, Ayako Yoshino, and Kei Sato : *Environmental Science & Technology* 2017 51 (23), 13545-13567

Wardrop, J. G., Whitehead, J. I., 1952. Correspondence. Some theoretical aspects of road traffic research. *Proceedings of the Institution of Civil Engineers*, 1, 5 : 767-768. DOI : 10/frrdcn.

Q.J. Zhang, M. Beekmann, F. Drewnick, F. Freutel, J. Schneider, M. Crippa, A. Prevot, U. Baltensperger, L. Poulain, A. Wiedensohler, J. Sciare, V. Gros, A. Borbon, A. Colomb, V. Michoud, J-F. Doussin, H. A. C. Denier van dr Gon, M. Haefelin, J.-C. Dupont, G. Siour, H. Petetin, B. Bessagnet, S.N. Pandis, A. Hodzic, O. Sanchez, C. Honoré, and O. Perrussel: Formation of organic aerosol in the Paris region during the MEGAPOLI summer campaign: evaluation of the volatility-basis-set approach within the CHIMERE model, *Atmos. Chem. Phys.*, 13, 5767-5790, 2013.