

UNIVERSITÉ TOULOUSE III - PAUL SABATIER

U.F.R. Sciences et Vie de la Terre

**SIMULATION ET PRÉVISION
DE LA QUALITÉ DE L'AIR
AUX ÉCHELLES
CONTINENTALE ET RÉGIONALE.**

THÈSE

présentée et soutenue publiquement le 11 décembre 2006 par

Anne DUFOUR

pour obtenir le grade de

**DOCTEUR DE L'UNIVERSITÉ TOULOUSE III
(Spécialité : Physique et Chimie de l'Atmosphère)**

sous la direction de
Vincent-Henri PEUCH

devant le jury composé de

Bernard CROS	Professeur, Université de Toulouse III	Président
Sylvie CAUTENET	Directeur de Recherche, LAMP	Rapporteur
Robert VAUTARD	Directeur de Recherche, IPSL-CEA	Rapporteur
Laurence ROUIL	Ingénieur R & D, INERIS	Examinateur
Richard MENARD	Chercheur, MSC/McGill University	Examinateur
Daniel CARIOLLE	Ingénieur Général des Ponts et Chaussées, CNRM	Examinateur
Vincent-Henri PEUCH	Ingénieur des Ponts et Chaussées, CNRM	Directeur de thèse

"Doukipudonktan"
Queneau (1959)

Remerciements

Merci, merci, merci.

Merci donc tout d'abord à Météo-France de m'avoir donné l'opportunité de poursuivre et compléter mes études d'ingénieur des travaux de la météorologie par une Formation Complémentaire Par La Recherche. Je pense ici tout particulièrement aux personnes de ma promotion n'ayant pas eu cette chance.

En second lieu, je tiens à remercier mes encadrants Vincent-Henri Peuch et Daniel Cariolle, pour avoir proposé, suivi, encadré et encouragé cette thèse.

Ensuite... Merci à Bernard Cros d'avoir accepté d'en présider le jury, à Sylvie Cautenet et Robert Vautard de l'avoir rapportée, et enfin, à Laurence Rouil et Richard Ménard de l'avoir examinée. Vous avez notamment su faire de ce moment de soutenance, légèrement appréhendé il est vrai, un véritable instant d'échanges et d'écoute. Vraiment, merci.

J'aimerai profiter de cette page également pour remercier l'ensemble des personnes ayant un jour appartenu à l'une des équipes ERAM, CATS ou CARMA/CANOE/CAIAC : un attachement certain à la fois aux moquettes oranges et à la chimie atmosphérique nous soudent tous les uns aux autres... Je ne citerai pas ici tous les joyeux drilles animant ce couloir (une petite mention à Tomator et Mister T. tout de même), mais plutôt trois personnes avec qui j'ai particulièrement interagi : Marie-Andrée, pour la patience et la bonne humeur avec laquelle elle a pris en charge le côté administratif et pégasistique de ces années, Marielle Amodei, dont la mutation vers le contrôle des modèles météorologiques a initié la réflexion sur les liens entre erreurs de modélisations chimiques et météorologiques ainsi que Françoise Chéroux, pour la mise en place de la plateforme de suivi des prévisions quotidiennes de qualité de l'air. Une brassée de mercis également à l'efficacité et la disponibilité de l'ensemble du service informatique du CNRM sans qui tout aurait été beaucoup plus compliqué, comme imprimer une thèse disparue par exemple.

Cette thèse a également profité de nombreuses collaborations extérieures au CNRM, et ce malgré le caractère parfois tendu qui a régné au sein du milieu de la qualité de l'air en France... Qu'elles soient des AASQA, de l'ADEME, de PREV'AIR ou ayant participé à ESQUIF ou ESCOMPTE, j'aimerai saluer pêle-mêle ici : Alexandre Armengaud, Matthias Beekman, Souad Bouallala, Fabrice Caïni, Augustin Colette, Joëlle Colosio, Virginie Gaiffe, Cécile Honoré, Luc Lavrilleux, Adeline Maitre, Frederick Meleux, Laurent Menut, Sandrine Monteiro, Bernard Pirletta, Nathalie Poisson, et bien sûr pour la seconde fois le grand Robert. Merci à vous pour les échanges et les discussions que nous avons pu partager. Pour les autres, ceux des parties de coinches, des ballades pyrénéennes nocturnes et salvatrices, des pauses surtout non scientifiques, des ancolies, petites rires et grandes rigolades, j'ai préféré faire un dessin !

Silencieuse et mystérieuse, une grumme passe...

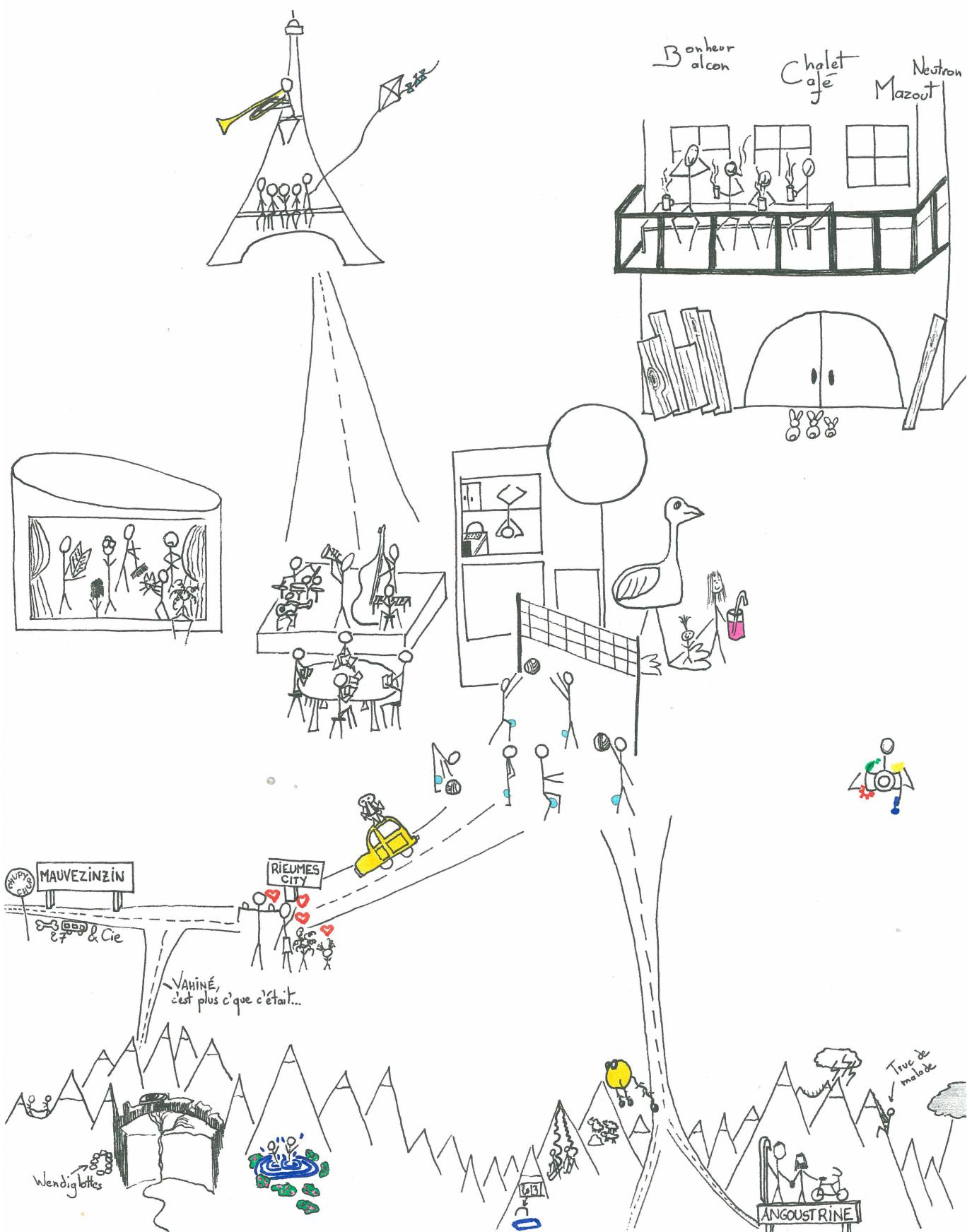


Table des matières

1	Introduction générale	1
1.1	Introduction	2
1.2	La chimie de l'ozone troposphérique	4
1.3	Les observations	7
1.3.1	Les réseaux	7
1.3.2	Les campagnes	11
1.4	La modélisation numérique de la pollution photochimique	14
1.4.1	Historique	14
1.4.2	Qu'est ce qu'un modèle déterministe?	16
1.4.3	Processus physico-chimiques	16
1.4.4	Présentation du modèle utilisé dans cette étude : le modèle MO-CAGE de Météo-France	19
1.5	L'assimilation de données chimiques	24
2	La campagne ESQUIF	27
2.1	Présentation du projet ESQUIF	27
2.2	Le dispositif	28
2.2.1	Les mesures aéroportées	29
2.2.2	Les mesures in-situ	30
2.3	Premières simulations de MOCAGE version qualité de l'air	33
2.3.1	Configuration du modèle utilisé pour cette étude	33
2.3.2	Bilan et performances sur les POI 5 à 8	34
2.3.3	Structure à la verticale de Paris (POI5)	39
2.3.4	Episode photochimique intense (POI6)	44
2.3.5	Pollution transfrontière (POI7)	51
2.3.6	Prise en compte de la nébulosité (POI8)	55
2.3.7	Conclusions	61
3	La campagne ESCOMPTE	63
3.1	Présentation	63
3.2	Le dispositif	64
3.2.1	Les mesures des réseaux permanents	65
3.2.2	Les mesures in-situ spécifiques à la campagne	66
3.2.3	Les radiosondages chimiques	66
3.2.4	Les mesures LIDAR	67
3.2.5	Les mesures aéroportées	67
3.3	MOCAGE à l'étude du "temps chimique" des Bouches-du-Rhône	70
3.3.1	Résumé en français	70

3.3.2 Article en anglais	71
3.4 Enseignement de l'exercice de modélisation	101
3.4.1 Les composés primaires : CO, SO ₂ , NO _x	101
3.4.2 L'ozone	101
4 Les campagnes de prévisions estivales	105
4.1 De PIONEER au passage en opérationnel	105
4.2 Bilan et performances	109
4.2.1 Méthodologie	109
4.2.2 Application sur une saison estivale	110
4.2.3 Variabilité interannuelle et intermensuelle	130
4.2.4 Variabilité des conditions aux limites du domaine continental	135
4.2.5 Analyse conjointe des différents indicateurs	141
4.3 Impact de la qualité du forçage météorologique sur la simulation de la qualité de l'air	146
4.3.1 Qualité intrinsèque du forçage météorologique	146
4.3.2 Différents réseaux de prévisions météorologiques	147
4.3.3 Même réseau de prévisions météorologiques : variabilité journalière	153
4.4 Prévisions sur site : adaptation statistique	163
4.4.1 Méthodologie	163
4.4.2 Résultats et discussion	165
5 Production de cartes d'analyse de concentration d'ozone	173
5.1 Position du problème	173
5.2 L'Interpolation Optimale (IO)	174
5.3 L'Interpolation Optimale anisotrope	175
5.3.1 La matrice de variance-covariance des erreurs d'ébauche B	176
5.3.2 La matrice de variance-covariance des erreurs d'observation R	180
5.3.3 Etape de débiaisage	181
5.4 Etude des corrélations spatiales	181
5.4.1 Corrélation spatiale des observations	181
5.4.2 Etude des cartes de corrélation de sortie de MOCAGE	186
5.5 Prise en compte de la typologie des sites	188
5.6 Discussion des cartes d'analyse	190
5.6.1 Cartes d'analyse a posteriori	190
5.6.2 Cartes de prévision	197
5.7 Conclusion	200
6 Conclusions et perspectives	201
Bibliographie	205
Annexes	213
A La fédération ATMO	214
B Indicateurs statistiques utilisés	216

C La campagne ESCOMPTE	219
C.1 Précisions et incertitudes des moyens de mesure	219
C.2 Mesures sur le site chimique spécifique de Realtor	220
C.3 Exercice de modélisation ESCOMPTE	221
C.3.1 Etude quantitative de la variabilité du champs d'ozone	221
D Les modèles météorologiques forceurs	227
E La pollution, le temps et le "temps chimique"	229
F Etude de cas	237
F.1 Cas du 25 au 27 juillet 2005	238
F.2 Cas du 27 août 2005	239
G Liste des symboles utilisés dans le texte	240

Liste des figures

1.1	<i>Localisation des AASQA de la fédération ATMO</i>	10
1.2	<i>Répartition géographique des sites de mesure d'ozone et d'oxydes d'azote des AASQA</i>	11
1.3	<i>Incertitudes de mesure pour quatres polluants réglementés</i>	12
1.4	<i>Processus physico-chimiques de la modélisation de la composition chimique de l'atmosphère</i>	18
1.5	<i>Distribution des niveaux verticaux du modèle MOCAGE</i>	22
2.1	<i>Dispositif expérimental d'ESQUIF : plan de vols et stations sol</i>	29
2.2	<i>Domaines géographiques de la version MOCAGE utilisée pour les simulations ESQUIF</i>	33
2.3	<i>Production moyenne d'ozone sur une journée en fonction de la dilution des émissions</i>	38
2.4	<i>POI5 Localisation des moyens de mesure</i>	39
2.5	<i>POI5 Concentrations d'ozone observées et simulées. Deux vols matinaux du 2/7/1999</i>	40
2.6	<i>POI5 Concentrations d'ozone simulées et observées. Stations rurales d'AIRPARIF</i>	41
2.7	<i>POI5 Coupes zonales verticales des concentrations d'ozone à 09UTC le 2/7/1999</i>	42
2.8	<i>POI5 Coupes zonales verticales des concentrations d'ozone à 13UTC le 2/7/1999</i>	42
2.9	<i>POI5 Concentrations d'ozone simulées et observées. Deux vols de l'après-midi du 2/7/1999</i>	43
2.10	<i>POI5 Profils temporels des niveaux de vol correspondant à la figure précédente</i>	43
2.11	<i>POI5 Concentrations d'ozone simulées et observées. Vol MERLIN du 2/7/99</i>	43
2.12	<i>POI6 Vols DIMONA du 16 au 18/7/1999 : simulations 2D et observations d'ozone</i>	45
2.13	<i>POI6 Pente O_x/NO_z pour l'ensemble des vols de la POI6 d'ESQUIF</i>	46
2.14	<i>POI6 Trajectoires des vols de la base MOZAIC pour le 18/07/1999</i>	47
2.15	<i>POI6 Vols MOZAIC du 18/7/99 : comparaison avec les simulations du domaine régional</i>	47
2.16	<i>POI6 Deux vols MOZAIC du 18/7/99 : comparaison avec les simulations des 3 domaines</i>	47
2.17	<i>POI6 Exercice de modélisation : vol DIMONA du 18/7/1999 (ozone)</i>	49
2.18	<i>POI6 Exercice de modélisation : Rapports O_x/NO_z observés et simulés</i>	50
2.19	<i>POI7 Localisation des moyens de mesures</i>	51
2.20	<i>POI7 Concentrations d'ozone observée et simulée. Vol matinal MERLIN du 25/7/1999</i>	52
2.21	<i>POI7 Champs 2D de NO_x simulé le 25/7/1999 à 6HTU à 1000 mètres</i>	52
2.22	<i>POI7 Concentrations de NO_x observée et simulée. Vol matinal MERLIN du 25/7/1999</i>	52
2.23	<i>POI7 Concentrations d'ozone observée et simulée. Vol PM MERLIN du 25/7/1999</i>	54
2.24	<i>POI7 Champs 2D d'ozone simulé et observations. Vol PM MERLIN du 25/7/1999</i>	54
2.25	<i>POI7 Vents zonal et méridien observés et simulés. Vol PM MERLIN du 25/7/1999</i>	54
2.26	<i>POI8 Localisation des moyens de mesures</i>	55
2.27	<i>POI8 Nébulosité et vent simulés par MOCAGE le 29/7/1999</i>	55
2.28	<i>POI8 Prise en compte de la nébulosité : concentrations d'ozone. Vols du 29/7/99</i>	57
2.29	<i>POI8 Prise en compte de la nébulosité : coupes verticales de différents paramètres relatifs à la nébulosité et à la chimie. Point en marge d'un nuage convectif simulé.</i>	59
2.30	<i>POI8 Idem 2.29 pour un point au coeur du nuage</i>	60
3.1	<i>Localisation des sites de mesures chimiques in-situ spécifiques de la campagne ESCOMPTE</i>	67

3.2	<i>Dispositif expérimental aéroporté d'ESCOMPTE</i>	68
4.1	<i>Nombre de jours avec dépassement du seuil d'information de l'ozone à l'échelle continentale</i>	112
4.2	<i>Histogramme des séries horaires de concentration d'ozone à l'échelle continentale</i>	113
4.3	<i>Profils moyens d'ozone par type de station</i>	115
4.4	<i>Biais et EQM des séries de concentration d'ozone pour J0 sur l'été 2005</i>	118
4.5	<i>Corrélation des séries de concentration d'ozone pour J0 sur l'été 2005</i>	119
4.6	<i>FOM et rapport des variances des séries de concentration d'ozone pour J0 sur l'été 2005</i>	120
4.7	<i>Scores station par station pour la série des amplitudes journalières d'ozone</i>	122
4.8	<i>Histogramme des séries des amplitudes journalières de concentration d'ozone</i>	123
4.9	<i>Nombre de jours avec dépassement du seuil d'information de l'ozone à l'échelle régionale</i>	124
4.10	<i>Cas de bouffée sur le site du Phare d'Ailly le 7 septembre 2005</i>	126
4.11	<i>Episode de pollution transatlantique nord</i>	137
4.12	<i>Profils de PAN aux bords du domaine continental</i>	138
4.13	<i>Variabilité des conditions aux limites du domaine Européen</i>	139
4.14	<i>Variabilité des conditions aux limites du domaine Européen</i>	140
4.15	<i>Impact d'un lissage spatial sur les champs 2D</i>	142
4.16	<i>Impact d'un lissage spatial sur les indicateurs statistiques usuels</i>	143
4.17	<i>Moyenne observée et prévue de la nébulosité à 12HTU</i>	147
4.18	<i>Evolution des scores portant sur les pics d'ozone avec l'échéance</i>	148
4.19	<i>Histogramme des séries des pics journaliers de concentration d'ozone (J0 et J3)</i>	150
4.20	<i>Nuage de points des températures à 12HTU de J0 à J3</i>	151
4.21	<i>Roses des vents et concentration d'ozone</i>	155
4.22	<i>Corrélation entre écart type des concentrations d'ozone et paramètres météorologique</i>	157
4.23	<i>Nuages de points (écart type ozone) / (écart type Pmer) ou (Moyenne Température)</i>	158
4.24	<i>Corrélation entre indicateurs chimiques (ici biais) et indicateurs météorologiques</i>	160
4.25	<i>Comme figure 4.24 pour l'erreur quadratique moyenne</i>	161
4.26	<i>Comme figure 4.24 pour la Figure Of Merit</i>	161
4.27	<i>Comme figure 4.24 pour le rapport des variances</i>	162
4.28	<i>Choix effectif des différents prédicteurs potentiels en fonction de l'heure</i>	166
4.29	<i>Profils journaliers d'ozone : observations, simulation brute et adaptation statistique</i>	167
4.30	<i>Comparaison des scores des séries horaires : simulation brute versus adaptation statistique</i>	168
4.31	<i>Comme figure 4.30 pour les scores des séries des pics journaliers</i>	170
4.32	<i>Histogramme des pics journaliers d'ozone : simulation brute et adaptation statistique</i>	171
4.33	<i>Scores de dépassement du seuil d'alerte d'ozone : simulation brute et adaptation statistique</i>	171
4.34	<i>Comparaison des scores des pics en considérant ou non l'ozone prévu comme prédicteur</i>	172
5.1	<i>Représentation schématique des différentes étapes de construction des matrices de l'IO</i>	177
5.2	<i>Corrélation d'erreur d'ozone et d'ozone observées en fonction des corrélations prévues</i>	178
5.3	<i>Variance d'erreur d'ozone (resp. biais) en fonction de la variance (resp. moyenne) prévue</i>	179
5.4	<i>Evolution temporelle du rapport des variances d'erreur</i>	180
5.5	<i>Graphes de corrélation spatiale (stations rurales)</i>	183
5.6	<i>Graphes de corrélation spatiale (stations péri-urbaines)</i>	184
5.7	<i>Graphes de corrélation spatiale (stations urbaines)</i>	185
5.8	<i>Cartes de corrélation de l'erreur de l'ébauche</i>	187
5.9	<i>Cartes de corrélation de l'erreur de l'ébauche atténuee par une fonction gaussienne</i>	189
5.10	<i>Observations, simulation et analyse en surface du 11 juin 2005</i>	192
5.11	<i>Observations, simulation et analyse en surface du 22 juin 2005</i>	192

5.12	<i>Observations, simulation et analyse en surface du 20 juillet 2005</i>	193
5.13	<i>Série temporelle de scores journaliers analyse versus ébauche</i>	194
5.14	<i>Scatter-plot des scores de tables de contingence analyse versus ébauche</i>	196
5.15	<i>Séries temporelles de scores journaliers Interpolation Optimale versus ébauche pour J0</i>	198
5.16	<i>Observations et cartes de prévision à J0 avec et sans IO pour 3 jours</i>	199
C.1	<i>Zonage du domaine en régions climatologiquement homogènes</i>	221
D.1	<i>Résolution horizontale équivalente d'ARPEGE sur une grille non étirée</i>	227
D.2	<i>Couverture spatiale des réseaux météorologiques au sol SYNOP et RADOME</i>	228
F.1	<i>Séries journalières sur l'été 2005 des scores chimiques et météorologiques</i>	237
F.2	<i>Cas du 25 au 27 juillet 2005 : décalage spatial de la trajectoire d'une perturbation</i>	238
F.3	<i>Cas du 27 août 2005 : décalage temporel d'un corps pluvio-instable</i>	239

Liste des tableaux

1.1	<i>Méthodes et incertitudes des mesures chimiques aéroportées du programme MOZAIC</i>	8
1.2	<i>Parc analytique des AASQA françaises pour les polluants réglementés</i>	11
1.3	<i>Principales caractéristiques de différentes versions de MOCAGE</i>	23
2.1	<i>Caractéristiques techniques des analyseurs embarqués de la campagne ESQUIF</i>	31
2.2	<i>Méthodes de mesure et incertitudes des mesures au sol effectuées par AIRPARIF</i>	32
2.3	<i>Caractéristiques de la version de MOCAGE utilisée pour les simulations ESQUIF</i>	34
2.4	<i>Indicateurs statistiques pour les mesures in-situ et aéroportées des POI 5 à 8</i>	35
2.5	<i>Caractéristiques des modèles déterministes participant à l'exercice de modélisation ESQUIF</i>	48
2.6	<i>POI8 Indicateurs statistiques sur les séries d'ozone. Sensibilité à la prise en compte de la nébulosité sur les constantes de photolyse</i>	56
3.1	<i>Méthodes des mesures au sol effectuées par AIRMARAIX et AIRFOBEP</i>	66
3.2	<i>Caractéristiques des mesures LIDAR effectuées durant ESCOMPTE</i>	67
3.3	<i>Instruments embarqués et paramètres chimiques mesurés lors de la campagne ESCOMPTE</i>	69
3.4	<i>Principales caractéristiques des modèles de l'exercice de modélisation ESCOMPTE</i>	102
4.1	<i>Forçages météorologiques alimentant les simulations opérationnelles</i>	107
4.2	<i>Caractéristiques de la version utilisée pour les simulations opérationnelles en 2005</i>	108
4.3	<i>Scores globaux à l'échelle continentale pour la série des pics journaliers d'ozone</i>	111
4.4	<i>Scores globaux pour la série des pics journaliers d'ozone</i>	116
4.5	<i>Scores globaux pour la série des valeurs horaires d'ozone</i>	116
4.6	<i>Scores globaux pour la série des amplitudes journalières d'ozone</i>	121
4.7	<i>Table de contingence pour le seuil de $180 \mu\text{g.m}^{-3}$ sur le pic d'ozone et scores associés</i>	128
4.8	<i>Comme 4.7 en tenant compte de la marge d'erreur des mesures</i>	129
4.9	<i>Variabilité inter-mensuelle des scores des séries des pics journaliers de concentration d'ozone</i>	133
4.10	<i>Variabilité inter-annuelle des scores des séries des pics journaliers de concentration d'ozone</i>	134
4.11	<i>Impact du lissage sur les scores de dépassement de seuil</i>	144
4.12	<i>Impact du lissage sur le nombre de jours de dépassement de seuil</i>	145
4.13	<i>Scores des prévisions météorologiques pour quelques paramètres d'intérêt en chimie</i>	146
4.14	<i>Nombre de jours de dépassement du seuil d'information à l'ozone pour J0, J1, J2 et J3</i>	152
4.15	<i>Relations liant l'ozone (12H et 14HTU) aux paramètres météorologiques (12HTU)</i>	154
4.16	<i>Scores globaux pour l'ozone : simulations brutes et adaptations statistiques</i>	167
5.1	<i>Rayon d'action et moyennes observées des concentrations d'ozone par type de station</i>	190
5.2	<i>Scores globaux pour la série des pics journaliers</i>	194
5.3	<i>Scores globaux pour la série des valeurs horaires</i>	195
5.4	<i>Scores globaux par type de stations pour la série des pics journaliers</i>	195
5.5	<i>Moyennes par type de stations pour les différentes méthodes</i>	195

A.1	<i>AASQA de la fédération ATMO</i>	215
C.1	<i>Précision et incertitudes des mesures chimiques de la campagne ESCOMPTE</i>	219
C.2	<i>Rapport des variances obs/mod POI1 Stations fixes</i>	222
C.3	<i>Rapport des variances obs/mod POI2a Stations fixes</i>	222
C.4	<i>Rapport des variances obs/mod POI2b Stations fixes</i>	222
C.5	<i>Rapport des variances obs/mod POI3 Stations fixes</i>	223
C.6	<i>Rapport des variances obs/mod POI4 Stations fixes</i>	223
C.7	<i>Rapport des variances obs/mod POI1 Moyens mobiles</i>	224
C.8	<i>Rapport des variances obs/mod POI2a Moyens mobiles</i>	224
C.9	<i>Rapport des variances obs/mod POI2b Moyens mobiles</i>	225
C.10	<i>Rapport des variances obs/mod POI3 Moyens mobiles</i>	226
C.11	<i>Rapport des variances obs/mod POI4 Moyens mobiles</i>	226

Chapitre 1

Introduction : étude et prévision de la pollution photochimique à l'échelle continentale et régionale

Sommaire

1.1	Introduction	2
1.2	La chimie de l'ozone troposphérique	4
1.3	Les observations	7
1.3.1	Les réseaux	7
1.3.2	Les campagnes	11
1.4	La modélisation numérique de la pollution photochimique	14
1.4.1	Historique	14
1.4.2	Qu'est ce qu'un modèle déterministe ?	16
1.4.3	Processus physico-chimiques	16
1.4.4	Présentation du modèle utilisé dans cette étude : le modèle MOCAGE de Météo-France	19
1.5	L'assimilation de données chimiques	24

La pollution vue par le Petit Robert des noms communs...

POLLUANT, ANTE *adj.* et *n.m.* (v. 1970; d'un milieu par l'introduction d'un polluant ★ de polluer. Qui pollue (2°). *Produits polluants. Pollution des eaux d'une rivière. Pollution atmosphérique. Lutte contre la pollution* V. **Antipollution, dépollution ; dépolluer. Etude de l'environnement et des facteurs de pollution. Science des pollutions. V. Molysmologie ; et aussi écologie.** - Par ext. Dégradation des conditions de vie, nuisances quelconque (bruit, etc).

POLLUTION *n.f.* (XII^eme; lat. ecclés. *pollutio*). ◇ 1° *Vieilli.* Action de polluer, le fait d'être pollué. V. **Souillure** ◇ 2° *Mod.* Dégradation

1.1 Introduction

Changement climatique, réduction des émissions, qualité de l'air et impact sanitaire : la chimie atmosphérique concentre aujourd'hui un intérêt croissant dans le grand public et la communauté scientifique. La question de l'impact des perturbations anthropiques sur la composition chimique de l'atmosphère se pose à plusieurs échelles de temps et d'espace ; l'évolution des distributions des gaz en traces est le fruit d'échanges complexes à l'interface sol-atmosphère ainsi que de processus dynamiques, physiques, microphysiques et chimiques couplés. Si les cycles atmosphériques des principaux constituants sont compris, le détail des étapes, des mécanismes et des réactions intermédiaires impliqués sont imparfaitement connus et généralement très peu observés voire non accessibles à l'observation. Les modèles déterministes de chimie tri-dimensionnels sont de nature à fournir des éléments de compréhension sur l'importance qualitative des processus déjà identifiés participant à la chimie de l'atmosphère ainsi que la mise en évidence de nouveaux processus par confrontation des observations aux simulations.

En Europe, la prise de conscience des problématiques liées à la pollution atmosphérique d'origine anthropique s'est développée dans les années 1970 autour de la compréhension du phénomène des pluies acides sur les pays nordiques : même si les premières constatations du phénomène datent du milieu du XIX^{eme} (notamment les travaux de Smith à Manchester en Angleterre et ceux de Barral à Paris), il faut attendre 1972 et l'allocution de Bolin à la conférence des Nations Unies de Stockholm (Bolin (1972)) pour procéder à une véritable prise de conscience et l'instauration de programmes pour mesurer et étudier la pollution transfrontière, notamment l'initiative norvégienne du projet SNSF (projet interdisciplinaire d'une durée de 8 ans sur les précipitations acides, ancêtre de l'actuel EMEP) ainsi que la mise en place à l'échelle européenne d'un programme de coopération technique de mesures de la pollution transfrontière (OCDE). En Europe toujours, la photochimie devient un objet de préoccupation dès les années 80 dans les pays scandinaves et en Allemagne qui se dote d'ailleurs d'un des premiers réseaux de mesure de qualité de l'air. En parallèle de ces préoccupations de pollution troposphérique, ce sont également dans les années 70-80 que les effets perturbateurs à l'échelle globale des activités humaines sont envisagés, notamment leurs possibles conséquences climatiques : diminution de la couche d'ozone et augmentation des concentrations de gaz à effet de serre.

En France, il faudra attendre les années 1990 pour voir naître à la fois un réseau national de surveillance de la qualité de l'air (vote de la Loi sur l'Air et l'Utilisation Rationnelle de l'Energie, la LAURE, en décembre 1996) et des initiatives de modélisation dans les laboratoires : citons, par exemple, vers 1995, le développement du modèle communautaire Meso-NH-Chimie , modèle de méso-échelle dédié à l'étude des processus, piloté par le Laboratoire d'Aérologie et Météo-France ou CHIMERE, développé au Laboratoire de Météorologie Dynamique avec pour objectif la prévision de la qualité de l'air ou un peu plus tard encore, MOCAGE à partir 1999, le modèle utilisé dans cette étude. Développé par le CNRM, MOCAGE ambitionne une approche intégrée de la composition chimique de l'atmosphère en choisissant de traiter de manière détaillée la liste des processus participant aux problématiques climatiques (notamment l'ozone stratosphérique et les aérosols) et de moyen et court terme (typiquement relevant de la qualité de l'air). Il est conçu en aval des modèles météorologiques opérationnels de Météo-France et du CEPMMT.

La présente thèse s'est inscrite dans un double contexte : d'une part, la prévision de la qualité de l'air en temps réel sur une base quotidienne (tout d'abord dans le cadre d'un

projet de recherche puis de façon opérationnelle) et d'autre part, le rassemblement de la communauté scientifique chimique autour de deux projets de grande ampleur ESQUIF (de 1998 à 2001) et ESCOMPTE (de 2000 à 2001 pour la campagne, jusqu'en 2005 pour l'exercice de modélisation) comprenant tous deux une campagne de mesures intensives et un volet de modélisation.

Ces deux thèmes ont été poursuivis conjointement pour atteindre l'objectif principal de la thèse qui était de mettre en place et valider une configuration du modèle MOCAGE pour la prévision de la qualité de l'air à courte échéance, notamment pour la période estivale. En effet, comme le souligne Schmidt et al. (2001), l'absence de techniques de mesure pour l'ensemble des composés atmosphériques simulés par le modèle ainsi que l'insuffisance de l'échantillonnage spatial et temporel rendent la réalisation d'une validation exhaustive du modèle très difficile. Deux approches sont généralement envisagées et appliquées pour évaluer les performances d'un modèle de chimie-transport vis à vis de la pollution photochimique :

- évaluer simultanément le plus grand nombre d'espèces chimiques entrant dans le cycle de formation de l'ozone, ce qui est possible uniquement lors du déploiement d'importants moyens d'observations dans le cadre de campagnes spécifiques.
- se contenter des concentrations d'ozone mais sur des périodes beaucoup plus longues de l'ordre de la saison, englobant le plus grand nombre de situations possibles et pour le plus grand nombre de sites d'observation possibles.

Les travaux présentés dans ce manuscrit participent donc à l'effort de validation du modèle MOCAGE. A la différence des études engagées jusqu'alors, de nature typiquement verticale (où les différents aspects de la modélisation de la chimie et du transport sont évalués de façon aussi indépendante que possible : transport sous-maille, schémas chimiques, échanges en surface, assimilation, aérosols), la démarche entreprise ici possède une dimension plus horizontale et vise à caractériser les performances du modèle dans sa configuration multi-domaines pour une application à la prévision de la qualité de l'air estivale.

La première partie de la thèse est consacrée à des rappels sur la chimie troposphérique : à la fois les mécanismes principaux qui régissent le cycle de l'ozone, mais également, puisque ce sont les deux piliers autour desquels s'articule le travail, les observations qui la caractérisent (réseaux permanents et campagnes de mesures) ainsi que la modélisation qui la prend pour objet.

La seconde partie présente les simulations de la toute première version de MOCAGE, confrontées aux données de la campagne de mesure ESQUIF, dont l'objet était la pollution en région parisienne. Elle a été conduite avec une configuration de MOCAGE proche de celle qui était employée alors pour l'échelle globale. Elle a principalement permis de mettre en lumière les priorités pour la suite du développement.

La troisième partie est consacrée aux travaux réalisés au cours du projet ESCOMPTE qui a étudié la pollution photochimique en PACA : elle reprend un article publié dans le numéro spécial ESCOMPTE de la revue Atmospheric Environment qui présente une comparaison détaillée des simulations MOCAGE avec l'ensemble des moyens de mesure mis en place pour la campagne ainsi que les particularités des simulations de MOCAGE vis à vis des modèles ayant participé à l'exercice de modélisation.

Dans la quatrième partie, on s'intéresse aux simulations quotidiennes de prévision de la

qualité de l'air à l'échelle de la France et de l'Europe. Plus précisément, on cherche à dégager une méthodologie ou tout au moins des indicateurs statistiques pertinents pour caractériser les performances d'un système de modélisation.

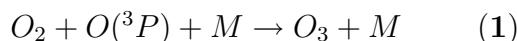
La cinquième partie montre l'utilisation d'une méthode de cartographie des concentrations d'ozone en mode prévision : une méthode d'interpolation optimale permettant de combiner simulations numériques déterministes et observations in-situ est en effet appliquée aux simulations en mode prévision et à des adaptations statistiques sur site, effectuées afin de corriger les simulations brutes et de prendre en compte des particularités sous-mailles et spécificités de chaque site.

1.2 La chimie de l'ozone troposphérique

L'ozone est le principal oxydant photochimique de la troposphère, à la fois directement (en témoigne son impact sanitaire sur les êtres vivants et la végétation) et indirectement puisque sa photolyse est la principale source du radical hydroxyl (OH). Ce radical, extrêmement réactif, joue un rôle prépondérant dans de nombreux cycles de réactions du fait de sa haute réactivité envers de nombreux constituants.

La formation de l'ozone résulte de réactions mettant en jeu les oxydes d'azotes, les composés organiques volatils et le rayonnement solaire comme source d'énergie. La description qui en est faite ici est tirée de Teyssèdre (2003).

L'ozone correspond à une des formes du constituant oxygène, dont la forme stable et majoritaire correspond à la molécule de dioxygène, O_2 , présente dans toute l'atmosphère terrestre à hauteur de 21 % environ. L'ozone (O_3) est l'une des 3 formes d'oxygènes impairs, minoritaire, regroupant également l'oxygène atomique ($\text{O}^{(3P)}$ la forme stable ou $\text{O}^{(1D)}$ la forme excitée). L'unique réaction produisant de l'ozone dans l'atmosphère est la réaction 1 :



Une source possible d' $\text{O}^{(3P)}$ est la dissociation de la molécule de dioxygène :



mais elle nécessite des longueurs d'onde assez faibles (typiquement $200 \text{ nm} \leq \lambda \leq 220 \text{ nm}$) qui ne sont présentes que dans la stratosphère et filtrées en son sein par la "couche d'ozone" justement, située vers 25 km d'altitude (son altitude varie en fait selon la latitude de 25 à 30 km à l'équateur à entre 15 et 20 km au-dessus des pôles en hiver). Aussi, à cause de ce filtrage (par l'ozone, mais également par les autres constituants de l'atmosphère), seule la partie du rayonnement solaire au delà de 290 nm atteint le sol. Ceci rend donc impossible la réaction (2) à proximité de la surface. En revanche, la photolyse du dioxyde d'azote (NO_2) peut produire $\text{O}^{(3P)}$ à une énergie plus basse ($200 \text{ nm} \leq \lambda \leq 424 \text{ nm}$) :



Par ailleurs, l'ozone et le monoxyde d'azote (NO) réagissent rapidement entre eux afin de reformer du dioxyde d'azote :

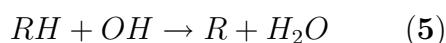


Les réactions (3), (1) et (4) forment un cycle, correspondant à un équilibre photostationnaire entre l'ozone et les oxydes d'azote (NO_x), la réaction (1) étant considérée comme instantanée. La concentration d'ozone est alors donnée par la relation :

$$[O_3] = \frac{j[NO_2]}{k[NO]}$$

Les valeurs d'ozone pronostiquées en appliquant l'équilibre photostationnaire sont bien inférieures à celles observées dans les panaches de pollution. Il est donc nécessaire de prendre en compte l'ensemble des réactions qui permettent de déplacer cet équilibre en assurant la conversion du NO en NO_2 . Cette conversion peut être assurée par le radical hydropéroxile (HO_2) et par l'ensemble des radicaux peroxyles, notés RO_2 . Le mécanisme le plus efficace pour cela est la propagation radicalaire, liée à l'oxydation progressive des Composés Organiques Volatils (COV). Ces COV regroupent une grande diversité de composés primaires émis dans la troposphère consécutivement aux activités anthropiques ou par des processus naturels, notamment liés à la végétation.

Les différentes espèces chimiques regroupées sous le terme COV peuvent présenter des comportements radicalement différents dans l'atmosphère du fait de réactivités chimiques extrêmement variables. Ainsi, les alcanes, de formule chimique C_nH_{2n+2} , sont présents dans l'atmosphère, principalement sous les formes du méthane (CH_4) et de l'éthane (C_2H_6). Ces composés réagissent relativement lentement avec le radical hydroxyle (OH) et leur distribution est donc fortement conditionnée par le transport. De plus, les alcanes sont faiblement déposés. Au contraire, les alcènes, de formule chimique C_nH_{2n} , sont quant à eux assez réactifs avec OH , NO_3 et O_3 . Ils sont donc très importants en atmosphère polluée, tout comme en atmosphère rurale. En conséquence, la chimie des COV dans l'atmosphère est complexe, et nécessite la prise en compte de nombreux paramètres pour sa représentation. La première étape de l'oxydation d'un COV, noté RH , est due au radical hydroxyle (OH) :



Le composé radicalaire R se recombine alors instantanément avec l'oxygène moléculaire (O_2) formant ainsi un radical peroxylique (RO_2) :



Ce radical RO_2 permet, dans une deuxième phase, de suppléer l'ozone pour l'oxydation de NO en NO_2 , produisant un radical alcoxy (RO) :



Enfin, ce radical alcoxy réagit avec l'oxygène moléculaire, générant un radical hydropéroxile (HO_2) :



Ce radical HO_2 peut alors oxyder NO en NO_2 :



restituant ainsi un radical hydroxile OH qui pourra à son tour oxyder un autre COV selon les réactions **5** à **9**. Le radical hydroxile (OH) qui initie ce cycle, provient en général, de la photolyse du méthane (CH_4), de l'ozone, ou d'un aldéhyde (comme par exemple, le formaldéhyde $HCHO$). Toutefois, ces radicaux OH , HO_2 ou RO_2 peuvent avoir un devenir différent de celui de la propagation radicalaire : on parle alors de terminaisons radicalaires. Par exemple, la réaction du radical hydroxile (OH) avec le dioxyde d'azote (NO_2) forme l'acide nitrique (HNO_3) :



est l'une de ces terminaisons radicalaires, quantitativement importante. L'acide nitrique est donc un sous-produit de la pollution photochimique ; il est aujourd'hui un facteur important de l'acidité des pluies sur les régions industrialisées. La fixation d'un radical peroxylique (RO_2) par des nitrates organiques ou la recombinaison de 2 radicaux hydroperoxyliques (HO_2) entre eux (en présence ou non d'eau) afin de former de l'eau oxygénée (H_2O_2) :



sont également deux autres mécanismes importants de terminaisons radicalaires.

Parmi les différents facteurs conditionnant la production d'ozone troposphérique, la charge du milieu en oxydes d'azote (NO_x) est cruciale. Ainsi, deux principaux régimes chimiques peuvent être distingués avec une zone de transition située aux environs de quelques ppbv pour les NO_x (concentrations généralement rencontrées en périphérie des grandes agglomérations) :

- pour les faibles rapports de mélange en NO_x , (jusqu'à quelques dizaines de pptv), le régime est alors dit limité en NO_x et la vitesse de production d'ozone augmente proportionnellement au contenu en oxydes d'azote ;
- au contraire, le second régime, dit saturé en NO_x (de plusieurs dizaines de pptv à plusieurs ppbv), voit la production d'ozone diminuer lorsque le contenu en NO_x augmente.

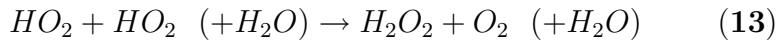
Le mécanisme d'oxydation radicalaire précédemment décrit aboutit à une vitesse de production d'ozone augmentant avec la concentration en NO_x pour les milieux modérément riches en oxydes d'azote (régime limité en NO_x). Dans ce cas de figure, les radicaux hydroxyles OH évoluent alors majoritairement vers la formation des radicaux peroxyliques RO_2 . Néanmoins, l'oxydation des COV par OH (réactions **5** à **9**) est en compétition avec la terminaison radicalaire de formation de l'acide nitrique HNO_3 (réaction **10**). Lorsque, en regard des concentrations en COV, le milieu devient très riche en NO_x , l'effet des terminaisons radicalaires, dont le piégeage de OH par la formation de HNO_3 , devient prépondérant et la vitesse de production d'ozone décroît.

Ces différents régimes chimiques expliquent que contrairement aux autres polluants primaires (NO_x), les plus fortes concentrations d'ozone troposphérique ne sont pas observées à proximité immédiate des sources d'émissions des polluants (*i.e.* en régime saturé en NO_x), mais plus loin dans le panache des grandes agglomérations et des sites industriels (*i.e.* en régime limité en NO_x). Ainsi, la production d'ozone troposphérique possède une très forte non-linéarité de ce terme source en fonction des concentrations respectives des oxydes d'azote et des COV. Tout comme pour la chimie stratosphérique, il existe également des espèces réservoirs pour les oxydes d'azote dans la troposphère et qui modulent la production d'ozone troposphérique. Avec l'acide nitrique, le réservoir le plus important est le peroxy-acétyl-nitrate (*PAN*).

Enfin, dans les milieux très pauvres en oxydes d'azote (quelques dizaines de pptv au maximum), l'évolution des radicaux peroxyyles (RO_2) est alors dominée par les réactions :



et :



L'ozone et le dioxyde d'azote (NO_2) sont alors consommés par leur photolyse respective et ne sont donc plus régénérés par le mécanisme de l'oxydation radicalaire.

Autre que sa photodissociation, un puits important pour l'ozone et d'autres constituants minoritaires, réside dans le phénomène de dépôt sec. Il s'agit d'un mécanisme selon lequel, en l'absence de précipitation, les polluants, gazeux ou sous forme d'aérosols, sont transportés depuis l'atmosphère vers la surface et la végétation, où ils sont absorbés. Les principaux facteurs qui le gouvernent sont le degré de turbulence atmosphérique, les propriétés chimiques de l'espèce considérée et la nature des sols et de la végétation. Le dépôt sec peut jouer un rôle important en surface. Il représente environ 30% du puits pour l'ozone troposphérique, 12% pour le monoxyde de carbone et 5% pour le méthane. De plus, il présente un profil diurne très marqué. Il est très variable en intensité suivant la solubilité des espèces et les réactivités particulières avec la végétation (Michou (2005)).

Il existe également un autre type de dépôt, dit "humide". Il se réfère au processus par lequel une espèce est entraînée au sol par les hydrométéores (gouttelettes de brouillard et de nuages, pluies, neiges). Pour une espèce chimique, ce processus est d'autant plus important que sa solubilité est grande, comme par exemple pour l'acide nitrique (HNO_3) qui participe au processus d'acidification des précipitations comme indiqué précédemment.

Très schématiquement, la perturbation chimique résultante de l'émission d'un polluant dans la troposphère peut se décomposer selon les 3 phases suivantes :

- émission du polluant : le milieu se charge en oxydes d'azote et en composés organiques volatils (pollution primaire), le radical hydroxyle OH est principalement consommé par la formation de l'acide nitrique HNO_3 (terminaison radicalaire) ;
- dans le panache du polluant advecté par la circulation : l'oxydation radicalaire des COV devient importante et la production d'ozone effective (pollution secondaire) ;
- en atmosphère peu polluée : ozone et oxydes d'azote sont déposés au sol ou alors mélangés dans toute la couche limite par la diffusion turbulente (fin de l'épisode de pollution).

1.3 Les observations

1.3.1 Les réseaux

Le suivi de la composition chimique de l'atmosphère à grande échelle remonte au XIX^{ème} siècle, avec par exemple, les mesures d'ozone troposphérique effectuées au pic du Midi et à Paris-Montsouris depuis respectivement 1874 et 1876. D'autres composés, comme le dioxyde de carbone, sont également l'objet de mesures courant XX^{ème} siècle (en France toujours, le Laboratoire d'Hygiène de la Ville de Paris mesure le gaz carbonique depuis longtemps) mais ce n'est qu'à partir de 1957 (année géophysique internationale) que la surveillance globale de la composition chimique de l'atmosphère se structure sous

l’impulsion notamment des Nations Unies et de l’OMM.

Ce programme se nomme aujourd’hui **GAW** (pour Global Atmospheric Watch ou VAG pour l’acronyme français : Veille Atmosphérique Globale). Il est complété à l’échelle de l’Europe par **EMEP** et au niveau français **MERA** et un rapprochement entre ces réseaux est d’ailleurs en cours. Ils sont dédiés essentiellement aux problématiques de changement climatique et portent sur le suivi de l’ozone, des gaz à effet de serre, des polluants acides, des radiations solaires et du rayonnement ultra-violet ainsi que des aérosols et de l’épaisseur optique. Ce suivi s’entend à long-terme et s’effectue à partir de site de surface les plus isolés possibles de sources d’émissions anthropiques.

Le réseau **NDSC** (Network for the Detection of Stratospheric Change) vise les mêmes objectifs (i.e. le suivi à long-terme des polluants d’intérêt climatique) en faisant appel à un spectre d’instrument plus large comprenant notamment des lidars et des spectromètres visant les gaz-traces, tandis que le réseau **AERONET** est dédié aux aérosols et à l’épaisseur optique.

Le programme européen **MOZAIC** (Measurements of OZone and water vapour by in-service AIrbus airCraft) Marenco et al. (1998) , initié en 1993 est opérationnel depuis 1994 et s’est achevé en 2006. La base de données MOZAIC provient initialement de l’équipement par des sondes ozone et vapeur d’eau de 5 avions de ligne long-courrier (A340-300). Il permet de constituer une base de données en altitude au niveau de croisière des vols situés à une dizaine de kilomètres du sol mais également de profils verticaux aux aéroports de départ et d’arrivée (essentiellement Paris, Bruxelles, Francfort et Vienne pour l’Europe). La couverture spatiale est globale, mais la densité des mesures est forte surtout au niveau du couloir Atlantique nord. Une seconde phase (à partir de 2000) correspond aux mesures additionnelles de monoxyde de carbone (CO) et des oxydes d’azote (NO_y) (Nedelec et al. (2003)). Les caractéristiques techniques des mesures sont données tableau 1.1. Son prolongement s’intitule IAGOS ¹ (Integration of routine Aircraft measurements into a Global Observing System) et vise à augmenter la flotte d’avions équipés ainsi que d’étudier la transmission en temps quasi-réel des données collectées.

	O ₃ ozone	CO monoxyde de carbone	NO _y Composés azotés
Méthode de mesure	Absorption ultra-violet	Absorption Infra-rouge améliorée : dérives liées à T, P et H ₂ O. corrigées	réduction catalytique puis chimiluminescence
Limite de détection	2 ppb		50 ppt
Précisions	± [2 ppb + 2 %]		< 10 %

TABLEAU 1.1 – Méthodes de mesures et incertitudes (quand spécifiées) des mesures d’ozone, de monoxyde de carbone et de composés azotés effectuées par les avions du programme MOZAIC

Des dispositifs de surveillance de la composition chimique de l’atmosphère concernant des échelles spatio-temporelles plus fines, notamment relatifs à la qualité de l’air, ont été parallèlement développés dans chacun des pays; on retiendra les institutions qui centralisent les données utilisées dans ce travail : l’ADEME (Agence De l’Environnement

¹<http://www.fz-juelich.de/icg/icg-ii/iagos>

et de la Maîtrise de l'Energie) en France, l'UBA (Agence fédérale de l'environnement) en Allemagne, le LML en Hollande, l'ARPA en Italie, le NAQIA² (National Air Quality Information Archive) au Royaume-Uni, l'UBA (Agence fédérale de l'environnement) en Autriche et la BUWAL (Agence fédérale de l'Environnement, des Transports, de l'Energie et de la Communication) en Suisse. Le paragraphe suivant détaille le cas particulier de la France avec son réseau national d'Associations Agréées de Surveillance de la Qualité de l'air, la **fédération ATMO**.

Le réseau français : la fédération ATMO

Au niveau européen, des directives émergent dans les années 80 pour un certain nombre de polluants pour lesquels sont définies des valeurs guides assorties d'un temps d'exposition. Ces directives concernent tout d'abord le dioxyde de soufre et les particules en suspension en 1980, le plomb en 1982 puis le dioxyde d'azote en 1985. La directive suivante de 1992 concernant l'ozone a un impact important en Europe. En effet, plus novatrice et opérationnelle que ces prédecesseurs, elle implique la création d'un réseau de surveillance et d'une procédure d'information et d'alerte à la population. L'obligation d'action est également renforcée : en cas de risque de dépassement, les états membres doivent établir des plans d'action indiquant les mesures à prendre à court terme afin d'en réduire le risque et d'en limiter la durée. La déclinaison française de cette directive européenne est la **Loi sur l'Air et l'Utilisation Rationnelle de l'Energie**, la LAURE, votée le 30 décembre 1996.

La mise en oeuvre de cette loi est confiée par les pouvoirs publics à des Associations Agréées de Surveillance de la Qualité de l'Air (AASQA), régie par la loi 1901. Certaines AASQA sont agréées pour exercer leur mission à l'échelle d'une zone industrielle (comme AIRFOBEP pour le site de Fos-Berre en région PACA), d'autres à l'échelle d'une agglomération (comme AIRNORMAND pour le Havre ou ASCOPARG pour Grenoble) ou à celle d'une région. Ces différences s'expliquent par des raisons historiques : avant la LAURE, comme indiqué en début de paragraphe, la surveillance de l'air était surtout axée sur les problématiques industrielles et urbaines. Aussi, l'agrément des associations de surveillance nouvellement mises en place s'est fait en agrégeant les structures déjà existantes tout en déployant la surveillance vers d'autres zones non encore documentées, notamment les zones rurales. Depuis, une nouvelle directive "cadre" européenne, datant de 1996, a étendu la gamme des polluants réglementés dans l'air ambiant (CO, benzène, HAP, Ni, Cd, As et Hg), a imposé la révision des seuils en vigueur et rendu obligatoire la surveillance de l'air sur les agglomérations de plus de 250 000 habitants entraînant donc au niveau français des obligations supplémentaires pour les AASQA voire la création de certaines d'entre elles (cf les dates de création des différentes AASQA reportées en annexe A).

Celles-ci, regroupées au sein de la fédération ATMO³, sont chargées de surveiller la qualité de l'air, d'informer les autorités et les citoyens, de comprendre et prévoir les épisodes de pollution et enfin d'évaluer l'impact des mesures de réduction des émissions. Elles sont au nombre de 42 (5 en outre-mer dont 1 réseau uniquement "associé" : SCAL'AIR de Nouvelle-Calédonie) et couvre aujourd'hui l'ensemble du territoire (voir figure 1.1).

²<http://www.airquality.co.uk>

³<http://www.atmo-france.org>

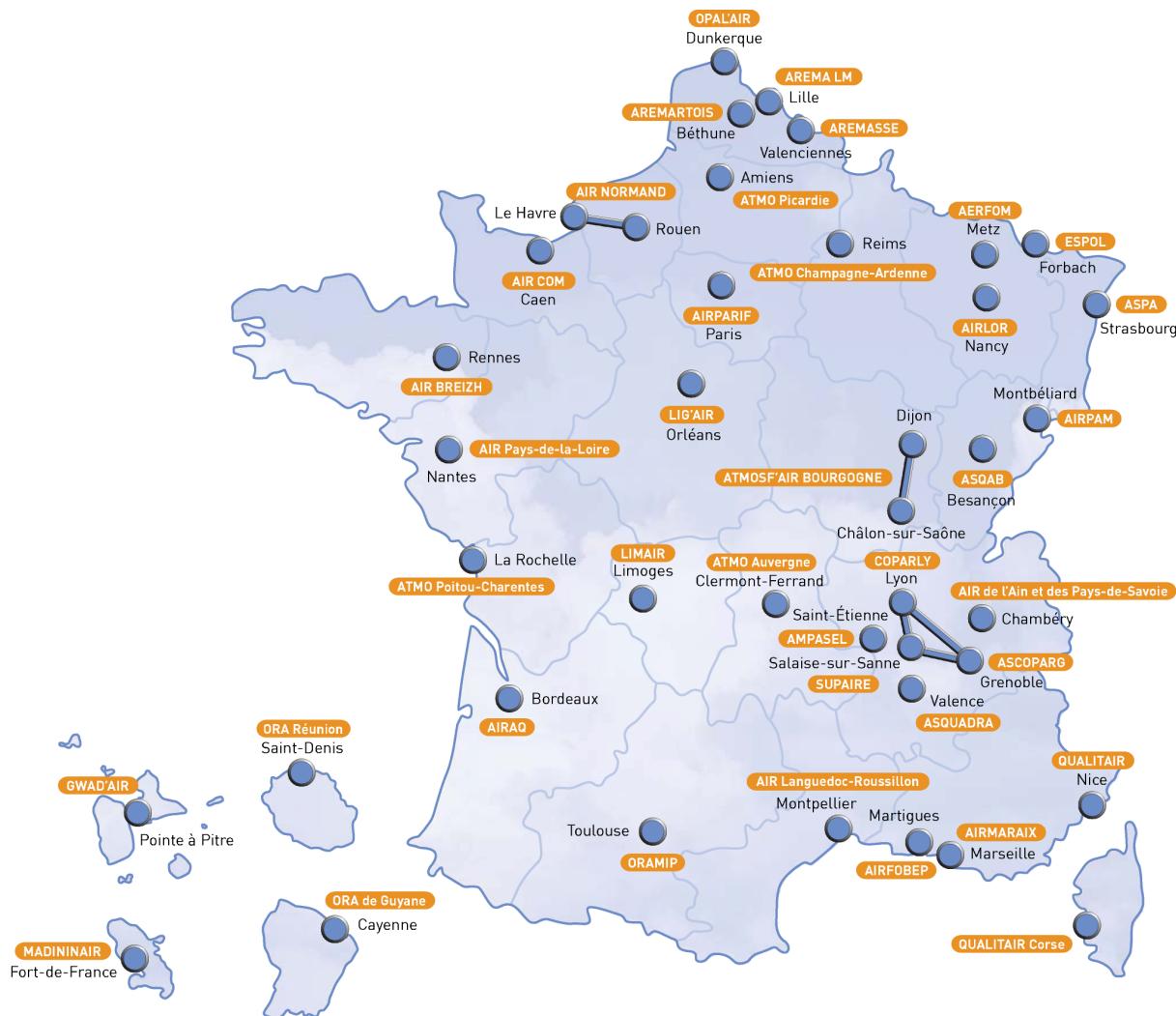


FIGURE 1.1 – Localisation des AASQA de la fédération ATMO.

La surveillance de l'air ambiant fait appel à plusieurs moyens complémentaires : les mesures ainsi que la modélisation à la fois statistique et/ou déterministe.

Les mesures sont issues de 3 origines différentes : les stations automatiques de mesures fixes des polluants réglementés (voir leurs caractéristiques techniques tableau 1.2 et leur répartition géographique figure 1.2), les analyseurs spécifiques et les prélevements dépouillés en laboratoire pour le suivi d'autres espèces (métaux, COV, HNO₃, HAP, etc), les laboratoires mobiles pour des campagnes ponctuelles. Une procédure d'étalonnage trimestrielle, mise en place en collaboration avec le Laboratoire Central de Surveillance de la Qualité de l'Air (LCSQA), assure la qualité des mesures des principaux polluants surveillés par analyse automatique (dioxyde de soufre, ozone, oxydes d'azote). D'autre part, pour ces mêmes polluants, ont été évaluées les incertitudes de l'ensemble de la chaîne de mesure, dues au prélèvement, aux divers raccordements de la ligne de mesure, à la linéarité de la réponse de l'instrument, à la reproductibilité de la mesure ainsi qu'aux traitements informatiques, à l'acquisition et aux arrondis. Les résultats sont présentés figure 1.3 : l'incertitude élargie (c'est à dire à un niveau de confiance de 95 %) est tracée en fonction de la concentration du polluant. En pourcentage, elle n'exède pas les 10 % pour l'ozone, les oxydes d'azote et le

souffre pourvu que les concentrations mesurées soit suffisamment fortes (environ $50 \mu\text{g.m}^{-3}$) ; pour les concentrations les plus faibles, les erreurs sont beaucoup plus importantes, notamment dues aux problèmes liés aux raccordements dans les chaînes de prélèvement. La modélisation, elle, se décline à plusieurs niveaux : (1) au niveau national au sein de la plate-forme PREV'AIR de prévision et de cartographie de la qualité de l'air mise en oeuvre par l'INERIS (2) au niveau régional, avec la mise en commun de moyens techniques et humains sur plusieurs AASQA (par exemple, le système ESMERALDA regroupant 6 AASQA du Nord et du Centre de la France ou le système AIRES des 3 AASQA de la région PACA) (3) au niveau local par des systèmes de modélisation propres (notamment des versions de CHIMERE locales), ou par une réappropriation statistique et cartographique des prévisions nationales.

Composé	Nombre	Méthode de mesure	Normes
O_3	461	Absorption UV	NF X 43-064
SO_2	419	Fluorescence UV	NF X 43-062
NO_x	512	Chimiluminescence et réduction catalytique	NF X 43-061
Particules PM10	320	Pesage	EN 12341
Particules PM2,5	51	(microbalance à quartz)	prEN 14907
CO	109	Absorption IR	NF X 43-065
Benzène	28		prEN 14662

TABLEAU 1.2 – *Parc analytique des AASQA françaises pour les polluants réglementés : nombre d'appareils, méthodes de mesure et normes appliquées. Source : BDQA 2005.*

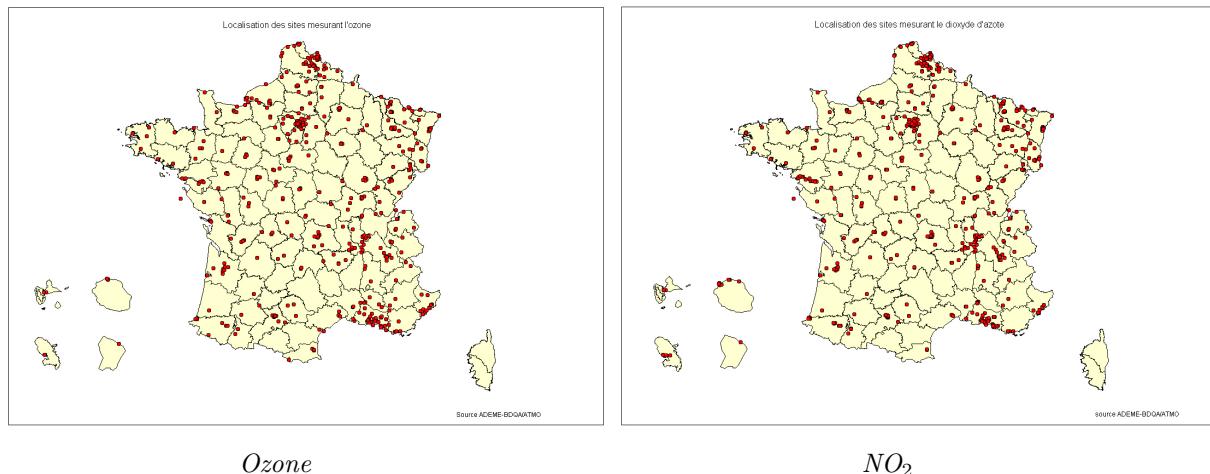


FIGURE 1.2 – *Répartition géographique des sites fixes de mesure d'ozone (à droite) et d'oxydes d'azote (à gauche) des AASQA. Source : A. Maitre, BDQA/ATMO 2005.*

1.3.2 Les campagnes

Les réseaux permanents mesurant la composition de l'atmosphère répondent à des objectifs qui leur sont propres. Si l'on se focalise sur la qualité de l'air, la demande sociétale implique la surveillance de l'exposition des populations à certains polluants réglementés.

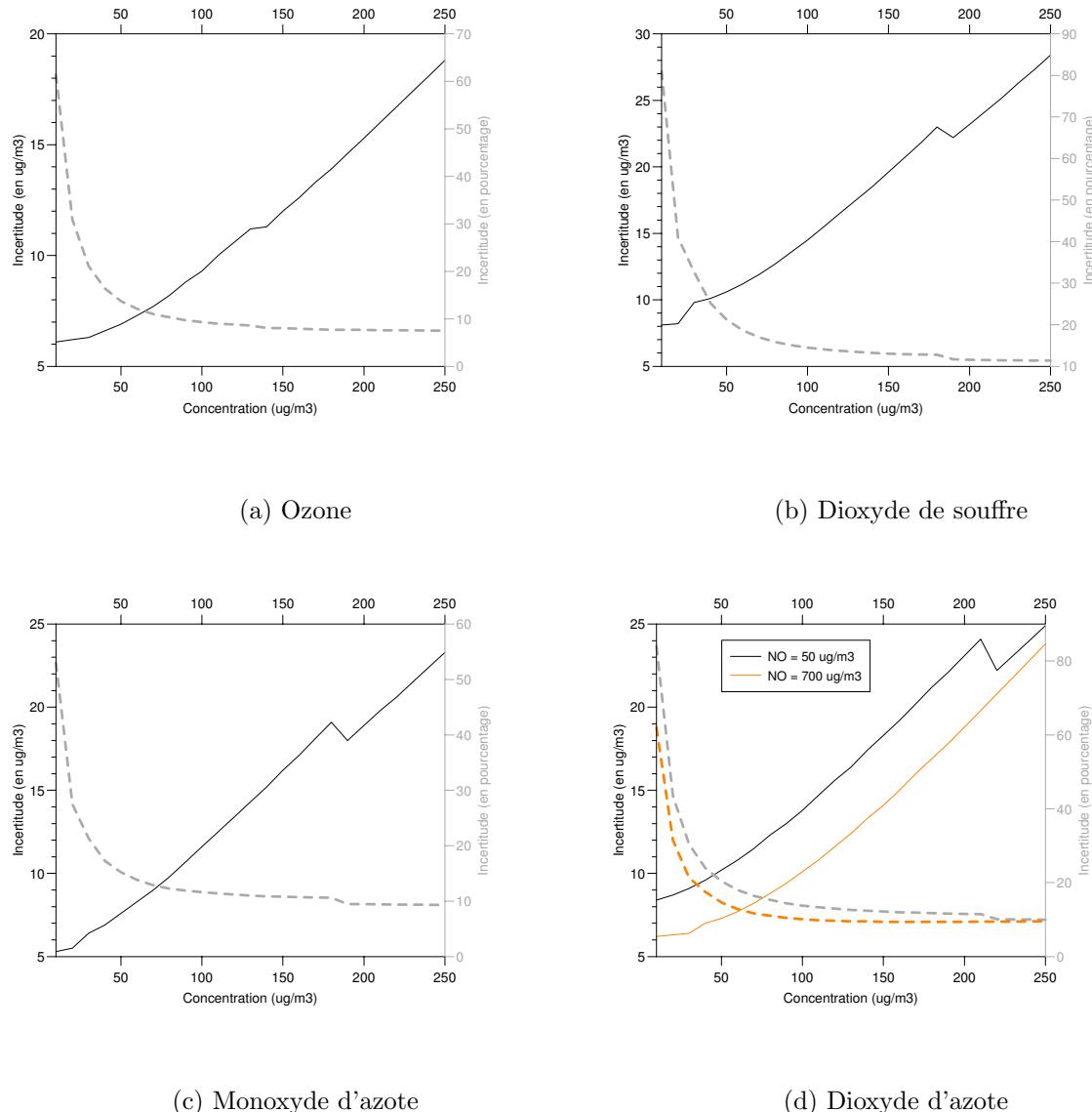


FIGURE 1.3 – *Incertitudes élargies (niveau de confiance de 95 %) de quatre des polluants mesurés en routine par les AASQA : l'ozone (O_3) le dioxyde de soufre (SO_2), les oxydes d'azote (NO et NO_2 dont l'incertitude dépend de la concentration en NO par principe même de la mesure voir 1.2). Source : abaque en ligne d'AIRPARIF sur la qualité des mesures des polluants gazeux. <http://www.airparif.asso.fr/pages/resultats/incertitudes>*

Elle va donc piloter à la fois l'implantation des sites et le choix des polluants mesurés. La compréhension des processus physico-chimiques ainsi que la validation des modèles (sans même mentionner la recherche instrumentale) ne suivent pas forcément les mêmes stratégies expérimentales concernant d'une part les constituants mesurés (par exemple mesures de radicaux) mais aussi les zones documentées (zones peu ou pas habitées, données en altitude). Cette niche, complémentaire aux réseaux permanents, correspond aux **campagnes de mesures**. De nombreux moyens instrumentaux sont alors concentrés temporairement sur une région pour répondre à une problématique bien précise : le nombre et la richesse des informations collectées sont très souvent inversement proportionnels à la durée de la période documentée en raison du coût financier et humain de telles opérations (e.g. revue de Solomon et al. (2000) des principales campagnes relatives à l'ozone troposphérique de la décennie 1990-2000).

De nombreux programmes ont notamment été dédiés à la documentation et l'étude d'épisodes pollués à proximité de grandes conurbations et à la compréhension des processus photochimiques associés. Ils s'appuient sur des stratégies relativement similaires alliant modélisation et campagnes de terrain qui documentent à la fois la surface et la verticale de l'atmosphère (mesures aéroportées, radiosondées, radiométriques, ...). Ces mesures sont de plus en plus précises et concernent de plus en plus de constituants (e.g. radicaux, composition chimique des particules). Enfin, ces programmes portent tous un intérêt particulier à la validation voire à l'élaboration de cadastre d'émissions dans les zones étudiées. Ce dernier point justifiait à lui seul la multiplication des lieux de campagnes de mesure qui produisent, par ailleurs, des résultats relativement similaires :(1) réaffirmation du caractère multi-échelles de l'ozone troposphérique sur l'horizontale (2) impact des couches supérieures de l'atmosphère sur l'ozone en surface (3) importance des sources biogéniques de NO_x et de COV (4) diagnostic des inventaires d'émissions ainsi que leur prise en compte efficace dans les modèles comme l'une des composantes les plus sensible de la modélisation numérique de la qualité de l'air (5) effet d'accumulation lié aux recirculations des masses d'air de zones d'émissions, recirculations dues, par exemple, à l'orographie (zones montagneuses, brises de pentes et effet de cuvette) ou à la présence d'eau (brise de mer ou de lac) (6) difficulté de mettre en place à l'échelle locale des mesures claires de réduction d'émissions à cause de la grande variation des régimes chimiques (NO_x ou COV limités) selon la distance aux sources et les conditions météorologiques.

Citons Los Angeles (Ulrickson and Mass (1990)), Mexico City (MARI, IMP and LANL (1994)), Nashville et Atlanta (SOS, Meagher et al. (1998)), Vancouver (LFVOS, Steyn et al. (1997)), Houston (TexAQS 2000, Daum (2002), Hansel et al. (2002)) pour le continent américain et Athènes (MEDCAPHOT-TRACE, Ziomas (1998)), Berlin (BERLIOZ, Volz-Thomas et al. (2003)), Milan (PIPAPPO, Neftel (1999)), Paris (ESQUIF, Vautard et al. (2003)) ou Marseille (ESCOMPTE, Cros et al. (2003)) en Europe.

Dans ce manuscrit, nous utiliserons notamment les données d'ESQUIF (voir chapitre 2) et d'ESCOMPTE (voir chapitre 3).

1.4 La modélisation numérique de la pollution photo-chimique

Tout comme en météorologie, la modélisation numérique est aujourd’hui un outil important de la recherche et des applications de la physico-chimie de l’atmosphère.

Un modèle numérique atmosphérique est une représentation mathématique d’un ensemble de processus dynamiques, physiques, chimiques et radiatifs de l’atmosphère, dépendants du temps et de l’espace (voir paragraphe 1.4.3). Ces processus, plus ou moins bien connus et compris, sont représentés soit par des formulations physiques issues de théories auxquelles des hypothèses simplificatrices peuvent être appliquées (e.g. hypothèse de quasi-géostrophisme en météorologie dynamique) soit par des relations empiriques déduites de mesures.

La résolution, généralement approchée, de ce problème déterministe aux dérivées partielles s’effectue à l’aide de moyens de calculs adaptés et en évolution constante.

La première finalité de la modélisation numérique est de permettre d’intégrer l’ensemble des connaissances sur un sujet et de l’évaluer par la confrontation des résultats de simulations numériques avec la réalité observée.

La seconde est d’utiliser les modèles construits et évalués à des fins de prévisions à échéances plus ou moins lointaines : de la prévision immédiate en cas d’accident industriel aux prévisions concernant le changement climatique (c’est à dire de l’ordre de la décennie au siècle) en passant par la prévision à quelques jours d’échéance pour la qualité de l’air. La troisième est de développer des outils utilisables par les décideurs afin de mettre en place des solutions aux problèmes de pollution (politique de gestion et de réduction des émissions notamment).

1.4.1 Historique

L’histoire de la modélisation numérique de la pollution photochimique est étroitement liée avec celle de la modélisation numérique de l’atmosphère jusqu’à s’y fondre dans les dernières générations de modèles couplés dit ”on-line” où chimie et météorologie sont traitées simultanément avec rétroactions de l’une à l’autre.

Elle en partage à la fois les **repères chronologiques** avec les travaux théoriques pionniers de Bjerknes (1904) et Richardson (1922) et les premières simulations dans les années 1950 Charney et al. (1950), les **contraintes** (notamment la puissance des moyens de calculs) mais aussi **certains objectifs** (e.g. prévisions à plus ou moins longue échéance, étude du changement climatique par le biais de la prescription des concentrations en gaz à effet de serre et en aérosols, problématique de l’assimilation).

Les premiers modèles furent des modèles de boîtes destinés à mieux comprendre la formation du ”smog” photochimique (e.g. modèle EKMA, Dodge (1977)) et leur extensions au suivi de masses d’air lagrangiennes (e.g. Wayne et al. (1973)). La masse d’air d’une région y est traitée comme une boîte de hauteur variable dans laquelle les polluants sont émis et subissent des réactions chimiques. Un panel assez complet d’équations chimiques y est utilisé, mais il y a peu ou pas de transport (en général, uniquement le transport dans et hors de la boîte par les processus météorologiques et la dilution sont pris en compte). Les modèles lagrangiens reprennent ce concept mais traitent comme autant de

boîtes interconnectées des colonnes d'air dont ils permettent de suivre conjointement le déplacement et la modification de la composition chimique.

Des années 1950 à 1970, les puissances de calcul évoluant, les modèles de qualité de l'air ont été étendus aux 3 dimensions géographiques avec une représentation en point de grille (modèles eulériens et semi-lagrangiens) et traitent le transport, le dépôt, les émissions et la chimie gazeuse. Initialement, cette approche s'est focalisée sur la modélisation de la pollution photochimique urbaine à l'instar du premier CTM : Urban Airshed Model (UAM), dédié à l'étude de la pollution à Los Angeles (Reynolds et al. (1973)). Les données météorologiques d'entrée utilisées furent tout d'abord des observations puis progressivement des champs météorologiques numériques prévus ou analysés.

Depuis les années 1970, les problèmes de pollution atmosphérique autres que la pollution urbaine émergent et modifient de fait la formulation et la conception des modèles parmi lesquels on peut citer : la prise de conscience du **caractère régional de la pollution photochimique** ainsi que le phénomène des **pluies acides** qui soutend l'existence de la pollution transfrontière et transcontinentale (ce qui a eu pour effet d'accroître l'extension horizontale des modèles jusqu'alors essentiellement urbains) ou encore la question de l'augmentation des concentrations en **gaz à effet de serre** et notamment des niveaux de fond globaux d'ozone (instaurant donc la nécessité de traiter les couplages entre dynamique, chimie et rayonnement : modèles dits "on-line") ainsi que le phénomène du **trou d'ozone stratosphérique** dans les années 80 avec des modèles bi puis tri-dimensionnels traitant la basse stratosphère (impliquant une extension verticale des modèles).

Les résolutions et la complexité de ces modèles (voir section suivante) sont extrêmement variables et dépendent non seulement des applications envisagées mais également de la puissance de calcul disponible à la date considérée : par exemple, actuellement, la résolution horizontale des CTM peut aller de quelques kilomètres pour les simulations régionales de la qualité de l'air à la centaine de kilomètres pour les problématiques plus globales.

Pendant toutes ces années, les modèles n'ont traité que la phase gazeuse. Vers la fin des années 80, l'augmentation de la puissance de calcul et des bases de données sur les propriétés physiques et chimiques des particules et leurs interactions avec la phase gazeuse ont rendu possible la prise en compte des aérosols dans les modèles chimiques (Pilinis and Seinfeld (1988)).

Parallèlement au développement de ces modèles de chimie-transport, à partir des années 1990, des travaux portent sur les interactions et les rétroactions entre la dynamique turbulente et la chimie à des échelles sub-kilométriques par le biais de modèles de chimie on-line à méso-échelle (e.g. Yamartino et al. (1992)) et de modèles Large Eddy Simulation (LES) incluant des réactions chimiques : très peu à l'origine (une !) comme dans Schumann (1989) se complexifiant par la suite jusqu'à des mécanismes complets de photochimie troposphérique (Auger (2006)).

Enfin, les méthodes d'assimilation de données initialement développées en dynamique de l'atmosphère (voir le sous-chapitre 1.5) sont appliquées depuis le milieu des années 1990 dans le domaine de la pollution chimique. L'assimilation de données satellitaires de gaz trace dans les modèles de chimie stratosphérique utilise de nombreuses méthodes (e.g. Fisher and Lary (1995) pour la première assimilation variationnelle en chimie) ; concer-

nant la chimie troposphérique, les observations assimilées ont été tout d'abord in-situ (par exemple Elbern and Schmidt (2000) puis progressivement satellitaires : colonnes totales puis troposphériques de NO_x ou CO notamment (e.g. Clerbaux et al. (2001), Konovalov et al. (2004), Pradier et al. (2006)).

1.4.2 Qu'est ce qu'un modèle déterministe ?

Cette section très courte rappelle les principales caractéristiques d'un modèle déterministe de simulations numérique de la composition chimique de l'atmosphère :

- définition de l'objectif visé par le système modélisation mis en place
- détermination des échelles spatiales et temporelles d'intérêt

Elles conditionneront, entre autres, les méthodes et les données utilisées pour la validation du modèle.

- choix des dimensions (0, 1, 2 ou 3-D) et, le cas échéant de l'extension spatiale du domaine de modélisation sur l'horizontale (aire limitée, global) et sur la verticale (CL, troposphère, stratosphère)
- sélection des processus physico-chimiques à prendre en compte afin d'atteindre l'objectif défini au premier point.

Ils constituent à proprement parler le cœur du modèle et sont détaillés dans le paragraphe suivant (paragraphe 1.4.3)

- sélection des variables diagnostiques du modèle
- définition du pas de temps et de la méthode d'intégration
- définition des conditions initiales (qui conditionnent en partie la période de spin-up)
- choix des conditions aux limites
- choix des données d'entrée

e.g. cadastre d'émissions ; données de cinétique chimique ; météorologie si le modèle est off-line.

- le cas échéant, les fréquences de couplage avec les données d'entrée qui le nécessitent (comme les données d'émissions ou de dynamique).

1.4.3 Processus physico-chimiques

Les processus physico-chimiques susceptibles d'avoir un effet sur la composition chimique de l'atmosphère sont nombreux. La figure 1.4 (extraite de Delmas et al. (2005)) les explicite et schématisé leurs interactions. Ils y sont répartis en 4 classes principales, qui interagissent toutes fortement avec les paramètres météorologiques (qui peuvent être issus d'observations, d'archives ou de prévisions de modèles météorologiques) :

- **l'injection des polluants dans l'atmosphère**

Les émissions sont la source atmosphérique d'espèces chimiques (pas d'apport de l'exosphère). Elles sont à la fois naturelles (végétation, animaux, feux de biomasse, éclairs, activités telluriques et volcaniques, ...) et anthropiques (industries, agriculture, véhicules, chauffage, ...). Les injections se font à la fois au sol et en altitude aussi bien pour les émissions naturelles que d'origine humaine (e.g. panaches volcaniques dans la haute atmosphère et émissions dues à l'aviation).

La quantification temporelle et spatiale de ces sources constitue un champ de recherche à part entière.

Leur description dans les modèles peut être figée ou dépendre des conditions environnementales. Par exemple, la température et le rayonnement solaire influent sur les émissions de COV par la végétation ; le vent en surface sur les émissions de poussières désertiques ; la température sur les émissions dues au chauffage domestique (NO_x , CO)

• le transport et la dispersion des polluants dans l'atmosphère

Les concentrations évoluent partiellement par processus de transport et de mélange à la fois sur l'horizontale et la verticale à différentes échelles : de l'échelle synoptique (advection) à la micro-échelle (turbulence) en passant par la méso-échelle (convection par exemple).

Selon la résolution spatiale et temporelle du modèle, le forçage météorologique choisi ainsi que le couplage utilisé entre chimie et dynamique, certains des processus seront explicitement traités (pour les échelles résolues), paramétrisés (pour les phénomènes sous-maille jugés d'importance) ou tout simplement ignorés.

• les transformations physiques et chimiques des polluants

Les polluants sont soumis à des photolyses et à des réactions chimiques en phase homogène ou hétérogène et dépendant elles aussi des conditions environnementales (notamment température et précipitation). Les aérosols subissent en sus les processus microphysiques de nucléation, condensation et coagulation.

Les nombres de constituants et de réactions mis en jeu sont hors de portée des moyens de calculs actuels, rendant obligatoire la simplification de la représentation de cette partie dans les modèles par le biais de "schémas chimiques". En général, ces derniers sont dédiés à un paramètre d'intérêt, comme le soufre, l'ozone troposphérique ou encore l'ozone stratosphérique. Ils ne considèrent alors que le cycle de cette espèce principale et définissent alors le type de polluants considérés (gaz et/ou particules), les espèces et les regroupements d'espèces pris en compte ainsi que les réactions nécessaires.

• le retrait des polluants de l'atmosphère

Enfin, les puits d'espèces chimiques et de particules interviennent à la fois dans la colonne atmosphérique (lessivage dans et sous les nuages pour les particules et les gaz solubles) et à la surface (dépôt sec).

Réciproquement, la composition chimique de l'atmosphère en gaz et particules va influer sur la dynamique notamment à travers l'équation de transfert radiatif et la modification du cycle hydrologique.

Le choix des processus pris en compte et le choix de leur représentation dépend ensuite de la définition de l'objectif du modèle déterministe considéré, de la compréhension et la connaissance de l'état de l'art sur le sujet ainsi que des contraintes techniques et matérielles associées à la réalisation de l'objectif. Répondre à ces 3 critères permet d'expliquer la diversité très importante de modèles numériques disponibles dans la littérature traitant, de façon générique, de la "composition chimique de l'atmosphère".

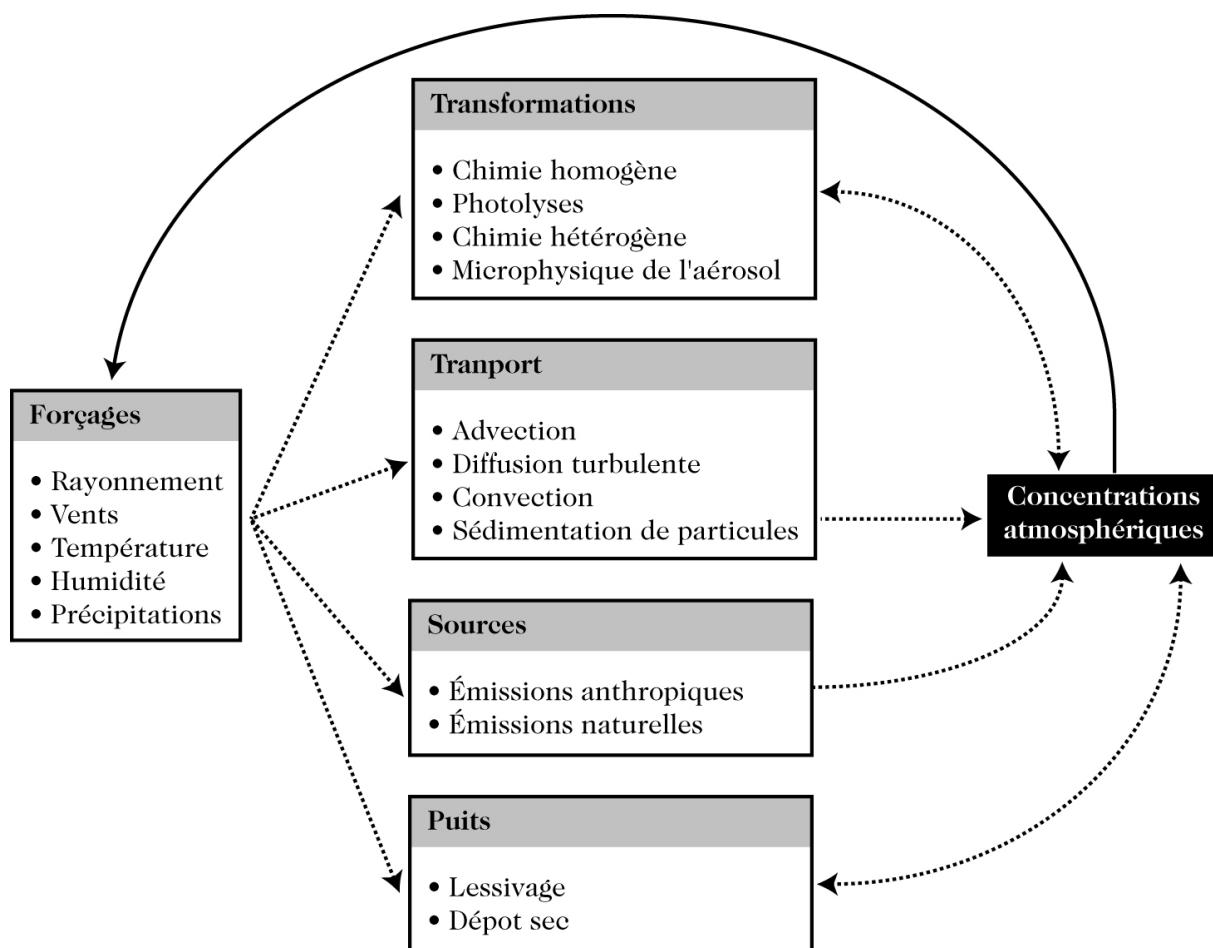


FIGURE 1.4 – Principaux processus physico-chimiques mis en jeu pour la modélisation numérique de la composition chimique de l'atmosphère. Source : chapitre 12, Delmas et al. (2005).

1.4.4 Présentation du modèle utilisé dans cette étude : le modèle MOCAGE de Météo-France

La modélisation de la chimie de l'atmosphère est une activité de longue date à Météo-France, abordée historiquement dans l'optique de la modélisation du climat.

Le premier modèle, MOBIDIC (Cariolle (1982)), stratosphérique et zonal (bidimensionnel), a été notamment utilisé pour mettre au point une paramétrisation simplifiée de la photochimie de l'ozone pour les modèles de climat (Cariolle and Déqué (1986)). L'évolution des moyens de calcul a permis d'étendre la modélisation à trois dimensions : le modèle REPROBUS (Lefèvre et al. (1994)), développé en collaboration avec le NCAR (National Centre for Atmospheric Research, USA), est utilisé au CNRM depuis 1991 pour étudier la composition chimique de la basse stratosphère et son interaction avec le climat avec un focus particulier sur les perturbations de l'ozone stratosphérique des régions polaires. Le besoin d'une prise en compte explicite de la troposphère, à la fois en terme de réservoir potentiel de gaz à effet de serre mais aussi en raison des émissions qui y sont injectées, a conduit à la définition du projet MOCAGE, initié fin 1998 (Peuch et al. (1999)), qui peut donc être vu comme l'extension de REPROBUS à la troposphère.

Les principales applications de MOCAGE sont les suivantes :

- l'étude des interactions entre la chimie et le climat
- la prévision déterministe opérationnelle de la qualité de l'air et la fourniture de conditions aux limites pour des modèles à aire limitée
- l'assimilation de données de mesures chimiques in-situ et télédéTECTées.

Le projet prend donc le parti de traiter dans un seul et même code unifié des échelles spatio-temporelles très différentes, répondant à ces différentes problématiques. D'autres équipes de recherche ont également fait ce choix : e.g. un consortium de 7 universités et laboratoire canadiens développe MAQNet⁴ (Multiscale Air Quality Modelling Network) qui inclut des modules chimiques au modèle global météorologique opérationnel canadien GEM (Global Environmental Multiscale model) ainsi qu'au modèle méso-échelle à aire limitée MC2 (Mesoscale Compressible Community). Le modèle intégré correspondant, GEM-AQ/MC2-AQ, vise des échelles locales aux globales (Kaminski et al. (2002)) à la fois en modélisation et en assimilation. Il est aussi utilisé à la fois en mode recherche et en opérationnel délivrant des prévisions quotidiennes à 48 heures d'échéance.

L'approche alternative étant de construire, pour chaque objectif, un outil différent. C'est, par exemple, le choix de l'IPSL qui développe le modèle stratosphérique et global LMDZ-INCA axé sur le changement climatique et le modèle troposphérique à aire limitée CHIMERE pour les aspects de qualité de l'air, de l'échelle continentale (version PREV'AIR) à la méso-échelle (plateforme ESMERALDA⁵ à 2km de résolution sur le Nord et le Centre de la France ou plateforme AIRES⁶ à 3km de résolution en région PACA) .

Description du modèle MOCAGE

Il s'agit d'un modèle global tri-dimensionnel en point de grille traitant la troposphère et la basse stratosphère. Il est possible de considérer simultanément plusieurs niveaux de grilles imbriquées à double sens ; la définition de ces différents domaines est flexible, une dizaine de configurations existe à ce jour. Les résolutions, l'extension et le nombre de niveaux sur la verticale sont dépendantes de la configuration utilisée tout comme les

⁴<http://www.maqnet.ca>

⁵<http://www.esmeralda-web.fr>

⁶<http://www.gse-promote.org> Rubrique Air Quality

résolutions horizontales des différents domaines. Les principales caractéristiques de quelques configurations de MOCAGE sont présentées dans le tableau 1.3 et sur la figure 1.5.

L'intégration numérique se fait par séparation des opérateurs, l'ensemble des paramétrisations étant appelé séquentiellement dans un ordre alterné. Plus précisément, le transport se fait toutes les heures ; les émissions et le dépôt toutes les 1/2 heure ; les pas de temps chimiques, eux, varient avec l'altitude (pas de temps plus faibles pour la chimie stratosphérique) et le schéma chimique considéré (de quelques secondes avec un schéma troposphérique complet à 15 minutes en ne considérant que la stratosphère).

Le solveur chimique est un algorithme semi-implicite, adapté à partir de celui qui était employé dans REPROBUS.

Le transport

MOCAGE est un CTM "offline" et utilise des champs météorologiques archivés à l'issue des séquences d'analyse-prévision de modèles de prévisions numériques du temps ou de simulations de modèles de climat. Actuellement, des configurations existent pour les analyses et les prévisions des modèles opérationnels français ARPEGE (Action de Recherche Petite Echelle Grande Echelle) et ALADIN (Aire Limitée, Adaptation dynamique, Développement International), pour les prévisions d'ARPEGE/CLIMAT qui est la version climatique d'ARPEGE ainsi que les analyses et prévisions du CEPMMT.

MOCAGE utilise alors les champs de vent horizontal, température, pression et humidité de ces modèles. Ensuite, il recalcule la vitesse verticale du vent (pour s'assurer de la non-divergence et ainsi conserver la masse des constituants chimiques), l'humidité de la stratosphère (puisque ce paramètre météorologique est également un paramètre chimique clé à ces altitudes) et la nébulosité.

L'advection se fait au moyen d'un schéma semi-lagrangien basé sur celui de Williamson and Rash (1989). La convection et la diffusion turbulente ne sont pas résolus explicitement. Les processus convectifs sont assurés par deux schémas possibles : Tiedtke (1981) ou Bechtold et al. (2001). La diffusion turbulente est paramétrée à l'aide du schéma de Louis (1979). Ces schémas sont détaillés et évalués dans Josse et al. (2004a) et Josse (2004b).

Emissions et dépôts

Les échanges en surface sont traités de façon externalisée. Ils sont présentés de façon détaillée dans la thèse de Michou (2005). Les émissions peuvent être prescrites ou ignorées (cas des simulations purement stratosphériques utilisant REPROBUS). Plusieurs cadastres sont par ailleurs disponibles à différentes échelles spatiales et temporelles (du total annuel à la précision horaire). Une paramétrisation des émissions globales biogéniques des COVNM est notamment disponible : elle est basée sur ECOCLIMAP (jeu de données, nécessaires aux schémas sol-végétation-atmosphère, à 1 km de résolution sur le globe) et permet de prendre en compte les conditions environnementales (température de surface et rayonnement). Le dépôt sec des espèces utilise la représentation dite big-leaf, basée sur les travaux de Wesely (1989). Le dépôt humide (ou lessivage) est paramétré pour les nuages stratiformes et convectifs (Giorgi and Chameides (1986) et Mari et al. (2000)).

La chimie

La chimie gazeuse

MOCAGE peut considérer différents schémas chimiques. Du fait de la représentation

explicite de la troposphère et de la stratosphère, le code de chimie stratosphérique REPROBUS a été fusionné avec plusieurs codes de chimie troposphérique : RACM Stockwell et al. (1997), SAPRC99 Carter (1999) ou RELACS Crassier et al. (2000) pour les schémas les plus couramment utilisés. L'aggrégation entre les chimies stratosphérique et troposphérique des schémas précédemment cités est obtenue grâce à un pré-processeur qui permet l'écriture automatique du code chimique à partir d'une liste de paramètres comprenant principalement les espèces chimiques ainsi que les réactions dans lesquelles elles sont impliquées. Les vitesses de réactions sont consignées dans une base de données de référence, basées sur les recommandations internationales disponibles (JPL). Comme le niveau le plus élevé de MOCAGE dans la version opérationnelle se situe vers une quarantaine de kilomètres d'altitude dans l'atmosphère standard et que les distributions d'espèces chimiques présentent un gradient vertical non négligeable dans la stratosphère, une climatologie dépendant de la latitude et du mois de l'année est imposée au-dessus du niveau le plus haut du modèle. Cette climatologie est issue d'une simulation pluri-annuelle menée avec le schéma REPROBUS couplé au modèle ARPEGE/CLIMAT qui s'étend jusqu'à la mésosphère WMO (1998). Elle permet notamment de forcer les valeurs des flux subsidents, principalement à l'intérieur du tourbillon polaire (circulation de Brewer-Dobson).

Les distributions initiales tri-dimensionnelles troposphériques des simulations sont prescrites de façon homogène sur le globe par des valeurs caractéristiques d'un environnement moyennement pollué ou issue de climatologie du modèle MOCAGE lui-même (validation en cours, implantation prévue pour la version opérationnelle 2007).

Les aérosols

Un module de Black Carbon a été implanté ; les résultats et l'évaluation des simulations à l'échelle globale sont décrits dans Nho-Kim et al. (2003) ainsi que Martet and Peuch (2006). Le dépôt sec des particules, basé sur Slinn (1982) est explicité dans Nho-Kim et al. (2004).

Le traitement des poussières désertiques est également implémenté Martet (2004). Il utilise le module d'arrachement de Marticorena and Bergametti (1995) pour les déserts d'Afrique et d'Asie (Amérique du Sud en préparation).

Quant aux aérosols organiques, ils sont paramétrés selon le modèle ORILAM (Tulet et al. (2005)). La paramétrisation ne permet pas encore l'interaction complète des phases solide et gazeuse (représentée par le schéma RACMOBUS) : en effet, seule la prise en compte des constituants gazeux pour l'évolution des aérosols est disponible.

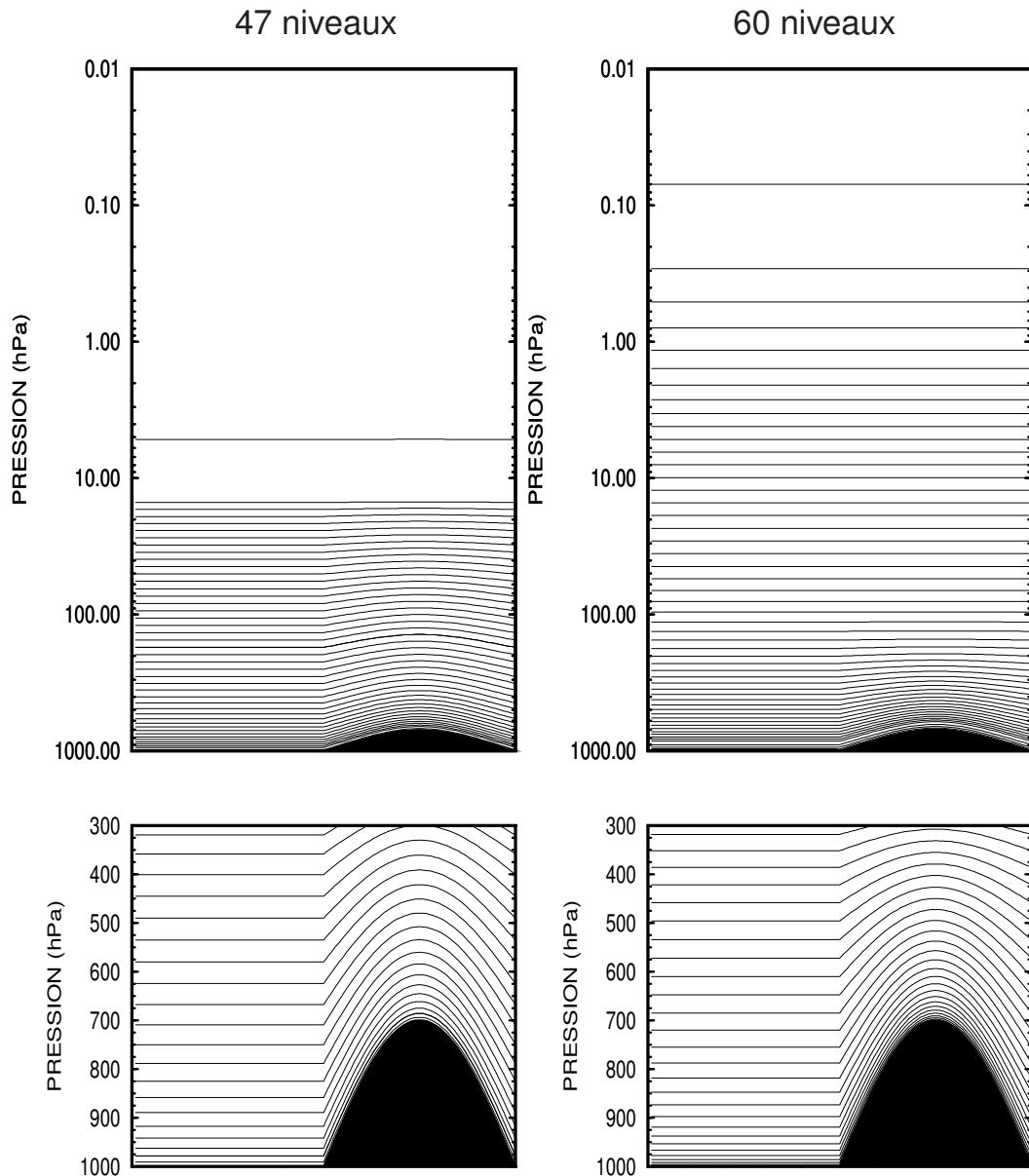


FIGURE 1.5 – Distribution des niveaux verticaux dans le modèle MOCAGE dans ses versions à 47 et 60 niveaux. Dans la troposphère, le modèle utilise des niveaux hybrides qui tendent et deviennent isobares dans la stratosphère et la mésosphère. En haut : totalité du domaine vertical (du sol à 0,01 hPa) en coordonnée $\text{Log}(\text{Pression})$. En bas : zoom sur la troposphère en coordonnée verticale linéaire en Pression. Source : Teyssèdre (2003)

Version	OPER2006	GEMS	CLIMAT
Domaine horizontal	global ($4^\circ \times 4^\circ$) Europe ($0,5^\circ \times 0,5^\circ$) France ($0,1^\circ \times 0,1^\circ$)	global ($2^\circ \times 2^\circ$) Europe ($0,2^\circ \times 0,2^\circ$)	global (T42, T64, T106)
Domaine vertical	surface à 5hPa (47 niveaux)	surface à 1hPa (60 niveaux)	
Thermodynamique	prévisions ARPEGE/ALADDIN	analyses CEPMMT	analyses CEPMMT prévisions ARPEGE/Climat
Transport		Semi-lagrangien	
Convection		Bechtold	
Emissions en surface	IPCC (globe) EMEP99	RETRO (globe) TNO (perspective)	IGAC/GEIA et RIVM/EDGAR
Chimie	RACMOBUS (RACM+REPROBUS) ORILAM	RELACS (RELACS + REPROBUS)	

TABLEAU 1.3 – Principales caractéristiques de différentes versions de MOCAGE : version qualité de l'air opérationnelle en 2006 (OPER2006), version GEMS, version Climat

1.5 L'assimilation de données chimiques

L'assimilation de données est un volet important du projet MOCAGE. Les travaux dans ce domaine concernent plutôt l'échelle globale, mais nous présenterons au chapitre 5 l'application d'une méthode d'interpolation optimale afin de cartographier les concentrations d'ozone à l'échelle régionale en surface d'après Blond et al. (2003).

L'objectif des méthodes d'assimilation de données est de combiner de façon optimale les simulations d'un modèle numérique avec un ensemble d'observations. Le résultat en est l'estimation la plus juste possible de la valeur d'une variable sur l'ensemble du domaine de simulation en accord avec les observations disponibles, ces deux sources d'informations complémentaires étant entachées d'erreurs propres.

Diverses techniques d'assimilation de données sont utilisées pour la prévision météorologique depuis de nombreuses années (Bergthorsson and Döös (1955)) et plus récemment appliquées au domaine de la chimie atmosphérique (e.g. Lary et al. (1995), Elbern and Schmidt (2000)). Les mesures de constituants in situ et télédéTECTés sont de plus en plus nombreuses et il faut noter l'apparition récente de produits satellites troposphériques comme les colonnes troposphériques de NO_2 des instruments GOME et SCHIAMACHY ou des profils de CO par MOPITT Pradier et al. (2006). Aussi, de nombreux projets affichent un volet assimilation de données chimiques ambitieux (GEMS notamment en Europe). Un bénéfice important en est attendu pour la prévision chimique à toutes les échelles spatiales à la fois directement et indirectement (par modélisation inverse pour améliorer les inventaires d'émissions par exemple). Notons que la problématique est différente d'en météorologie : d'une part, la prévision du temps chimique ne semble pas chaotique (Honoré (2000)) et d'autre part, elle est conditionnée certes par les conditions 3D initiales des polluants mais également par les flux d'émissions.

Il existe plusieurs méthodes d'assimilation de données, globalement basées sur la même théorie et se distinguant par leur complexité et leur coût numérique. Historiquement, les méthodes d'assimilations se sont développées parallèlement aux modèles de prévision météorologique : l'assimilation séquentielle s'est construite vers 1950 avec les analyses de Cressman et les corrections successives puis l'Interpolation Optimale, le filtre de Kalman et le 3D-var qui a conduit ensuite au 4D-var. L'assimilation séquentielle consiste, à un instant donné, à ajuster une ou plusieurs variables du modèle par rapport à un jeu d'observation que l'on considère à ce même instant donné. En revanche, dans l'assimilation non-séquentielle, l'information contenue dans les observations est utilisée simultanément sur toute une fenêtre temporelle, c'est à dire que l'analyse est produite à un instant donné en tenant compte d'observations à la fois antérieures *et* postérieures à cet instant.

Notations.

Nous essaierons dans la mesure du possible de suivre les notations préconisées dans Ide et al. (1997).

Soit un modèle de n points de grille.

On notera x^b le vecteur de dimension n représentant l'ébauche du modèle au temps t (b pour background en anglais), x^t le vecteur de dimension n également représentant au même instant l'état vrai de l'atmosphère (t pour true), et x^a l'état du modèle après assimilation.

On note l'erreur de l'ébauche :

$$\zeta^b = x^b - x^t$$

Soit le vecteur colonne des observations y^o , de taille p , avec en général, $p \ll n$. Comme les points de mesure ne correspondent pas forcément avec les points de grille, on définit la matrice H , appelée opérateur d'observation, de taille (n, k) , permettant d'obtenir les équivalents modèles aux mesures. On introduit alors le vecteur des erreurs d'observations :

$$\epsilon = y^o - Hx^t$$

Analyse de Cressman et corrections successives ou *nudging*

Les premières méthodes ont utilisé la technique des corrections successives :Bergthorsson and Döös (1955) et Cressman (1959). Cette technique corrige le champ du modèle aux points de grille pour lesquels sont disponibles des observations contenues dans un certain rayon d'influence défini empiriquement, noté R_{infl} , à partir de laquelle les observations n'ont plus de poids.

L'analyse au point de grille i est donc la somme de l'ébauche et d'une combinaison linéaire des différentes observations disponibles pondérées par un coefficient, $w(i, j)$, dépendant de la distance entre le point de grille i et chaque observation j (d_{ij}) ainsi que des variances d'erreur des observations et du modèle (respectivement noté σ_o et σ_M).

$$x^a(i) = x^b(i) + \frac{\sum_{j=1}^p w(i, j)[y^o(j) - Hx^b(j)]}{\sum_{j=1}^p w(i, j) + \frac{\sigma_o^2}{\sigma_M^2}}$$

avec $w(i, j) = \max(0, \frac{R_{infl}^2 - d_{i,j}^2}{R_{infl}^2 + d_{i,j}^2})$

Dans l'optique d'une simulation repartant d'analyse, cette méthode peut induire localement des modifications non physiques du ou des champs, ce qui peut déstabiliser le modèle et faire perdre très rapidement le bénéfice de l'assimilation par remise à l'équilibre de la situation, ce qui renvoie alors à l'ébauche.

Historiquement, c'est la première méthode d'assimilation de donnée à avoir été appliquée à MOCAGE. Conçue pour assimiler les données de la base MOZAIC et améliorer la vision de l'UTLS, la méthode originale de Cathala et al. (2003) s'articule autour de l'utilisation d'un système de coordonnées θ - Pression afin d'imprimer les incrémentations des observations dans les structures dynamiques du modèle plutôt que localement. Les champs assimilés gardent alors plus durablement le rappel aux observations que dans la méthode initiale. Ces champs plus réalistes ont été utilisés pour évaluer les flux d'ozone au niveau de la tropopause (Clark et al. (Submitted 2006)).

Interpolation Optimale, filtre de Kalman

Le principe de ces méthodes est de prendre en compte les propriétés statistiques des champs des variables assimilées ainsi que des diverses observations disponibles. L'algorithme peut mettre en jeu une seule grandeur (on parle alors de méthode *univariée*) ou plusieurs (méthode *multivariée*).

On cherche une solution sous la forme :

$$x^a = x^b + K(y^o - Hx^b)$$

où K, appelée matrice de gain, minimise la variance d'erreur d'estimation.

Apparaissent dans son expression les matrices de covariances des erreurs du modèle (resp. des observations) notée B (resp. R) .

$$B = E(\zeta^b \zeta^{bT}) \quad \text{et} \quad R = E(\epsilon \epsilon^T)$$

La particularité du filtre de Kalman est de propager dans le temps la matrice B des covariances d'erreurs.

Pradier et al. (2006) utilise un filtre de Kalman pour assimiler les profils de CO MOPITT à l'échelle globale et nous avons utilisé une méthode d'Interpolation Optimale pour assimiler les données du réseau de surface des AASQA à l'échelle régionale (cf chapitre 5).

Formulation variationnelle du 3D- et 4D-Var

On parle d'assimilation variationnelle lorsque l'on considère le problème de l'analyse non plus comme la minimisation de la variance de l'erreur d'analyse en supposant les matrices de covariance d'erreur connues mais comme l'état le plus probable obtenu en minimisant une fonction coût J (c'est à dire l'écart entre le modèle et les observations) à la fois par rapport à l'état initial et/ou à des paramètres du modèle, et ce, sans calcul direct des covariances d'erreurs.

$$J(x) = J^b(x) + J^o(x) + J^c(x) = \frac{1}{2}(x - x^b)^T B^{-1}(x - x^b) + \frac{1}{2}(Hx - y^o)^T R^{-1}(Hx - y^o) + J^c(x)$$

Cette fonction coût se décompose en trois fonctions coût partielles : J^b est relative à l'écart de l'analyse par rapport à la situation initiale, J^o est relative à l'écart de l'analyse par rapport aux observations et enfin, J^c est optionnelle et correspond à la prise en compte de lois physiques ou de contraintes permettant de pénaliser des analyses non compatibles avec elles.

Aussi, les termes J^b et J^c assure la cohérence de l'analyse avec la formulation et les contraintes physiques du modèle.

Le 4D-var est une extention temporelle du 3D-var pour laquelle l'optimisation de la fonction J est réalisée en intégrant les observations non plus simultanément à un instant t , mais sur une fenêtre temporelle, appelée "fenêtre d'assimilation".

Couplé avec le logiciel d'assimilation PALM (Projet d'Assimilation par Logiciel Multi méthode, CERFACS), MOCAGE a à sa disposition des outils de cet ordre, 4D-var et 3d-Fgat notamment (Massart et al. (2005)).

Chapitre 2

La campagne ESQUIF

Sommaire

2.1	Présentation du projet ESQUIF	27
2.2	Le dispositif	28
2.2.1	Les mesures aéroportées	29
2.2.2	Les mesures in-situ	30
2.3	Premières simulations de MOCAGE version qualité de l'air	33
2.3.1	Configuration du modèle utilisé pour cette étude	33
2.3.2	Bilan et performances sur les POI 5 à 8	34
2.3.3	Structure à la verticale de Paris (POI5)	39
2.3.4	Episode photochimique intense (POI6)	44
2.3.5	Pollution transfrontière (POI7)	51
2.3.6	Prise en compte de la nébulosité (POI8)	55
2.3.7	Conclusions	61

Cette partie présente les résultats des premières simulations du modèle MOCAGE en version "qualité de l'air" effectuées en 2001. Aussi, les résultats présentés ici correspondent à une version historique du modèle, qui était alors très proche de la version utilisée pour effectuer les simulations globales climatiques. Ils représentent néanmoins une étape importante dans le développement du modèle et dans la thèse. Cette étude avait notamment permis d'orienter les évolutions des versions suivantes (voir §2.3.7) notamment grâce à l'exercice d'intercomparaison dans le cadre du projet ESQUIF avec les modèles AZUR (Jaecker-Voirol et al. (1998)), Chimère (Vautard et al. (2001)) et Méso-NH-Chimie (Lafore et al. (1998), Tulet et al. (2003)).

2.1 Présentation du projet ESQUIF

Le projet de recherche ESQUIF, élaboré conjointement par l'IPSL, le LISA, Météo-France et le LA, a regroupé plusieurs équipes françaises et étrangères à la fois d'observation

et de modélisation durant trois ans, de 1998 à 2000. Il a été coordonné par R. Vautard (IPSL). Les principaux résultats sont décrits dans Vautard et al. (2003). L'objet de ce projet était la pollution atmosphérique régionale en s'appuyant sur le cas spécifique de la région parisienne avec 2 objectifs principaux :

- améliorer la compréhension des processus dynamiques et chimiques conduisant aux épisodes de pollution en Ile-de-France en vue d'apporter des éléments de réponse aux principales questions environnementales qui se posent aujourd'hui pour améliorer la qualité de l'air dans cette région :
 - * importance relative de la production locale d'ozone et de précurseurs par l'agglomération parisienne par rapport à l'advection d'ozone d'origine régionale et continentale
 - * sensibilité des épisodes photochimiques aux émissions internes et externes à l'Ile-de-France
 - * prévisibilité des épisodes de pollution
- constituer une base de données tri-dimensionnelle complémentaire aux mesures opérationnelles de qualité de l'air et météorologiques à l'aide notamment de moyens aéroportés et de télédétection.

Ainsi, un ensemble représentatif des situations conduisant aux épisodes de pollution sur la région a été documenté de l'échelle locale à la méso-échelle à travers 12 Périodes d'Observations Intensive (POI) réalisées durant la phase expérimentale d'ESQUIF sur les été 1998, 1999 et 2000 et sur l'hiver 1999-2000. La base de données est en accès libre et hébergée par le pôle de compétence ETHER¹.

Le dispositif de la campagne et les principaux résultats de son exploitation sont décrits dans Menut et al. (2000). La méthodologie générale d'ESQUIF concernant le volet de modélisation numérique a consisté à développer et coupler l'ensemble des outils complémentaires déjà disponibles en France pour exploiter de façon optimale la base de données acquise. En effet, la gamme d'échelles visées par les objectifs s'étend depuis celle des processus urbains (turbulence, flux de chaleur au sein de la couche limite urbaine) jusqu'à l'échelle hémisphérique (flux de polluants trans-continentaux). Répondre à chacune de ces problématiques nécessite la mise en oeuvre de systèmes de modélisation éventuellement différents ainsi que la collaboration des différentes équipes (par exemple, fourniture de conditions aux limites chimiques et météorologiques de grande échelle MOCAGE/ARPEGE pour les simulations du système à aire limitée de méso-échelle Méso-NH-Chimie, Sarrat (2003)). La modélisation a également été utilisée en mode inverse pour contraindre les flux d'émissions et améliorer les cadastres de la région.

2.2 Le dispositif

Le dispositif expérimental de la campagne s'appuie principalement sur les réseaux de mesures opérationnels de la région : mesures des concentrations des polluants réglementaires sur les sites de l'AASQA AIRPARIF ainsi que les paramètres météorologiques du réseau d'observation de Météo-France (stations sol et radiosondages).

Les plus-values majeures de la campagne ESQUIF et de la base de données constituée résident dans :

¹<http://ether.ipsl.jussieu.fr>

- la représentativité spatiale, à la fois sur la verticale et l'horizontale par l'utilisation de moyens aéroportés et de télédétection (radar UHF, lidar à absorption différentielle)
- la mesure de paramètres non effectuée en routine, que ce soit des constituants chimiques (station MILEAGE documentant l'ensemble des espèces intervenant dans le cycle de l'ozone) ou des paramètres dynamiques (e.g. caractérisation des flux turbulents ou du rayonnement).

Nous détaillons dans les paragraphes suivants les mesures que nous avons utilisées dans ce chapitre.

2.2.1 Les mesures aéroportées

Lors des POI, cinq avions ont permis de fournir la distribution tri-dimensionnelle de l'ozone et ses précurseurs (essentiellement ozone, NO_x , CO et aérosols) de l'échelle locale à la méso-échelle : le Merlin-IV et le Piper-Aztec du CNRM/CAM, l'Aztec du LSCE, l'ARAT-Fokker 27 de l'INSU et le DIMONA du Metair.

Les avions volaient sur préavis de 48 heures et selon des plans de vols prédéfinis à différentes échelles présentés figure 2.1 :

- les vols "périphérique" avec des palliers à 350, 1000 et 1700 mètres circonscrivant Paris intra-muros
- les vols "agglomération" à l'altitude constante de 500 mètres permettant d'échantillonner à la fois les flux entrants et les panaches de l'ensemble de l'agglomération parisienne,
- les vols "profils" à la verticale (jusqu'à 1800 mètres) de 4 points cardinaux autour de Paris : Beauvais, Dreux, La-Ferté-Gaucher et Pithiviers, permettant de renseigner les flux advecés et la stratification des masses d'air sur l'Ile-de-France,
- les vols "méso-échelles" effectués sur un pallier de 1000 mètres afin de renseigner les conditions aux limites chimiques du domaine régional.

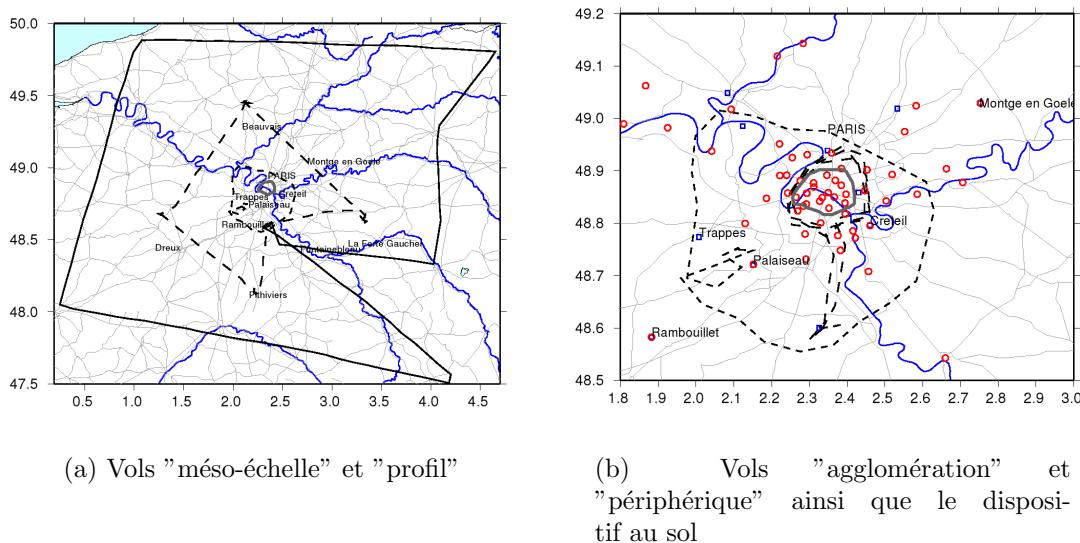


FIGURE 2.1 – *Trajectoires au sol des différents types de vol suivis par les avions durant les POI ESQUIF ainsi que l'implantation (à droite) des stations de mesure du réseau de surveillance de la qualité de l'air AIRPARIF (cercles rouges) ainsi que les stations de mesure météorologique de Météo-France (carrés bleus).*

Les caractéristiques de ces mesures aéroportées sont consignées dans le tableau 2.1.

2.2.2 Les mesures in-situ

L'AASQA francilienne AIRPARIF dispose d'un réseau dense de stations automatiques (environ 50 pour 130 instruments de mesures), réparties sur un rayon de 100 kilomètres autour de Paris (voir figure 2.1 à droite) et documentant à la fois les zones urbaines, péri-urbaines et rurales. La densité des sites de mesures donne une idée de la taille caractéristique des structures observables par ce réseau.

Les mesures quart-horaires d'ozone, de mono- et de di-oxydes d'azote ont été mises à disposition de la communauté scientifique. Les caractéristiques techniques des mesures et les incertitudes associées sont consignées dans le tableau 2.2.

Composé chimique	Technique de mesure	Limite de détection	Temps de réponse
MERLIN IV MIS EN OEUVRE PAR MÉTÉO-FRANCE			
O ₃	Absorption UV	2 ppb	7 s
NO	Chimiluminescence	100 ppt	30 s
NO _y	Chimiluminescence + Convertisseur Mo	150 ppt	30 s
CO	Gaz IR filter correlation	50 ppt	30 s
PIPER AZTEC MIS EN OEUVRE PAR MÉTÉO-FRANCE			
O ₃	Absorption UV	2 ppb	5 s
NO	Chimiluminescence	1 ppb	50 s
NO _y	Chimiluminescence + Convertisseur Mo	1 ppb	50 s
CO	Flacons en verre + CPG		
COVNM	Flacons en verre + CPG		
AZTEC MIS EN OEUVRE PAR LE CEA-LSCE			
O ₃	Absorption UV	2 ppb	7 s
CO	Correlation IR	75 ppb	30 s
CO	Flacons inox + CPG		
COVNM	Flacons inox + CPG		
ARAT-FOKKER 27 MIS EN OEUVRE PAR L'INSU			
O ₃	Absorption UV	1 ppb	1 s
NO	Chimiluminescence	20 ppt	30 s
NO ₂	Photolyse UV	20 ppt	30 s
NO _y	Convertisseur Au-CO	20 ppt	60 s
HNO ₃	Convertisseur Au-CO	20 ppt	60 s
PAN	Chromatographie gazeuse ECD	15 ppt	300 s
CO	Gaz IR filter correlation	50 ppt	30 s
COVNM	Chromatographie gazeuse embarquée		
DIMONA MIS EN OEUVRE PAR METAIR			
O ₃	Absorption UV	1 ppb	1 s
NO	Chimiluminescence + convertisseur CrO ₃	0,5 ppb	10 s
NO ₂	Chimiluminescence + convertisseur CrO ₃	0,5 ppb	10 s
NO _y	Chimiluminescence + convertisseur MO	0,5 ppb	10 s
HNO ₃	Chimiluminescence + convertisseur	0,5 ppb	10 s
PAN	Chimiluminescence + four	0,5 ppb	10 s
CO	Absorption IR		
COVNM	Chromatographie in-situ		

TABLEAU 2.1 – Caractéristiques techniques des analyseurs embarqués de la campagne ESQUIF. Source : rapport final ESQUIF (IPSL et al. (2001))
 CPG = Chromatographie en Phase Gazeuse ECD = Détecteur à Capture d'Electrons

	O_3 ozone	NO ou NO_x monoxyde ou oxydes d'azote	NO_2 dioxyde d'azote
Norme AFNOR	ISO 13-964	NF X 43-018	
Méthode de mesure	Absorption ultra-violet	Chimiluminescence	Chimiluminescence puis réduction catalytique
Concentrations		Incertitudes	
10 ppb	3.1	3.4	6.8
30 ppb	3.1	3.4	6.8
50 ppb	3.6	3.6	7.2
70 ppb	4.2	4.1	8.2
90 ppb	4.9	4.7	9.4
100 ppb	5.3	5.0	10.0
150 ppb	7.6	6.9	13.8
200 ppb	10.0	9.0	18.0
250 ppb	12.5	11.2	22.4

TABLEAU 2.2 – Méthodes de mesures et incertitudes (en ppb) des mesures d'ozone et d'oxydes d'azote effectuées par l'AASQA AIRPARIF en fonction de leur concentration (en ppb). Source : rapport final ESQUIF (IPSL et al. (2001)).

2.3 Premières simulations de MOCAGE version qualité de l'air

Après une brève description de la configuration du modèle utilisée (§2.3.1), un bilan des performances générales des simulations du modèle est dressé sur l'ensemble des 4 POI traitées (§2.3.2) afin d'évaluer le réalisme et la pertinence des simulations sur la région parisienne à l'aune de la base de données tri-dimensionnelles collectées durant la campagne. Les sous-paragraphes suivants (§2.3.3 à §2.3.6) s'attachent à étudier à travers les particularités de chacune des POI une composante du système de modélisation ou un aspect des simulations : la structure verticale de l'atmosphère pendant la POI5 qui était mal reproduite dans les simulations (§2.3.3) ; le POI6 documente un épisode photochimique particulièrement intense pour lequel a eu lieu une intercomparaison, il est donc intéressant de regarder comment le modèle reproduit cet épisode et comment il se comporte par rapport aux autres simulations (§2.3.4) ; au contraire, la POI7 est beaucoup moins polluée en région parisienne et l'on s'intéresse alors aux panaches exportés par la région parisienne et le Benelux (§2.3.5) ; la POI8, elle, nous a permis de valider sur un cas précis de cumulonimbus l'atténuation des taux de photolyse avec la nébulosité (§2.3.5). Enfin, le paragraphe 2.3.7 présente les conclusions générales de l'étude.

2.3.1 Configuration du modèle utilisé pour cette étude

La configuration du modèle est la version "standard 2001" pour les applications de qualité de l'air (voir §1.4.4). Pour les paramétrisations physiques et chimiques modulaires, les choix suivants sont adoptés :

transport convectif : paramétrisation Kain-Fritsch-Bechtold, Bechtold et al. (2001)

schéma chimique troposphérique : RACM, Stockwell et al. (1997)

extension verticale : 47 niveaux (du sol à 5 hPa) dont 7 décrivant la couche limite, 16 la troposphère libre et 24 la stratosphère.

La configuration géographique des 3 domaines imbriqués choisis est illustrée figure 2.2 et donnée tableau A.1 avec les cadastres d'émissions et les forçages météorologiques utilisés.

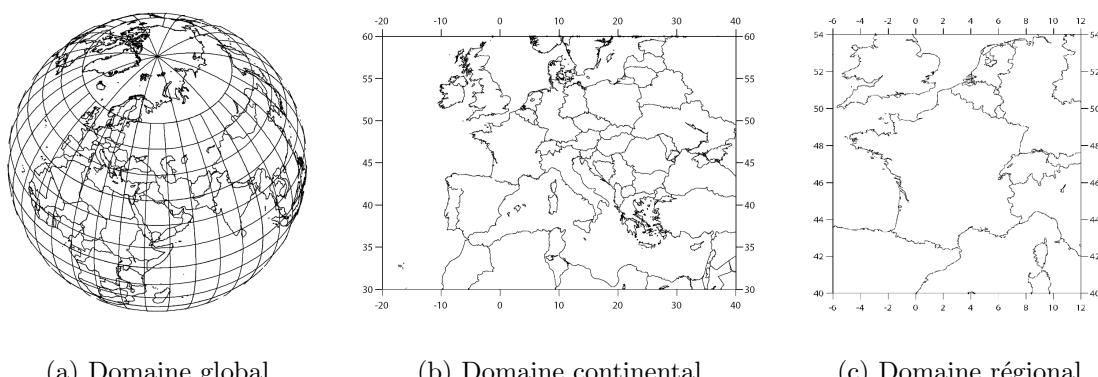


FIGURE 2.2 – Domaines géographiques de la version MOCAGE utilisée pour les simulations ESQUIF

Domaine	Globe	Europe	France
Résolution horizontale	$2^\circ \times 2^\circ$	$1^\circ \times 1^\circ$	$0,25^\circ \times 0,25^\circ$
Extension géographique	Globe entier	20 O- 40 E / 30 N- 60 N	6 O- 12 E / 40 N- 54 N
Nombre de points de grille	180 x 90	60 x 30	72 x 56
Forçage météorologique <i>Modèle</i>		ARPEGE Modèle global étiré spectral C3,5 T199 L41 Résolution kilométrique équivalente (min/max) : 19 / 235 km 3 heures	
Inventaires d'émissions <i>Résolution spatiale</i> <i>Résolution temporelle</i>		EDGAR et GEIA $1^\circ \times 1^\circ$ Mensuelle (totaux annuels basés sur les recommandations IPCC 1995)	

TABLEAU 2.3 – *Caractéristiques de la version de MOCAGE utilisée pour les simulations ESQUIF.*

2.3.2 Bilan et performances sur les POI 5 à 8

Courant juillet 1999, quatre POI ont été documentées : la 5^{eme}, du 1 au 2 juillet ; la 6^{eme}, du 16 au 18 juillet ; la 7^{eme}, du 24 au 25 juillet et la 8^{eme}, du 28 au 31 juillet.

Ce paragraphe présente les **résultats transverses à l'ensemble de ces POI**, en s'appuyant sur les mesures in-situ et aéroportées. Après quelques remarques de synthèse, nous distinguerons l'analyse par zones : rurale, péri-urbaine et urbaine.

Les résultats du modèle concernant les concentrations d'ozone sont satisfaisants tant au niveau des valeurs de fond à l'échelle régionale qu'en ce qui concerne le développement des panaches sous le vent des zones fortement urbanisées ou industrielles. L'intensité et la chronologie de tels phénomènes sont généralement en bon accord avec les observations (Cf tableau 2.4).

De plus, la répartition verticale des concentrations semble correcte aux niveaux étudiés au cours de ces travaux : essentiellement au sol, au sein de la couche limite et jusqu'à 230 hPa par le biais de la base MOZAIC.

En région parisienne, sur la base de ces 4 épisodes ESQUIF simulés avec MOCAGE, une première constatation est la très grande variabilité des performances du modèle selon la période étudiée, ainsi que la persistance locale des erreurs d'une journée à l'autre : en effet, l'ozone ayant une durée de vie troposphérique de l'ordre de quelques jours, les erreurs peuvent subsister sur cette échelle de temps.

Les biais les plus marquants sont engendrés par un mauvais positionnement du panache. Aussi, dans ces situations de pollution photochimique à l'ozone où le vent synoptique et la nébulosité sont faibles, le forçage météorologique apparaît comme le facteur limitant des simulations.

Concentrations simulées en zone urbaine

Il s'agit d'un domaine de modélisation pour lequel cette configuration du modèle n'était pas adapté. En effet, la résolution utilisée ($0.25^\circ \times 0.25^\circ$) est relativement grossière (l'agglomération intra-muros est englobée par 2 mailles) et, surtout, la résolution de l'inventaire d'émissions est bien trop lâche ($1^\circ \times 1^\circ$). L'objectif est ici moins l'évaluation de la version du modèle utilisée que d'illustrer les limites liées à un cadastre d'émissions inadapté.

	POI5	POI6	POI7	POI8
AIRPARIF				
Paris 6	0.90 <i>26.6</i>	0.44	0.53 <i>17.2</i>	0.74 <i>19.7</i>
Paris 7	0.88 <i>30.1</i>	0.54	0.54 <i>15.3</i>	0.74 <i>21.5</i>
Paris 13	0.90 <i>25.4</i>	0.53	0.64 <i>13.3</i>	0.71 <i>21.2</i>
Paris 18	0.89 <i>29.4</i>	0.51	0.58 <i>20.0</i>	0.71 <i>21.0</i>
Aubervilliers	0.90 <i>27.3</i>	0.39	0.60 <i>14.9</i>	0.71 <i>21.0</i>
Genevilliers	0.91 <i>27.6</i>	0.86 <i>15.6</i>	0.64 <i>14.1</i>	0.70 <i>20.7</i>
Mantes	0.86 <i>23.2</i>	0.75 <i>21.5</i>	0.51 <i>14.1</i>	0.70 <i>27.8</i>
Rurale E	0.65 <i>30.0</i>	0.65 <i>16.7</i>	0.38 <i>14.8</i>	0.40 <i>22.1</i>
Rurale NE	0.62 <i>21.7</i>	0.76 <i>17.0</i>	0.59 <i>12.0</i>	0.71 <i>22.5</i>
Rurale N O	0.91 <i>16.8</i>	0.56 <i>27.0</i>	0.53 <i>12.0</i>	0.67 <i>32.3</i>
Rurale O	0.77 <i>24.4</i>	0.86 <i>14.6</i>	0.66 <i>14.7</i>	0.70 <i>22.8</i>
Rurale SE	0.76 <i>17.8</i>	0.58 <i>24.6</i>	0.59 <i>12.0</i>	0.74 <i>16.3</i>
Rurale SO	0.71 <i>15.9</i>		0.72 <i>12.0</i>	0.82 <i>22.0</i>
ARAT				0.41 <i>18.6</i> <i>MD</i> 0.09 <i>16.4</i> <i>PM</i> 0.51 <i>19.7</i> <i>PM</i>
AZTEC	0.40 <i>26.9 AM</i> 0.35 <i>44.0 PM</i>	0.89 <i>16.6 PM</i> -0.4 <i>28.5 PM</i>		0.45 <i>21.9 AM</i> 0.64 <i>20.5 PM</i>
DIMONA	0.29 <i>26.0 AM</i> 0.71 <i>53.1 PM</i>	0.54 <i>38.5 PM</i> 0.03 <i>20.4 AM</i> 0.24 <i>30.9 PM</i> 0.47 <i>12.3 AM</i> 0.15 <i>38.5 PM</i>		
MERLIN	0.10 <i>12.1 PM</i>	0.31 <i>15.1 PM</i> -0.3 <i>20.2 AM</i>	0.50 <i>22.1 AM</i> 0.02 <i>14.1 PM</i>	

TABLEAU 2.4 – Valeur des corrélations et des EQM (en italique et exprimées en ppb) pour l'ensemble des POI du mois de juillet. Le paramètre considéré est l'ozone. Pour les stations sol, les valeurs correspondent à l'ensemble de la période ; pour les moyens aéroportés, chaque vol est traité individuellement, *AM* correspondant à un vol matinal, *MD* à un vol autour de midi et *PM* l'après-midi.

Le réseau de surveillance de la qualité de l'air AIRPARIF fournit les données pour quatre stations urbaines situées dans Paris intra-muros (6^{eme}, 7^{eme}, 13^{eme} et 18^{eme} arrondissement) ainsi que deux autres stations très proches : Aubervilliers et Gennevilliers. L'ensemble de ces 6 stations est compris dans une unique maille de MOCAGE pour la résolution la plus fine utilisée ici, à savoir 0.25°.

De façon systématique, la simulation surestime les pics d'ozone (d'environ 30 ppb) et les valeurs nocturnes. Ces deux biais sont à relier à la résolution spatiale des cadastres d'émissions utilisés pour cette étude : EDGAR et GEIA. En effet, ces deux inventaires ont une résolution de 1°x 1°. Or, la taille réelle de la zone de fortes émissions est plus beaucoup réduite et fortement hétérogène, d'où une dilution des concentrations dans la maille "urbaine" dans laquelle se trouve Paris : les concentrations des précurseurs de l'ozone (COV et NOx) dans les mailles de zones urbaines sont donc sous-estimées. Par conséquent, les simulations vont à la fois sous-estimer la titration nocturne de l'ozone par le monoxyde d'azote et surestimer les concentrations nocturnes d'ozone. Les concentrations pour la journée suivante partent donc dans la simulation avec un biais positif qui se conservera, même si la production locale d'ozone est correctement simulée. En outre, la titration peut se poursuivre en journée pour peu que les émissions soient suffisamment importantes, contribuant à consommer l'ozone et donc également à favoriser une surestimation des concentrations dans les simulations par rapport aux observations.

Par contre, d'un point de vue qualitatif, l'évolution relative des maxima sur les périodes considérées est reproduite ainsi que la variation temporelle, notamment la durée du pic ; en témoignent les bons scores en terme de corrélation obtenus pour les stations urbaines, mais avec de très fortes valeurs d'EQM (voir tableau 2.4).

Un raffinement du cadastre d'émissions à la fois temporel et spatial devrait améliorer sensiblement ces biais. Cet aspect a donc été un des axes importants des développements ultérieurs de MOCAGE.

Concentrations simulées en zone péri-urbaine et panaches

La zone péri-urbaine est caractérisée par le développement de panaches d'ozone sous le vent de Paris. Le suivi de ces panaches est documenté par deux moyens de mesure :

- les stations "rurales" d'AIRPARIF en surface. Elles sont au nombre de sept, situées à une trentaine de kilomètres maximum de l'agglomération, et couvrent l'ensemble des directions mais de façon non homogène : le nord-ouest est beaucoup plus documenté que les autres directions. Il est important de noter que, pour certaines de ces stations, les concentrations nocturnes de fond en ozone sont faibles voire très faibles (e.g. voir figure 2.6) dénotant de la proximité de sources d'émissions conséquentes : on parle alors de sites situés en zone "rurale polluée".
- les moyens aéroportés, notamment, les vols péri-urbains "périphériques" et "profils" de l'avion DIMONA et l'avion AZTEC de Météo-France effectués dans un rayon d'une vingtaine de kilomètres autour de Paris, et les vols "Île de France", effectués par le Fokker ARAT jusqu'à une cinquantaine de kilomètres de Paris.

La présence ou non d'un panache d'ozone sur la région parisienne est une donnée correctement simulée par MOCAGE ; l'intensité maximale rencontrée également. Par contre, la localisation du panache n'est pas toujours bien reproduite. En effet, les situations météorologiques favorables à l'apparition de tels phénomènes sont caractérisées par un fort ensoleillement d'une part, mais surtout par des conditions de vents synoptiques faibles, de l'ordre de quelques mètres par secondes. Or, pour cette gamme de vitesse, le modèle

forceur ARPEGE devient imprécis pour la direction. Aussi, des erreurs sur la direction sont commises, traduites par une répartition spatiale erronée des maxima, même si le comportement chimique du modèle semble réaliste (voir par exemple le panache simulé sur la figure 2.17).

Enfin, l'impact de la nébulosité d'une façon générale est peu importante dans ces cas de fort ensoleillement. Néanmoins, localement, son impact au sol sur les concentrations d'ozone peut atteindre jusqu'à un facteur 6. En effet, au vu de la saison (été), des nuages convectifs se développent. Leur extension sur l'horizontale est de plusieurs mailles ($\pm 0.25^\circ$) et ils atteignent la tropopause, bloquant toutes réactions photochimiques dans les basses couches.

Concentrations simulées en zone rurale

Durant la campagne, l'appareil MERLIN était dédié aux vols "méso-échelle", effectués à une distance de 150 kilomètres de Paris afin de documenter les concentrations de fond de la région ainsi que de fournir une validation du transport de polluants à l'échelle régionale.

Les concentrations de fond sont simulées à ± 20 ppb près par le modèle, et la présence de panaches d'origine parisienne ou transfrontière (pays de l'Europe du NE ou Royaume-Uni) est correctement perçue dans les simulations. Par contre, les concentrations dans ces panaches sont sur-estimées et présentent une extension horizontale trop marquée. Une fois de plus, la résolution de l'inventaire d'émissions est incriminée : la dilution des composés primaires conduit à une production nette d'ozone plus élevée en moyenne sur la journée comme montré récemment dans Wild and Prather (2006) (et références citées) ou dans Milford et al. (1994). La figure 2.3, issue de cette publication, montre les résultats de simulations simplifiées (sans prise en compte de mélange vertical et de dépôt) : les flèches pointillées représentent la production nette d'ozone entre 9 et 17 heures en fonction de différentes concentrations initiales en COV et en NO_x mais à rapport COV/NO_x constant (donc exactement la dilution évoquée plus haut). La flèche la plus en haut à droite (représentant la situation où la dilution des émissions est la moins forte) conduira aux concentrations d'ozone les moins élevées. A noter que la production d'ozone en fonction de la dilution passe par un maximum : une dilution trop importante des émissions finira tout de même par repénaliser la production d'ozone (flèche la plus en bas à gauche), mais il s'agit de conditions correspondant à des masses d'air très "propres" que l'on ne trouve pas sur l'Europe continentale.

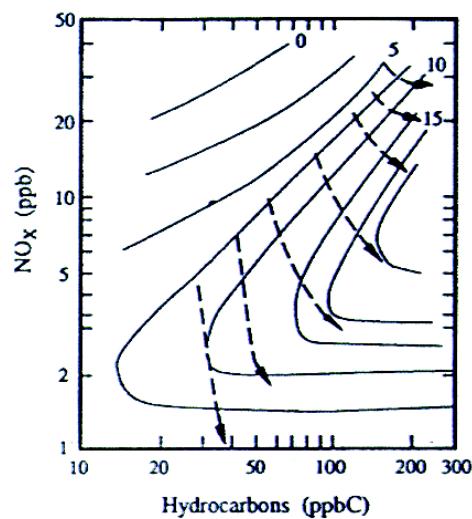


FIGURE 2.3 – Production moyenne d'ozone entre 9 et 17 heures (en ppb/h) pour différentes concentrations initiales de précurseurs (en émissions). Les flèches représentent la "trajectoire" photochimique sur 8 heures de masses d'air caractérisées par des émissions différentes tout en conservant un rapport COV/NO_x constant égal à 6. Source : Milford et al. (1994).

2.3.3 Structure à la verticale de Paris (POI5)

Conditions météorologiques

La POI se déroule du jeudi 1 au vendredi 2 juillet 1999. Une perturbation peu active affecte le Nord du pays le 1^{er} (faible insolation de 23 % sur Paris). Une dorsale en altitude se met ensuite en place le 2nd : les vents en surface sont faibles (de SE sur la région Parisienne) ; les fractions d'insolation sont élevées (supérieures à 80 %) tout comme la température (environ 30 °C).

Panache résiduel et structure verticale au dessus de Paris

5 vols ont été effectués le 2 juillet, dont quatre vols près de Paris avec de nombreux sondages verticaux par l'AZTEC et le DIMONA (circulaire autour de l'agglomération) et un vol MERLIN méso-échelle l'après-midi (figure 2.4). Les sondages permettent de

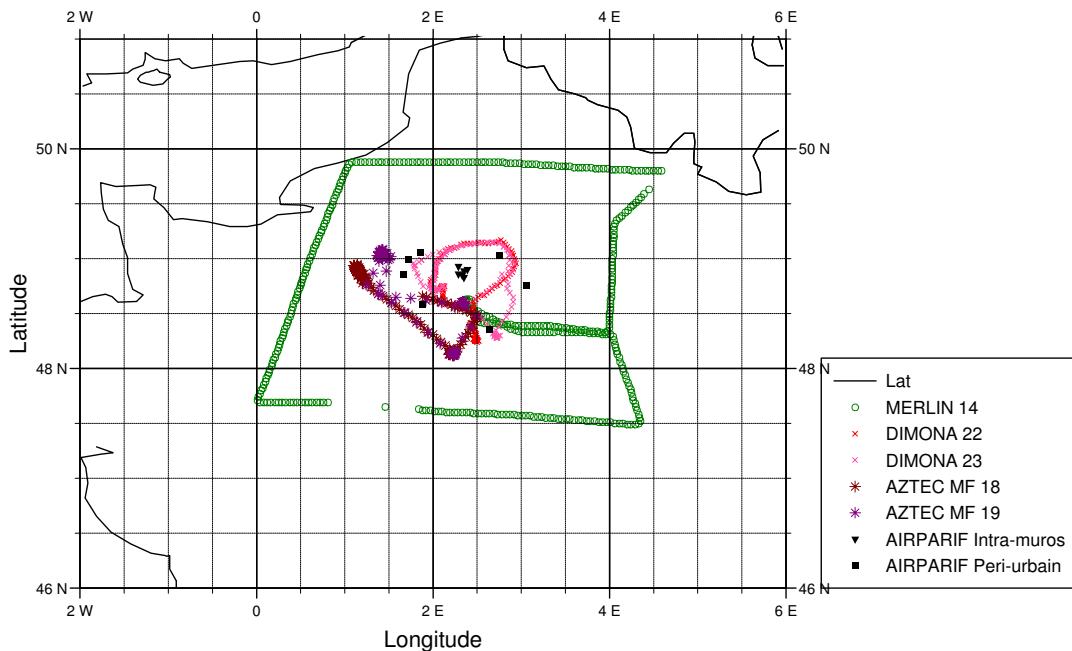


FIGURE 2.4 – *Localisation des moyens de mesure de la POI5.*

caractériser la structure verticale de l'atmosphère. Ceux du matin permettent d'explorer la présence éventuelle d'un panache résiduel et son évolution.

Deux vols ont documenté la matinée du 2 juillet 1999. L'accord entre concentrations observées et simulées (tracées sur la figure 2.5) dépend à la fois de l'altitude de la mesure, mais également de la localisation géographique. Dans la simulation, lors du pallier à 950 hPa du vol 22 du DIMONA, la trajectoire de l'avion rencontre un panache d'intensité forte (environ 70 ppb à 8H30 TU) à l'est de l'agglomération parisienne qui n'est pas visible dans les observations. Par contre, l'accord entre observation et simulation pour les basses couches est meilleur pour le vol 18 de l'AZTEC dont la trajectoire reste plutôt à l'ouest de

l'agglomération. Aussi, les corrélations des concentrations d'ozone entre valeurs observées et simulées sont-elles plus faibles pour le vol du DIMONA que celui de l'AZTEC : 0,29 contre 0,40 (voir tableau 2.4). Pour les niveaux de troposphère libre, simulations et observations sont en accord avec des valeurs relativement élevées de l'ordre de 60 ppb.

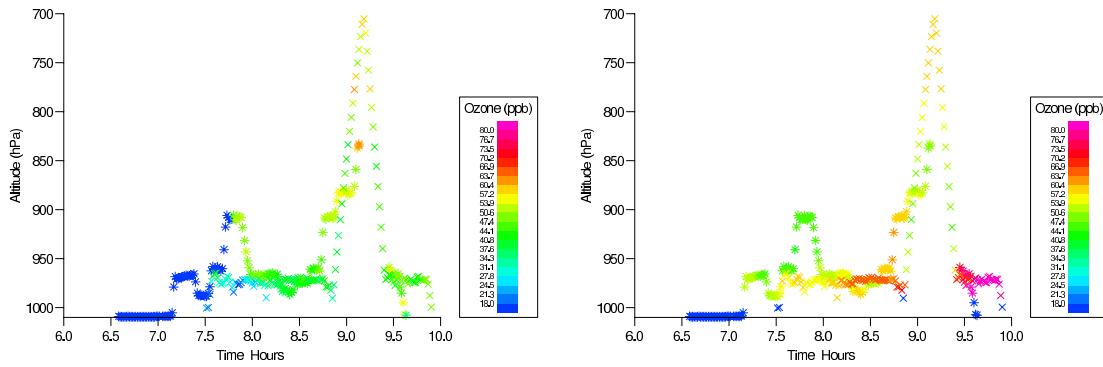


FIGURE 2.5 – POI5 Valeur des concentrations d'ozone observées (à gauche) et simulées (à droite) pour les deux vols matinaux du 2 juillet 1999 : Aztec 18 (étoiles) et Dimona 22 (croix).

Deux défauts sont visibles : d'une part, l'intensité des concentrations d'ozone "ambiantes" à l'est de l'agglomération et d'autre part, la stratification verticale.

La surestimation des concentrations orientales matinales (de 20 ppb) est probablement due à la mauvaise simulation de la journée précédente. En effet, les concentrations en ozone des stations rurales AIRPARIF du 1^{er} juillet sont surestimées, notamment pour les directions Est (voir figure 2.6). Aussi, par persistance, les niveaux du lendemain matin sont surestimés.

En outre, les vents simulés sont d'intensité plus faibles que dans les observations, ce qui va également dans le sens d'une surestimation des concentrations dans le modèle.

Toujours concernant les concentrations très fortes sur le palier à 950 hPa, au développement abusif dans le modèle d'un panache la veille pourrait se superposer un développement plus précoce de la couche limite pour cette journée du 2 juillet. En effet, dans la simulation, le cisaillement de vent est moins fort en altitude et les températures plus chaudes de quelques degrés dans les basses couches par rapport aux observations disponibles. Or, l'altitude du pallier (950 hPa) est à la frontière entre troposphère libre et couche polluée dans la simulation comme montré sur la figure 2.7 qui présente une coupe verticale zonale passant par Paris pour laquelle le gradient vertical est marqué.

Pour l'après midi du 2 juillet, le vol circulaire Dimona 23 présente une assez bonne représentation des structures spatiales, à la fois verticales et horizontales (corrélation sur les concentrations d'ozone de 0.71) mais un biais très important sur les intensités (EQM de 53,1 ppb et voir les séries temporelles sur la figure 2.9 à droite). Le vol de l'Aztec, effectué à peu près durant la même période, révèle cependant (par le biais de sondages plus graduels, cf figure 2.10) un problème de hauteur de couche mélangée : en effet, les observations présentent une couche homogène jusqu'à 860 hPa (même valeur de troposphère libre que pour le vol Dimona) alors que dans la simulation ces valeurs sont atteintes dès 920 hPa (voir la figure 2.9 des séries temporelles observées et modélisées au cours du vol et la coupe zonale simulée à 13 HTU présentée figure 2.8). Ce problème est circonscrit autour de Paris et en présence du panache puisque le vol Merlin 14 ne présente pas de différences

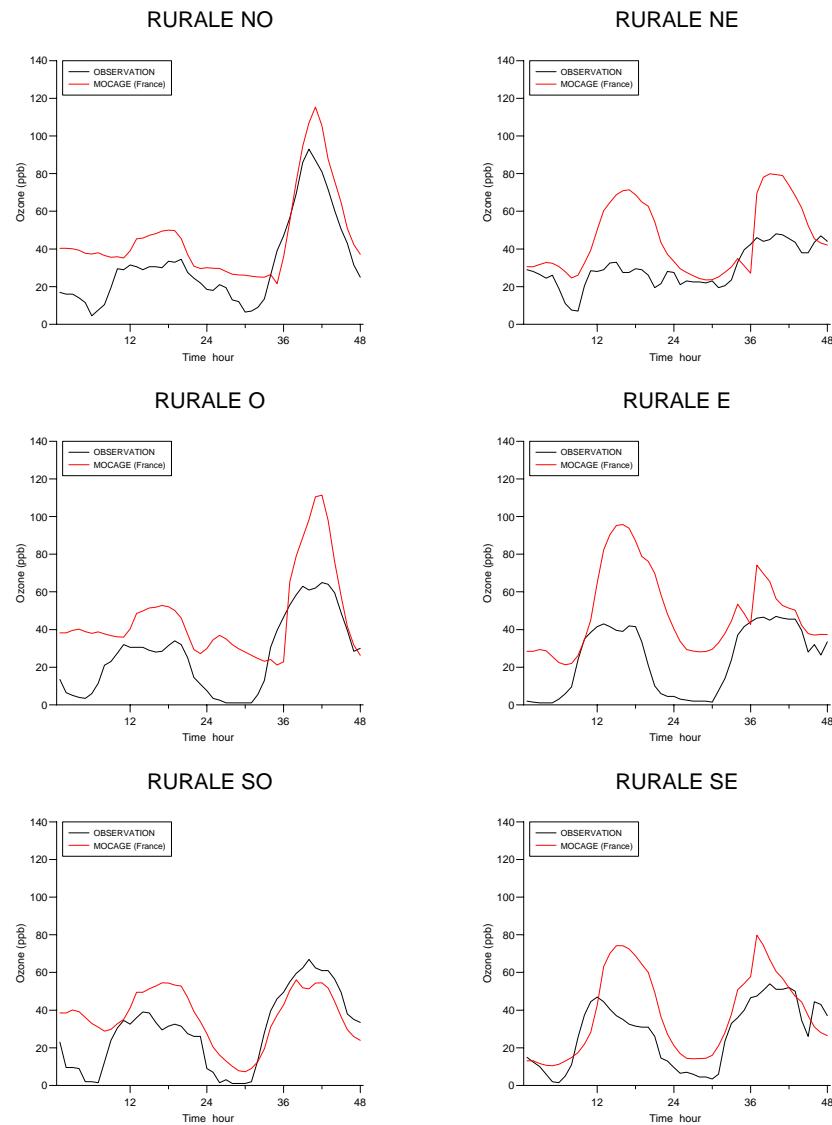


FIGURE 2.6 – POI5 Evolution des concentrations d'ozone (en ppb) pour les stations rurales d'AIRPARIF pour les 1 et 2 juillet 1999. Les observations sont en noir et les simulations en rouge.

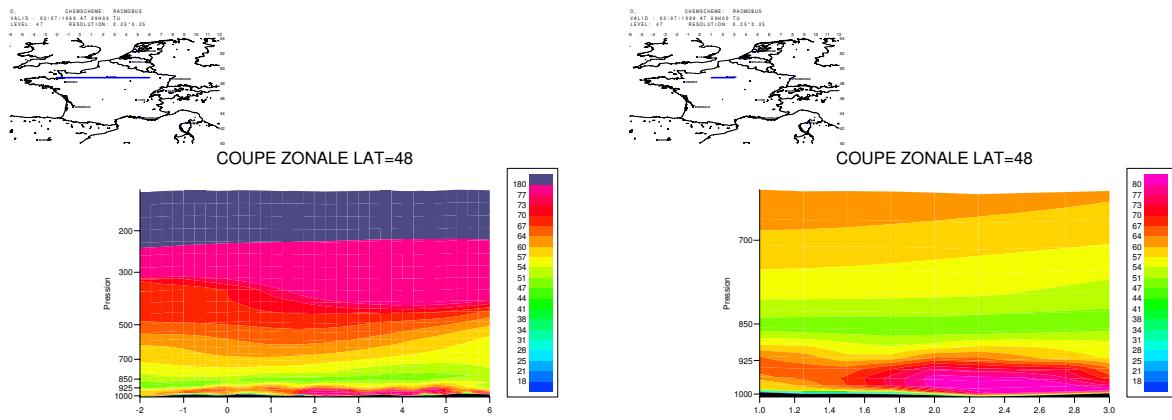


FIGURE 2.7 – POI5 Coupes zonales verticales passant par Paris des concentrations d'ozone (en ppb) à 09UTC le 2 juillet 1999. A droite, zoom sur le domaine vertical et horizontal documenté par l'avion.

simulation/observation aussi marquées (figure 2.11) alors que son niveau de vol est 910 hPa, sauf au départ et à l'arrivée de Paris qui s'effectue vers l'Est : la trajectoire ne croise donc malheureusement pas le panache situé ce jour là à l'Ouest.

Dans la simulation, la couche limite est donc moins développée, ce qui entraîne un tassemement de la quantité d'ozone sur une épaisseur plus fine, qui peut en partie expliquer la sur-estimation du modèle pour cette journée là.

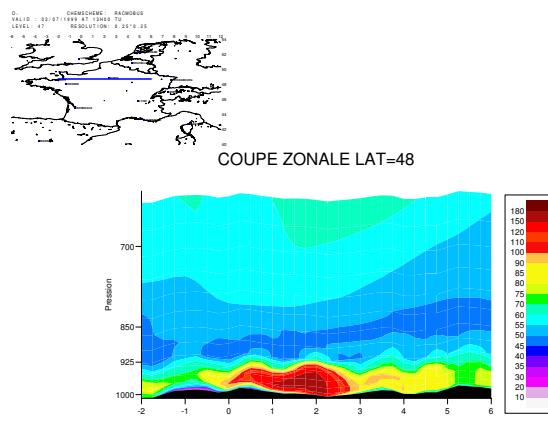


FIGURE 2.8 – POI5 Coupes zonales verticales passant par Paris des concentrations d'ozone (en ppb) à 13UTC le 2 juillet 1999.

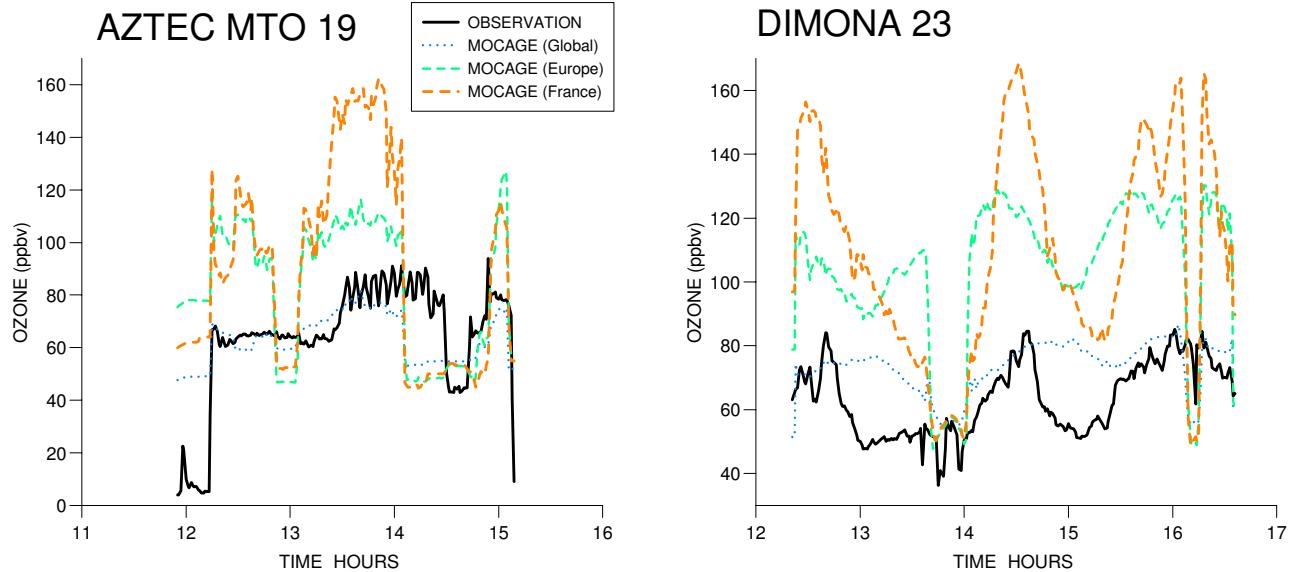


FIGURE 2.9 – POI5 Séries temporelles d'ozone pour les deux vols de l'après-midi.

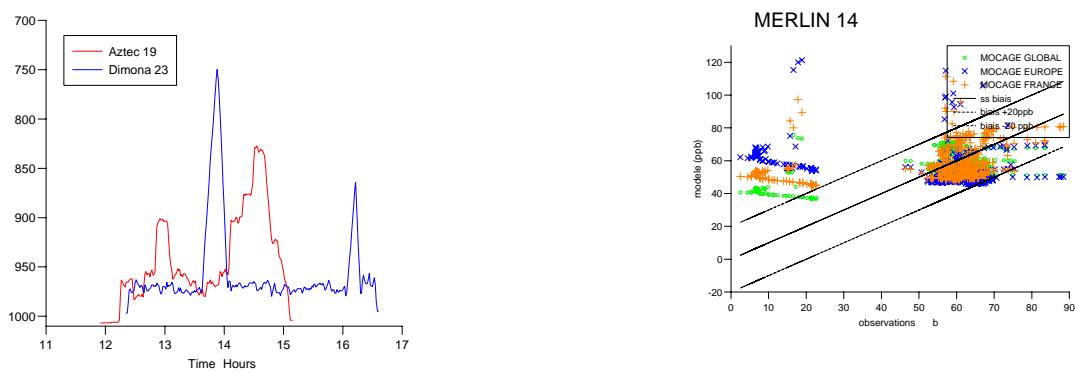


FIGURE 2.10 – POI5 Profils temporels des niveaux de vol des deux avions dont les concentrations d'ozone sont reportées figure 2.9.

FIGURE 2.11 – POI5 Scatter-plot des mesures d'ozone simulées et observées pour le vol Merlin méso-échelle du 2 après-midi.

2.3.4 Episode photochimique intense (POI6)

Conditions météorologiques

Durant la POI6, c'est à dire du vendredi 16 au dimanche 18 juillet 1999, un anticyclone se déplace vers l'ouest du jeudi au vendredi, caractérisé par des vents plutôt faibles ainsi que des fractions d'ensoleillement importantes (supérieures à 90 %). Le dimanche 18 est marqué par l'installation d'un marais barométrique et une intensification de la tendance orageuse dans l'après-midi. L'insolation reste néanmoins autour de 80%. Les températures minimales et maximales sont croissantes sur les trois jours pour atteindre respectivement 18 et 33 degrés le 18 juillet.

Panache péri-urbain

Notre étude porte essentiellement sur les 17 et 18 juillet 1999 car le panache y a été le plus marqué (figure 2.12). Le 17, les observations convergent vers un panache situé au nord-ouest, et le maximum d'ozone mesuré est de 140 ppb à 300 mètres d'altitude et de 110 ppb au sol pour la station rurale nord-ouest. Le 18, le panache est situé plus au nord avec un maxima mesuré de 130 ppb à 300 mètres et de 100 ppb au sol pour la station nord-est.

Par comparaison à ces observations, le panache simulé par MOCAGE est mal positionné pour ces deux jours, avec une position sud-ouest le 17 et sud le 18. Nous avons pu attribuer cette erreur au forçage dynamique : par exemple, dans le cas du 18 juillet où la composante méridienne du vent dans la région parisienne est de nord dans le modèle alors qu'elle est de sud en réalité.

En revanche, l'intensité des concentrations d'ozone du panache ainsi que les gradients entre le centre du panache et la concentration de fond sont reproduits à 10 ppb près au sol comme en altitude.

Réactivité chimique

Sous réserve que la masse d'air considérée soit homogène, une façon d'évaluer l'efficacité de la production photochimique d'ozone dans le modèle est de considérer la pente de la droite de régression liant O_x ($O_x = O_3 + NO_2$) à NO_z (somme des espèces azotées hors NO_x). Ces valeurs sont dépendantes à la fois du schéma chimique considéré, des émissions utilisées et du traitement du rayonnement.

Le paramètre a été évalué pour l'ensemble des vols de la POI6. Les valeurs de ces pentes pour les observations sont relativement variées et balaiennent un spectre assez large : de 4 à 25 ppb O_x /ppb NO_z . Les pentes les plus fortes correspondent à l'après-midi, où l'activité photo-chimique est la plus forte, et aux niveaux de vol les plus élevés. Le modèle simule globalement assez bien la gamme de pentes observées (voir figure 2.13).

Vols de la base MOZAIC

Pour la journée du 18/07/99, 13 vols sont disponibles ; leurs trajectoires sont reproduites sur la figure 2.14. L'utilisation de ces mesures permet de compléter l'information sur les concentrations de fond. L'altitude de croisière des vols est située aux environ de 10 kilomètres, près de la tropopause. Aussi, les avions traversent parfois des masses d'air stratosphérique ce qui explique les pics de très fortes valeurs sur les enregistrements : par exemple 300 ppb sur le vol Vienne Téhéran du 18/07/99 (voir figure 2.15 en bas à droite).

Le biais se situe en général dans une gamme de plus ou moins 20 ppb et la dispersion entre simulations et observations est relativement faible pour des concentrations d'ozone

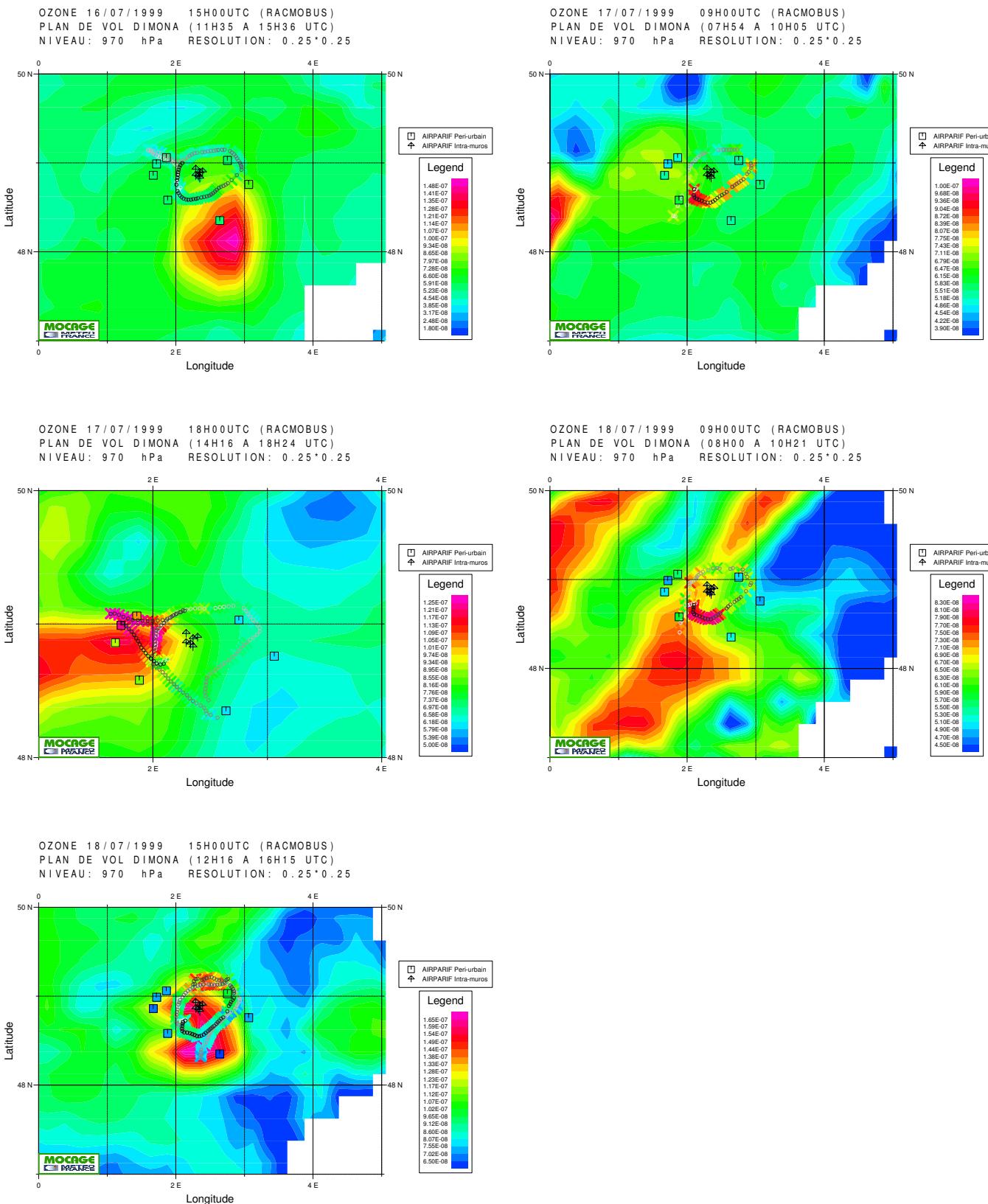


FIGURE 2.12 – POI6 Vols DIMONA (croix, la trajectoire étant représentée par les rondes grisées chronologiquement) et stations AIRPARIF (carrés et triangles) : observations et simulations MOCAGE (isolignes) sur l'isobare 970 hPa, correspondant au niveau de vol des avions (domaine FRANCE).

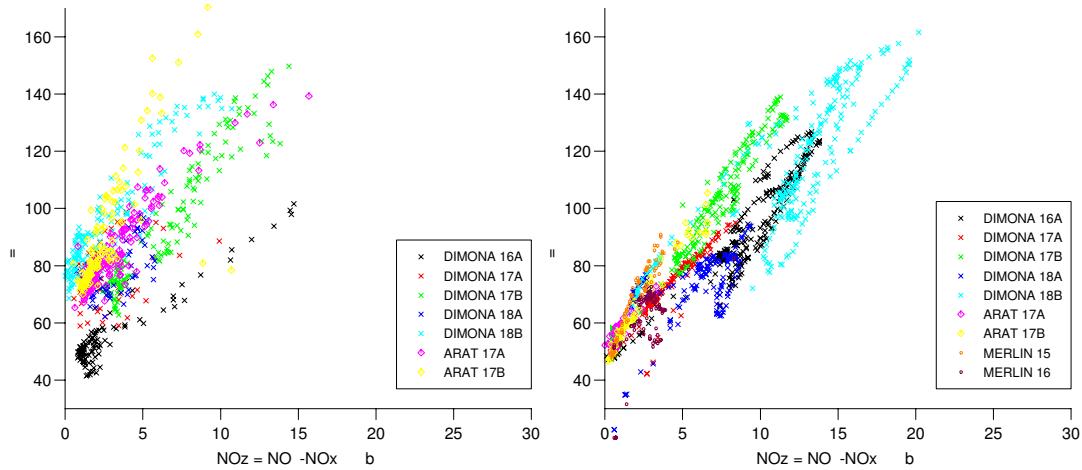


FIGURE 2.13 – *POI6 Valeur de la pente O_x/NO_z pour l’ensemble des vols de la POI6 d’ESQUIF ; à gauche les observations, à droite les simulations MOCAGE domaine France.*

inférieures à 100 ppb (figure 2.15 à gauche). Le modèle est capable de modéliser correctement des structures fines, échantillonées pendant des durées de l’ordre du quart d’heure de vol (voir les séries temporelles observées et modélisées sur deux vols figure 2.16 à droite). Par contre, les fortes valeurs (> 200 ppb) sont sous-estimées par le modèle. Elles correspondent à des structures spatiales très fines de langues stratosphériques, et subissent donc, dans le modèle, un lissage spatial.

Exercice d’intercomparaison

Dans le cadre du projet ESQUIF, la POI6 a été simulée par 3 CTM (AZUR, CHIMERE et MOCAGE) et un modèle de méso-échelle on-line (Méso-NH-Chimie). Le tableau 2.5 résume leurs caractéristiques principales. Pour MOCAGE, il s’agissait des toutes premières simulations de ”qualité de l’air”.

Nous reprenons ici les principales conclusions de l’intercomparaison, pilotée par M. Beekman et disponibles dans le rapport final ESQUIF (IPSL et al. (2001)), afin de placer les performances de MOCAGE en perspective vis à vis d’autres systèmes de modélisation de complexité et d’architecture différentes.

La localisation des panaches est décalée pour MOCAGE les 17 et 18 juillet, alors qu’elle est bien simulée dans les 3 autres modèles, montrant pour ces 2 jours des erreurs de direction dans le modèle forceur ARPEGE (voir par exemple le vol de l’avion DIMONA du 18 juillet 1999 sur la figure 2.17).

La résolution grossière des émissions entraîne par ailleurs une sous-estimation des composées primaires ainsi qu’une sur-estimation de l’ozone dans Paris et sa petite couronne. Par contre, nos simulations ne présentent pas de biais systématiques au vent et sous le vent de l’agglomération, avec notamment une bonne reproduction des maxima d’ozone rencontrés dans les panaches malgré (ou grâce à d’ailleurs !) des résolutions horizontales (modèle lui-même et inventaire) plus faible que les autres modèles.

Enfin, pour les vols étudiés, l’étude de la pente O_x/NO_z comme indicateur de l’efficacité de production d’ozone révèle un bon comportement de MOCAGE (en dehors de l’agglomération proprement dite) : en effet, les simulations sont capables de reproduire les pentes observées, et notamment leur variabilité reliée à la fois à l’altitude des vols, mais

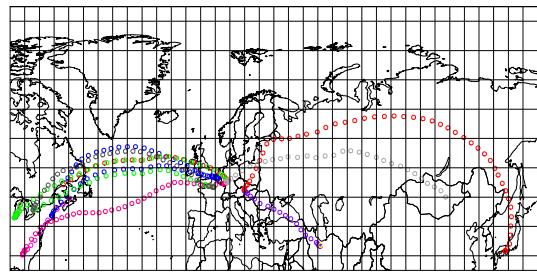


FIGURE 2.14 – POI6 Trajectoires des vols de la base MOZAIC pour le 18/07/1999.

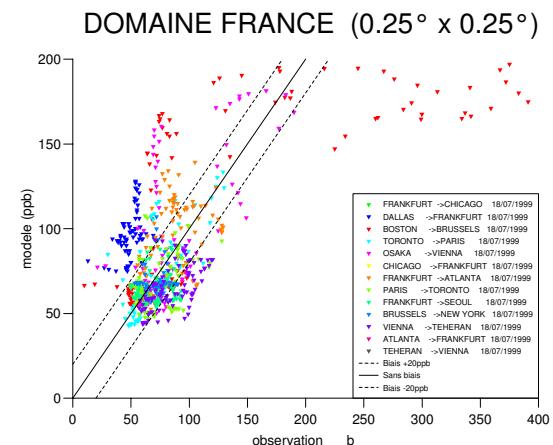
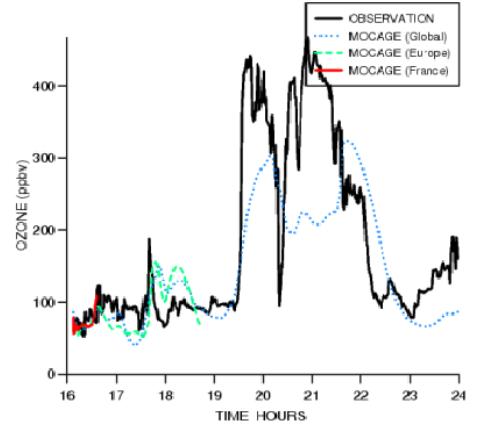


FIGURE 2.15 – POI6 Observations de la base MOZAIC pour la journée du 18/07/1999 : nuage de points pour la fraction des vols s'effectuant sur le domaine France.

FRANKFURT ->SEOUL 18/07/1999



VIENNA ->TEHERAN 18/07/1999

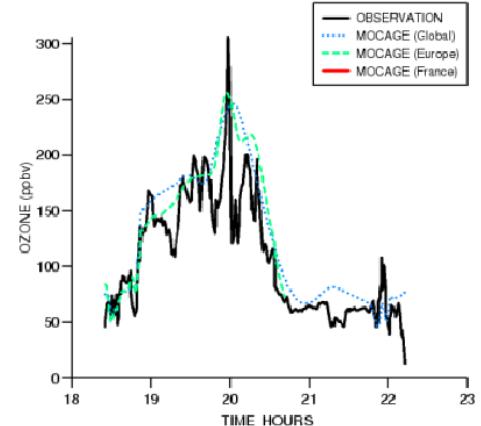


FIGURE 2.16 – POI6 Comparaison de 2 vols particuliers du 18/07/1999 avec les simulations de MOCAGE aux 3 résolutions disponibles.

Modèle	AZUR	CHIMERE	Méso-NH-C	MOCAGE
Type	3D aire limitée	3D multi-échelle aire limitée	3D multi-échelle aire limitée	3D multi-échelle global
Dynamique ¹	off-line (ECMWF)	off-line (ECMWF)	on-line	off-line (ARPEGE)
Emissions ²	AIRPARIF	AIRPARIF	GENEMIS	GEIA/EDGAR
Résolution ³	6 km	6 km	3 km	0,25° (25x18 km)
Chimie ⁴	MOCA (65)	MELCHIOR (82)	RELACS (37)	RACMOBUS (108)

TABLEAU 2.5 – *Description sommaire des caractéristiques des modèles déterministes ayant participé à l'exercice de modélisation ESQUIF.*

¹ Entre parenthèses est indiqué le modèle météorologique forceur des CTM.

² L'information n'est donnée que pour la grille la plus fine.

³ Il s'agit ici de la résolution horizontale de la grille la plus fine sur laquelle l'intercomparaison a portée.

⁴ Entre parenthèses est indiqué le nombre d'espèces chimiques prises en compte par chacun de ces schémas.

également à la journée étudiée (figure 2.18). De plus, il ne semble pas y avoir de biais systématique pour ce paramètre pour MOCAGE alors que les autres systèmes ont tendance à le sous-estimer. Il n'a pas été possible avec les simulations qui étaient alors disponibles de trancher sur cette question de la part de responsabilité entre le schéma chimique utilisé et/ou la dilution des émissions et/ou la différence du rapport COV/NO_x à l'émission.

Aussi, malgré une résolution horizontale relativement grossière, les simulations MOCAGE présentent un comportement honorable en zones péri-urbaine et rurale mais insuffisant sur l'agglomération. De façon intéressante, le modèle se démarque des autres pour l'efficacité de production d'ozone.

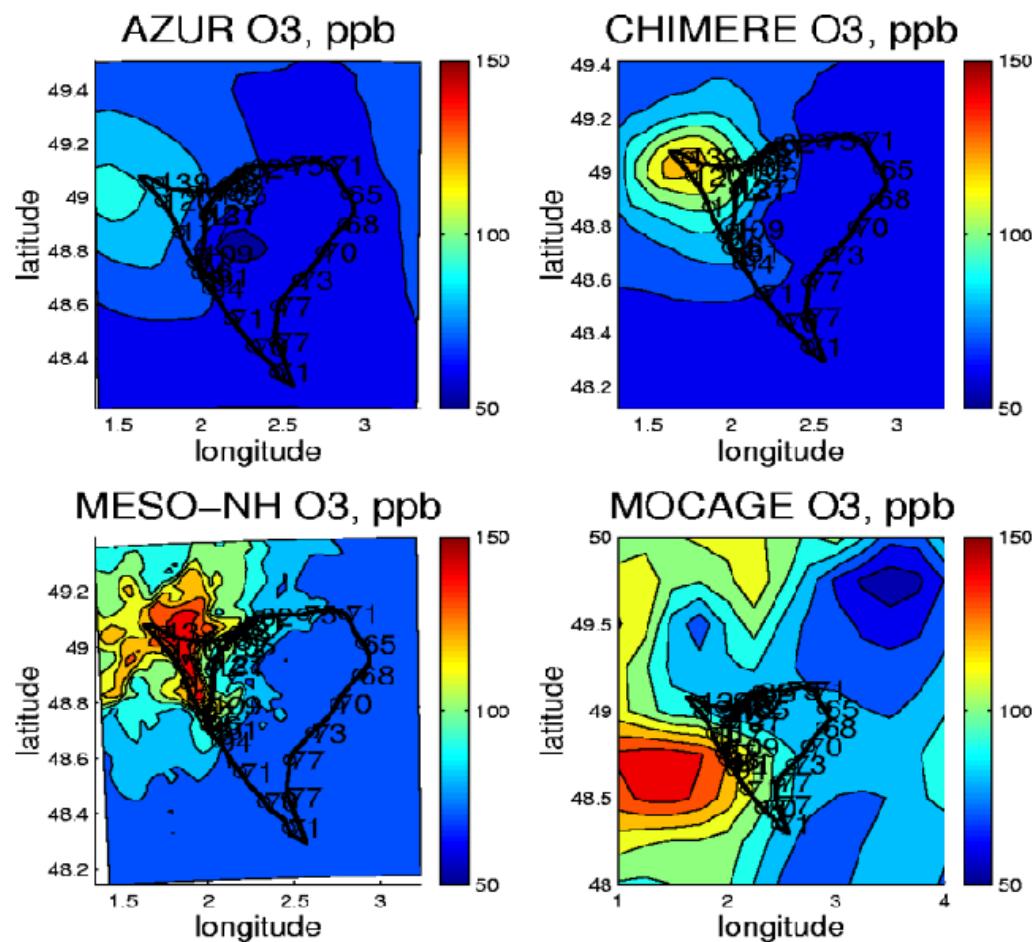


FIGURE 2.17 – POI6 Champs d'ozone 2D le 18 juillet 1999 à 300 mètres au dessus du sol pour les 4 modèles ayant participé à l'exercice d'intercomparaison. Les chiffres noirs correspondent aux mesures aéroportées durant la totalité du vol (de 12h15 à 16h15 TU). Le maximum (139 ppb) est observé au Nor-Est de la trajectoire de l'avion. Source : IPSL et al. (2001).

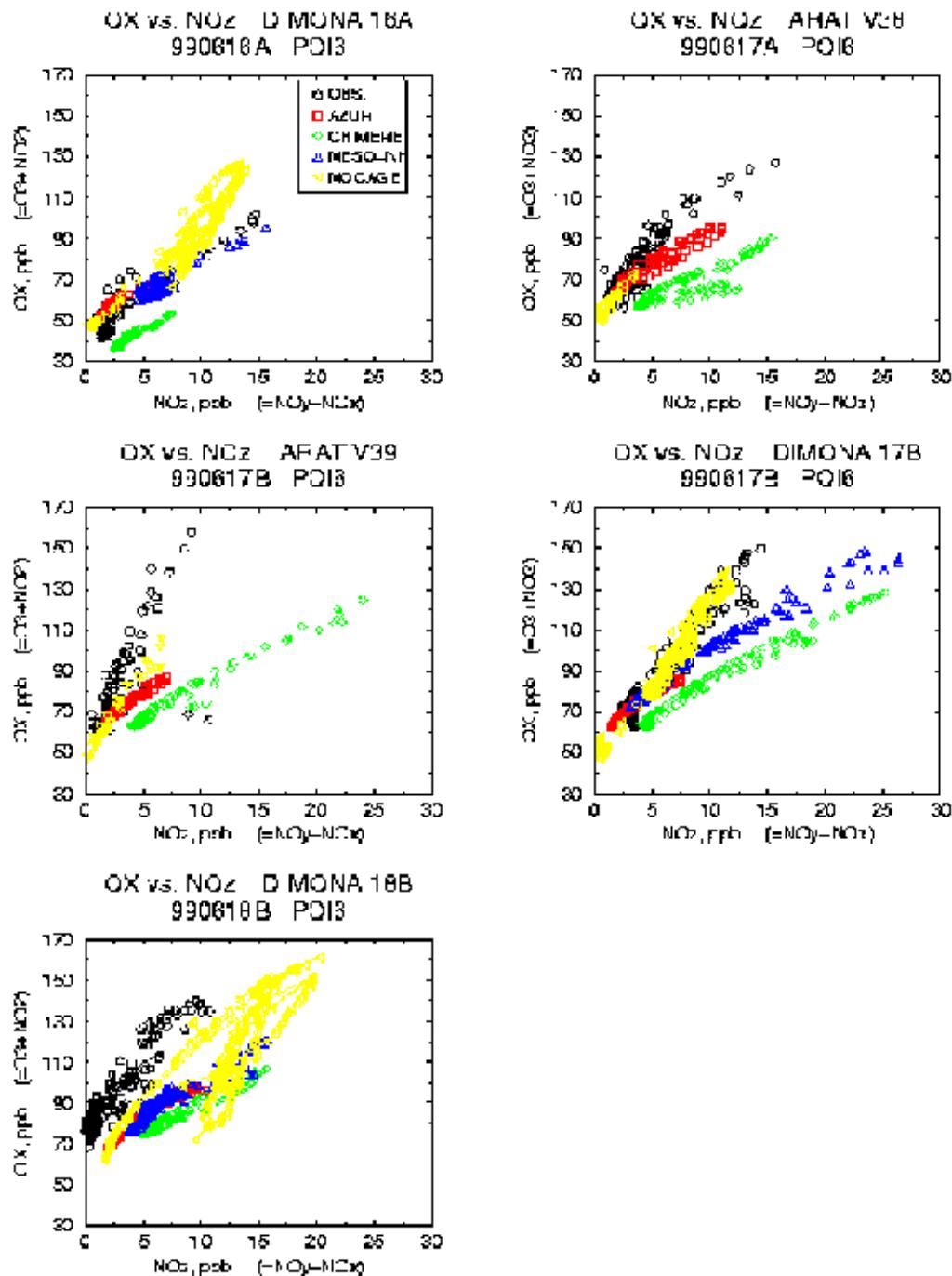


FIGURE 2.18 – Comparaison des observations et simulations du rapport O_x/NO_z pour les 4 modèles ayant participé à l'exercice d'intercomparaison à partir des vols du DIMONA et de l'ARAT de la POI6.
Source : IPSL et al. (2001).

2.3.5 Pollution transfrontière (POI7)

Conditions météorologiques

Durant ces deux journées (samedi 24 et dimanche 25 juillet 1999), la région parisienne rencontre des conditions anticycloniques. La nébulosité est faible, l'insolation élevée. La journée du 25 juillet est particulièrement chaude. D'autre part, des vents d'Est de l'ordre de 10m.s^{-1} balaien la région, faisant de cette POI la période la plus ventée de la campagne.

Par le fait, les niveaux d'ozone enregistrés autour de Paris sont peu élevés et aucune station du réseau AIRPARIF ne présente de pic : le maximum observé (60 ppb) et simulé par MOCAGE (70 ppb) se situe au Sud-Ouest de Paris. La POI est dédiée à l'observation du transport du panache parisien vers la Bretagne.

Panache en Bretagne

Deux vols méso-échelle de l'avion Merlin sont disponibles le 25 juillet matin et après-midi. Le niveau exploré est 930 hPa (voir figure 2.19).

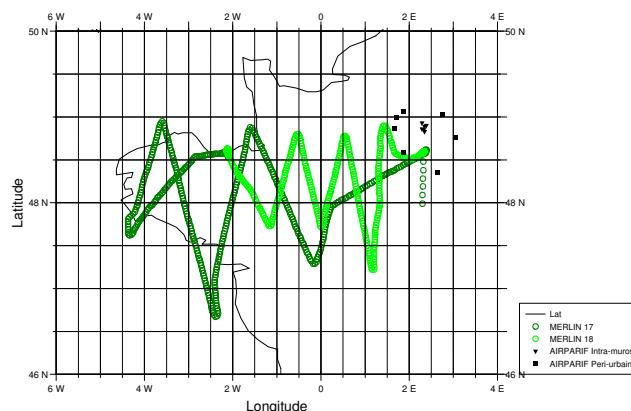


Fig. 2.19 – Localisation des moyens de mesures pour la POI7.

Les niveaux d'ozone de la simulation du vol du matin (vol 17) sont trop bas : ils présentent un biais négatif de l'ordre de 20 ppb. Par contre les variations spatiales sont relativement bien reproduites (corrélation de 0.5) avec trois maxima locaux en phase dans les observations et la simulation. Le panache au nord de la Bretagne est simulé, bien que d'intensité trop forte (figure 2.20).

A noter que les vents simulés sont d'Est légèrement Sud, alors qu'il sont Nord-Est dans les observations. Aussi, le biais négatif observé pourrait être dû à une titration abusive par les panaches de NO_x originaires de Paris et du Benelux (voir figure 2.21).

Les vents sont correctement simulés l'après-midi, bien que l'intensité soit un peu faible (figure 2.25). Le niveau moyen d'une soixantaine de ppb est bien simulé (EQM de 14 ppb), mais la corrélation modèle/observation est très faible : en effet, les variations des observations et de la simulation ne sont pas en phase sur les trajectoires. Le modèle place un panache d'ozone en Bretagne qui est effleuré par la trajectoire de l'avion (maximum

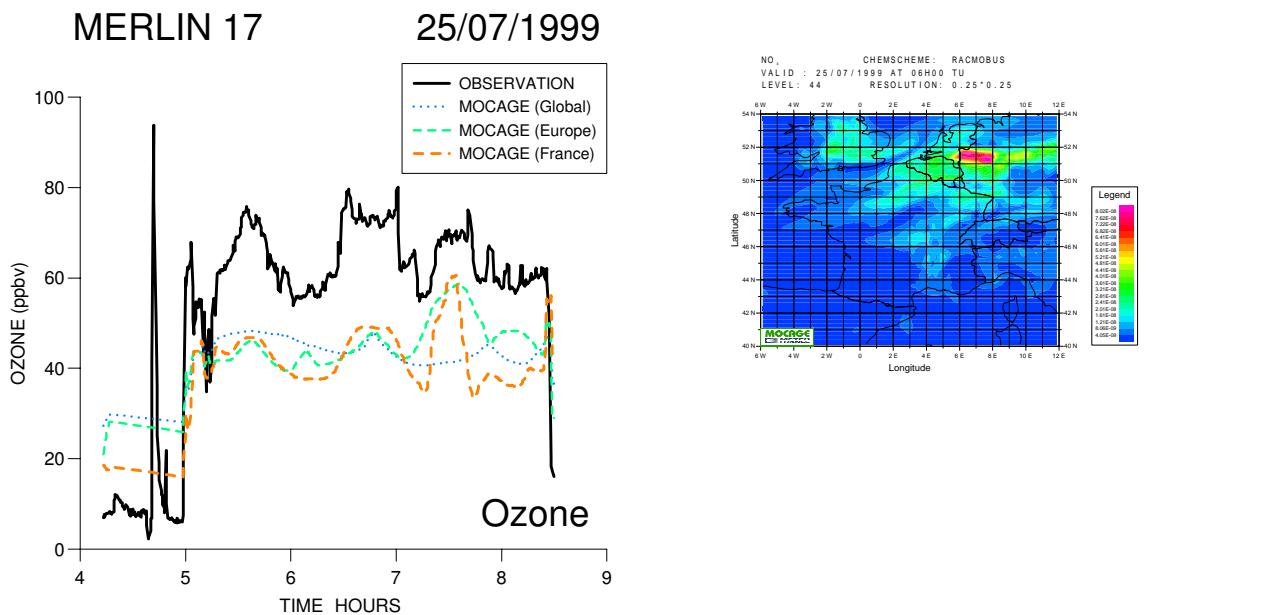


FIGURE 2.20 – *POI7* Série temporelle des concentrations d'ozone observées (noir) et simulées pour les trois domaines MOCAGE sur le vol matinal Merlin 17.

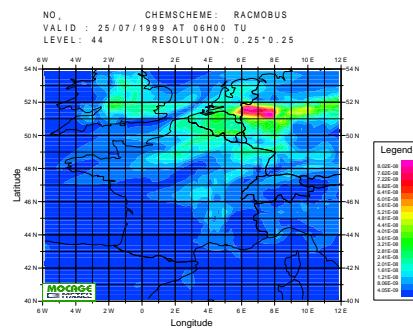


FIGURE 2.21 – *POI7* Concentration d'oxydes d'azote le 25 juillet à 06H TU au niveau 44 du modèle (environ 1000 mètres).

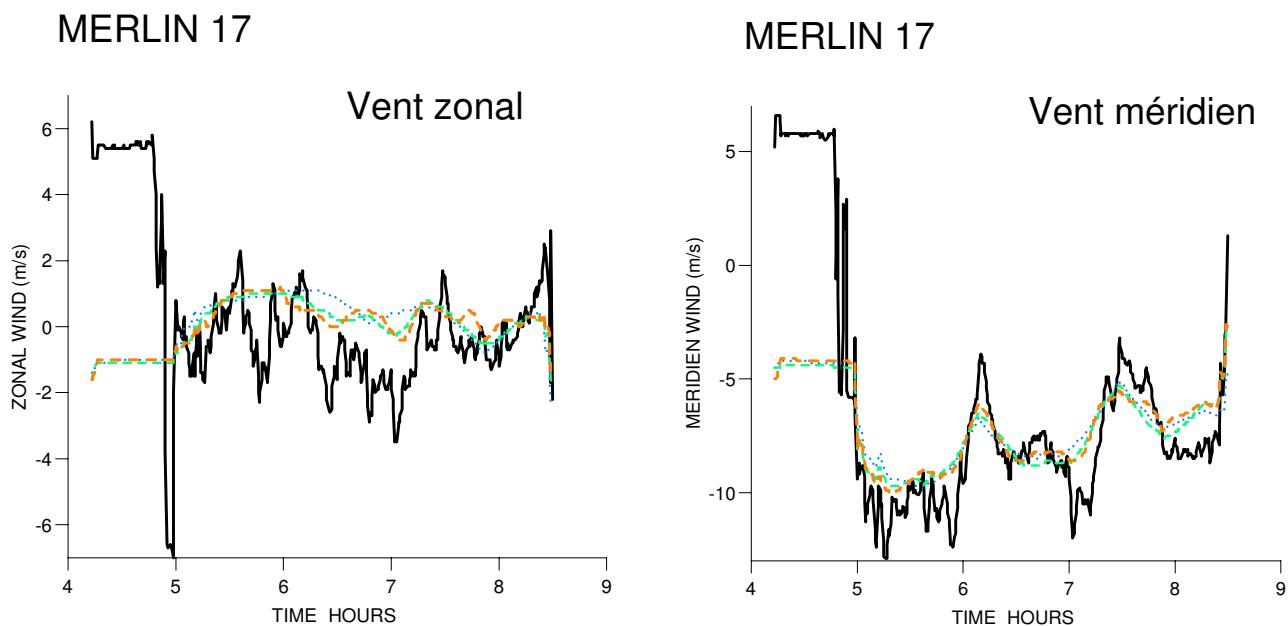


FIGURE 2.22 – *POI7* Séries temporelles du vent zonal et méridien pour le même vol matinal du 25 juillet 1999 de l'avion MERLIN que la figure 2.20.

de 80 ppb), alors qu'il n'y a rien dans les observations (figures 2.23 et 2.24). Il peut donc s'agir d'un problème spatial de positionnement ou d'extension horizontale de ce panache (puisque'il était présent le matin avec une intensité trop forte dans la simulation). Par contre, les observations montrent un panache sur la vallée de la Loire qui est absent des simulations. Il pourrait correspondre à un léger panache d'ozone dû à la ville et l'aéroport de Tours dont les émissions ne sont pas décelables dans l'inventaire utilisé (EDGAR).

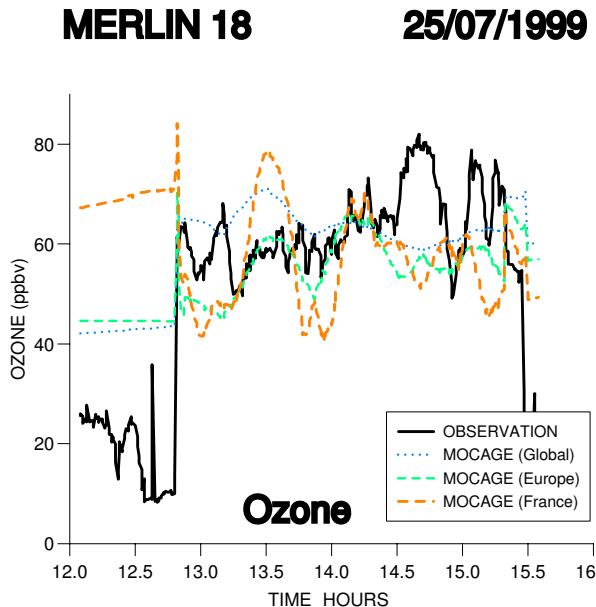


FIGURE 2.23 – POI7 Séries temporelles des concentrations d'ozone observées (noir) et simulées pour les trois domaines MOCAGE sur le vol de l'après-midi Merlin 18.

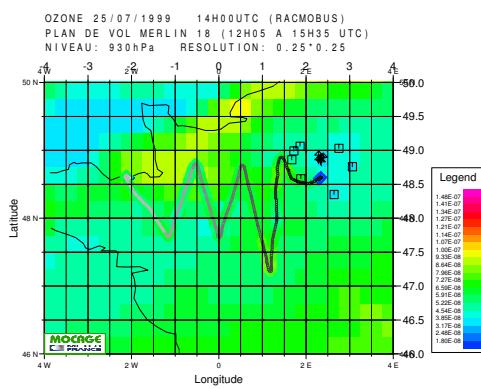


FIGURE 2.24 – POI7 Trajectoire et mesure d'ozone du vol Merlin 18 reportées sur la simulation d'ozone de MOCAGE (domaine France).

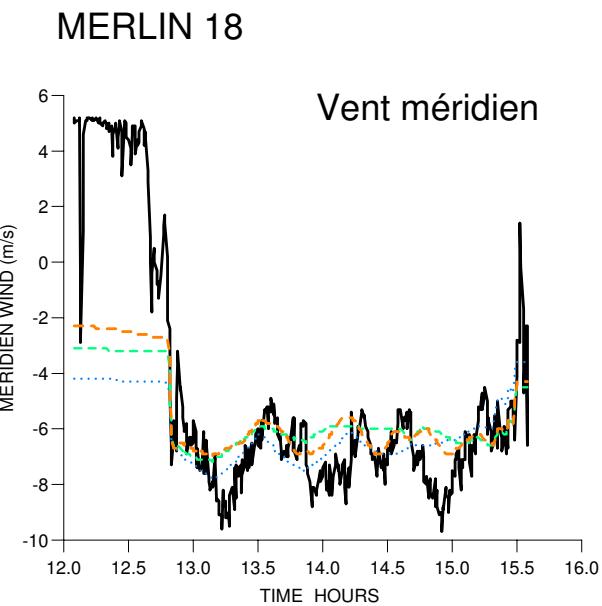
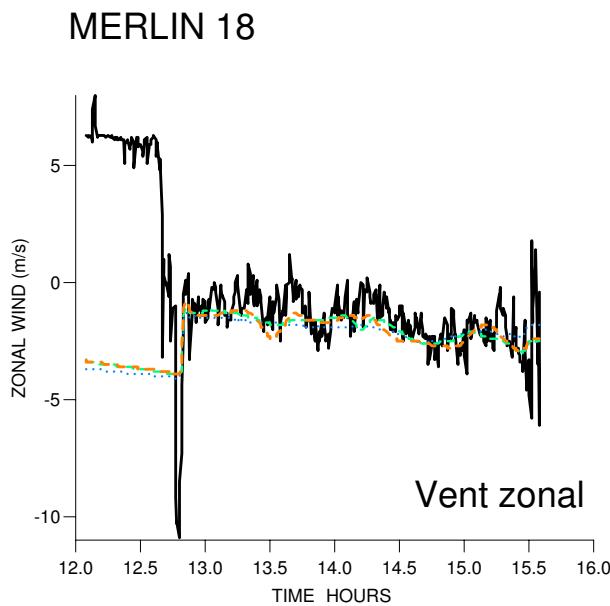


FIGURE 2.25 – POI7 Séries temporelles du vent zonal et méridien pour le même vol.

2.3.6 Prise en compte de la nébulosité (POI8)

Conditions météorologiques

La situation météorologique du mercredi 28 au samedi 31 juillet 1999 est marquée par la présence d'un marais barométrique où la convection par évolution diurne est importante. La masse d'air stagne et les vents sont très faibles (inférieurs à 4 m/s) ; les températures sont particulièrement élevées : de l'ordre de 18°C pour les températures minimales et 31°C pour les maximales. L'insolation est respectivement pour les jours de la POI : 60, 83, 77 et 50 %.

Cumulonimbus mal placé

On dispose le 29 juillet de 5 vols : un le matin et quatre l'après-midi (voir figure 2.26). Or, trois d'entre eux présentent au même endroit les mêmes caractéristiques dans les simulations : une sur-estimation de l'humidité et une sous-estimation de l'ozone. Les scores correspondant à ces vols, en terme de corrélation et EQM, sont très faibles. En effet, le modèle place un cumulonimbus croisé par les trajectoire des avions (voir figure 2.27). Comme le pic d'humidité n'apparaissait pas dans les observations, nous avons réalisé une simulation de la POI sans que l'impact de la nébulosité sur les constantes de photolyse soit pris en compte dans le modèle.

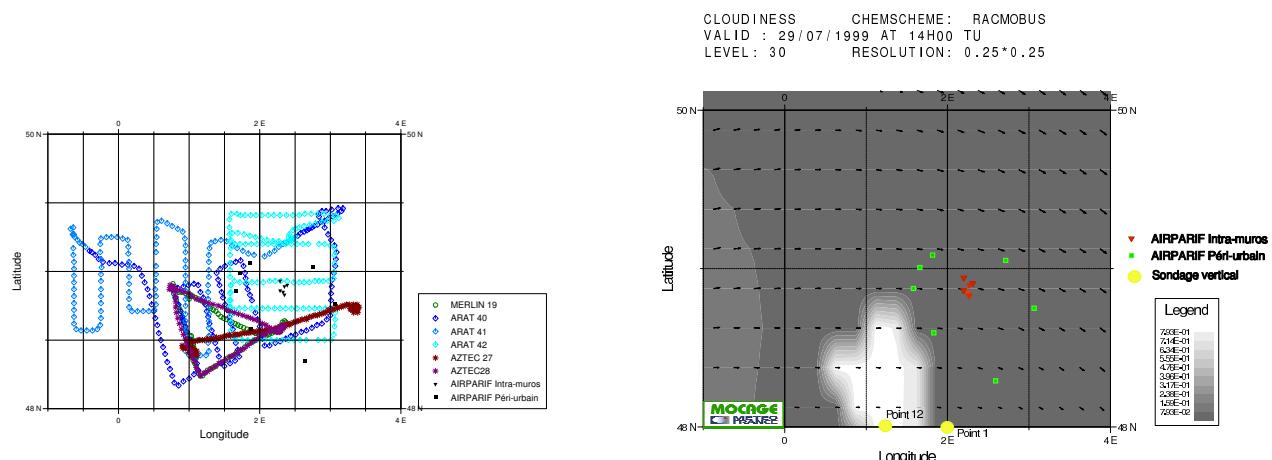


Fig. 2.26 – Localisation des moyens de mesures pour la POI8.

Fig. 2.27 – POI8 Nébulosité et vent simulés par le domaine régional de MOCAGE le 29 juillet 1999 au niveau 30 (environ 6 300 mètres).

Cette expérience de sensibilité apporte une amélioration très nette des scores des moyens aéroportés, à la fois sur les corrélations et les EQM (tableau 2.6 et figure 2.28).

Par contre, il est intéressant de constater que, sur l'ensemble de la POI8, la prise en compte ou non de la nébulosité n'a quasiment pas d'impact pour les stations AIRPARIF. Ceci est directement relié à la très faible nébulosité durant la POI. De même, pour la journée concernée, aucune différence significative ne distingue la simulation avec ou sans nébulosité. La production d'ozone est donc strictement locale ; il y a très peu d'advection : les stations sous le vent comme celle dénommée Ouest ou Sud-Ouest ne sont pas touchées (voir figure 2.28).

Afin de regarder plus précisément l'impact sur la valeur des constantes de photolyses,

	POI8 avec nbl	POI8 sans nbl	29/08 avec nbl	29/08 sans nbl
AIRPARIF				
Paris 6	0.74 <i>19.7</i>	0.75 <i>19.3</i>	0.74 <i>17.2</i>	0.73 <i>17.3</i>
Paris 7	0.74 <i>21.5</i>	0.75 <i>21.1</i>	0.67 <i>19.1</i>	0.65 <i>18.4</i>
Paris 13	0.71 <i>21.2</i>	0.71 <i>20.9</i>	0.79 <i>15.8</i>	0.77 <i>16.7</i>
	0.71 <i>21.0</i>	0.72 <i>20.4</i>	0.67 <i>18.5</i>	0.65 <i>18.0</i>
Aubervilliers	0.71 <i>21.0</i>	0.71 <i>20.8</i>	0.70 <i>20.5</i>	0.69 <i>21.3</i>
Genevilliers	0.70 <i>20.7</i>	0.73 <i>19.5</i>	0.72 <i>17.9</i>	0.71 <i>18.5</i>
Mantes	0.70 <i>27.8</i>	0.70 <i>26.9</i>	0.93 <i>18.9</i>	0.92 <i>19.8</i>
Rurale E	0.40 <i>22.1</i>	0.39 <i>22.1</i>	0.21 <i>24.3</i>	0.19 <i>24.5</i>
Rurale NE	0.71 <i>22.5</i>	0.70 <i>22.9</i>	0.33 <i>29.2</i>	0.29 <i>30.1</i>
Rurale N O	0.67 <i>32.3</i>	0.69 <i>31.0</i>	0.86 <i>24.4</i>	0.85 <i>25.2</i>
Rurale O	0.70 <i>22.8</i>	0.72 <i>21.8</i>	0.90 <i>12.7</i>	0.90 <i>12.8</i>
Rurale SE	0.74 <i>16.3</i>	0.73 <i>16.8</i>	0.66 <i>18.8</i>	0.63 <i>20.0</i>
Rurale SO	0.82 <i>22.0</i>	0.86 <i>20.0</i>	0.91 <i>20.1</i>	0.91 <i>20.6</i>
ARAT			0.41 <i>18.6</i> <i>MD</i> 0.09 <i>16.4</i> <i>PM</i>	0.56 <i>14.5</i> <i>MD</i> 0.29 <i>14.8</i> <i>PM</i>
AZTEC			0.45 <i>21.9</i> <i>AM</i> 0.64 <i>20.5</i> <i>PM</i>	0.97 <i>20.4</i> <i>AM</i> 0.92 <i>14.5</i> <i>PM</i>
MERLIN			0.04 <i>28.1</i> <i>MD</i>	0.94 <i>23.6</i> <i>MD</i>

TABLEAU 2.6 – *POI8 Valeur des corrélations et EQM (en italique et exprimées en ppb) des séries de concentrations d'ozone pour les simulations sans et avec prise en compte de la nébulosité sur les constantes de photolyse. Les deux premières colonnes concernent les quatre jours de la POI; les deux dernières uniquement la journée du 29 juillet.*

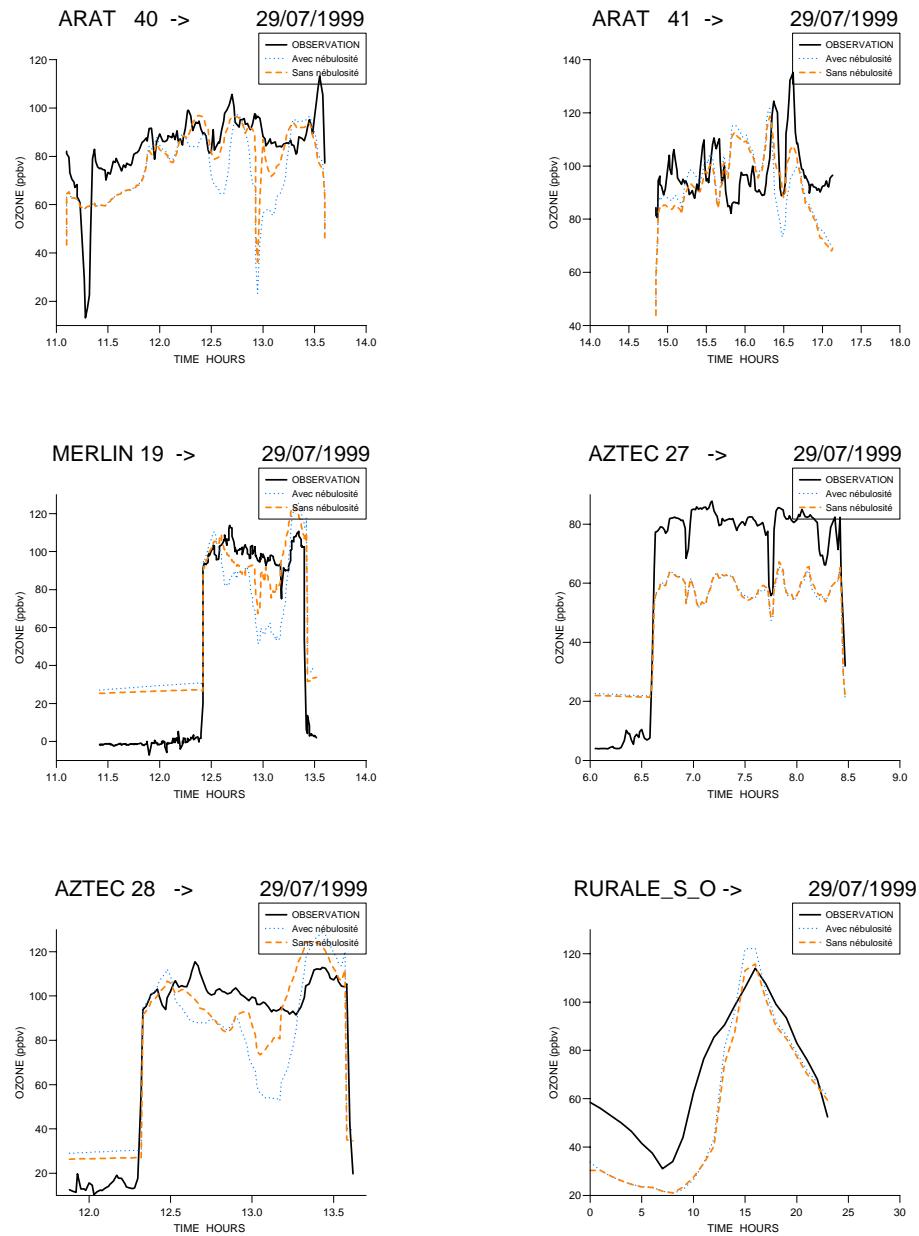


Fig. 2.28 – POI8 Séries temporelles de concentration d'ozone (en ppb) des différents vols de la journée du 29 juillet ainsi qu'une station sol. Les observations sont en trait plein noir ; les traits tiretés représentent les valeurs simulées avec et sans prise en compte de la nébulosité sur les constantes de photolyse (respectivement en bleu et orange).

des coupes verticales sont effectuées pour certains points, dans ou à proximité du nuage. Les paramètres sont le contenu en eau liquide et solide, la fraction nuageuse, et enfin les rapports des taux de photolyse de NO_2 (j_{NO_2}) et O_3 sans nébulosité/ avec nébulosité (voir figures 2.29 et 2.30). Pour le point 12, dans la simulation avec nébulosité, le j_{NO_2} est nul du niveau 38 jusqu'au sol, pour une quantité d'ozone jusqu'à 6 fois plus importante au sol. L'impact sur les concentrations d'ozone est extrêmement dépendant de l'altitude : en effet, même au coeur du nuage, le niveau 47 correspondant à la surface est le plus affecté ; le facteur sur les concentrations d'ozone passe ensuite à moins de 2 pour le niveau suivant (46), situé à environ 80 mètres d'altitude. Puis, au dessus du niveau 40 (altitude 1300 mètres), on ne note que des perturbations inférieures à 10 %.

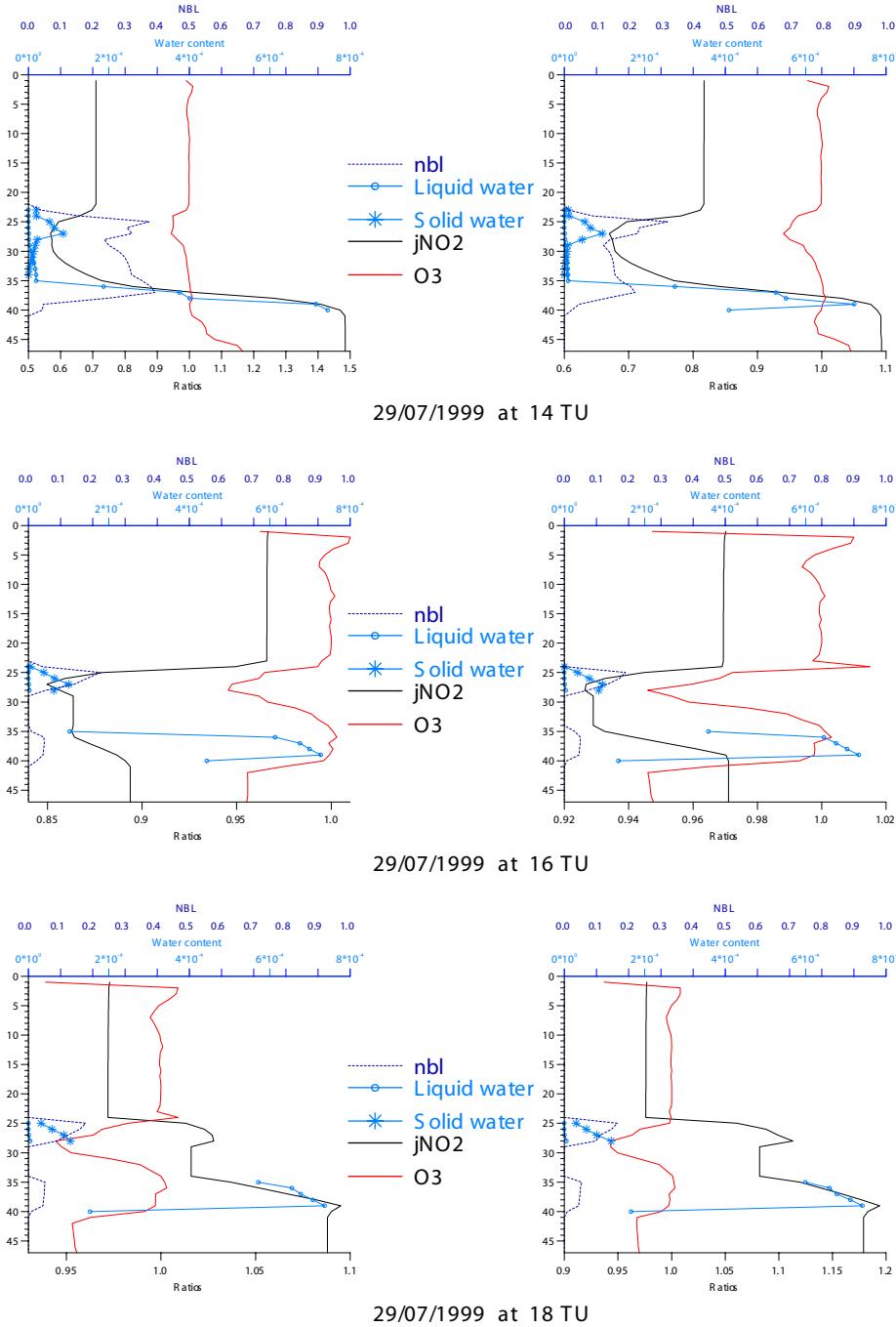


Fig. 2.29 – POI8 Coupe à la verticale du point de coordonnées 2E-48N, en marge du nuage simulé. La nébulosité est en trait pointillé bleu foncé, les contenus en eau liquide et solide (en bleu clair) sont exprimés en rapport de mélange. Les traits pleins noir et rouge représentent, respectivement pour l'ozone et le jNO₂, le rapport entre la valeur dans la simulation sans prise en compte de la nébulosité et la valeur de la simulation avec nébulosité.

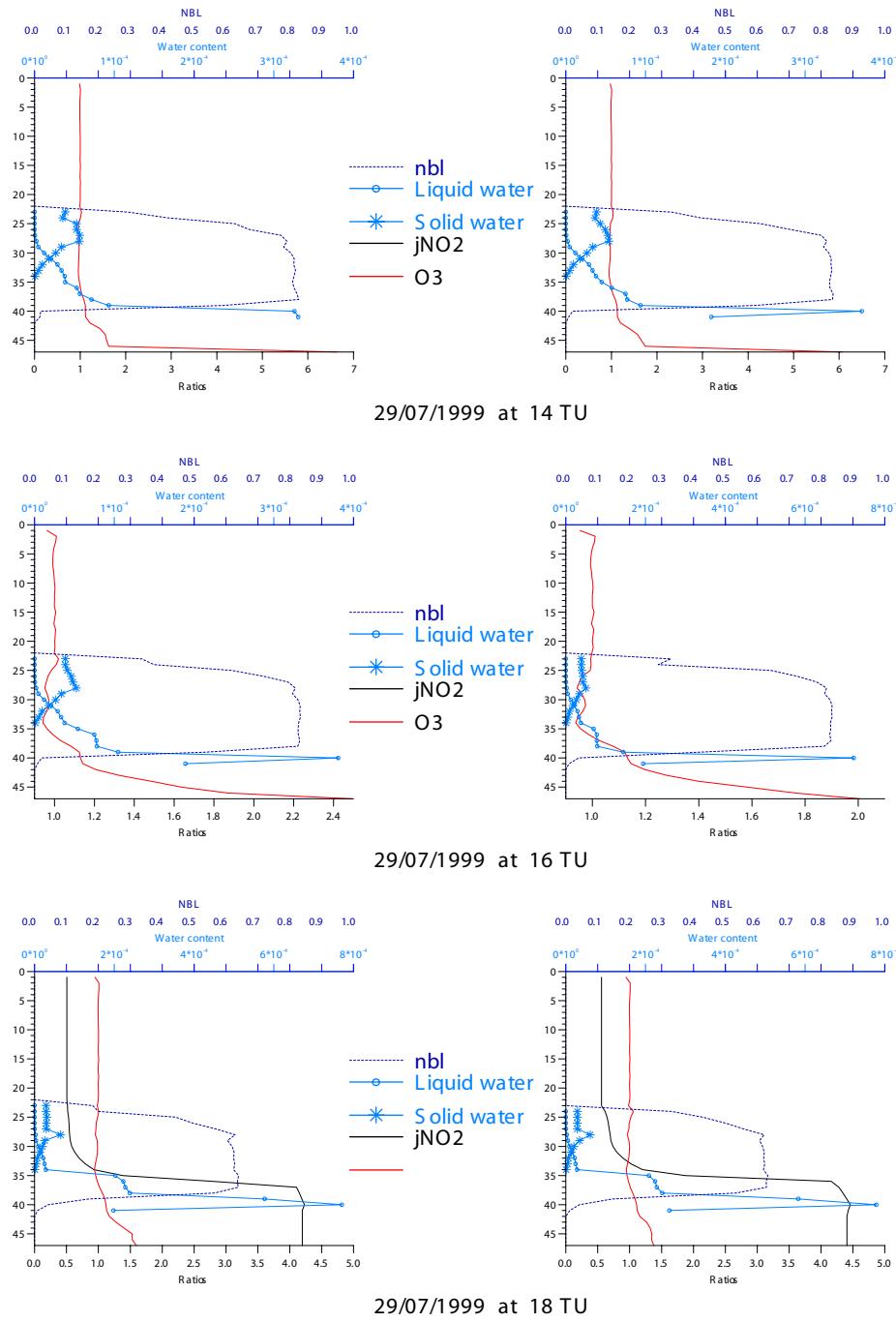


Fig. 2.30 – POI8 Coupe à la verticale du point de coordonnées 1°20E-48N, au cœur du nuage simulé. La nébulosité est en trait pointillé bleu foncé, les contenus en eau liquide et solide (en bleu clair) sont exprimés en rapport de mélange. Les traits pleins noir et rouge représentent, respectivement pour l'ozone et le jNO₂, le rapport entre la valeur dans la simulation sans prise en compte de la nébulosité et la valeur de la simulation avec nébulosité.

2.3.7 Conclusions

La simulation des POI 5 à 8 du projet ESQUIF ont permis de confronter la première version "qualité de l'air" du modèle de chimie-transport MOCAGE à un ensemble dense de mesures à la fois au sol et en altitude.

Les résultats du modèle concernant les concentrations d'ozone sont relativement satisfaisants tant au niveau des valeurs de fond à l'échelle régionale qu'en ce qui concerne le développement des panaches sous le vent de l'agglomération ; par contre, la simulation réaliste des niveaux d'ozone des zones fortement urbanisées ou industrielles s'est révélée hors de portée de la configuration utilisée, sans surprise compte-tenu de la résolution de l'inventaire d'émissions employé.

Par ailleurs, la simulation des composés azotés présente des erreurs beaucoup plus importantes que pour l'ozone. Au sol, la sous-estimation est systématique et très importante pour les valeurs de NO_x en zone urbaine (jusqu'à un facteur 10) ; les valeurs péri-urbaines et rurales polluées sont en revanche mieux reproduites. Les résultats sont identiques pour les observations des vols avions (NO_x , NO_y et HNO_3) : sous-estimation chronique lors du survol de Paris intra-muros, mais pas de biais systématique dans les panaches régionaux.

Suite à ce travail, nous avons décidé d'apporter plusieurs évolutions au modèle :

- **utilisation d'un cadastre d'émissions de résolution plus fine** en rapport avec les difficultés de cette configuration du modèle à appréhender les concentrations ainsi que les régimes chimiques dans les zones proches des sources d'émissions.
- **utilisation d'un forçage météorologique de résolution plus fine** puisque même dans une zone aussi "simple" que le bassin Parisien (en terme de cadastre d'émissions et de météorologie), il s'est avéré que les panaches avaient des structures très hétérogènes, particulièrement dans les situations météorologiques de vent très faible. Sur la base d'une POI et de 4 modèles de chimie, les simulations les plus performantes au niveau des structures étaient celle du modèle de méso-échelle aussi bien au sol qu'en altitude.
- **conservation d'un schéma chimique relativement complexe** : en effet, toujours lors de l'exercice d'intercomparaison, MOCAGE (dont le schéma chimique était le plus complet) est le seul modèle à simuler une variabilité des vitesses de production d'ozone, la justification première étant que MOCAGE ne doit pas seulement simuler des zones "polluées" et leurs réactions, mais aussi des zones très "propres" (domaine Global).

D'autre part, sans que cela fasse partie à proprement parler de la configuration du modèle, il s'est avéré nécessaire de **porter une attention particulière à la période de spin-up du modèle**. En effet, l'importance de la production locale de photo-oxydant, même sur une région fortement émettrice comme l'Ile de France, n'est pas forcément prédominante sur les flux horizontaux à plus grande échelle : Menut et al. (2000) conclue à 50/50. Pour que ces flux soient corrects, il est donc nécessaire que la simulation ait déjà couru sur plusieurs jours. Quant aux flux verticaux, la période de mise à l'équilibre doit au moins être égale au temps caractéristique des systèmes synoptiques (c'est à dire environ 1 semaine) : par exemple, un filament stratosphérique atteignant la moyenne et basse troposphère ne sera bien simulé chimiquement que si la simulation couvre la période de

génèse de la perturbation qui lui donnera naissance et au cours de laquelle la masse d'air concernée se chargera en ozone. Aussi, nos simulations ESQUIF sans spin-up ne peuvent pas rendre la totalité du signal observé.

Enfin, se pose la question de **la fréquence du forçage météorologique**. Même si, pour des raisons techniques d'archivage des données météorologiques, la fréquence du forçage a été maintenue à 3 heures dans MOCAGE, l'importance de l'advection et de la hauteur de la couche de mélange dans la modélisation de la qualité de l'air nécessiterait sans doute un couplage plus étroit entre dynamique et chimie.

Chapitre 3

La campagne ESCOMPTE

Sommaire

3.1 Présentation	63
3.2 Le dispositif	64
3.2.1 Les mesures des réseaux permanents	65
3.2.2 Les mesures in-situ spécifiques à la campagne	66
3.2.3 Les radiosondages chimiques	66
3.2.4 Les mesures LIDAR	67
3.2.5 Les mesures aéroportées	67
3.3 MOCAGE à l'étude du "temps chimique" des Bouches-du-Rhône .	70
3.3.1 Résumé en français	70
3.3.2 Article en anglais	71
3.4 Enseignement de l'exercice de modélisation	101
3.4.1 Les composés primaires : CO, SO ₂ , NO _x	101
3.4.2 L'ozone	101

3.1 Présentation

Le programme "Expérience sur Site pour COntraindre les Modèles de Pollution atmosphérique et de Transport d'Emissions" (ESCOMPTE) avait pour mission de produire un ensemble cohérent de données pour évaluer les modèles régionaux de qualité de l'air (Cros et al. (2003)). Il comprend à cet égard deux volets : la réalisation d'un inventaire d'émissions à haute résolution à la fois spatiale et temporelle et la coordination d'une campagne de terrain.

Le programme était piloté par B. Cros (LA) et P. Durand (CNRM) et impliquait une trentaine d'équipes différentes de France, Allemagne, Suisse, Italie, Pologne, Etat-Unis et Canada. La campagne de mesure a eu lieu dans la région marseillaise sur les mois de juin et juillet 2001 dont 15 jours au total ont été intensivement documentés.

Le programme ESCOMPTE a ainsi permis d'établir sur cette région un cadastre d'émissions détaillé ainsi qu'une base de données renseignant à la fois la dynamique et la composition chimique de l'atmosphère durant des épisodes de pollution photochimique.

L'ensemble des données¹ recueillies permet d'améliorer la compréhension des processus dynamiques et chimiques en jeu ainsi que leur interaction, plus précisément, il ouvre la possibilité de :

- valider et améliorer les modèles numériques de qualité de l'air à l'échelle régionale
- comprendre et exploiter la relation entre émissions et mesures aéroportées
- améliorer les connaissances sur le lien entre dynamique atmosphérique et pollution atmosphérique
- améliorer les connaissances sur le lien entre température et niveaux de pollution au sens large du terme (émissions, cinétique, aspects dynamiques et radiatifs)
- étudier l'interaction entre zone urbaine et rurale dans le contexte particulier de Marseille et de l'étang de Berre
- déterminer l'influence des aérosols sur la pollution photochimique.

Les questions scientifiques associées étant :

- quels sont les rôles respectifs de la chimie et de la dynamique dans les épisodes de pollution ?
- Quelle méthodologie adopter pour prendre en compte de façon optimale des émissions urbaines dans un modèle régional ou global ?
- Est-il possible de mettre en place un système de prévisions opérationnelles de qualité de l'air et avec quelles performances ?
- Quelle est la contribution respective de la production locale d'ozone par rapport à l'advection d'ozone dans cette région particulière ?
- Quelles sont les stratégies politiques à mettre en oeuvre pour réduire les concentrations d'aérosols et de photo-oxydant dans cette région ?

En outre, deux autres projets se sont greffés sur le programme ESCOMPTÉ : l'expérience de Couche Limite Urbaine (CLU) ainsi que l'expérience de tomographie de vapeur d'eau par GPS (GPS/H₂O).

Enfin, un rôle important a été joué par les travaux de modélisation :

- dans la définition même des objectifs détaillés du programme et la spécification du cadastre d'émissions
- dans la phase exploratoire de mise en place de la campagne de terrain : extension géographique du domaine d'étude, positionnement des moyens de mesures, ... (voir par exemple Meleux (2002))
- pendant le déroulement même de la campagne où les deux modèles CHIMERE et MOCAGE fournissaient des prévisions en temps réels à échéance de 2 jours dans le cadre du projet PIONEER (voir §4.1)
- dans la phase d'exploitation avec l'organisation d'un exercice de modélisation² auquel 12 modèles ont participé.

3.2 Le dispositif

La zone d'intérêt couvre une région de 120 km x 120 km autour de la région Marseillaise (voir figure 1 de l'article reproduit au paragraphe 3.3). Elle a été choisie pour 3 raisons

¹Base de données en accès libre hébergée sur le site <http://medias.obs-mip.fr/escompte>

²<http://medias.obs-mip.fr/escompte/exercice/HTML/exe.html>

principales :

- ses fortes émissions à la fois industrielles et urbaines
- l'occurrence fréquente d'épisodes de pollution photochimique intense
- la présence d'un réseau opérationnel dense de surveillance de la qualité de l'air (AASQA AIRMARAIX et AIRFOBEP).

Une autre de ses caractéristiques réside dans sa dynamique extrêmement complexe. L'orographie intervient à différentes échelles : Alpes et Massif central pour la canalisation synoptique des masses d'air dans la vallée du Rhône (Mistral) ou massifs plus modestes entraînant des effets plus locaux (Sainte-Baume, Sainte Victoire, Luberon et Mont Ventoux). S'y superposent les effets de brises dû à la mer Méditerranée et également à l'étang de Berre.

”Modéliser la région” est une véritable gageure pour les modèles de l'état-de-l'art, qu'ils soient météorologiques ou de chimie-transport.

La campagne de terrain a permis de documenter en 3 dimensions les paramètres météorologiques standards (pression, température, vent et humidité) ainsi que les flux turbulents, les flux d'espèces chimiques aux interfaces sol-atmosphère et biosphère-atmosphère (ozone, oxydes d'azote, isoprène), un grand nombre d'espèces entrant dans le cycle de l'ozone ainsi que les aérosols.

Le dispositif combinait mesures aéroportées (7 avions), mesures in-situ (15 sites en sus de ceux des réseaux de surveillance de qualité de l'air opérationnels), profils verticaux (5 Lidars ozone, 33 ballons à volume constant, 15 profileurs de vent, 1 lidar Doppler, 4 sites de radiosondage) ainsi que des mesures maritimes (2 bateaux équipés).

Les paragraphes 3.2.1 à 3.2.4 détaillent les mesures chimiques dont nous nous sommes servis pour les résultats de l'article présenté ainsi que les résultats de l'exercice d'inter-comparaison.

Une plus-value indéniable de la base de données constituée réside dans la semaine de calibration du début de la campagne (Quality Control/ Quality Assurance week) qui a permis de comparer l'ensemble des moyens de mesures en situation réelle et de dégager des incertitudes génériques sur chacun des paramètres mesurés dans des conditions proches de celles de la campagne elle-même (Frejafon et al. (2005) et Said et al. (2005)). Ainsi, l'intervalle de confiance des mesures a été évalué en conditions réelles tous instruments et plate-forme de mesure confondus. L'incertitude globale pour les mesures d'ozone a été évalué à 20 % en altitude et au sol ; et celle des mesures de NO_x à 15 % (avec des dérives de l'ordre de 6 % par semaine pour certains instruments). Pour plus de détails, se reporter à l'annexe C.1.

3.2.1 Les mesures des réseaux permanents

Il s'agit des réseaux mis en oeuvre par les associations locales de surveillance de la qualité de l'air.

Celles-ci sont au nombre de deux :

- AIRFOBEP est la plus ancienne, initialement chargée d'évaluer l'impact environnemental des émissions du complexe industriel de la région de l'étang de Berre. Son réseau est constitué de 34 stations.
- AIRMARAIX gère 29 stations et est en charge de l'Est des Bouches-du-Rhône, du Var et du Vaucluse comprenant les agglomérations Marseille, Aix-en-Provence, Aubagne, Toulon

et Avignon.

Aussi, une soixantaine de sites fournissent des données en continu parmi les polluants réglementés : O₃, NO, NO₂, SO₂, CO, PM₁₀, ainsi que H₂S et hydrocarbures totaux. Certaines stations sont de plus instrumentées pour mesurer des paramètres météorologiques (température, vitesse et direction du vent).

Les caractéristiques des mesures utilisées pour l'ozone et les oxydes d'azotes sont identiques à celles présentées dans le tableau 2.2, exceptée la norme pour les mesures d'ozone qui est la NF X 43-024 ; pour les autres composés utilisés pour l'évaluation du modèle, voir tableau 3.1.

	SO₂ dioxyde de souffre	CO monoxyde de carbone	HT Hydrocarbures totaux
Norme AFNOR	NF X 43-OIFI	NF X 43-044	
Méthode de mesure	Fluorescence UV	Absorption IR	CPG

TABLEAU 3.1 – *Méthodes de mesures et des mesures de dioxyde de souffre, monoxyde de carbone et hydrocarbures totaux utilisées par les AASQA AIRMARAIX et AIRFOBEP.*

3.2.2 Les mesures in-situ spécifiques à la campagne

Les sites instrumentés pour la chimie étaient dédiés à l'étude lagrangienne de l'évolution de la composition chimique du panache, l'idée étant de permettre de suivre les masses d'air depuis les sources jusqu'en zone rurale. Les 18 sites sont ainsi classés en 3 groupes selon leur distance aux sources d'émissions : sites "émissions", sites "intermédiaires" et enfin sites "isolés". Les routes climatologiques privilégiées des panaches de la région étaient pourvues d'au moins 1 site de chaque groupe (voir implantation des stations "C" figure 3.1).

Les composés mesurés en phase gazeuse étaient, en considérant toutes les mesures effectuées sur l'ensemble des sites : O₃, NO/NO₂, NO_y, PAN, HNO₃, HONO, COV, RCHO, H₂O₂, CO et SO₂. Les composés mesurés ainsi que les caractéristiques des mesures du site de Realtor utilisées dans notre article sont données en annexe C.2 ; pour les autres mesures, il est possible de se reporter sur le cahier d'opération de la campagne (Cros et al. (2001)).

3.2.3 Les radiosondages chimiques

Le site de radiosondage de l'Observatoire de Haute Provence (OHP) fait partie du réseau de "ozone profiling network" et fournit un radiosondage d'ozone tout les mercredi à 10HTU. Durant la campagne, d'autres lâchers occasionnels ont eu lieu durant les POI (5 lâchers durant la campagne dont 4 pendant les différentes POI).

Le site d'Aix-les-Milles (noté RS1 sur la figure 3.1), mis en oeuvre par le CNRM, a également réalisé des radisondages équipés d'un capteur d'ozone : 3 à 4 par jours de POI. La mesure d'ozone est effectuée avec des sondes electrochimiques (E.G.C.) couplées avec des sondes PTU / GPS de Vaisala RS80GE. On obtient une mesure toutes les 10 secondes des données ozone, pression, température, humidité et vent.

Enfin, un ballon captif (LA) équipé de 3 sondes (paramètres météorologiques, ozone, paramètres turbulents) était installé à l'Observatoire de Marseille dans le cadre de la campagne associée CLU. Il a permis de documenter 7 jours des POI.

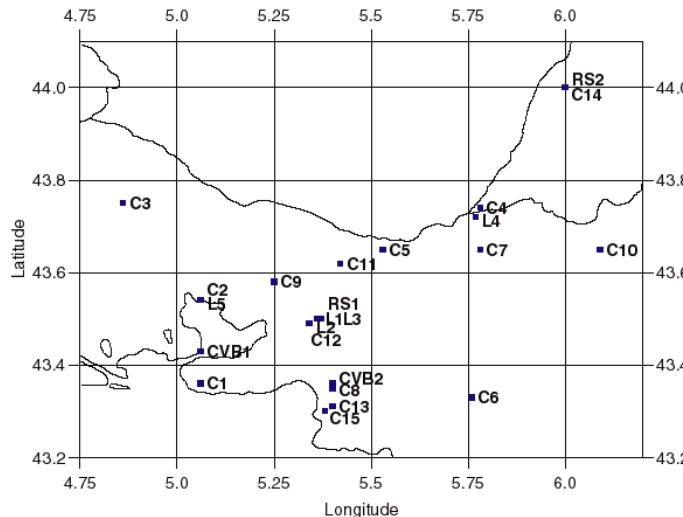


FIGURE 3.1 – Localisation des sites de mesures chimiques in-situ spécifiques de la campagne ESCOMPTE : C pour site chimique, CVB pour site de lâcher de ballons à volume constant, L pour les sites équipés de lidar ozone et RS pour le site de radiosondage fournissant des profils d'ozone.

3.2.4 Les mesures LIDAR

Le LIDAR (LIght Detection And Ranging) est un système de télédétection optique qui repose sur une technologie laser. Il permet de mesurer à distance la concentration de différents polluants atmosphériques.

Cinq lidars ozone/ aérosols ont permis de documenter la stratification et les concentrations verticales d'ozone. Ils étaient situés à la fois près des sources (L5 à Saint-Chamas et L3 à Vallon Dol), en zone intermédiaire (L1 à Aix-les-Milles et L2 à Réaltor) et en zone rurale (L4 à Cadarache) comme indiqué figure 3.1.

Leurs caractéristiques sont résumées tableau 3.2.

	Institut	Type	Extension verticale (en m)	Résolutions verticales Min/Max (en m)	Précision
L1	SA	Vertical	500 à 7 000	200/1 000	10 %
L2	BTU	Angulaire	5 à 3 000	50/200	5 %
L3	INERIS UCLO	Angulaire	5 à 3 000	50/200	5 %
L4	INERIS	Vertical	100 à 3 000	100/200	10 %
L5	EPFL	Vertical	500 à 7 000	200/1 000	10 %

TABLEAU 3.2 – Caractéristiques des mesures LIDAR effectuées durant ESCOMPTE. La première colonne renvoie à la localisation des appareils donnée sur la figure 3.1.
La limite de détection de l'ensemble des appareils est $2\text{-}3 \mu\text{g.m}^{-3}$.

3.2.5 Les mesures aéroportées

Elles sont l'une des composantes principales de la campagne, avec 125 vols documentés représentant plus de 300 heures de mesures.

Une flotte de six avions a été mise en oeuvre : le Fokker 27 ARAT de l'INSU, le Merlin IV et le Piper Aztec 23 de Météo-France, le Dornier 128 de l'IMK, l'ULM de l'IFU ainsi que

le Falcon 20 du DLR, dédié à l'exploration tri-dimensionnelle du vent (instrument WIND-lidar DOPPLER- embarqué à bord). Les mesures chimiques, présentées précisément pour chaque avion tableau 3.3, concernent essentiellement le cycle de l'ozone : ozone, composés azotés (NO_x , NO_y , PAN, HNO_3) ainsi que pour certains avions les composés organiques volatils (C5 à C10) et des mesures de taux de photolyse (J_{NO_2} et $J_{\text{O}_1\text{D}}$).

Les trajectoires des avions suivaient cinq plans de vol prédéterminés présentés figure 3.2 répondant aux objectifs suivant :

- vols "exploration" : approche 2D afin de déterminer la composition chimique et les paramètres météorologiques sur l'ensemble de la zone ESCOMPTÉ sur des niveaux de vol constants ponctués de sondages verticaux afin de documenter les masses d'air entrantes
- vols "condition aux limites" : approche 2D afin de déterminer la composition chimique et les paramètres météorologiques des masses d'air entrant dans la zone ESCOMPTÉ à la fois provenant de la vallée du Rhône mais également de la Méditerranée.
- vols "brise de mer" : caractérisation d'un plan perpendiculaire à la côte documentant à la fois le continent (sur 120 km) et la mer (sur 50 km).
- vols "panache" : étude spécifique de la canalisation du panache dans la vallée de la Durance
- vols "couche limite urbaine" : étude de la variabilité entre Marseille et son environnement proche.

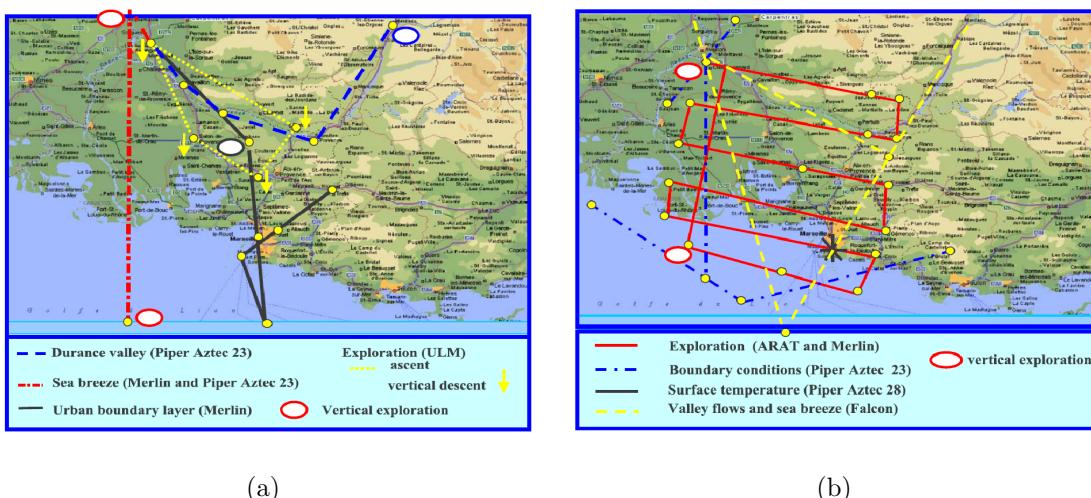


FIGURE 3.2 – Trajectoires au sol des différents types de vol suivis par les avions durant les POI ESCOMPTE. Source : Cros et al. (2003).

(a) Vol "brise de mer" (pointillés rouges), vol "panache de la Durance" (pointillés bleus), Vol "couche limite urbaine" (trait plein noir), vols "exploration" spécifique à l'ULM avec 4 branches ascendantes terminées par des profils verticaux descendants indiqué par les flèches (pointillés jaunes).

(b) Vol "exploration" des appareils autres que l'ULM (trait plein rouge), vol "conditions aux limites" (pointillés bleus) ainsi que les trajectoires dédiées à la dynamique : vol dédié aux flux des vallées du Rhône et de la Durance (pointillés jaune) ainsi que la trajectoire en étoile sur la ville de Marseille pour mesurer la température de surface (traits pleins noirs).

Les disques blancs correspondent aux explorations verticales des différents plans de vol.

Appareil (Institut)	Paramètre(s)	Instrument
ARAT (INSU)	O ₃ NO, NO ₂ , NO _y , PAN, HNO ₃ COV (C5 - C10) CO J _{NO₂}	Thermo Electron Inst 49 MONA (Chimiluminescence) Pièges Thermo-électron (MOZAIC) MeteoConsult
MERLIN (Météo-France)	O ₃ NO, NO ₂ , NO _y , PAN, HNO ₃ COV (C5 - C10) CO J _{NO₂} H ₂ O ₂	Thermo Electron NOxTOy Metair (Luminol) Pièges Thermo-électron (MOZAIC) MeteoConsult Aérolaser
PIPER AZTEC 23 (Météo-France)	O ₃ NO, NO ₂ , NO _y , PAN, HNO ₃ COV (C5 - C10)	Environnement SA NOxTOy Metair (Luminol) Pièges
DORNIER 128 (IMK)	O ₃ NO, NO ₂ , NO _y CO CO ₂	Environnement SA NOxTOy Metair (Luminol) Aéro Laser 5001 LICOR
ULM MIFU (IFU)	O ₃ J _{NO₂} , J _{O_{1D}} , Radiation Globale	Photomètre UV Radiomètres + LICOR

TABLEAU 3.3 – Paramètres chimiques gazeux mesurés par les différents avions participant à la campagne ESCOMPTE ainsi que les instruments embarqués correspondants. Source : Plan d’opération ESCOMPTE, Cros et al. (2001).

3.3 MOCAGE à l'étude du "temps chimique" des Bouches-du-Rhône

3.3.1 Résumé en français

Cet article s'attache à évaluer et quantifier les incertitudes attachées aux systèmes de modélisation de chimie-transport sur la base de deux périodes d'observation intensive (POI2 du 20 au 26 juin et POI4 du 10 au 14 juillet 2001) et du modèle MOCAGE dans une configuration globale à domaines imbriqués comprenant la troposphère et la basse stratosphère.

Les simulations de référence sont tout d'abord comparées à la base de données d'observation, comprenant sites de mesures au sol et en altitude : mesures aéroportées, radiosondages, mesures LIDAR. On s'est attaché à mettre en évidence et étudier la variabilité observée et modélisée tant dans la couche de mélange que dans la troposphère libre. Si les simulations présentent ponctuellement des erreurs, notamment de positionnement du panache et de flux entrants (comme pour la journée du 24 juin par exemple), le comportement du modèle est globalement satisfaisant concernant la présence ou non d'un panache, son déplacement, la variabilité de son extension verticale et horizontale, ainsi que la variabilité des couches de la troposphère libre, caractéristique tout à fait particulière à MOCAGE. Le tableau 1 présente quelques indicateurs statistiques sur les POI2 et 4 pour un ensemble de stations des réseaux des ASQAA locales, tant pour l'ozone que les oxydes d'azote. Les scores sont raisonnables et les tendances de moyenne et d'écart-type sur les 2 POI sont bien cohérentes entre simulations et observations. De même, la figure 3 illustre la capacité du modèle à fournir en début de journée des concentrations d'ozone correctes, sur l'ensemble de la couche de mélange, présentant la bonne gamme de variabilité géographique ET inter-journalière. Les mesures aéroportées simultanées d'ozone et de NO_x ont permis d'autre part d'accéder à une quantification de la variabilité de la réactivité du cycle photochimique de l'ozone par le biais du rapport O_x/NO_z . Ils sont reportés sur la figure 4. Le schéma chimique utilisé semble suffisamment raffiné pour saisir les principales lignes dans la couche limite où volaient les avions, caractéristique déjà constaté dans le cadre d'ESQUIF (voir chapitre 2). Enfin, les figures 5 et 6 illustrent la très grande variabilité des couches de la troposphère libre dans les radiosondages et les mesures LIDAR lors de la POI2, avec notamment des masses d'air très riche en ozone (d'origine stratosphérique) mais également très pauvre (venant des troposphères libres propres nord-atlantique et nord-africaine).

Une fois la simulation de référence validée, trois études de sensibilité sont appliquées au système de modélisation concernant les conditions aux limites chimiques, la précision du cadastre d'émissions et la représentation de la chimie.

Le paragraphe 3.2 traite de la sensibilité aux conditions limites chimiques, sur l'horizontale ainsi que sur la verticale. MOCAGE étant un modèle global, tropo-stratosphérique, nous avons limité les degrés de liberté du système progressivement en forçant une partie des domaines et/ou une portion de la verticale par une climatologie tri-horaire établie spécifiquement sur la période de la POI2. Nous disposons alors de 4 simulations : (1) "TOP" désigne l'expérience pour laquelle le modèle est libre sous 5000 mètres, hauteur à partir de laquelle la climatologie est appliquée, (2) l'expérience "FRA" : seul le domaine couvrant le quart Sud-Est de la France est laissé libre, forcé latéralement par la climato-

Section 3.3 : MOCAGE à l'étude du "temps chimique" des Bouches-du-Rhône

logie appliquée au domaine couvrant la France, (3) l'expérience "EURO" : la contrainte est plus faible, puisque le domaine couvrant la France est libre, forcé latéralement par la climatologie appliquée au domaine couvrant l'Europe et (4) enfin la simulation de référence. La figure 6 s'appuyant sur les profils verticaux d'un LIDAR-ozone illustre que chacun de ces degrés de liberté explique une partie de la variabilité observée, et ce, même dans la couche de mélange, avec un impact au sol sur la zone pouvant atteindre 10 ppb bien que l'épisode de la POI2 soit majoritairement pilotée par les phénomènes locaux d'émissions et de re-circulation. Cette étude est consistante avec d'autres travaux récents couplant modèles à aire limitée et modèles hémisphériques ou globaux pour la simulation de la pollution estivale (Langmann et al. (2003) ou le projet GLOREAM³, initié au sein du projet EUROTAC en 1997 et se poursuivant au sein du réseau d'excellence ACCENT).

Le paragraphe 3.3 étudie l'impact du raffinement des émissions sur les simulations. Nous disposons pour cela de 3 jeux d'émissions correspondant à 3 simulations notées entre guillemets : (1) l'inventaire global EDGAR/GEIA (expérience "EDG") (2) l'inventaire européen GENEMIS (expérience "GEN") et (3) l'inventaire régional spécifique ESCOMPTE (expérience "ESC") dont les caractéristiques sont présentées tableau 2. Les totaux journaliers sur le domaine ESCOMPTE sont comparables pour les 3 inventaires pour la plupart des composés (e.g. les NOx) excepté pour certains COV (notamment l'isoprène). Par ailleurs, la spatialisation et la répartition journalière diffèrent (voir figure 10). De manière générale, les simulations sont améliorées lorsque l'inventaire utilisé est spécifique à la fois au sol et en altitude, ainsi que pour les composés primaires et secondaires comme illustré sur les figures 11 et 12.

Le paragraphe 3.4 s'intéresse à l'impact d'un autre choix de paramétrisation d'importance : celle de la chimie, par utilisation de deux schémas de l'état de l'art de la pollution photochimique : RACM (Stockwell et al. (1997)) et SAPRC (Carter (1999)). La sensibilité des simulations est relativement forte étant donné que la complexité de ces deux schémas est équivalente, avec des différences notamment sur la chimie nocturne mais aussi sur la réactivité diurne du cycle de l'ozone plus réactif pour SAPRC (cf figures 12 et 13).

Les conclusions principales de cette étude concernent donc d'une part la capacité du modèle MOCAGE dans sa configuration "qualité de l'air" à reproduire les grandes lignes d'un épisode photochimique à l'ozone sur toute une gamme de composés primaires et secondaires, à la fois au sol et en altitude, bien qu'utilisant un forçage hydrostatique et une résolution d'une dizaine de kilomètres. D'autre part, la sensibilité du système de modélisation à la variabilité des conditions aux limites chimiques verticales et horizontales, aux inventaires d'émissions ainsi qu'à la représentation de la chimie a été testée. De façon assez intéressante, les incertitudes liées à ces 3 processus comparées à l'erreur totale du modèle sont du même ordre de grandeur, tout au moins sur la POI2, mais qui représente un cas typique d'épisode photochimique de la région selon AIRMAIX et AIRFOBEP.

3.3.2 Article en anglais

³<http://www.gsf.de/eurotrac/subprojects/sp-glo-f.htm>



ELSEVIER

ATMOSPHERIC
RESEARCH

Atmospheric Research 74 (2005) 161–189

www.elsevier.com/locate/atmos

Observed and modelled “chemical weather” during ESCOMPTE

A. Dufour^{a,*}, M. Amodei^a, G. Ancellet^b, V.-H. Peuch^a

^a*Météo-France, Centre National de Recherches Météorologiques, 42, avenue G. Coriolis,
Toulouse 31057, France*

^b*Service d’Aéronomie, Institut Pierre-Simon Laplace, Paris, France*

Received 1 July 2003; received in revised form 1 January 2004; accepted 1 April 2004

Abstract

The new MODèle de Chimie Atmosphérique à Grande Echelle (MOCAGE) three-dimensional multiscale chemistry and transport model (CTM) has been applied to study heavy pollution episodes observed during the ESCOMPTE experiment. The model considers the troposphere and lower stratosphere, and allows the possibility of zooming from the planetary scale down to the regional scale over limited area subdomains. Like this, it generates its own time-dependent chemical boundary conditions in the vertical and in the horizontal. This paper focuses on the evaluation and quantification of uncertainties related to chemical and transport modelling during two intensive observing periods, IOP2 and IOP4 (June 20–26 and July 10–14, 2001, respectively). Simulations are compared to the database of four-dimensional observations, which includes ground-based sites and aircraft measurements, radiosoundings, and quasi-continuous measurements of ozone by LIDARs. Thereby, the observed and modelled day-to-day variabilities in air composition both at the surface and in the vertical have been assessed. Then, three sensitivity studies are conducted concerning boundary conditions, accuracy of the emission dataset, and representation of chemistry. Firstly, to go further in the analysis of chemical boundary conditions, results from the standard grid nesting set-up and altered configurations, relying on climatologies, are compared. Along with other recent studies, this work advocates the systematic coupling of limited-area models with global CTMs, even for regional air quality studies or forecasts. Next, we evaluate the benefits of using the detailed high-resolution emissions inventory of ESCOMPTE: improvements are noticeable both on ozone reactivity and on the concentrations of various species of the ozone photochemical cycle especially

* Corresponding author. Tel.: +33 5 61 07 93 50; fax: +33 5 61 07 96 10.
E-mail address: Anne.Dufour@meteo.fr (A. Dufour).

primary ones. Finally, we provide some insights on the comparison of two simulations differing only by the parameterisation of chemistry and using two state-of-the-art chemical schemes for regional photochemical modelling. Regional air quality modelling is found to be highly sensitive to the emission inventory dataset and also to the vertical and horizontal boundary conditions and detailed representation of chemistry. Interestingly enough, they infer the same range of errors compared to total model errors.

© 2004 Elsevier B.V. All rights reserved.

Keywords: Photochemical pollution; Regional air quality; Ozone; LIDAR; 3D chemistry and transport modelling

1. Introduction

One of the principal objectives of the ESCOMPTE field programme was to establish a database of four-dimensional observations of dynamics and chemistry, for the evaluation of the chemistry and transport models (CTMs), at the regional scale. Heavy natural and anthropogenic emissions with close residential, road traffic, and industrial sources; complex mesoscale meteorology due to the vicinity of the coast and of orography; as well as hot and sunny conditions make air quality in the Marseilles region (see Fig. 1), Southeastern France, particularly interesting to study and challenging to model (Cros et al., 2004). In addition, this coastal Mediterranean region is at the confluence of planetary-scale pollution (Lelieveld et al., 2002). Indeed, the field campaign in June–July 2001 observed a wide variety of episodes at the surface and in altitude. There have been several recent campaigns, dedicated to the documentation of polluted episodes and to the study of photochemical processes in the vicinity of large European conurbations such as BERLIOZ, around Berlin (Volz-Thomas et al., 2000), PIPAPO around Milano (Neftel, 1999), and ESQUIF around Paris (Menut et al., 2000). However, the ESCOMPTE site is probably more complex and the database that was collected is unique, comprising of in situ surface and altitude measurements as well as remotely sensed data. We describe in this paper the chemical context of two intensive observing periods (IOPs) of the campaign and compare them with the simulations performed with the new multiscale CTM MOdèle de Chimie Atmosphérique à Grande Echelle (MOCAGE) of Météo-France, first of all, to test the chosen configuration for air quality applications against a dense observational database in a complex environment, and then to quantify uncertainties linked to different processes of tropospheric chemistry modelling, namely large-scale pollution transport, stratospheric impact on the composition of the troposphere, refinement of emission inventory, as well as representation of the chemistry (see also Cousin et al., 2001; Menut et al., this issue).

The model set-up and the periods studied are presented in Section 2. In Section 3, model results are analysed. The ability of the model to reproduce the high variability encountered during the campaign is assessed (Section 3.1). Lastly, results of three sensitivity studies are presented concerning the impact of:

- upper and horizontal chemical boundary conditions (Section 3.2)
- emissions inventory (Section 3.3)

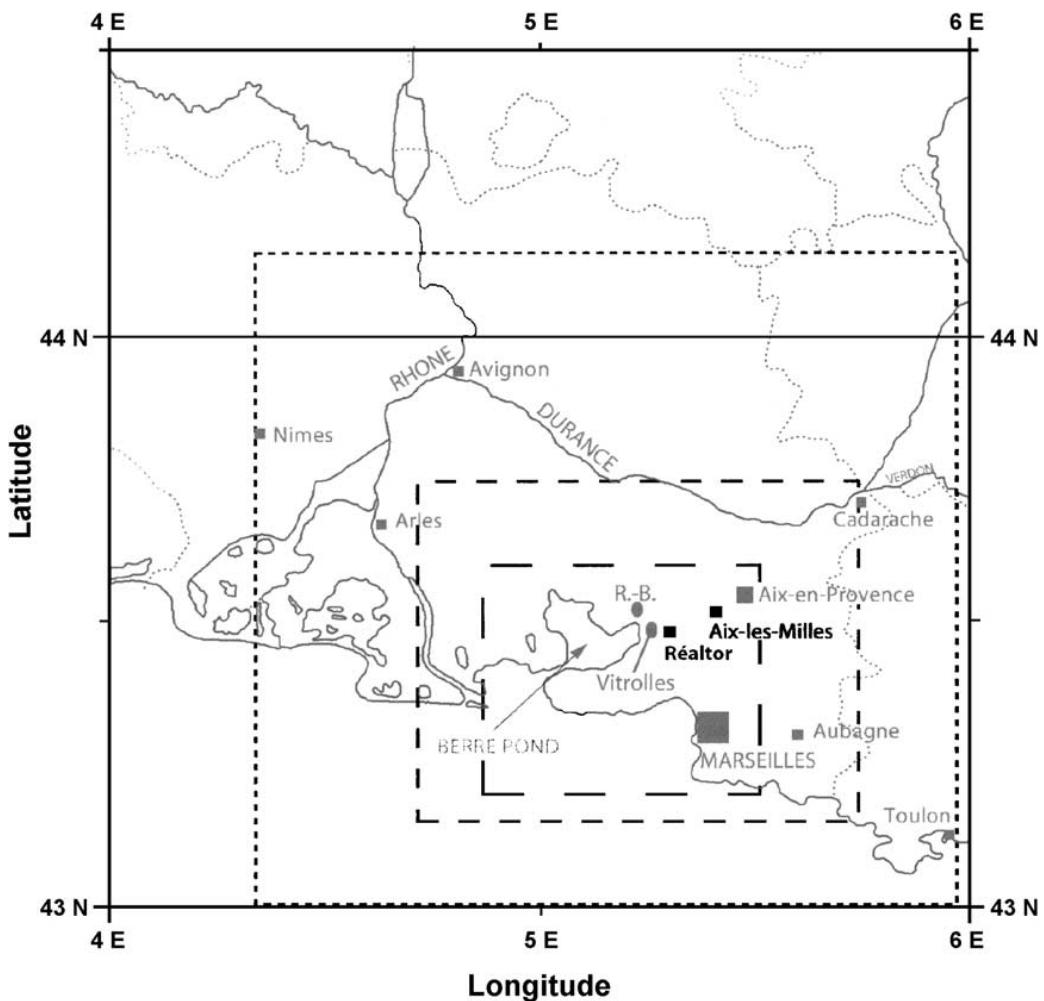


Fig. 1. Map of the ESCOMPTE area. The surface measurement sites used in the present work are reported (“R-B” is for Rognac-Barjaquet, which is listed in Table 1). Three rectangular domains appear: (1) the inner domain (large dash) is the “emissions” zone encompassing both the city of Marseilles and the Berre Pond industrial area; (2) the “intermediate” domain (medium dash) is a zone of active photochemistry and of mixing between the different plumes of the “emissions” zone; and (3) the outer domain (small dash) is the so-called “ESCOMPTE domain A”, which encompasses the previous domains and includes relatively remote areas such as the Luberon mountain.

- representation of the ozone photochemical cycle and tropospheric chemistry (Section 3.4).

2. Model set-up and ESCOMPTE observing periods studied

MOCAGE is the new multiscale CTM of Météo-France (Peuch et al., 1999) based on the REPROBUS CTM (Lefèvre et al., 1994). However, whereas REPROBUS only accounted for the stratosphere, MOCAGE considers simultaneously the troposphere and stratosphere at the planetary scale. In addition, it is possible within MOCAGE to zoom down to the regional scale over limited area subdomains, with the model providing its own time-dependent chemical boundary conditions. The computational structure of MOCAGE

is flexible, which allows the model to adapt and contribute to a wide range of scientific questions: “chemical weather” forecasts, i.e. variability in chemical compounds (in the type of configuration depicted in this study), global-scale tropospheric chemistry, and chemical data assimilation (Cathala et al., 2003) or coupled chemistry–climate scenarios. Thus, it belongs to the family of global models of the chemistry of the atmosphere along with other projects with the same philosophy (e.g., GATOR-GCMM, Jacobson, 2001a,b; MOZART, Brasseur et al., 1998; or GEM-AQ/MC2-AQ, Kaminski et al., 2003).

Depending on the application, MOCAGE can be run in both on-line (coupled to a general circulation model for climate studies for instance) and off-line mode (forced by archived meteorological analyses or forecasts). The latter configuration was chosen for the present study, using Météo-France ARPEGE-ALADIN operational Numerical Weather Prediction products. The dynamical fields (wind, temperature, humidity, and pressure) are provided as input to the advection scheme, as well as physical and chemical parameterisations. They are available every 3 h and linearly interpolated to yield hourly values, which is the time step for advection, while smaller time steps are used for physical processes and chemistry. MOCAGE is based upon a semi-Lagrangian advection scheme (Williamson and Rash, 1989), using a cubic polynomial interpolation in all three directions. At the expense of a specific mass conservation correction (applied every time step), the semi-Lagrangian formulation allows a large number of tracers to be simultaneously treated, typically on the order of one hundred or more. This configuration for advection was already used successfully within REPROBUS in the context of runs of several years (World Meteorological Organization, 1998).

One noticeable feature of MOCAGE is that it can simultaneously use several nested grids with increasing horizontal resolution down to a resolution of 0.08° over a limited-area region. The key point in such nested modelling of atmospheric chemistry is that the need for boundary conditions is largely bypassed and the only external condition needed is a monthly climatology of chemical compounds above 4 h Pa in order to take into account the Brewer–Dobson circulation in the upper stratosphere (World Meteorological Organization, 1998). The configuration used here comprises of four nested domains and is depicted in Fig. 2: the globe is gridded at 2° , a continental domain over Europe at 1° , a domain with France and neighbouring countries at 0.25° , and the southeastern quarter of France at a resolution of 0.08° . In addition to the ESCOMPTE domain, this fourth and innermost model domain covers a large portion of the Rhône Valley, including the chemical plants along it south of the city of Lyons. In the vertical, 47 hybrid (σ , P) levels go from the surface up to 5 h Pa, with approximately seven levels in the planetary boundary layer (PBL) from 40 to 700 m thick; 16 in the free troposphere and 24 in the stratosphere.

Concerning the physical and chemical parameterisations, an operator splitting approach is used. Parameterisations are called alternatively in forward and reverse order in order to reduce systematic errors. Several options are available within MOCAGE; we briefly mention in the following the option we have used. For subgrid-scale transport processes, vertical diffusion is treated following Louis (1979) and transport by convection is from Bechtold et al. (2001). A preprocessor allows the use of most of the chemical schemes available in the literature. The default configuration uses RACM (Stockwell et al., 1997). For the sensitivity study presented in Section 3.4, the SAPRC scheme (Carter, 1999) has

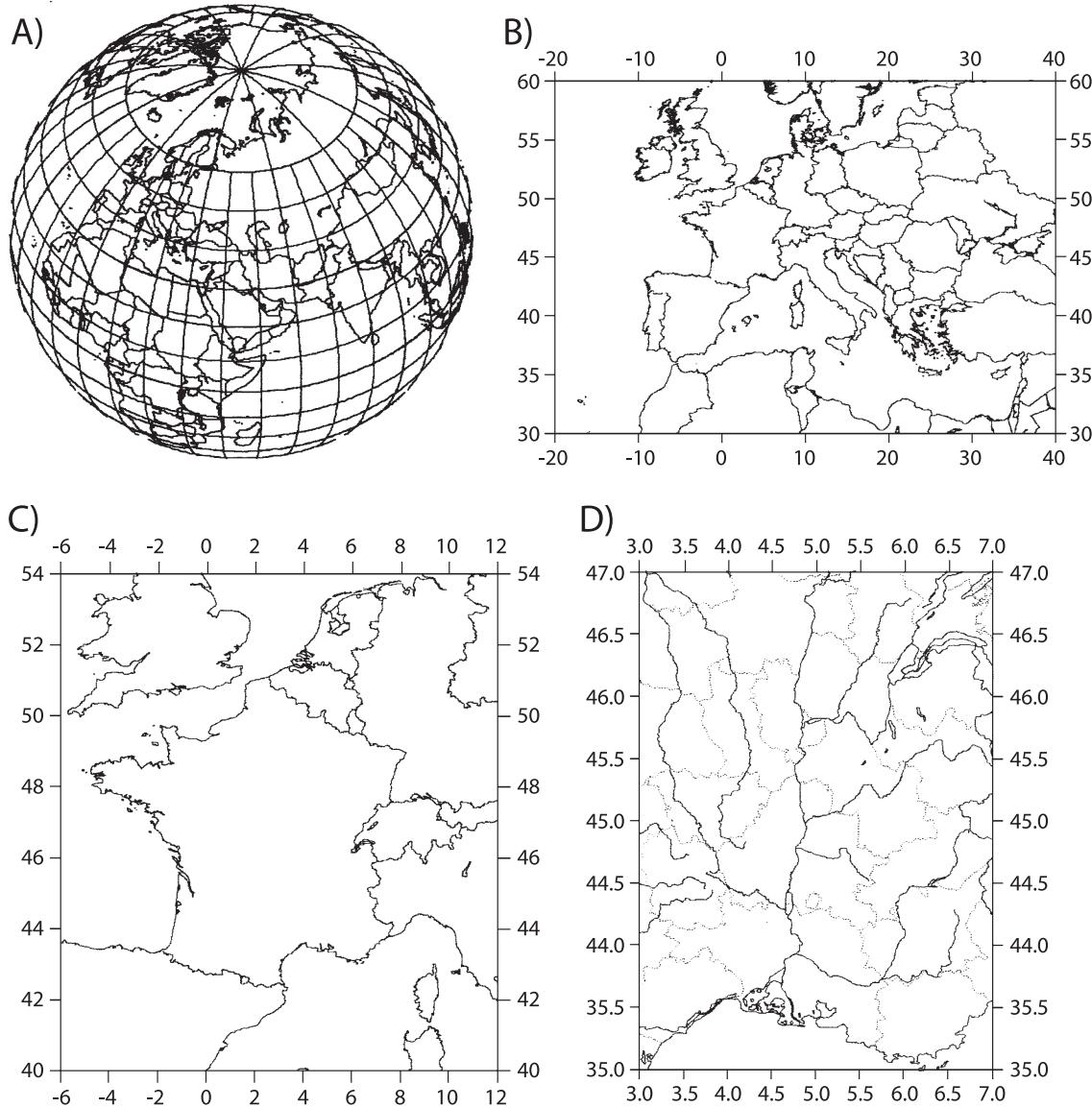


Fig. 2. Global-scale to mesoscale MOCAGE domains set-up used in the present study: (A) “global” domain at 2° horizontal resolution; (B) “continental” domain at 1° ; (C) “regional” domain at 0.25° ; and (D) “zoom” domain at 0.08° and including the ESCOMPTE area.

also been used. The “tropospheric” chemical schemes are merged within the preprocessor with the reactions relevant to the stratospheric chemistry of REPROBUS (Lefèvre et al., 1994). Photolysis rates are taken into account using a multientry look-up table computed off-line with TUV (Madronich, 1987). Moreover, the impact of clouds on the photolysis rates is done on-line similarly as in MOZART (Brasseur et al., 1998). Wet deposition by convective and stratiform rainfall are also taken into account. A description of the MOCAGE surface exchanges module is presented in Michou and Peuch (2002) as well as in a companion paper, which focuses on dry deposition observed and modelled during ESCOMPTE (Michou et al., this issue). Finally, on-line temporal and spatial interpolation tools are available in order to obtain model output corresponding to any kind of measurement platform. Three emissions dataset are available (see Table 2 for temporal and

geographical characteristics): (1) the GEIA (IGAC) and EDGAR (Olivier et al., 1996) inventories; (2) the GENEMIS inventory (EUROTRAC, <http://www.ier.uni-stuttgart.de/public/de/organisation/abt/tfu/projekte/genemis/>); and (3) the specific ESCOMPTE inventory (François et al., this issue).

We have studied two of the IOPs of ESCOMPTE (Cros et al., 2004): IOP2 and IOP4. IOP2 covered the period from June 21 to 26; it has been divided into two subperiods, which correspond to two different synoptic meteorological situations. IOP2a (6/21–23) is characterised by the end of a “mistral” event, the mistral being a strong northerly wind in the Rhone valley. Ozone concentrations are moderate all over the domain, except for maxima of 80 ppbv developing downwind from Marseilles, in the vicinity of the city of Toulon. During IOP2b (6/24–26), low winds and local recirculations (breezes) have led to high levels of pollution over most of the region. For instance, ground sites peaked around 120 ppbv at Aix, Cadarache, or Avignon (see location in Fig. 1), meanwhile aircrafts sampled PBL plumes with values as high as 140 ppbv. On a larger synoptic scale, a set of low-pressure systems crossed northern Europe, inducing high variability in the tropopause region, meanwhile Southern Europe was almost all the time under anticyclonic conditions. All of Europe experienced high levels of photo-oxidant pollution, particularly during IOP2b, with local pollution events being enhanced by continental-scale transport. Concerning IOP4 covering the period from July 10 to 13, ozone levels of 90 ppbv were observed inland in the lower troposphere on the 10th but then remained low during the rest of the period due to windy conditions (west to northwest flux of 15 m s^{-1}). Thus, levels of pollutants were low as primary pollutants could not accumulate. At higher altitudes, a rapid and stable zonal Westerly flow remained over France during the whole IOP.

3. Results and discussion

3.1. “Chemical weather” during IOP2 and IOP4

The dense ESCOMPTE database permits the study of day-to-day variability in chemical compounds, so-called “chemical weather,” both in the PBL (ground-based measurements, aircraft flights along predefined tracks at fixed hours, and ferries linking Marseilles and Corsica) and in the free troposphere (LIDARs and ozone soundings). In this section, the standard configuration of the model is used and results are from the “zoom” domain (0.08°) using the detailed ESCOMPTE emission inventory and the RACM chemical scheme. Simulated concentrations of ozone and nitrogen oxides at the surface (Table 1) and aloft are generally in good agreement with the measurements.

We concentrate first on the evolution of PBL ozone concentrations. Several flight plans intended to sample the three-dimensional chemical fields at the boundaries of the domain as well as before the beginning of photochemical activity, providing insight into large-scale context of the episodes (Cros et al., 2004). The so-called “Exploration A2” flight plan of the MERLIN aircraft (Météo-France) documented the whole ESCOMPTE domain (see Fig. 1) in the early morning of every IOP day, from the surface up to 3000 m both over land and sea. Fig. 3 presents these flights for June 22 (IOP2a) and July 12 (IOP4). Although the flight track is approximately the same, observed ozone patterns differ greatly

Table 1

Correlations, means, root mean square errors (RMSE) and standard deviation of (a) ozone, (b) NO, (c) and NO₂ temporal series during IOP2 and IOP4, at different ground-based sites of the air quality networks AIRFOBEP (^a) and AIMARAIX (^b)

Type	IOP2				IOP4				
	Correlation	Mean (ppbv)	RMSE (ppbv)	Standard deviation (ppbv)	Correlation	Mean (ppbv)	RMSE (ppbv)	Standard deviation (ppbv)	
<i>O₃</i>									
Aix-en-Provence (Platanes)	Suburban ^a	0.44	40.8 /40.5	16	16.5 /18.8	0.86	40.9 /36.2	10	18.0 /18.7
Aubagne (Est Pénitent)	Urban ^a	0.61	48.6 /41.1	19	19.1 /22.4	0.84	38.2 /34	9	16.2 /14.8
Avignon (Comtat-Venaissain)	Suburban ^a	0.77	41.9 /39.8	14	22.9 /21.1	0.83	36.4 /30.2	13	20.6 /16.0
Cadarache	Rural ^a	0.74	45.9 /43.8	17	23.2 /25.0	0.84	39.6 /37.2	11	19.3 /19
Toulon (Ouest Olive)	Suburban ^a	0.83	52.8 /57.0	15	18.0 /26.6	0.66	41.5 /39.6	9	10.9 /12.5
Vitrolles	Urban ^b	0.62	49.4 /49.2	18	23.2 /18.1	0.81	39.1 /36.2	11	18.6 /17.1
Rognac-Barjaquet	Industrial ^b	0.64	46.4 /46.8	19	23.8 /21.6	0.80	37.2 /36	11	18.2 /17.6
<i>NO₂</i>									
Aix-en-Provence (Platanes)	Suburban ^a	0.1	5.5 /9.8	8.3	4.4 /6.3	0.49	7.4 /7.5	6.5	7.6 /3.2
Aubagne (Est Pénitent)	Urban ^a	0.05	15.5 /14.9	14.4	11.3 /8.5	0.24	16.1 /10.8	12.3	11.5 /4.5
Toulon (Ouest Olive)	Suburban ^a	0.79	4.8 /9.8	8.3	3.4 /9.2	0.61	6.1 /4.3	3.7	4.2 /2.7
Vitrolles	Urban ^b	0.03	11.4 /14.6	12.3	9.2 /8.1	0.18	9.7 /10.4	10.7	10.6 /4.7
Rognac-Barjaquet	Industrial ^b	0.13	14.1 /10.0	13.6	12.1 /6.7	0.63	12.2 /6.5	11.3	11.9 /4.1
<i>NO</i>									
Aix-en-Provence (Platanes)	Suburban ^a	0.08	1.4 /2.0	3.4	1.7 /3.0	0.34	1.2 /2.3	1.9	1.6 /1.2
Aubagne (Est Pénitent)	Urban ^a	0.25	2.8 /2.5	6.9	3.6 /6.9	0.27	3.5 /2.2	5.9	5.4 /4.0
Toulon (Ouest Olive)	Suburban ^a	0.85	1.0 /1.2	2.0	1.6 /3.2	0.47	1.3 /0.2	2.2	2.1 /0.6
Vitrolles	Urban ^b	0.43	1.4 /1.9	2.9	1.9 /3.2	0.28	1.4 /1.6	2.4	2.3 /1.6
Rognac-Barjaquet	Industrial ^b	0.36	1.7 /1.2	2.4	2.4 /1.4	0.21	1.8 /1.7	3	3.1 /1.1

For means and standard deviations, bold values stand for the model and normal ones for observations.

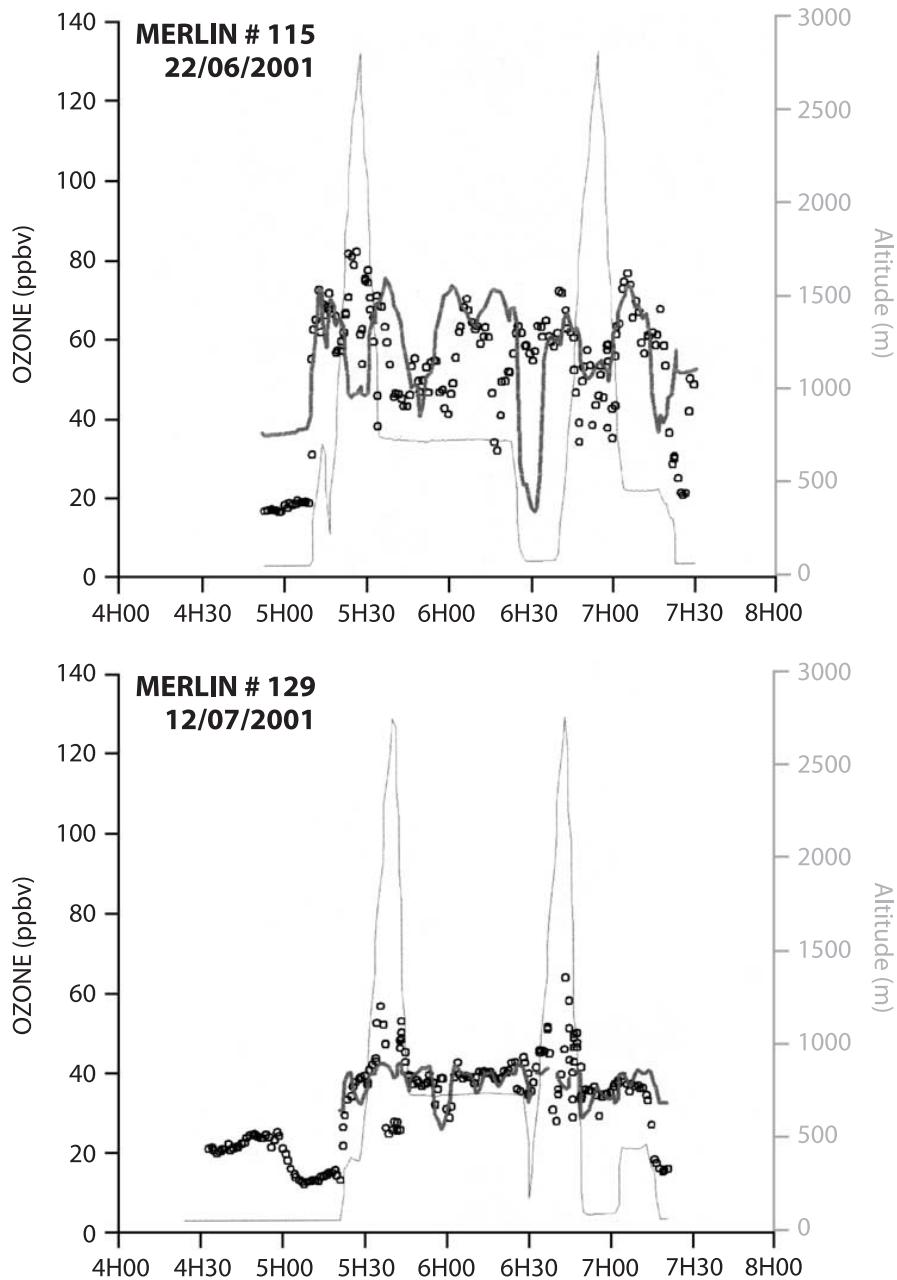


Fig. 3. Time series of measured and modelled ozone mixing ratio (ppbv) along a flight track of the MERLIN aircraft (Météo-France) exploring the whole “ESCOMPTE domain A” (see Fig. 1). Top: Flight 115 on the 22/6/2001 morning (IOP2a). Bottom: Flight 129 on the 12/7/2001 morning (IOP4). Observations are reported in black circles; MOCAGE simulation in grey bold line; and altitude (m) of the aircraft computed from the ALADIN meteorological model in thin black line.

both in terms of concentration (higher mean on June 22) and variability. These characteristics are well captured by the model.

A complementary estimation of the variability in air masses over the ESCOMPTE area is provided by the O_x/NO_z indicator called I in the following:

$$I = (O_x/NO_z) = (O_3 + NO_2)/[NO_y - (NO + NO_2)],$$

NO_y being total nitrogen oxides

Including both primary and secondary products, this ratio I gives information on the reactivity of the ozone photochemical cycle (Sillman, 1995). It is available in the ARAT aircraft measurements (CNRS/INSU) for several “domain A exploration” flights, covering the whole ESCOMPTE domain and altitudes from the surface up to 3000 m. In Fig. 4, the left panel corresponds to morning flights and the right panel to afternoon ones. As already seen in Fig. 3 for the early morning, the simulation reproduces the observed O_x/NO_z values. The afternoon flights present more variability that is fairly well captured by the model. Interestingly enough, observed slopes of the O_x/NO_z ratio are covering quite a range of values, even within the same flight: the aircraft sample plumes of freshly polluted air masses as well as more “background” air masses, which are less photochemically active (see, for instance, flight 44). As the RACM mechanism appears to be able to capture a large part of this variability, it gives confidence in the chemical behaviour of the model within the PBL.

Aloft, the free troposphere is sampled by ozone radiosoundings. Fig. 5 presents the profiles measured at Aix-les-Milles on June 24 (A) and June 26 (B) at 1300 UTC (solid lines). Apart from humidity in the lower levels, thermodynamical variables are satisfactorily modelled (dashed lines), reflecting the quality of the meteorological forcing (it is worthwhile noting that the Aix-les-Milles radiosoundings were not included in the operational analyses that we used). The observed ozone profiles are very different between the two situations. On June 24, ozone concentrations are in the range of 40–70 ppbv in the PBL. They remain at a constant value of 70 ppbv up to an altitude of 400 h Pa, increasing only slightly thereafter. On June 26, however, the profile shows more vertical structures: a sharp 120 ppbv peak at 880 h Pa and a polluted PBL, then very clean air between 700 and 600 h Pa (the origin of which is discussed in Section 3.2). Above 600 h Pa, an increase in the ozone concentration is evident together with drier air, indicating that the air mass is likely to be of stratospheric origin. The model reproduces the main features of these profiles but fails over some precise points. On June 24, there is an overestimation of the concentrations of ozone in the PBL and the lower free troposphere, while on June 26, the simulation has a short lag in the arrival of the “stratospheric” air. This is supported by the fact that the modelled profile 2 h later (1500 UTC; dotted line on Fig. 5B) fits better the observations above 600 h Pa. The high variability of the free tropospheric ozone (also illustrated in Fig. 6) is very specific to IOP2. Indeed, during IOP4, profiles are more homogeneous from a day to another (not shown here) and there is no evidence of stratospheric air descending to low altitudes, probably due to the very stable zonal flow at higher altitudes.

3.2. Sensitivity to chemical boundary conditions

Being global and extending up to the stratosphere, the CTM MOCAGE provides its own fully consistent vertical and lateral chemical boundary conditions. By disabling this intrinsic feature of the model, we can perform sensitivity tests. More precisely, we evaluate here the impact of the variability of the chemical boundary conditions. The underlying issue is whether it is necessary to have valid boundary conditions for air quality applications, at least over this area and during the period studied.

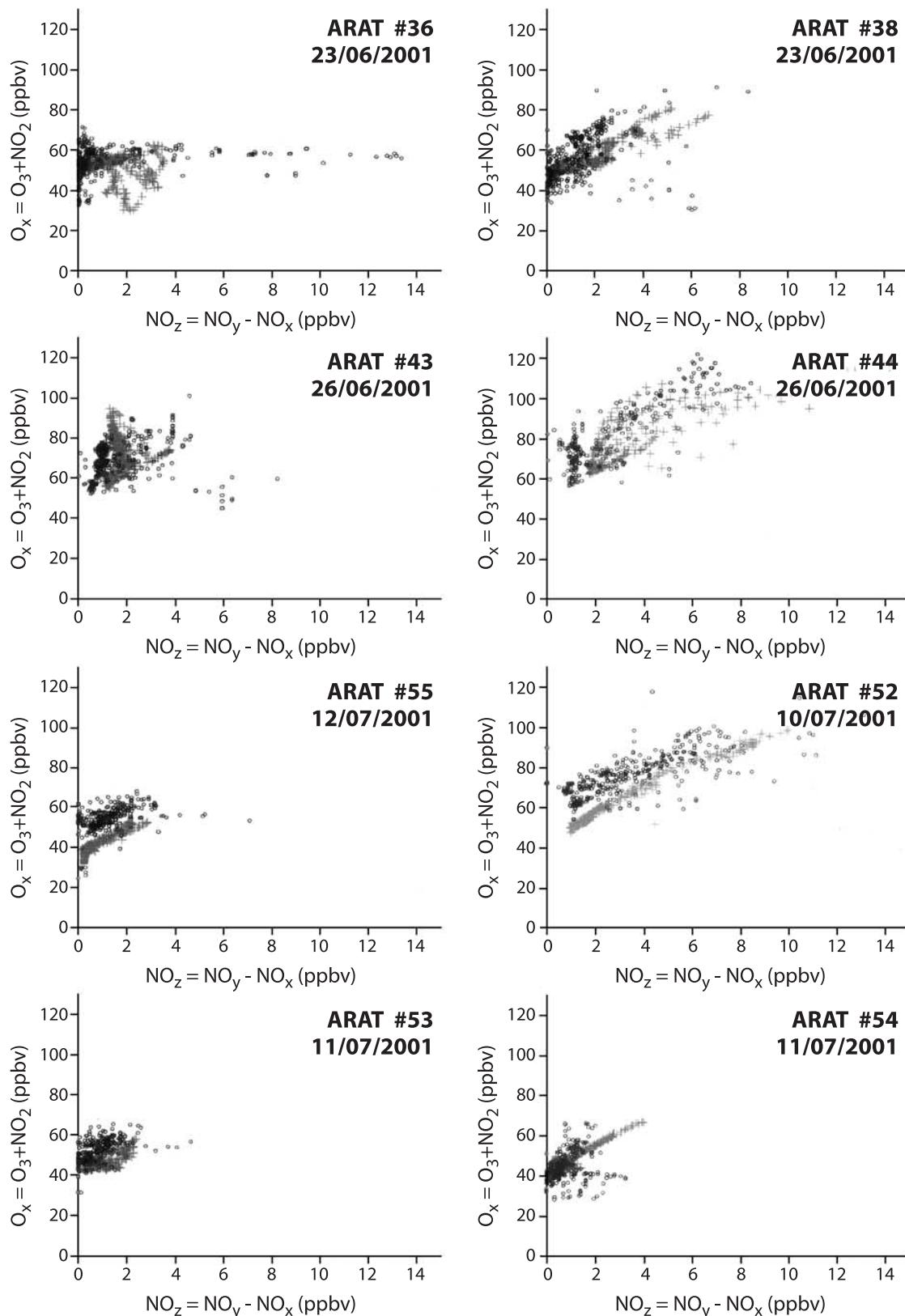


Fig. 4. Observed (black circles) and modelled (grey crosses) O_x/NO_z ratios along several flight tracks of the ARAT aircraft (CNRS/INSU); morning flights on the left and afternoon flights on the right. The four top plots correspond to IOP2b and the four bottom ones to IOP4.

The methodology is the following. A three-hourly climatology for all chemical species at 1° resolution is obtained by averaging the instantaneous values from a 6-day simulation of IOP2. This specific climatology is used to alter progressively the boundary conditions, starting from the reference of the two-way coupled simulation. We would like to emphasize the fact that this climatology provides chemical forcing, which is free of biases. In general, when using chemical boundaries from another model and which have not been computed for a specific period of time, it is expected that the effects are stronger than the ones we obtain here. In total, a set of four simulations has been performed (everything else being unchanged): (1) the four domains are constrained above 5000 m by the climatology, but are fully coupled below (simulation denoted “TOP” in the following); (2) the “zoom” domain is forced at its horizontal boundaries by the climatology of the “regional” domain (simulation “FRA”); (3) the “regional” domain is forced at its horizontal boundaries by the climatology of the “continental” (simulation called “EURO”); and (4) the reference simulation, using the standard hourly two-way coupled configuration (“REF”). For the four simulations, the tropospheric chemical scheme used is RACM and the emission inventory is GENEMIS.

One convenient way to evaluate the impact of chemical boundaries is to compare the different simulations obtained over the “zoom” domain (0.08°) to the dense measurement sequence provided by the ozone profiles obtained at Aix-les-Milles by the ALTO LIDAR (CNRS, Institut Pierre-Simon Laplace, Service d’Aéronomie; see [Ancellet and Ravetta, 1998; 2001](#)). Results are reported in [Fig. 6](#). The first striking result is that most of the modelled profile appears to be impacted by the chemical boundary conditions used, even when the climatological forcings are applied at the edges of the “continental” domain (“EURO”). Differences between the experiments are discussed below, at first for the surface and the PBL, then for the free troposphere, and lastly for the interaction with the stratosphere.

Differences are less pronounced for the lower layers as they are less dependent upon the actual synoptic situation. However, the impact within the PBL is noticeable with differences around 10 ppbv, even if the horizontal fluxes from the continental domain are not of high importance for this specific episode as the ozone production is mainly driven by what occurs in the regional domain. It is consistent with other recent studies coupling limited area and global or hemispheric models for summer air pollution simulation (reports of the European project EUROTRAC/GLOREAM available on <http://www.dmu.dk/AtmosphericEnvironment/gloream>; [Langmann et al., 2003](#)).

A strong interaction of the boundary layer with the layers above is seen in the present case. Local plumes extending within the PBL up to approximately 1500 m meet large-scale residual layers centred around 2500 m, which in turn are mixed with air masses of stratospheric origin.

The latter type of air masses arriving over Aix-les-Milles during IOP2 causes a high variability in the upper part of the profiles, both in the observations (LIDAR and radiosoundings) and the “REF” simulation. This variability disappears when the boundary conditions are altered. As a result, we conclude that simulations above 4500–5000 m cannot rely on climatological chemical forcings, but rather have to be forced at the domain boundaries in a time-dependent manner by a global model, or at least by an hemispherical one.

In this regard, the origin of some observed and simulated structures has been tracked, using the model “REF” simulation.

Let us first focus on the patterns of increased level of ozone on June 21–22 located around 2000 m (highlighted with a black rectangle in Fig. 6). According to the simulation,

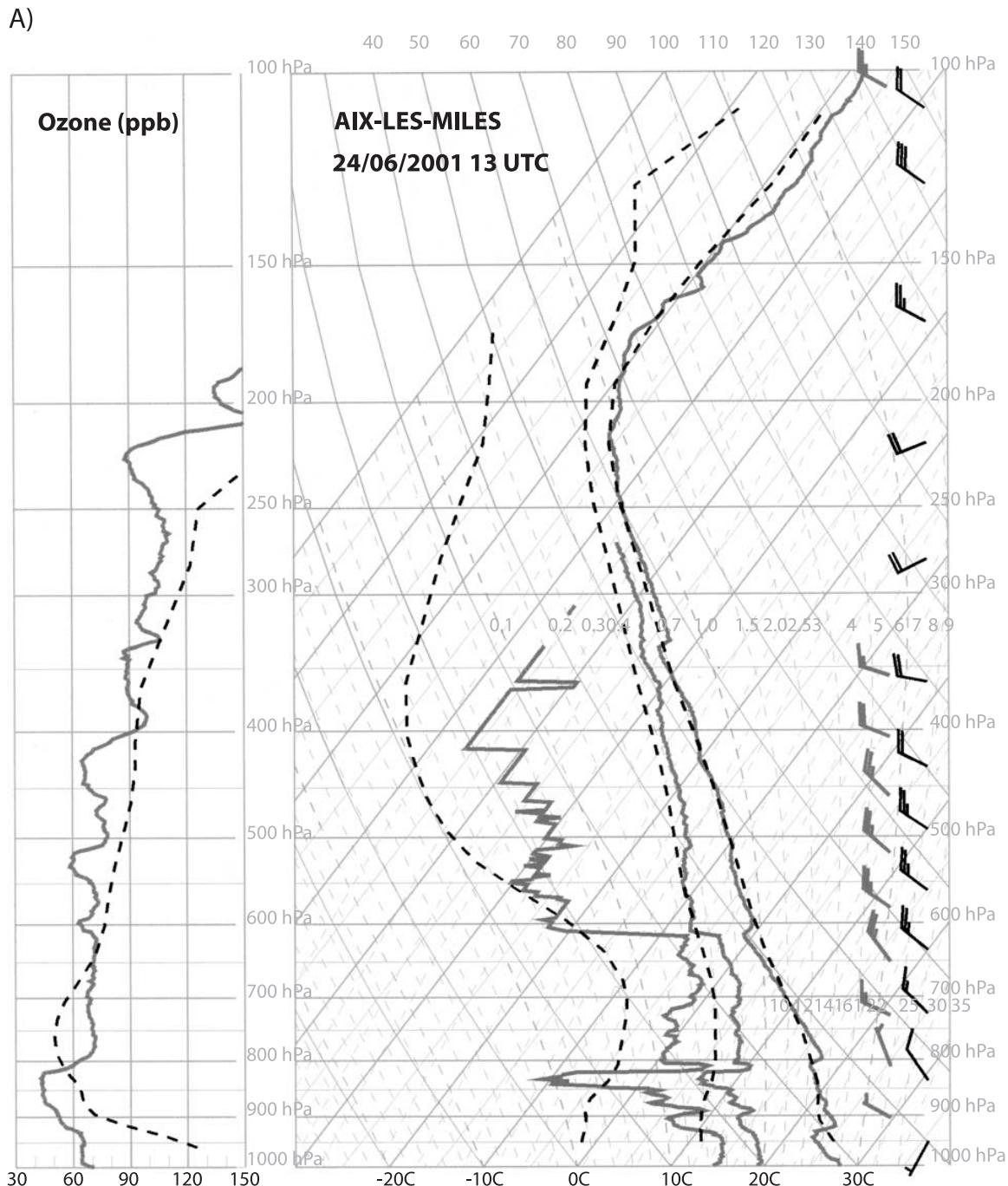


Fig. 5. Observed (solid grey line) and modelled (dotted or dashed black lines) radiosounding in Aix-les-Milles during IOP2b: (A) 24/6/2001 at 1300 UTC; (B) 26/6/2001 at 1300 UTC. Simulations at 1200 UTC are in dashed black lines and simulations at 1500 UTC (on the 26/6/2001) in dotted lines. Ozone profiles appear on the left panel and meteorological parameters on the right panel: from right to left, potential temperature ($^{\circ}$ C), wet bulb potential temperature ($^{\circ}$ C), dew point temperature ($^{\circ}$ C), and wind direction and intensity (observation in grey and simulation in black).

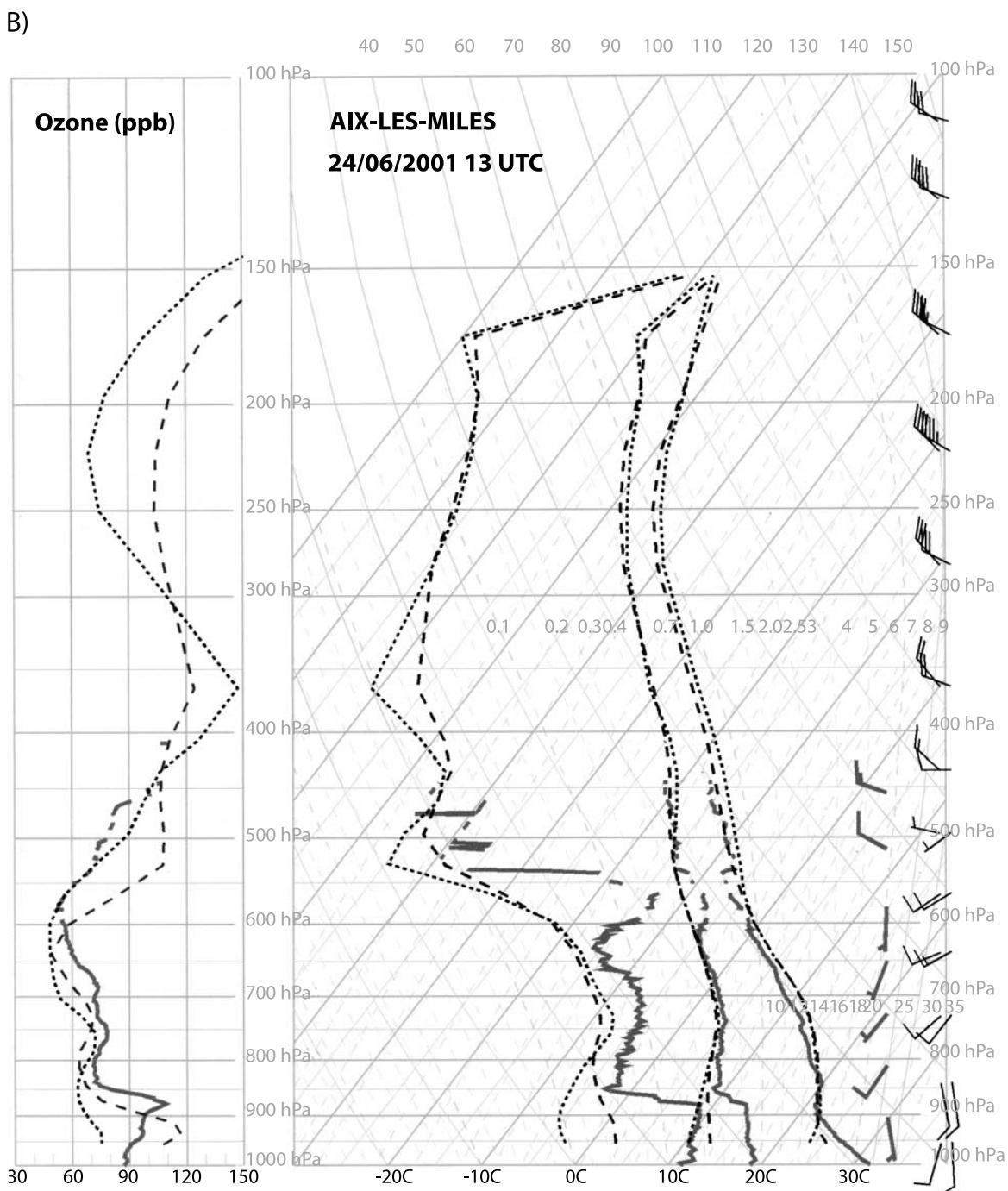
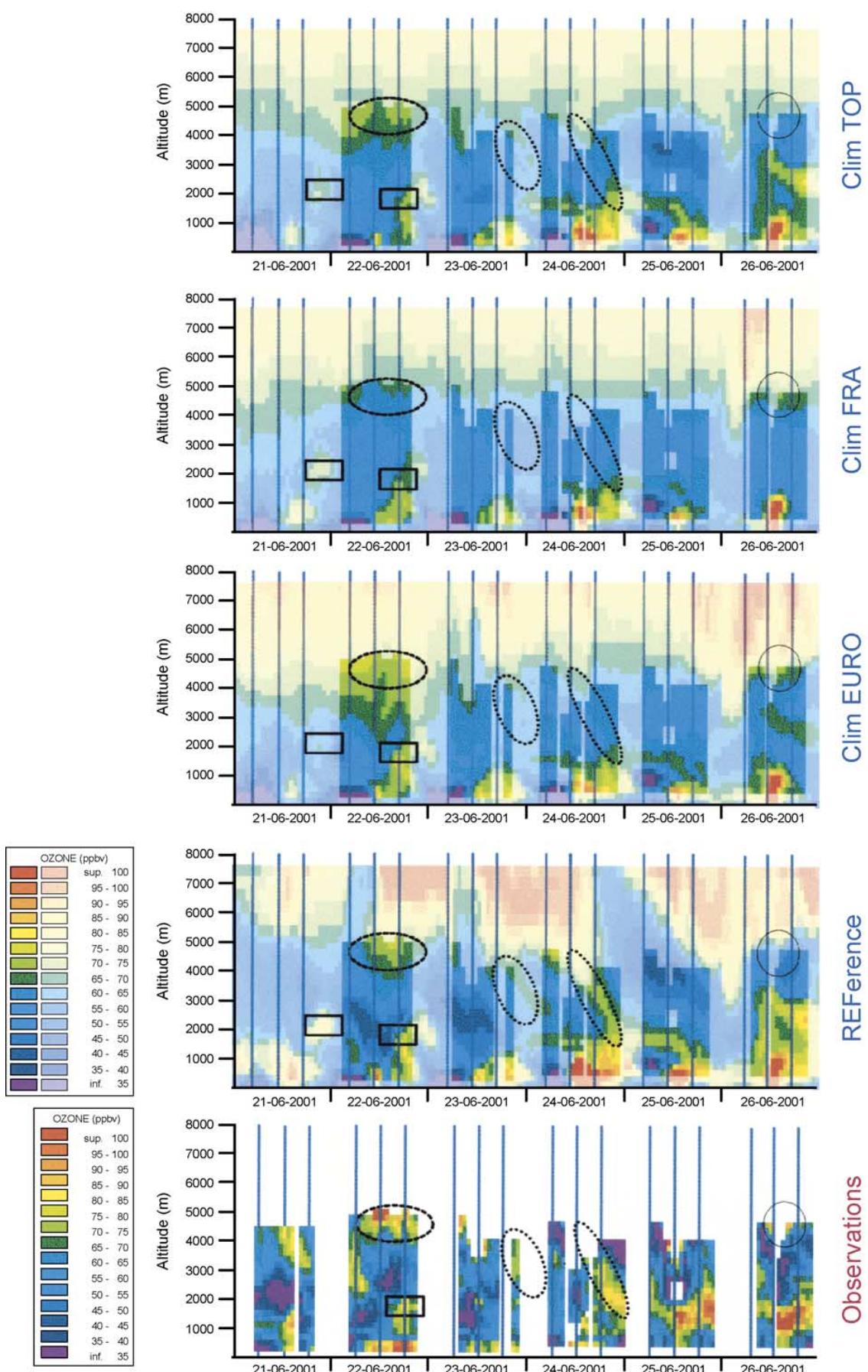


Fig. 5 (*continued*).

these air masses are coming from the north along the Rhône Valley advected quite rapidly by the “mistral” wind. They combine ozone produced in the Lyons area with pollution originating further north (Great Britain and northern Europe). These structures are more marked in “REF” or “TOP”, rather than in “EURO” and “FRA”. Indeed, it is related to episodic large-scale transport of tropospheric ozone from Northwestern Europe. The “climatological” air masses advected in the lower free troposphere into the inner domains are poorer in photo-oxidants for “EURO” and “FRA” than for “REF” or “TOP”.



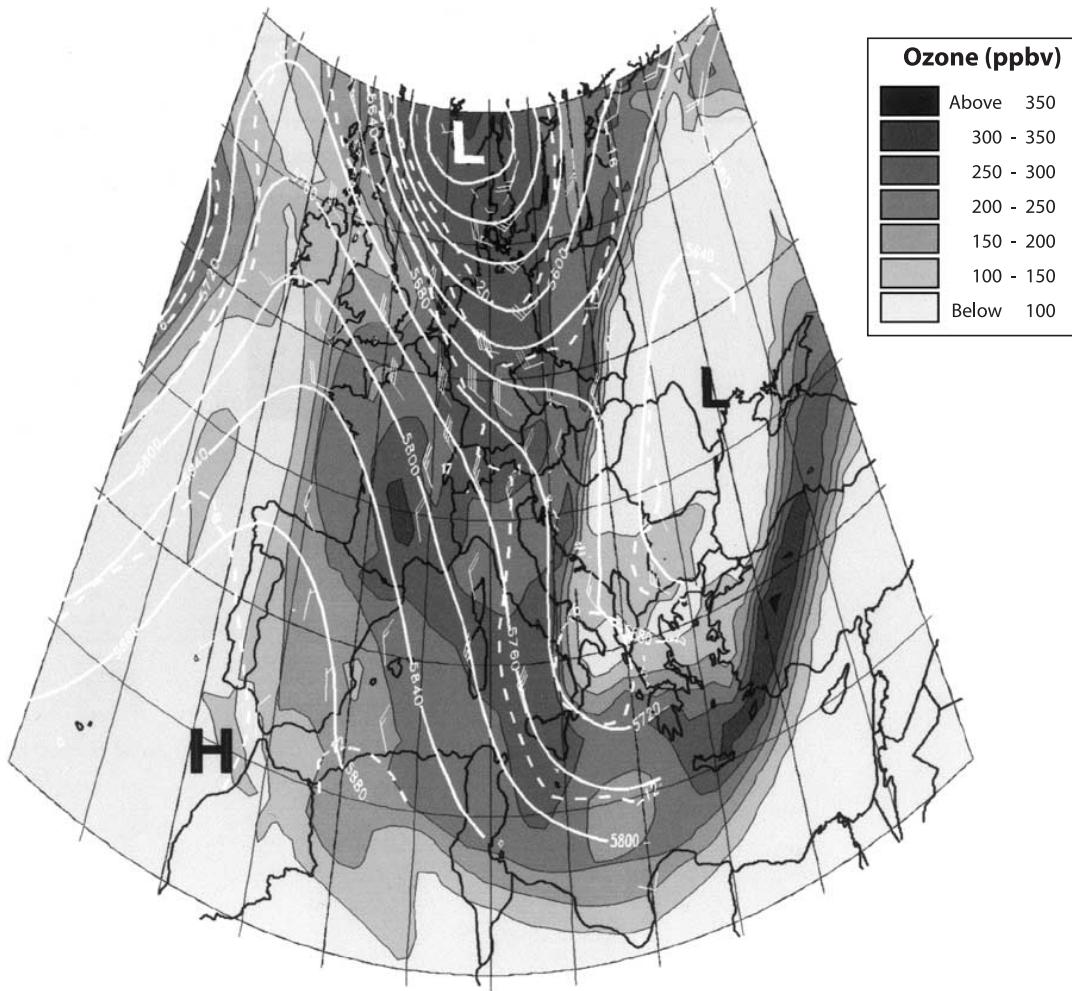


Fig. 7. Contour plot of modelled ozone (model level 25, approximately 10 km above ground) and ARPEGE meteorological chart at 500 h Pa in white [geopotential (m) in solid lines and potential temperature ($^{\circ}$ C) in dashed lines] for the 21/6/2001 at 1200 UTC. Modelled ozone corresponds to the output on the “continental” domain at an horizontal resolution of $1^{\circ} \times 1^{\circ}$.

In the following, we discuss the origin of modelled and observed filaments of stratospheric origin (ellipses in Fig. 6) related to the synoptic scale. During the first 2 days of IOP2a, there is descent of air with high ozone concentrations, visible both in the “REF” simulated and the observed profiles on June 22 around 5 km altitude (highlighted with dashed-line ellipse in Fig. 6). Precisely, this event is linked to a region of low geopotential, located over Denmark. On June 21, the tropopause is folding and stratospheric air is descending just below the potential vorticity intrusion and, to a lesser extent, within the warm sector (Fig. 7). Then, due to the presence of a powerful ridge extending from Morocco to Iceland, this filament is carried away in a strong northwesterly flow and rapidly reaches the Aix-les-Milles zone. As the origin of this stratospheric filament is over the

Fig. 6. Bottom: LIDAR (CNRS/IPSL/SA) observations of ozone profiles at Aix-les-Milles during IOP2. Above: model equivalents are shown for the different experiments (from top to bottom: “TOP”, “FRA”, “EURO”, and “REF”) at a 0.08° resolution. The full profiles are shown, but colours are lightened when no corresponding observation is available for the given time and vertical position.

northern edge of the “regional” domain (above 5000 m high, respectively), the “FRA” (the “TOP,” respectively) experiment cannot account for this phenomenon. During the following days, a surface cold front associated with an active low-pressure system traveled westwards across the Atlantic Ocean at 55° latitude. Thus, it is only partially accounted for in “EURO” and “TOP”, and not at all in “FRA”. Ozone is advected in altitude from the tail of the thalweg over Southeastern France. In “REF”, two filaments appear to be originating from this intrusion event and mix with layers below. It can be related with observed patterns (see dotted ellipses in Fig. 6). Another sharp midtropospheric structure appears on June 26 (thin circle in Fig. 6) but separated from the lowest layers. Although there is a degradation in the simulations when the chemical boundaries are altered, this structure can be seen in all of the experiments. Indeed, the depression is much closer, located over the United Kingdom, while there is a thalweg at 500 hPa along the Spanish coast (Fig. 8). The relative intensity amongst these filaments is respected in the “REF” simulation even though the levels are underestimated in comparison with the observations. These ozone-rich structures merge with the residual layers, both in the observations and the “REF” simulation.

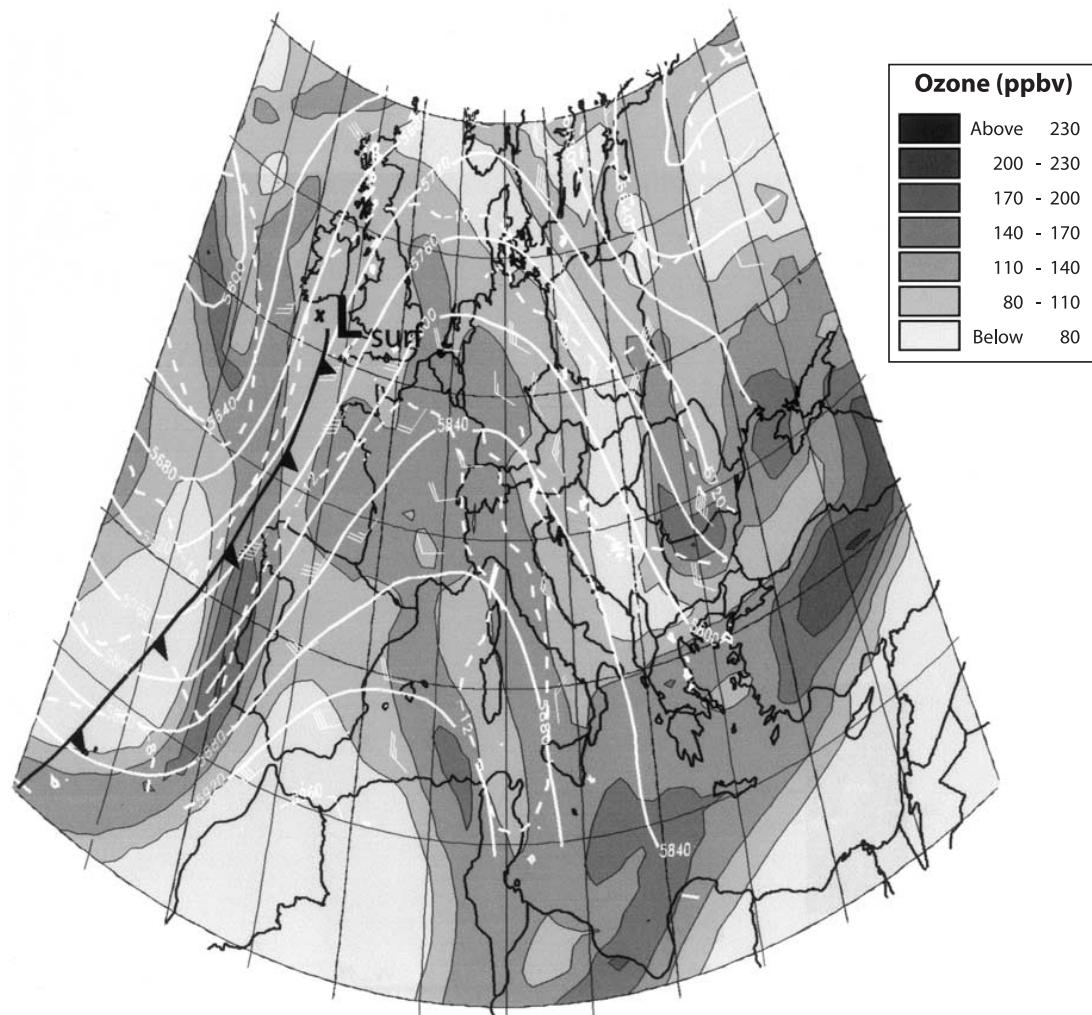


Fig. 8. Same legend as in Fig. 7 but for the 26/6/2001 at 1200 UTC. In addition, a surface low (L_{surf}) and associated front over the Atlantic has been superimposed in black.

As illustrated in Fig. 9, a tropical free-tropospheric air mass, which is low in ozone, is coming from North Africa on June 25. It lowers the intensity of low-level ozone maxima through vertical mixing. In “TOP”, but particularly in “FRA” and “EURO”, ozone concentrations are higher than the ones in “REF”. Only the “REF” experiment is able to provide the information that an ozone-poor air mass is coming from the tropics as it is the only configuration that takes into account time-dependant variations at latitudes under 30°N.

Overall, we can conclude that the measurements database from ESCOMPTE IOP2 support the development of operational routine global “chemical weather” forecasts and analyses, archived with a fine temporal resolution, in order to provide realistic synoptic forcings for limited area chemical simulations or forecasts. An example of such hierarchical modelling is given in a companion paper (Cousin et al., 2001): MOCAGE fields are providing chemical boundary conditions to the nonhydrostatic model Meso-NHC.

3.3. Sensitivity to the emission inventory

A sensitivity test on the spatial and temporal resolution of emissions has been performed. Three emission datasets were available within MOCAGE over the ESCOMPTE domain (see Table 2): (1) the coarse global GEIA (IGAC) and EDGAR;

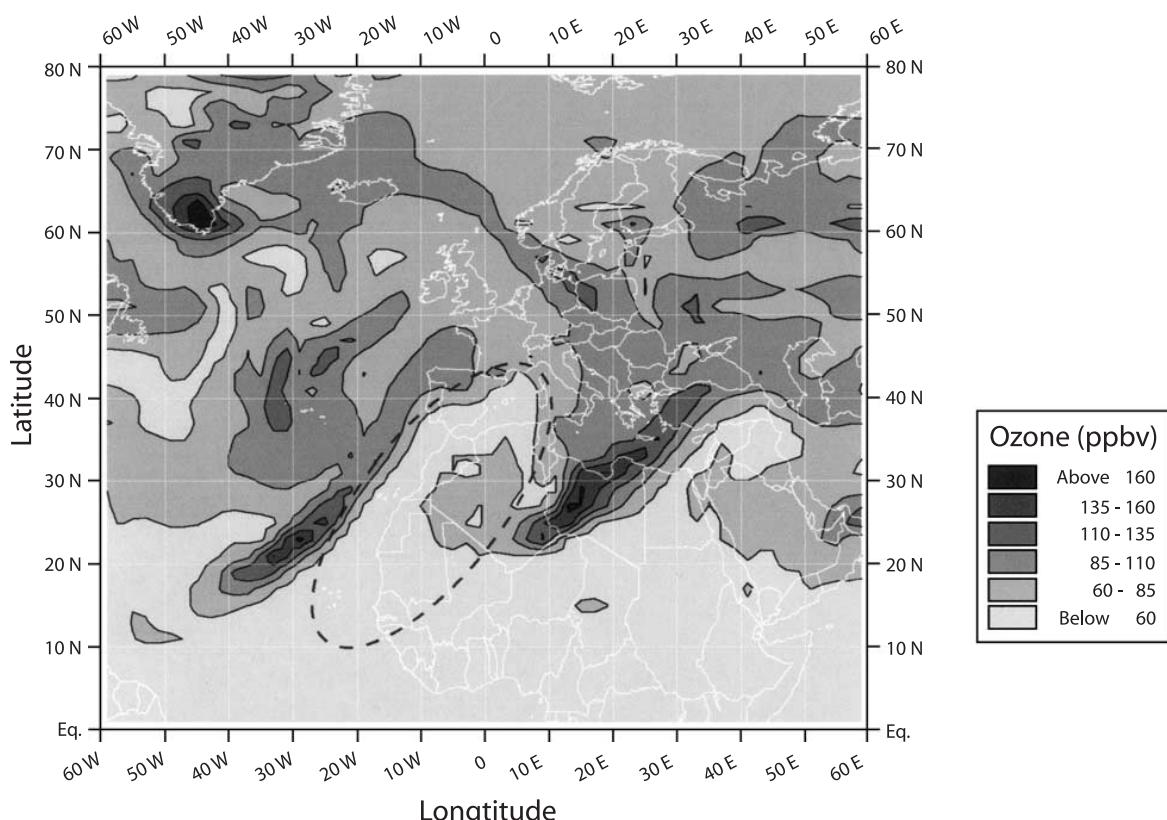


Fig. 9. Ozone mixing ratios (ppbv) at the 30th level of MOCAGE, approximately 6–7 km above ground, for the 25/6/2001 at 0200 UTC. The horizontal resolution is 2° (“global” domain). An air mass with lower concentrations of ozone, originating from the tropics, is located over North Africa (black dashed ellipse).

Table 2

Characteristics of the various emission inventories used

Name	Availability	Resolution		Basis
		Spatial	Temporal	
GEIA/EDGAR	Globe	1°	Month	Annual total scaled to values recommended by Intergovernmental Panel on Climate Change (1995)
GENEMIS	“Zoom” domain	0.05° (0.08°) ^a	Hour	Typical summer day
ESCOMPTE	ESCOMPTE “domain A”	0.01° (0.08°) ^a	Hour	Current day

^a Indicates that fields were regridded to 0.08° in order to match MOCAGE resolution over the “zoom” domain.

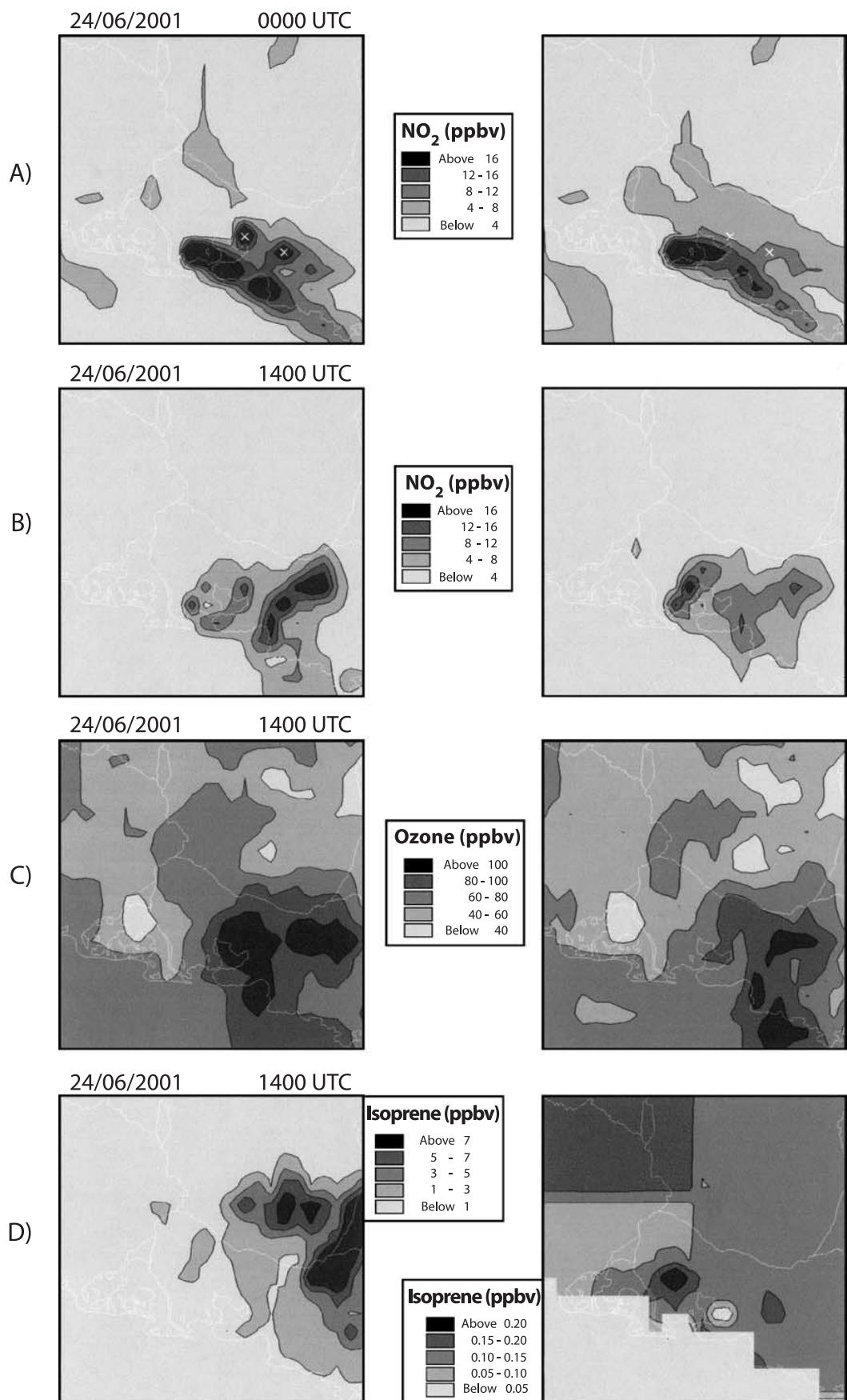
(2) the European-scale GENEMIS inventory; and (3) the specific regional ESCOMPTE inventory. Three experiments, differing only by these emissions, have been performed. They are called “EDG”, “GEN”, and “ESC”, respectively.

Daily total emissions over the ESCOMPTE domain between the three inventories are similar for most primary pollutants (in particular for NO_x), while for some volatile organic compounds (VOCs), ratios can go up by a factor of 10, reflecting the high uncertainties in some of the natural and anthropogenic sources. However, ratios between emissions from the inventories reach 100 on particular grid cell (northern part of the Berre pond for NO_x, for instance). Important natural VOC emissions, such as isoprene, are not accounted for in the GENEMIS anthropogenic dataset. They are emitted according to the GEIA coarse distributions ([Guenther et al., 1995](#)), both in “EDG” and “GEN”. Results in this section are presented for the innermost domain of the standard two-way nesting configuration (0.08° resolution) and use the RACM chemical scheme to account for tropospheric photochemistry.

3.3.1. Surface distributions of ozone and precursors

Regional maps of ozone and nitrogen dioxide for June 24 are displayed in [Fig. 10](#) for the first model level, approximately 20 m above ground. They reflect the impact of the specific ESCOMPTE emissions inventory (left panels) compared with the state-of-the-art inventory for air quality modelling across Europe GENEMIS (right panels). The NO₂ distribution during the night (0000 UTC; [Fig. 10A](#)) highlights differences in the location of some heavy sources leading to dissimilar plumes shape and intensity (e.g., in the northeast of the Berre Pond and a spot south of Aix-en-Provence, corresponding to the industrial city of Gardanne marked with white crosses in the figure). Thus, the composition of the air mass advected towards the Durance Valley later on (see maps at 1400 UTC; [Fig. 10B](#)) is richer in NO₂ in “ESC” than in “GEN.” However, the western side

[Fig. 10.](#) Modelled mixing ratios (ppbv) for the experiments “ESC” (left panels, using specific ESCOMPTE emissions inventory) and “GEN” (right panels, using GENEMIS emissions inventory). Model outputs correspond to the first level of the model (approximately 20 m above ground) over the “zoom” domain (0.08° horizontal resolution). From top to bottom : (A) NO₂ on the 24/6/2001 at 0000 UTC; (B) NO₂ on the 24/6/2001 at 1400 UTC; (C) O₃ on the 24/6/2001 at 1400 UTC; and (D) isoprene on the 24/6/2001 at 1400 UTC.



of the Berre Pound is cleaner in “ESC” than in “GEN”. For ozone ([Fig. 10C](#)), if the spatial structures are quite similar, intensities differ. Whereas the inland plume is slightly more intense in “ESC”, concentrations are weaker above the Mediterranean sea on the east of the domain, in better agreement with the measurements made on the ferryboat during the campaign. For isoprene ([Fig. 10D](#)), unsurprisingly, values are 10 times higher in “ESC” and the spatial distribution is different. It is fairly homogeneous over the domain in “GEN” (emissions resolution is 1°) but show much more small-scale structures in “ESC” with hot spots on the northeast of the domain related to forest emissions.

3.3.2. Comparison with observations

In order to assess the impact of refinements in the emissions inventory, the simulations at 0.08° have been compared to observations.

With no surprise, as far as nitrogen oxides are concerned, a strong improvement with the ESCOMPTE inventory is obtained, in the vertical as well as at the surface. As shown previously, concentrations in “ESC” and “GEN” present similar geographical patterns, also in the vertical. However, systematic improvements are found at ground sites. We present for instance in [Fig. 11](#), a comparison of the three experiments with observations of NO and NO_2 at the urban site “Aubagne Est Pénitent” of the local air quality network AIRMARAIX. This site is located approximately 15 km east of Marseilles. The intensity of the morning NO peak is better depicted in “ESC” than in “GEN”, which in turn is better than “EDG”. A short delay of 1–3 h is found between observations and simulations, whatever the emissions inventory, and we will investigate this in the following. NO_2 levels are strongly underestimated in “EDG”, while the simulations are better in “GEN” and “ESC”.

Concerning ozone, the nocturnal levels at the surface are overestimated in the three simulations. It seems that, close to industrial sources, simulated ozone concentrations are not very sensitive to the type of inventory used (comparisons at industrial ground sites located around the Berre Pond, not shown), whereas in the plumes, strong differences appear between “GEN” and “ESC”, with a better overall agreement with observations for the latter. Ozone levels are better simulated (compared to both ground-based and aircraft measurements) and chemical reactivities (as computed by the slope of the ratio O_x/NO_z) are better depicted. The refinement in VOC emissions and specifically in the biogenic contribution is probably the key factor.

In order to test this assumption, the simulations are compared with various gaseous products (including O_3 , NO, NO_2 , HNO_3 , HONO , isoprene, and some other VOCs) measured at the Réaltor site. Located a few kilometres east from the Berre Pond and 20 km from downtown Marseilles, the site was chosen in the “intermediate area” (see in [Fig. 1](#) and [Cros et al., 2004](#)) in order to measure the pollutants downwind from the two heavy emissions areas.

As far as ozone is concerned ([Fig. 12A](#)), there is a clear contrast between the two parts of IOP2. Pronounced peaks were observed during IOP2b (June 24 and 25), with nighttime levels reaching nearly zero, due to the recirculation of heavily polluted air masses driven by breezes. The relative evolution of ozone maxima is well depicted in “ESC” but not in “GEN”. Main improvements with “ESC” compared to “GEN” are found on June 22 and 24 (a 40 ppbv underestimation of the observed peak in “GEN” does not appear in “ESC”), but

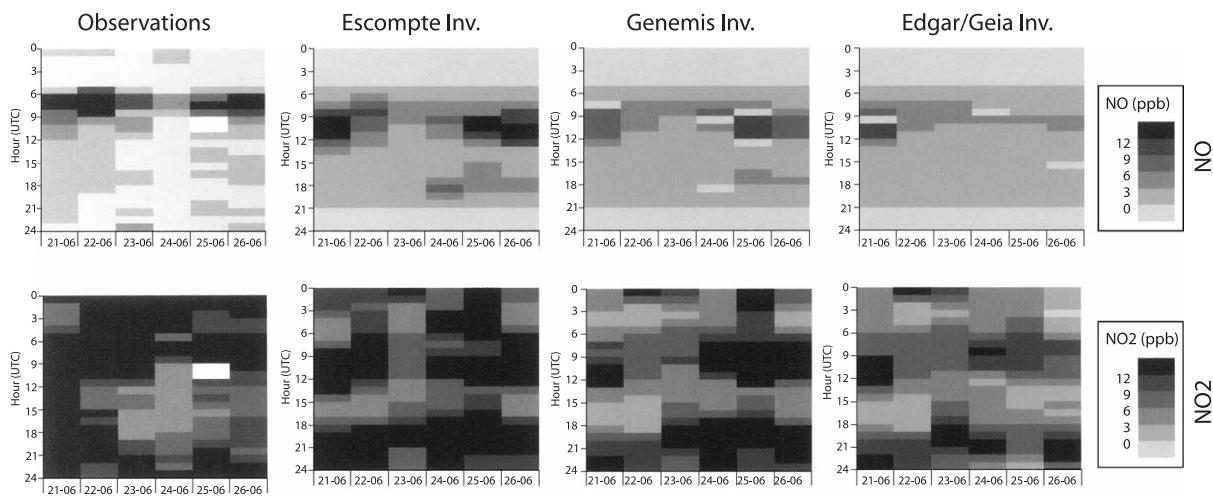


Fig. 11. Hovmöller plots of the diurnal evolution of nitrogen oxides (ppbv) during IOP2 at the “Aubagne” urban site (see Fig. 1): NO upper panels and NO₂ lower panels. From left to right: observations, experiments “ESC” (ESCOMPTE emissions), “GEN” (GENEMIS emissions), and “EDG” (EDGAR-GEIA emissions). Results shown correspond to the “zoom” domain (0.08°).

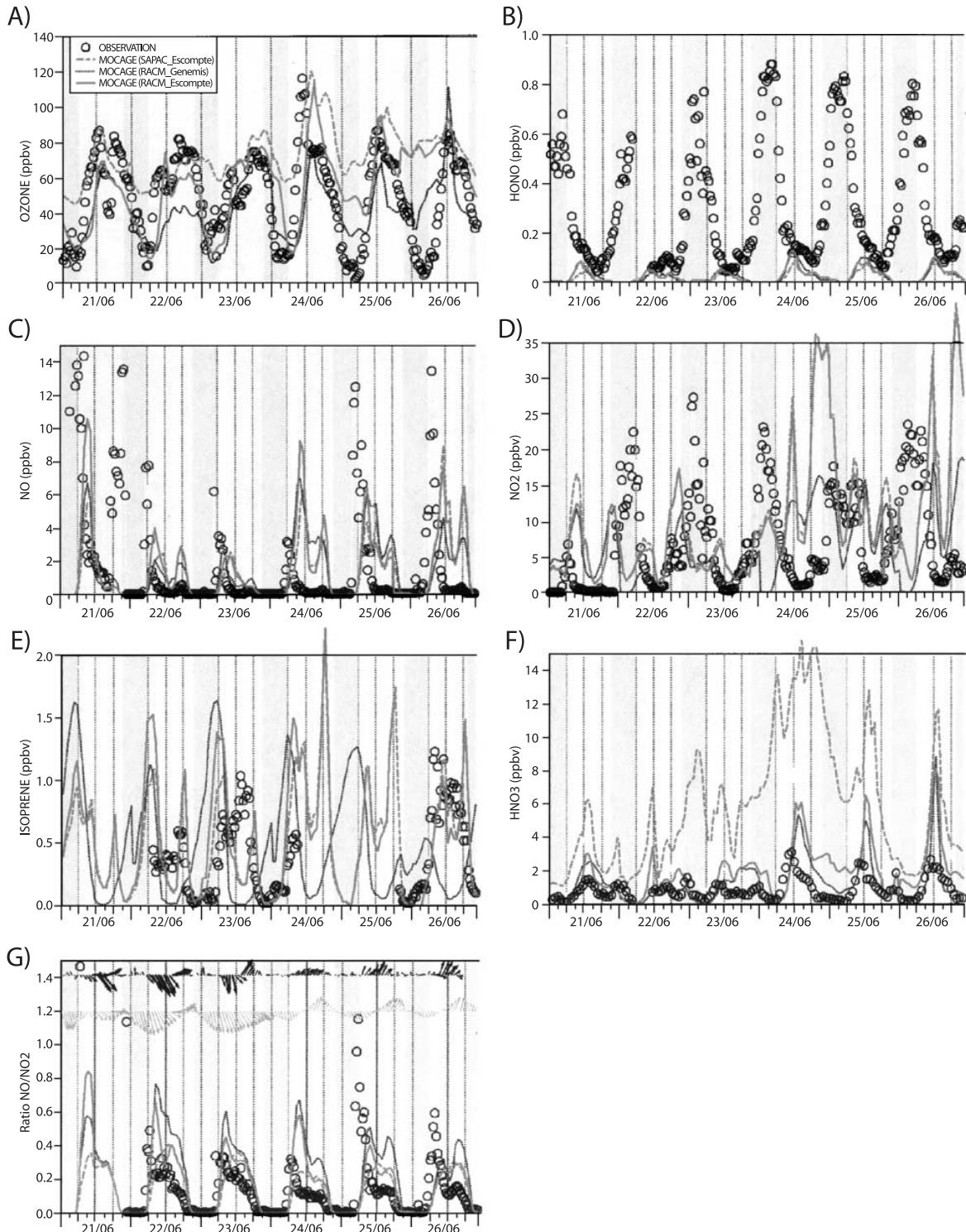


Fig. 12. Observations (black circles) and simulations for the “Realtor” suburban ground measurement site (see Fig. 1) during IOP2. “ESC” experiment (RACM, ESCOMPTE emissions) in bold grey solid lines; “GEN” (RACM, GENEMIS emissions) in thin black dotted lines; “SAPRC” (SAPRC, ESCOMPTE emissions) in bold grey dashed lines. From left to right and top to bottom (all concentrations are given in ppbv): (A) ozone, (B) HONO, (C) NO, (D) NO₂, (E) isoprene, (F) HNO₃, (G) NO/NO₂ ratio as well as observed (black arrows) and modelled (grey arrows) wind direction and intensity. Results shown correspond to the “zoom” domain (0.08°).

also on June 26 (the overestimation of the peak is reduced from 30 to 10 ppbv). As already mentioned, the simulated nighttime values are not very sensitive to the change in emissions inventory except for the nights of June 24–25 and 25–26. IOP2a is fairly well simulated, while IOP2b levels are overestimated in both cases, with “ESC” providing a worse agreement with the observations than “GEN”.

For NO_x , the general differences highlighted before are confirmed for this site. There is a better representation of the NO morning peak and higher levels of NO_2 in “ESC”. As NO is a primary pollutant, the spatial distributions show a strong variability and are very sensitive to local micrometeorological conditions, particularly in the vicinity of heavy point sources. During IOP2, the simulation of nocturnal winds is not fully satisfactory. Intensities were very low, around 1 m s^{-1} , which is of the order of the error in the meteorological model. In the observations for all the nights, there is a slight southerly wind, which induces at Réaltor an advection of polluted air masses coming directly from Marseilles. In the model, however, a north to northwesterly wind is systematically simulated, bringing relatively cleaner air to the site (see observed winds in black and winds modelled by the meteorological model ALADIN in grey in Fig. 12G).

A common feature of the “ESC” and “GEN” simulations is the early morning time lag (of approximately 1–3 h) in the triggering of the ozone diurnal cycle. It could be related to three main causes: (1) the delay in the NO morning peak, although it is anticipated that this factor should be sensitive to the emissions inventory, which is not the case; (2) a slightly erroneous representation of the early morning PBL development, which is very likely considering the crude K_z -type approach employed for turbulence; and (3) an additional cause may be of chemical origin and it is supported by the HONO measurements made on the same site. Several studies (Alicke et al., 2003 and references therein) have investigated the importance of HONO photolysis as an OH source and its influence on the early morning ozone increase, due to its low dissociation energy threshold. Its photolysis occurs at wavelengths as high as 405 nm, compared for instance with the 320 nm needed for the photolysis of O_3 (Harris et al., 1982). The main mechanism of HONO production involve OH, NO_x , and water vapour by 1), (2), and (3). Previous studies have shown that in the urban environment, reaction (2) is a major source (heterogeneous reaction on the ground and buildings):



The most important removal process of HONO is photolysis. As shown in Fig. 12B, the observed concentration at “Réaltor” increases during the night, reaching a maximum just before sunrise. It is followed by fast photolysis, and HONO concentrations remain very low during daytime. Our modelled concentrations behave differently. While daytime concentrations are fairly well reproduced, nighttime and sunrise ones are wrong. Night levels are extremely low, and well after sunrise correlated with the NO peak, a HONO maximum is modelled (with no equivalent in the observations). On the contrary, in the observed time series, HONO is well correlated with NO_2 ; such a correlation was

already observed in many other studies (e.g., [Alicke et al., 2003](#); [Febo et al., 1996](#); [Lammel and Cape, 1996](#)). Thus, the formation process of HONO itself is incorrectly represented in the model, as it takes only reaction (1) into account. The subsequent misrepresentation of early morning HONO can induce a lack of radicals and thus a delay in ozone photochemistry. It advocates for the introduction of heterogeneous reactions in the model.

Another precursor of ozone, the biogenic VOC isoprene, was measured at the same site ([Fig. 12E](#)). During the 3 days for which observations are available, the “double peak” diurnal cycle is well reproduced in “ESC” but not in “GEN” due to the coarse resolution in space and time. Regarding the high reactivity of this compound, the refinement of its representation in the new inventory may explain a large fraction of the improvement in ozone concentration. Indeed, as illustrated with the O_x/NO_z ratio of the AZTEC flight 117 in [Fig. 13](#) (lower panel), the reactivity, as estimated by the slope, is higher in “ESC.” This induces a better agreement between modelled and observed ozone.

Finally, one of the end products of the ozone cycle, HNO_3 , is also used to investigate the chemical behaviour of the RACM mechanism ([Fig. 12F](#)). Its formation is a sink for the OH radical and NO_2 . It is destroyed by photolysis, as well as by wet and dry deposition, but the removal on wet aerosols or water droplets is not taken into account in this study. However, the period was very dry and the agreement between the observed and modelled series is satisfactory considering the relative intensity of the 6 days and the double-peak diurnal variation. Observations and simulations both show an enhancement of photochemical activity during IOP2b, even though the values are overestimated in the simulations. Consistent with the results presented for ozone, the “ESC” simulation is worse during the night, especially for the night of June 24–25 when polluted air is advected by a weak northwesterly flux on the site from Berre Pond, while oxidant levels were overestimated above the pond during the whole day of June 24 in “ESC.” A problem in the meteorological forcing has been pointed out for June 24 relative to biases in wind and humidity fields in the ARPEGE model (linked with erroneous sea surface temperature) in which the limited-area ALADIN is nested. Combined with a different localisation of the main emission sources, it leads to better results for the “GEN” experiment for this day. It would be worthwhile using a more refined meteorological forcings, coming from a high-resolution mesoscale model for instance, in order to further analyse this situation.

3.4. Sensitivity to the representation of chemistry

A well-recognized source of uncertainty in three-dimensional air quality modelling is the representation of photochemistry through the use of different chemical schemes. Each of them is the result of a number of reduction hypotheses, allowing the number of chemical species and reactions to be reduced to a computationally tractable level. Thus, a sensitivity study has been performed with MOCAGE using two state-of-the-art schemes for regional air pollution RACM ([Stockwell et al., 1997](#)) used so far and SAPRC ([Carter, 1999](#)). The two simulations (called “RACM” and “SAPRC”) deviate only by the change of chemical scheme and by the way VOC emissions are regrouped into the different species

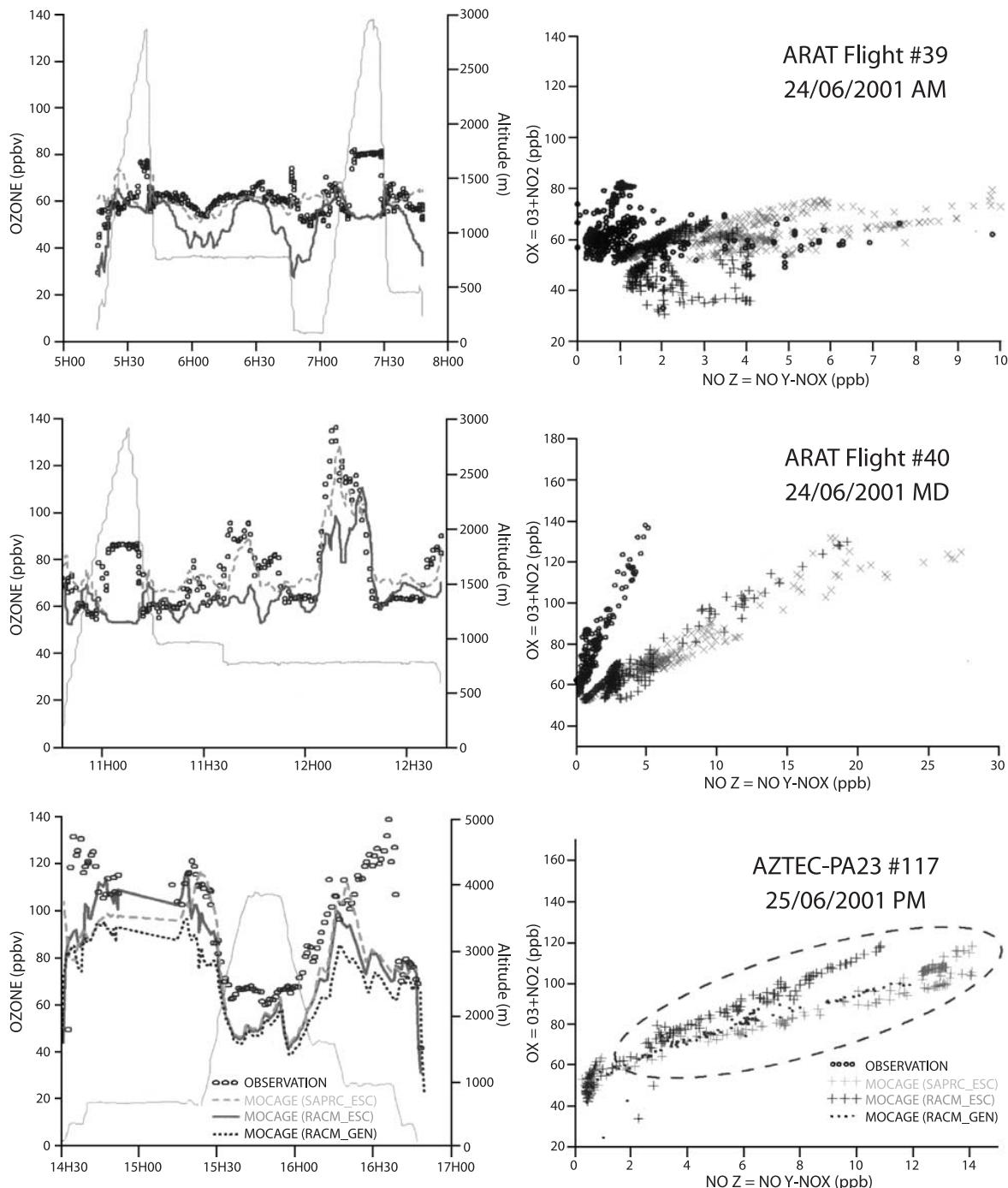


Fig. 13. Time series of observations (black circles) and simulations along two flight tracks of the ARAT aircraft (CNRS/INSU, flights 39 and 40 on the 24/6/2001) and one flight track of the AZTEC-PA23 aircraft (Météo-France, flight 117 on the 25/6/2001). Temporal series of ozone mixing ratios (ppbv) are on the left panels and O_x/NO₂ ratios (ppbv/ppbv; see text) on the right panels for the experiments “ESC” (RACM, ESCOMPTE emissions) in bold dark grey solid lines and crosses, “GEN” (RACM, GENEMIS emissions) in bold black dotted lines and dots, and “SAPRC” (SAPRC, ESCOMPTE emissions) in bold light grey dashed lines and crosses. Results shown correspond to the “zoom” domain (0.08°).

taken into account by the schemes. Results presented in this section are from the “zoom” domain (0.08°) using the detailed emission inventory of ESCOMPTE.

Three flights have been selected to illustrate the comparative behaviour of the two chemical schemes. Fig. 13 presents the time series of ozone concentrations for observations and simulations (left panels) and the O_x/NO_z plots as an indicator for ozone sensitivity vs. NO_x and VOC (right panels).

Contrasted cases appear: (1) “SAPRC” simulates better both the observed levels of ozone and the observed O_x/NO_z ratio compared to “RACM” during ARAT flight 39; (2) “SAPRC” simulates better the observed levels of ozone but simulate worse the O_x/NO_z ratio compared to “RACM” during ARAT flight 40; and (3) “SAPRC” simulates worse the observed levels of ozone but equally the observed O_x/NO_z ratio compared to “RACM” during PBL part of AZTEC 177 flight (dashed circle in Fig. 13). Thus, simulated ozone concentrations can compare nicely with observations, while other chemical components of the photochemical cycle of ozone are wrong due to model errors cancellation. It emphasises the systematic need for simultaneous measurements of ozone along with its main precursors. This is clearly one of the strengths of the ESCOMPTE database.

As shown in the aircraft data, ozone levels simulated with “SAPRC” and “RACM” are of similar quality during daytime. Results of these two configurations are also evaluated against the ground-based measurements performed at Réalitor (Fig. 12; solid bold grey lines for “RACM” and dashed bold grey ones for “SAPRC”). Nighttime ozone concentrations simulated with “SAPRC” strongly overestimate observations during the whole IOP2, while this bias is only present over the last 2 days and, to a lesser extent, with “RACM”. However, “SAPRC” daytime values are in better agreement with observations for IOP2a, especially on June 21, with the reproduction of the double peak not seen with “RACM”. During IOP2b, if maxima of similar intensities are simulated with the two chemical schemes, the shape of the diurnal profiles is not sharp enough in “SAPRC”. Modelled concentrations of NO_x are quite comparable for the two schemes, while the NO/NO_2 ratio (Fig. 12G) is smaller with “SAPRC”. Along with slightly smaller isoprene concentrations and the overestimation of HNO_3 , it points toward an overactive ozone photochemical cycle for this scheme. It could be linked to differences in the inorganic part of the schemes. Thus, the measurements of radicals that were made but that are not yet available, as this location will help further investigate and interpret this case. Besides, additional simulations with RACM and SAPRC but using the same constants for inorganic species could also be performed.

4. Concluding remarks

The MOCAGE multiscale CTM has been used to simulate and study IOP2 and IOP4 of the ESCOMPTE field campaign. An overview of the comparison between model and observations is presented. Interestingly, the agreement is generally good at the surface as well as in the vertical throughout the very varied situations encountered even though the model horizontal resolution is only 0.08° and the meteorological forcings are hydrostatic. Results of several sensitivity studies dedicated to evaluate key parameters in tropospheric

chemical modelling are also presented. They are performed on the basis of IOP2 and make use of some specificities of MOCAGE:

- being global and accounting for the stratosphere, it enables an investigation of the influence of chemical boundaries
- its modular parameterisation of chemistry permits the chemical scheme and/or the emissions inventory to be changed easily.

During IOP2, long-range transport but also stratospheric intrusions contribute to the high variability over the whole tropospheric column. Providing its own time-dependent consistent boundary conditions, the model is able to account for most of the complex vertical and horizontal structures sampled. We show that any simplification in the treatment of the chemical boundaries may be detrimental, even if the aim is solely regional surface air quality. Not surprisingly, modelled photochemistry within the PBL is quite sensitive to refinements in the emissions, particularly primary compounds, as well as to the chemical scheme employed. We highlight the richness of the ESCOMPTE database, which contains not only ozone measurements but also nitrogen oxides, radicals as well as VOCs. This allows a thorough analysis of the chemical episodes and limits the possibility of misinterpreting the model's performance by pointing out compensations of errors within the chemistry or between the chemistry and the transport. This is a very satisfactory consideration in the perspective of the International Modelling Exercise, which is organized on the basis of this comprehensive database (see <http://medias.obs-mip.fr/escompte/exercise/HTML/exe.html>).

Acknowledgments

We would like to thank our colleagues from Météo-France, M. Michou and F. Brocheton, for their help concerning the set-up of the ESCOMPTE emission inventory into MOCAGE and useful discussion on the photochemical aspects. We acknowledge also all the ESCOMPTE teams for fruitful collaborations, as well as the funding agencies of the field campaign.

References

- Alicke, B., Geyer, A., Hofzumahaus, A., Holland, F., Konrad, S., Pätz, H.W., Schäfer, J., Stutz, J., Volz-Thomas, A., Platt, U., 2003. OH formation by HONO photolysis during the BERLIOZ experiment. *J. Geophys. Res.* 108 (D4), 8247.
- Ancellet, G., Ravetta, F., 1998. A compact airborne LIDAR for tropospheric ozone (alto): description and field measurements. *Appl. Opt.* 37, 5509–5521.
- Ancellet, G., Ravetta, F., 2001. Analysis and Validation of O₃ Variability Observed by LIDAR during the ESCOMPTE-2001 Campaign.
- Bechtold, P., Bazile, E., Guichard, F., Mascart, P., Richard, E., 2001. A mass flux convection scheme for meso-scale and global models. *Q. J. Royal Meteorol. Soc.* 126, 865–889.
- Brasseur, G.P., Hauglustaine, D.A., Walters, S., Rasch, P.J., Muller, J.-F., Granier, C., Tie, X.X., 1998. MOZART: a global chemical transport model for ozone and related chemical tracers: Part 1. Model description. *J. Geophys. Res.* 103, 28,265–28,289.

- Carter, W.P.L., 1999. Documentation of the SAPRC-99 chemical mechanism for VOC reactivity assessment, Final Report to California Air Resources Board, Contract Nos. 92-329 and 95-308.
- Cathala, M.-L., Pailleux, J., Peuch, V.-H., 2003. Improving global chemical simulations of the upper troposphere–lower stratosphere with sequential assimilation of MOZAIC data. Tellus 55B, 1–10.
- Cousin, F., Tulet, P., Rosset, R., 2001. Interaction between local and regional polluted layers in the low troposphere: impact on surface concentrations during ESCOMPTE 2001, IOP2.
- Cros, B., Durand, P., Cachier, H., Drobinski, Ph., Fréjafon, E., Kottmeier, C., Perros, P.E., Peuch, V.-H., Ponche, J.L., Robin, D., Saïd, F., Toupane, G., Wortham, H., 2004. The ESCOMPTE program: an overview. Atmos. Res. 69, 241–279.
- Febo, A., Perrino, C., Allegrini, I., 1996. Measurement of nitrous acid in Milan, Italy, by DOAS and diffusion denuders. Atmos. Environ. 30, 3599–3609.
- François, S., Grondin, E., Fayet, S., Ponche, J.-L., 2004. The establishment of the atmosphere emission inventories of the ESCOMPTE program. Atmos. Res. 74, 5–35 (this issue).
- Guenther, A.B., Hewitt, C.N., Erickson, D., Fall, R., Geron, C., Graedel, T., Harley, P., Klinger, L., Lerdau, M., McKay, W.A., Pierce, T., Scholes, B., Steinbrecher, R., Tallamraju, R., Taylor, J., Zimmerman, P., 1995. A global model of natural volatile organic compound emissions. J. Geophys. Res. 100 (D5), 8873–8892.
- Harris, G.W., Carter, W.P.L., Winer, A.M., Pitts Jr., J.N., Platt, U., Perner, D., 1982. Observations of nitrous acid in the Los Angeles atmosphere and implications for predictions of ozone–precursor relationships. Environ. Sci. Technol. 16, 414–419.
- Intergovernmental Panel on Climate Change, 1995. Climate Change 1994: Radiative Forcing of Climate Change and an Evaluation of the IPCC IS92 Emissions Scenarios. Cambridge University Press, Cambridge, UK.
- Jacobson, M.Z., 2001a. GATOR-GCMM: a global through urban scale air pollution and weather forecast model: 1. Model design and treatment of subgrid soil, vegetation, roads, rooftops, water, sea ice, and snow. J. Geophys. Res. 106, 5385–5402 (<http://www.stanford.edu/group/efmh/jacobson/GATORglob.html>).
- Jacobson, M.Z., 2001b. GATOR-GCMM: 2. A study of day- and nighttime ozone layers aloft, ozone in national parks, and weather during the SARMAP field campaign. J. Geophys. Res. 106, 5403–5420 (<http://www.stanford.edu/group/efmh/jacobson/GATORstudy.html>).
- Kaminski, W., McConnell, J.C., Neary, L., Soldatenko, S.A., 2003. Multiscale air quality modelling system—global and regional results. Geophys. Res. Abstr. 5, 12,460.
- Lammel, G., Cape, J.N., 1996. Nitrous acid and nitrite in the atmosphere. Chem. Soc., 361–369.
- Langmann, B., Bauer, S.E., Bey, I., 2003. The influence of the global photochemical composition of the troposphere on European summer smog: Part I. Application of a global to meso-scale model chain. J. Geophys. Res. 108 (D4).
- Lefèvre, F., Brasseur, G.P., Folkins, I., Smith, A.K., Simon, P., 1994. Chemistry of the 1991–1992 stratospheric winter: three-dimensional model simulations. J. Geophys. Res. 99 (D4), 8183–8195.
- 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.B., Levin, Z., Markowicz, K., Mihalopoulos, N., Minikin, A., Ramanthan, V., de Reus, M., Roelofs, G.J., Scheeren, H.A., Sciare, J., Schlager, H., Schulz, M., Siegmund, P., Steil, B., Stephanou, E.G., Stier, P., Traub, M., Warneke, C., Williams, J., Ziereis, H., 2002. Global air pollution crossroads over the Mediterranean. Science 298, 794–799.
- Louis, J.F., 1979. A parametric model of vertical eddy fluxes in the atmosphere. Boundary - layer Meteorol. 17, 197–202.
- Madronich, S., 1987. Photodissociation in the atmosphere: 1. Actinic flux and the effects of ground reflections and clouds. J. Geophys. Res. 92, 9740–9752.
- Menut, L., et al., 2000. Measurements and modelling of atmospheric pollution over the Paris area: an overview of the ESQUIF project. Ann. Geophys. 18, 1467–1481.
- Menut, L., Coll, I., Cautenet, S., 2004. Impact of meteorological data resolution on the forecasted ozone concentrations during the ESCOMPTE IOP2. Atmos. Res. 74, 139–159 (this issue).
- Michou, M., Peuch, V.-H., 2002. Surface exchanges in the MOCAGE multi-scale chemistry and transport model. Water Sci. Rev. 15, 173–203 (special).
- Michou, M., Laville, P., Serça, D., Fotiadi, A., Peuch, V.-H., 2004. Measured and modeled dry deposition velocities over the ESCOMPTE area. Atmos. Res. 74, 89–116 (this issue).

- Neftel, A., 1999. Examples of the importance of trace gas measurements in the Milan ozone plume. *Anulusis* 27, 325–327.
- Olivier, J.G.J., Bouwman, A.F., Van der Maas, C.W.M., Berdowski, J.J.M., Veldt, C., Bloos, J.P.J., Visschedijk, A.J.H., Zanveld, P.Y.J., Haverlag, J.L., 1996. Description of EDGAR Version 2.0: a set of global emission inventories of greenhouse gases and ozone-depleting substances for all anthropogenic and most natural sources on a per country basis on $1^\circ \times 1^\circ$ grid, RIVM Rep 771060002/TNO MEP report no. R96/119, RIVM, Bilthoven, The Netherlands.
- Peuch, V.-H., Amodei, M., Barthet, T., Cathala, M.-L., Josse, B., Michou, M., Simon, P., 1999. MOCAGE: Modèle de Chimie, Atmosphérique A Grande Echelle. Actes des Atelier de Modélisation de l'Atmosphère, Météo-France, 33–36.
- Sillman, S., 1995. The use of NO_y , H_2O_2 and HNO_3 as indicator for ozone– NO_x –hydrocarbons sensitivity in urban locations. *J. Geophys. Res.* 100, 14,175–14,188.
- Stockwell, W.R., Kirchner, F., Khun, M., Seefeld, S., 1997. A new mechanism for regional atmospheric chemistry modelling. *J. Geophys. Res.* 102, 25, 847–25, 879.
- Volz-Thomas, A., Mihelic, D., Konrad, S., Pätz, H.-W., Houben, N., Platt, U., Perner, D., 2000. Local Ozone Production Rates from Photostationary State of O_3/NO_x and from EGS Conference, Nice, France, April.
- Williamson, D.L., Rash, P.J., 1989. Two-dimensional semi-Lagrangian transport with shape-preserving interpolation. *Mon. Weather Rev.* 117, 102–129.
- World Meteorological Organization, 1998. Scientific assessment of ozone depletion 1998. Global Ozone Research and Monitoring Project, WMO report no/ 44.

3.4 Enseignement de l'exercice de modélisation

L'évaluation des modèles régionaux modélisant la photochimie est l'un des objectifs principaux du programme ESCOMPTE.

A ce titre, un exercice de modélisation s'est déroulé de mai 2003 à octobre 2005. Deux points particuliers sont à souligner pour cet exercice : l'utilisation obligatoire du cadastre régional spécifique haute résolution par l'ensemble des modèles et l'évaluation systématique des composantes de la modélisation de l'ozone troposphérique, qu'elles soient accessibles par des observations ou non telles que les vitesses de dépôt, les taux de photolyse ou encore les radicaux (OH , HO_2 , RO_2 ou H_2O_2).

L'exercice a regroupé 11 équipes et 18 simulations dont les principales caractéristiques sont reportées tableau 3.4 (MOCAGE est noté en rouge, et les points communs avec les autres systèmes de modélisation sont notés en vert). Elles comprennent à la fois des simulations de CTM et des modèles couplés de méso-échelle (résolution horizontale de 0.1° à 0.027°), globaux ou à aire limités, troposphérique et stratosphérique (sommet de 3 km à 0.1 hPa) et traitant les émissions de façon plus ou moins sophistiquée (prise en compte ou non de la hauteur de l'altitude de rejet voire une paramétrisation sous-maille des panaches).

MOCAGE est donc le modèle à la résolution la plus grossière (10 km contre 3-4 km pour toutes les autres simulations). L'idée est ici de regarder son comportement vis à vis des autres simulations grâce à l'étude coordonnée par F. Brocheton et V.-H. Peuch. Les graphiques et les tableaux donnés en annexe sont issus du site⁴ ainsi que du rapport final de l'exercice (Brocheton and Peuch (2006)).

Deux aspects seront abordés successivement : la simulation des espèces primaires et celle de l'ozone ; ils conduisent à des conclusions contrastées.

3.4.1 Les composés primaires : CO , SO_2 , NO_x

Une première constatation porte sur le CO et le SO_2 pour lesquels les concentrations de fond en surface et en altitude sont très mal simulées par MOCAGE mettant en évidence une faiblesse des climatologies utilisées pour initialiser les simulations. En effet, pour ces espèces à durée de vie assez longue, la période de mise à l'équilibre n'est pas révolue.

La seconde, valable pour l'ensemble des primaires, est que la non-prise en compte de la hauteur d'injection des émissions et la résolution basse (10 km par rapport à la résolution des autres simulations : 3 à 4 km) est pénalisante en terme de localisation et d'intensité au sol et à proximité des sources. Par contre, en altitude et plus loin des sources, les simulations de MOCAGE rejoignent le comportement moyen de l'ensemble des modèles.

Il faut cependant noter que la simulation des primaires dans cette zone semble hors de portée de l'ensemble des systèmes testés durant l'exercice, le modèle le plus performant étant le seul possédant une paramétrisation sous-maille des panaches pour les émissions de grandes sources ponctuelles notamment, nombreuses dans la région.

3.4.2 L'ozone

Concernant l'ozone, la question posée est la suivante : pourquoi MOCAGE, avec une résolution environ trois fois plus lâche que les autres modèles, simule d'une part des champs

⁴<http://medias.obs-mip.fr/escompte/exercice/HTML/exe.html>

	Domaine horizontal	Domaine verti- cal	global/continental/ modèle à aire limitée	Forçage météorologiques	Chimie tropo	Traitement des émissions
Azur	138km*138km (Rés. : 3km *3km)	0-3km (15 niveaux)	Aire limitée : (forcé par CHIMERE)	off-line : MM5	SAPRC99	ALT.
Chimere1	140km*140km (Rés. : 4km *4km)	0-700hPa (15 niveaux)	Forcé par domaine père (modèle continental)	off-line : MM5	SAPRC99	ALT.
Chimere-Acri	138km*138km (Rés. : 3km *3km)	0-500hPa (12 niveaux)	Forcé par domaine père (modèle continental)	off-line : MM5	MELCHIOR2	ALT.
Mapom	???	???	???	off-line : MM5		
MC2-AQ	4.077°*4.077° (Rés. : 0.027°*0.027°)	0-20km (35 niveaux)	Forcé par domaine père (modèle global)	on-line	ADOM 2B	ALT
Meso-NHC	180km*216km (Rés. : 3km *3km)	0-16km (50 niveaux)	Forcé par domaine père (modèle continental)	on-line	Relacs	SANS ALT
Mocage1	15**11° (Rés. : 0.1°*0.1°)	0-5hPa (47 niveaux)	Forcé par domaine père (modèle global)	off-line : Aladin	RACMOBUS	SANS ALT
Mocage2	3.84°*3.84° (Rés. : 0.08°*0.08°)	0-5hPa (47 niveaux)	Forcé par domaine père (modèle global)	off-line : Aladin	RACMOBUS	SANS ALT
Polair	141km*141km (Rés. : 3km *3km)	0-3km (? ? niveaux)	Forcé par domaine père (modèle continental)	off-line : Rams	RACM	ALT
Rams-Camx1	144km*150km (Rés. : 3km *3km)	0-8.5km (15 niveaux)	area-limited : Forced by Mocage1	off-line : Rams	CBM-IV modif	ALT
Rams-Mocal	141km*141km (Rés. : 3km *3km)	0-8.5km (15niveaux)	Forcé par domaine père (modèle continental)	on-line	MOCA2.2	ALT
Rams-Moca2	as Rams-Mocal	as Rams-Mocal	as Rams-Mocal	as Rams-Mocal	MOCA2.2	ALT
Rams-Racm	as Rams-Mocal	as Rams-Mocal	as Rams-Mocal	as Rams-Mocal	RACM	ALT
Uam-Total1	141km*201km (Rés. : 3km *3km)	0-4km (13 niveaux)	Aire limitée : Forcé par Chimere1	off-line : Rams	CBM-IV tox	Panaches ss-maille
Uam-Total2	as Uam-Total1	as Uam-Total1	as Uam-Total1	as Uam-Total1	CBM-IV tox	Panaches ss-maille
Tcam	144*150km (Rés. : 3km *3km)	0-7km (15 niveaux)	Aire limitées : Forcé par Mocage1	off-line : Rams	SAPRC-97	ALT

TABLEAU 3.4 – Principales caractéristiques des modèles ayant participé à l'exercice de modélisation ESCOMPTÉ. MOCAGE est reporté en rouge ; les points communs avec les autres systèmes de modélisation sont notés en vert.

de primaires effectivement plus lisses et moins réalistes mais d'autre part des champs d'ozone autant voire plus structurés (hétérogénéité à la fois verticale et horizontale) ? Cette question sous-tend celle de la légitimité et du réalisme d'une telle variabilité.

Pour répondre à ce dernier point, il est possible d'évaluer dans une première approche qualitative l'hétérogénéité des champs 2D sur l'horizontale (grâce aux mesures in-situ, aux scannages horizontaux du LIDAR de l'INERIS et les palliers des avions) et sur la verticale (radiosondage ozone et profils LIDAR) ; quantitativement, les écart-types des simulations peuvent être comparé par rapport à ceux des observations.

Dans tous les cas, les structures dans cette région sont fortement hétérogènes.

Certaines des structures simulées par MOCAGE ne sont pas présentes dans les observations (cas des poches nocturnes de concentrations très faibles au nord-ouest du domaine) ; d'autre part, la structure verticale est parfois mal reproduite conduisant à de forte sur ou sous-estimation de la variabilité selon que l'avion échantillonne la troposphère libre dans la simulation et non dans la réalité (et inversement). D'une manière générale, ce paramètre est assez bien reproduit par MOCAGE (voir tableaux en annexe C.3.1) à la fois sur les régions photochimiques définies par les AASQA locales mais aussi sur les vols aéroportés. Les résultats sont moins satisfaisants site par site.

Enfin, les profils verticaux des LIDARs et des sondes montrent que la variabilité simulée est inférieure à celle mesurée, même si la reproduction de certaines structures caractéristiques sont vues par le modèle (intrusion stratosphérique de la POI2b ou flux de l'atlantique de la POI2a), à la différence de tous les autres modèles impliqués.

Ensuite, deux variables au moins peuvent expliquer un gain de variabilité de MOCAGE par rapport aux autres simulations qui contrebalancerait la résolution plus grossière : les taux de photolyses et les vitesses de dépôt sec.

En effet, la paramétrisation des taux de photolyse de MOCAGE est la seule de l'ensemble des modèles à tenir compte de l'albédo et de la colonne totale d'ozone. Cela entraîne de l'hétérogénéité sur le domaine ESCOMPTE pour ce paramètre qui peut à priori se répercuter sur les champs d'ozone bien que le lien de soit pas direct. MOCAGE présente les champs les plus variables sachant que les écarts entre les valeurs extrêmes toutes simulations confondues sont de l'ordre de 30 à 40% pour j_{NO_2} et de 30 à 130% pour j_{O^1D} . MOCAGE est réaliste par rapport aux quelques observations disponibles.

La deuxième source de variabilité provient des champs très hétérogènes des vitesses de dépôt de l'ozone, qui impactent directement les structures des concentrations d'ozone en surface. MOCAGE présente parmi les champs les plus variables sachant que la gamme des valeurs simulées est très large, montrant une contrainte assez faible de la modélisation sur ce paramètre : les écarts entre les valeurs extrêmes toutes simulations confondues vont de 30% jusqu'à 150% à 6HTU et sont de l'ordre de 50% à 18HTU.

Chapitre 4

Les campagnes de prévisions estivales

Sommaire

4.1	De PIONEER au passage en opérationnel	105
4.2	Bilan et performances	109
4.2.1	Méthodologie	109
4.2.2	Application sur une saison estivale	110
4.2.3	Variabilité interannuelle et intermensuelle	130
4.2.4	Variabilité des conditions aux limites du domaine continental	135
4.2.5	Analyse conjointe des différents indicateurs	141
4.3	Impact de la qualité du forçage météorologique sur la simulation de la qualité de l'air	146
4.3.1	Qualité intrinsèque du forçage météorologique	146
4.3.2	Défis et réseaux de prévisions météorologiques	147
4.3.3	Même réseau de prévisions météorologiques : variabilité journalière	153
4.4	Prévisions sur site : adaptation statistique	163
4.4.1	Méthodologie	163
4.4.2	Résultats et discussion	165

4.1 De PIONEER au passage en opérationnel

Le projet de recherche **PIONEER** (Prévisibilité et Incertitudes de l’OzoNe à l’Echelle Européenne et Régionale), piloté par R. Vautard (LMD), de 2001 à 2002 pour la phase initiale, avait pour objectif la prévisibilité de la pollution photo-oxydante à l'échelle continentale et régionale ainsi que l'évaluation et la comparaison de deux méthodologies d'estimation de cette pollution, par le modèle CHIMERE de l'IPSL (voir Schmidt et al. (2001)) et par le modèle MOCAGE du CNRM.

Le projet a permis dès l'été 2001 de conduire une expérience de prévisions quotidiennes de qualité de l'air à 2 jours d'échéance ainsi que la collecte en temps réel par le LMD de données de validation à l'échelle continentale sur 250 sites. Ces sites recouvrent la France (fédération ATMO), l'Allemagne (UBA), l'Angleterre (NAQIA), la Hollande (LML), la Belgique (IRCELIN) et la Suisse (NABEL/SAEFL). L'implantation géographique des stations apparaît sur la figure 4.1. PIONEER visait alors, à travers la comparaison entre les prévisions réalisées par les 2 modèles aux diverses échéances et les concentrations

mesurées sur les 250 sites, à estimer et dissocier les sources d'erreurs de la modélisation de la qualité de l'air : *forçages des systèmes (essentiellement météorologie et émissions)*, *paramétrisations* (par exemple transport sous-maille ou prise en compte de la nébulosité), *conditions initiales* et rôle de l'assimilation de données afin de diminuer cette erreur, *résolutions verticale et horizontale* avec sous-jacente la problématique de la représentativité des mesures.

Ce prototype de plate-forme de prévisions déterministes de la qualité de l'air, en mode recherche, a démontré la faisabilité et l'intérêt des simulations numériques (notamment aide à la décision pour le déclenchement des périodes d'observations intensives de la campagne ESCOMPTE durant l'été 2001).

Ce système a alors tout naturellement conduit à la création d'une structure opérationnelle : le système **PREV'AIR** regroupant le MEDD, l'INERIS, le CNRS, Météo France et l'ADEME. Mis en place en 2003, à l'initiative du MEDD, PREV'AIR¹ génère et diffuse quotidiennement des prévisions et des cartographies de qualité de l'air à différentes échelles spatiales, issues de simulations numériques ainsi que d'observations effectuées par les AASQA. Le système délivre à la fois l'information brute, qu'elle soit observée ou modélisée, mais également combine les deux sources d'informations par assimilation des données in-situ.

PREV'AIR s'appuie sur les deux modèles qui étaient impliqués dans PIONEER (CHIMERE et MOCAGE).

Une étape importante de la vie du projet MOCAGE a été son passage sur la chaîne opérationnelle de Météo-France le 23 juin 2005. Les simulations sont maintenant sauvegardées de manière pérenne dans la base de données de l'établissement ; les simulations quotidiennes de la qualité de l'air bénéficient de créneaux de calculs prioritaires quotidiens sur le supercalculateur leur mise en oeuvre technique est prise en charge par la Direction de la Production qui assure également un pupitrage H24 des tâches informatiques.

Enfin, plus récemment, en juillet 2005, à l'échelle européenne, a été lancé le projet GEMS (Global and regional Earth-system Monitoring using Satellite and in-situ data) à l'initiative de la Commission Européenne et de l'Agence Spatiale Européenne et piloté par le Centre Européen de Prévision. Le projet est de créer un système européen opérationnel de surveillance globale de la dynamique et de la composition de l'atmosphère et un système opérationnel de production de prévisions de qualité de l'air à court et moyen terme assimilant et exploitant les données satellite.

Pour le sous-projet RAQ (Regional Air Quality), trois modèles globaux (dont MOCAGE) et une dizaine de modèles à aire limitée sur l'Europe fourniront donc des prévisions à partir de 2007, permettant d'aborder la question de la prévision d'ensemble en chimie et de l'utilisation de l'assimilation satellite.

Ce chapitre explore les simulations telles qu'elles ont été mises en oeuvre pour l'été 2005.

Dans un premier temps, on présente leur évaluation en suivant la méthodologie et les objectifs présentés dans le paragraphe 4.2.1, à la fois à l'échelle continentale et régionale (§4.2.2). Une attention particulière est portée à la variabilité : temporelle interannuelle (§4.2.3) et spatiale (§4.2.4 et §4.2.5).

La seconde partie (§4.3) aborde le lien entre la qualité des prévisions météorologiques utilisées (qui représentent l'une des données de forçage d'un CTM) et la qualité des prévisions

¹<http://www.prevair.org>

chimiques obtenues en utilisant ce forçage.

Les caractéristiques de la version utilisée dans le cadre de ce chapitre correspondent à la version opérationnelle sur l'été 2005, décrite dans le tableau 4.2 pour la configuration du modèle. Le forçage météorologique est reprécisé dans le tableau 4.1 et une brève description des deux modèles forceurs est donnée en annexe D.

	00-24 (J0)	24-48 (J1)	48-72 (J2)	72-96 (J3)
GLOB44	Arpege r12 J-1 (12-36, 3)	Arpege r12 J-1 (36-60, 6)	Arpege r12 J-1 (60-84, 6)	Arpege r00 J0 (72-96, 6)
EMEP05	Arpege r12 J-1 (12-36, 3)	Arpege r12 J-1 (36-60, 6)	Arpege r12 J-1 (60-84, 6)	Arpege r00 J0 (72-96, 6)
FrAN01	Aladin r12 J-1 (12-36, 3)	Arpege r12 J-1 (36-60, 6)	Arpege r12 J-1 (60-84, 6)	Arpege r00 J0 (72-96, 6)

TABLEAU 4.1 – *Forçages météorologiques alimentant les simulations opérationnelles (configuration de l'été 2005) : modèle utilisé, réseau et jour du réseau utilisé par rapport au J0 des prévisions chimiques proprement dites : rXX JY (ech1-ech2, freq) où XX est le réseau de la prévision lancée à XXhTU le jour JY; entre parenthèses, les échéances utilisées (de ech1 à ech2) ainsi que la fréquence (freq en heure) à laquelle les prévisions météorologiques sont archivées (et donc utilisées).*

Domaine	Globe	Europe	France
Résolution horizontale	4° x 4°	0,5° x 0,5°	0,1° x 0,1°
Extension géographique	Globe entier	12°O-28°E / 34°N - 62°N	5°O-10°E / 41°N - 52°N
Nombre de points de grille	90 x 45	80 x 56	150 x 110
Schéma chimique			
Forçage météorologique	ARPEGE ARPEGE (voir tableau 4.1 pour plus de précisions)	RACM Stockwell et al. (1997)	ALADIN (J0)
Résolution spatiale	Modèle global étiré spectral C2,4 T358 L46 Résolution kilométrique équivalente minimale/maximale : 23 / 133 km		Modèle à aire limitée 9,5 km
Résolution temporelle		3 heures	
Inventaires d'émissions	RIVM/EDGAR Olivier et al. (1996) et IGAC/GEIA Guenther et al. (1995)	EMEP	
Résolution spatiale des émissions	1° x 1°	50 km x 50 km Respatialisée à 0,1° x 0,1° selon la proportion d'urbanisation d'ALADIN et cadastres spécifiques disponibles (Paris et PACA)	
Résolution temporelle des émissions	Mensuelle (taux annuels basés sur les recommandations IPCC (1995))	Mensuelle Profils diurnes appliqués	

TABLEAU 4.2 – Caractéristiques de la version de MOCAGE utilisée pour les simulations opérationnelles en 2005.

4.2 Bilan et performances

4.2.1 Méthodologie

L'évaluation des prévisions d'ozone en surface concerne les échelles continentale et régionale en s'appuyant respectivement sur le réseau mis en place lors du projet PIONEER et sur le réseau exhaustif des AASQA françaises. Cette évaluation s'appuie sur l'expérience accumulée depuis la mise en place des prévisions en routine dès 2001 et sur les travaux de Schmidt et al. (2001) ainsi que les références citées dans cet article.

Les buts visés par MOCAGE dans sa configuration qualité de l'air sont à la fois la représentation de l'état moyen photochimique à l'échelle de la saison, sa variabilité tant temporelle que spatiale, mais également la capacité à prévoir les épisodes de pollution photochimique estivale.

Aussi, les performances seront évaluées aux différentes échéances (J0 à J3) et seront comparées à la persistance et à la climatologie en ce sens où ces critères simples permettent de jauger des performances du modèle non plus dans l'absolu mais par rapport à un référent : la persistance pour les aspects de prévision, puisqu'elle est déjà un bon moyen de prévoir les conditions météorologiques et la climatologie pour la simulation de l'état photochimique moyen puisqu'elle le représente par définition (notamment temporellement à l'échelle de la journée et géographiquement). Par exemple, il est pertinent de comparer la corrélation simulée avec celle de la persistance ou l'erreur quadratique moyenne simulée par rapport à celle calculée à partir de profils climatologiques.

Les **diagnostics statistiques** utilisés, décrits en annexe, visent donc à caractériser quantitativement les performances du modèle pour les différents objectifs assignés :

- reproduction de l'évolution temporelle et géographique de la prévision : la corrélation
- caractéristication de l'état moyen : la moyenne, le biais et l'erreur quadratique moyenne (EQM)
- reproduction de la variabilité des champs : le taux de recouvrement ou Figure Of Merit (FOM) et le rapport des variances modélisées et observées
- bonne représentation des épisodes très pollués : la table de contingence pour le seuil d'information réglementaire (concentration horaire de $180 \mu\text{g.m}^{-3}$) et les scores associés

Ensuite, il faut définir la **nature des séries** sur lesquelles ces diagnostics statistiques vont être appliqués. Outre les valeurs horaires de concentrations d'ozone et du maximum journalier, on s'intéresse à l'amplitude diurne de la concentration d'ozone, afin de caractériser au mieux le comportement du modèle lui-même (indépendamment d'erreurs sur l'état initial avant le début de la photochimie). En effet, la formulation du modèle est en intégration de tendances temporelles : si C est la concentration d'une espèce chimique, P le terme de production, L le terme de perte, et ΔT le pas de temps, l'évolution de la concentration s'écrit :

$C(t + \Delta T) = C(t) + (P - LC) \Delta T$, la somme des tendances sur la journée étant alors l'amplitude diurne du composé en question.

Enfin, reste à définir les **ensembles géographiques considérés**. En effet, un objectif

peut être atteint à l'échelle nationale ou régionale et non locale : par exemple, la version de MOCAGE évaluée ici permet *grossost modo* de prévoir si une région est susceptible d'enregistrer des dépassements du seuil d'information mais ne peut pas prévoir de façon satisfaisante la même chose sur des sites précis.

Il est donc important, pour chaque objectif, de préciser à quelles échelles (géographique mais aussi temporelle) il est atteint.

Les résultats seront donnés soit pour chacune des stations prises séparément, soit par type de station, soit par AASQA, soit globalement toutes stations confondues, soit par grandes entités géographiques et photochimiques définies ci-dessous :

- LA RÉGION SUD-EST regroupant les AASQA suivantes : AIRFOBEP, AIRMARAIX, AIR LANGUEDOC ROUSSILLON et QUALITAIR.
- LE GRAND BASSIN PARISIEN : AIRPARIF, ATMOSFAIR BOURGOGNE CENTRE NORD ET SUD et LIGAIR
- LE NORD : ALPA, AREMASSE, OPALAIR, AREMA LILLE MÉTROPOLE, ATMO PICARDIE, REMAPPA et AREMAROIS
- LA RÉGION RHÔNE ALPES : ASCOPARG, COPARLY, SUPAIRE, AMPASEL, L'AIR DE L'AIN ET DES PAYS DE SAVOIE et ASQUADRA
- LA RÉGION NORD-EST : AERFOM, ARPAM, ATMO CHAMPAGNE ARDENNE, ASPA, ASQAB, ESPOL et AIRLOR
- LA RÉGION SUD-OUEST : ORAMIP et AIRAQ
- LE CENTRE : ATMO AUVERGNE et LIMAIR
- LA FAÇADE ATLANTIQUE ET DE LA MANCHE : ALPA, ATMO POITOU CHARENTES, OPAL'AIR, AIR BREIZH, AIRCOM, AIR PAYS DE LA LOIRE et AIRAQ

Un autre référent d'importance a permis de suivre les performances du modèle : les performances d'un autre modèle ! La comparaison, à l'échelle de la saison estivale, des statistiques des simulations de MOCAGE avec celles des simulations de CHIMERE est effectuée dans le cadre de la plate-forme de prévisions PREV'AIR et est disponible pour l'été 2004, Honoré and Dufour (2005). Cette collaboration a notamment mis en évidence la difficulté du choix d'indicateurs pertinents et synthétiques pour caractériser les performances des deux systèmes, compte-tenu de leurs comportements assez dissemblables. Ils diffèrent notamment sur la taille des structures horizontales modélisées. Aussi, nous avons exploré la réponse du comportement des scores au lissage des simulations dans le paragraphe 4.2.5.

4.2.2 Application sur une saison estivale

ECHELLE CONTINENTALE : ÉTÉ 2005

Les données du réseau mis en place lors du projet PIONEER sont confrontées aux sorties du domaine continental de MOCAGE de résolution horizontale $0,5^\circ$.

Les scores par type de station et par pays sont consignés pour les séries des pics journaliers dans le tableau 4.3. Les biais sont légèrement positifs, la corrélation est de l'ordre de 0,7, l'EQM de $25 \mu\text{g.m}^{-3}$ et les variances observées et modélisées sont à peu près équivalentes (la majorité de leur rapport est compris entre 0,9 et 1,2).

Curieusement, le type présentant les scores les moins performants est le type rural. Néanmoins, c'est le type pour lequel il y a le plus de stations disponibles et sur la plus grande superficie géographique ; l'écart type y est plus élevé que pour les autres types. à la fois dans les observations et dans le modèle, mais trop fortement pour ce dernier.

La figure 4.1 présente le nombre de jours de dépassement du seuil de $180 \mu\text{g.m}^{-3}$ dans

les observations et les simulations. Il apparaît aussi que le modèle produit trop d'épisodes photochimiques et d'intensité trop élevée notamment sur le Sud-Est de la France et le Sud de l'Allemagne, ce qui a pour effet d'augmenter l'écart type (voir section suivante pour une analyse plus détaillée des causes de ce comportement présent aussi sur le sous-domaine régional). Le gradient Nord/Sud est toutefois bien vu par le modèle ; il place également les noyaux de pollution logiquement autour des grandes zones d'émissions.

Un résultat positif est la reproduction correcte de la hiérarchie des concentrations moyennes par pays (à relativiser toutefois compte-tenu du faible nombre de données sur les Pays-Bas, la Suisse et la Belgique) ainsi que les scores tout à fait corrects du taux de recouvrement, excepté pour les Pays-Bas où la distribution est vraiment différente des observations (mais peu de stations sont disponibles et elles encerclent Amsterdam).

	Corr	<i>obs.</i>	<i>prev.</i>	Biais	EQMc	FOM	ECTo	ECTm	Var	Nb Obs
Toutes	0,68	99,1	106,4	7,3	26,6	76,8	32,6	34,2	1,10	16 320
Rurales	0,68	98,8	108,6	9,8	28,1	71,8	33,1	37,0	1,25	8 970
Péri-urbaines	0,68	101,5	105,1	3,6	25,2	80,2	32,2	30,8	0,91	4 426
Urbaines	0,70	98,1	103,3	5,2	22,3	77,5	29,1	28,7	0,97	2 138
Allemagne	0,61	99,0	109,0	10,0	29,9	70,9	31,4	35,7	1,3	8 970
Belgique	0,75	94,0	97,0	3,0	23,8	68,25	36,2	29,4	0,66	693
France	0,73	103,5	110,8	7,3	23,6	77,6	32,1	32,0	0,99	8 185
Pays-bas	0,71	97,0	104,8	7,8	27,7	46,8	39,0	30,0	0,59	350
Royaume-Uni	0,53	77,0	80,1	3,1	25,3	72,1	23,2	28,2	1,48	1 768
Suisse	0,22	124,4	118,1	-6,3	42,4	63,7	32,4	35,6	1,21	309

TABLEAU 4.3 – Scores globaux à l'échelle continentale sur la période du 01/06 au 30/09/2005 pour la série des pics journaliers d'ozone pour la simulation J0 (00-24 heures) relativement au réseau de mesure "PIONEER". L'unité est le $\mu\text{g.m}^{-3}$. Les indicateurs statistiques et les sigles sont définis dans l'annexe B.

Les résultats concernant les séries horaires sont présentés sous forme d'histogramme par type de station et par pays figure 4.2. Comme pour les séries des pics journaliers, les fonctions de distribution des stations péri-urbaines sont les mieux modélisées. D'une manière générale, les queues basses des distributions ne sont pas présentes dans le modèle. Il s'agit majoritairement des concentrations correspondant aux fortes titrations nocturnes. La distribution modélisée des concentrations rurales donne trop de poids aux classes supérieures au détriment du comportement plus "moyen" observé; cela est surtout le cas pour l'Allemagne (la France, elle, bénéficie de la modélisation à plus fine échelle du domaine régional grâce à l'imbrication à double sens).

Par ailleurs, les distributions vraiment particulières du Royaume-Uni et de la Suisse sont reproduites dans le modèle.

En conclusion, les champs de concentrations d'ozone prévues de MO-CAGE à l'échelle continentale sont donc satisfaisants notamment concernant le réalisme de la variabilité et de la distribution des concentrations modélisées. Il faut noter cependant pour cette période une surestimation d'une dizaine de $\mu\text{g.m}^{-3}$ des niveaux ruraux observés.

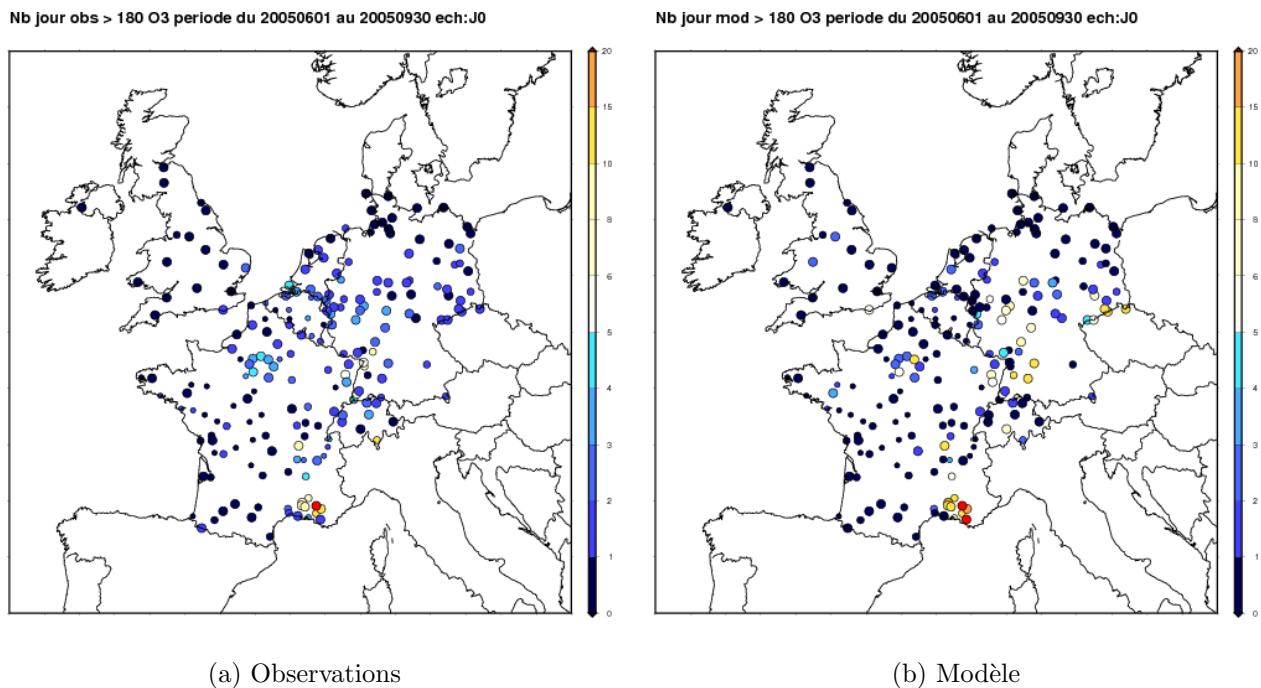


FIGURE 4.1 – Nombre de jours avec dépassement du seuil d'information de $180 \mu\text{g}.\text{m}^{-3}$ pour l'ozone à l'échelle continentale dans les observations du réseau "PIONEER" et pour la simulation J0 (00-24 heures) sur la période du 01/06 au 30/9/2005.

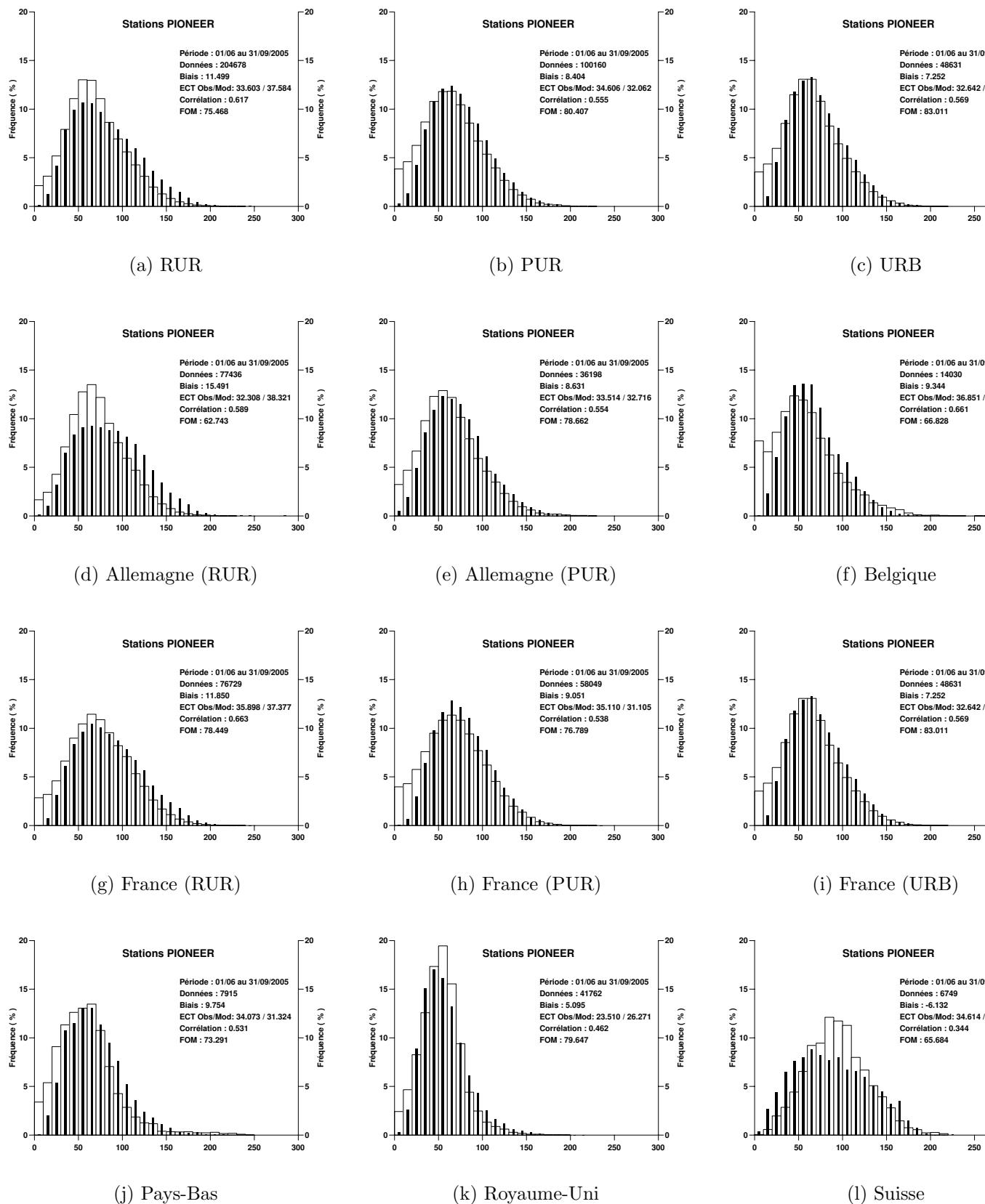


FIGURE 4.2 – Histogrammes et statistiques associées des séries horaires de concentration d'ozone à l'échelle continentale sur la période du 01/06 au 30/09/2005 pour la simulation J0 (00-24 heures) relativement au réseau de mesure "PIONEER".

ECHELLE RÉGIONALE : ÉTÉ 2005

Les données du réseau ATMO de la France métropolitaine sont confrontés aux sorties du domaine régional de MOCAGE de résolution horizontale $0,1^\circ$.

Les statistiques globales portant sur l'évaluation des concentrations d'ozone sur la période du 1er juin au 30 septembre 2005 par type de stations sont présentées dans les tableaux 4.4 pour les séries des maxima journaliers et 4.5 pour les séries des valeurs horaires. Les résultats sont indiqués pour la simulation J0 ainsi que pour la persistance et la "climatologie". Par "climatologie", il est entendu la moyenne pour chaque station sur la période de l'évaluation. Les scores obtenus sont donc à priori meilleurs que s'il s'agissait d'une climatologie sur une période passée ou différente. Notons dès à présent que l'ensemble de la période a été prise en compte pour calculer la climatologie y compris les jours où le modèle n'a pas fourni de sorties, ce qui explique que les biais ne soient pas forcément nuls pour les séries horaires. Pour les séries des maxima journaliers, se rajoute l'effet de l'heure du maximum observé qui peut varier jour à jour alors qu'il est constant pour la climatologie; d'autre part on impose la présence d'au moins 4 échéances documentées sur la tranche 12-18 heures pour calculer le maximum journalier jour à jour. Aussi, une valeur à 15 heures pour le jour J peut avoir été prise en compte pour la climatologie, mais, ce même jour J peut ne pas être pris en compte pour le bilan statistique s'il n'y a pas les 4 valeurs requises à la fois pour les observations et le modèle.

Globalement, le modèle surestime les concentrations d'ozone d'une dizaine de $\mu\text{g.m}^{-3}$ que ce soit pour les valeurs horaires ou le pic comme pour l'échelle continentale. Un point intéressant est la restitution fidèle de la différence des moyennes pour les séries horaires entre stations rurales et urbaines/péri-urbaines.

La corrélation est tout juste équivalente à la persistance pour la série des pics. A la décharge de cette expérience, il faut souligner deux points :

- les simulations sont mises bout à bout (l'état initial à 00H est donné par le J1 à 00H de la veille) sans aucune assimilation ou recalage aux données chimiques observées
- il n'y a pas de J-1, c'est à dire qu'à aucun moment ne sont utilisées des analyses météorologiques pour reconstruire la simulation.

Il est intéressant de souligner que la corrélation spatiale seule pour les séries des pics, donnée par la climatologie, permet d'expliquer à elle seule 0,4 point de corrélation.

Les performances de la simulation sont moins bonnes pour les séries horaires notamment à cause du décalage d'une à deux heures sur les profils moyens par rapport aux observations (figure 4.3). Ceci est d'autant plus vrai que le cycle diurne a de l'importance : pour les stations urbaines et péri-urbaines, un profil climatologique explique quasiment 0,6 point de corrélation contre simplement 0,45 pour les stations rurales (scores obtenus en considérant un profil moyen par type de station). Les scores de la climatologie grimpent même jusqu'à 0,7 si la composante spatiale est ajoutée à la composante temporelle (en considérant un profil moyen par station). L'évolution des concentrations urbaines horaires est pilotée majoritairement non pas par les variations d'un jour à l'autre, mais bien par les variations diurnes reliées à des processus relativement mal représentés dans cette version du modèle, tels que la titration par les émissions ou la chimie nocturne des oxydes d'azote. L'EQM est relativement élevé : équivalent à la persistance et meilleur que la climatologie pour les séries des pics mais légèrement supérieur aux deux pour les séries horaires notamment à cause du biais nocturne.

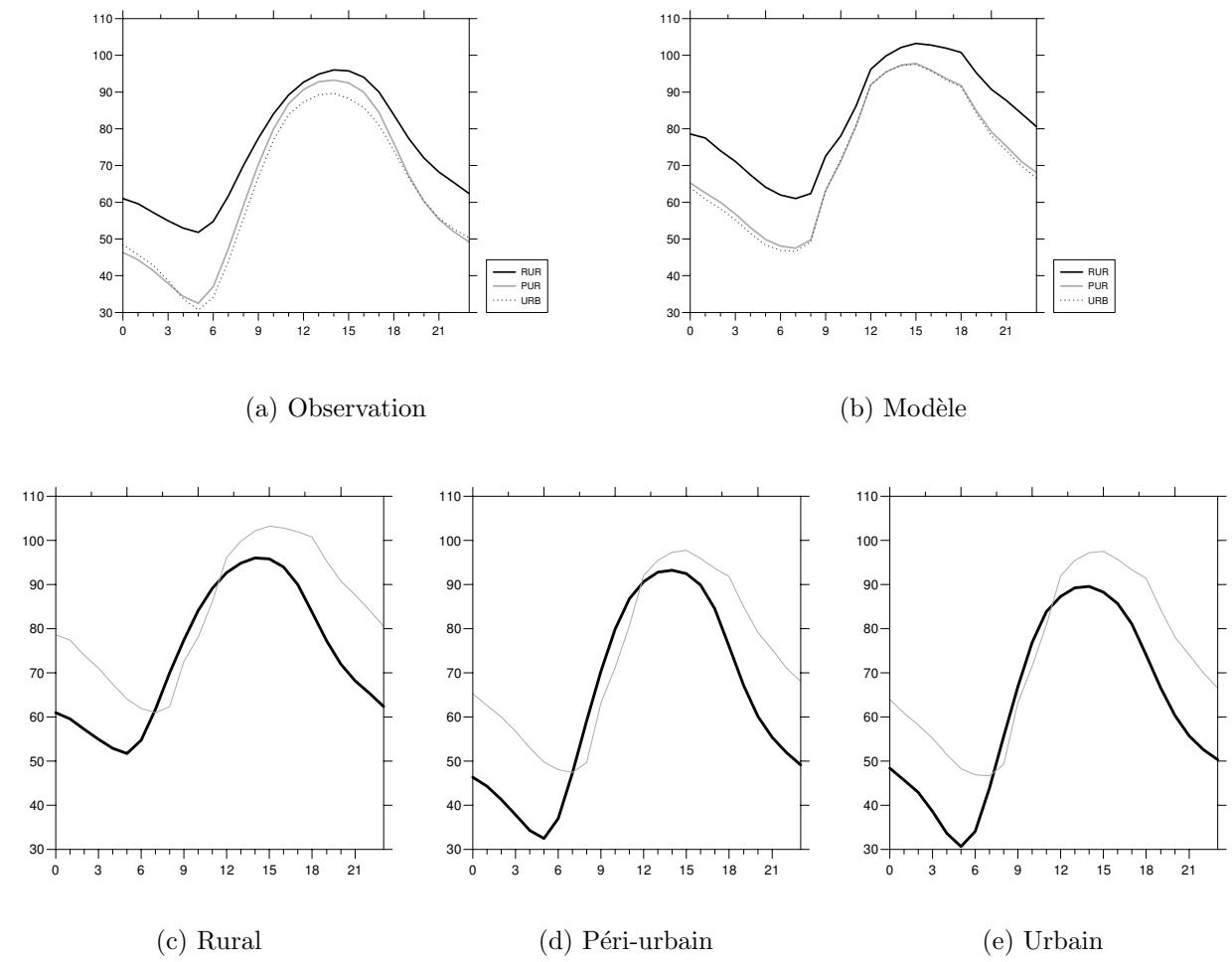


FIGURE 4.3 – Profils moyens d'ozone calculés par type de station sur la période du 01/06 au 30/09/2005 à partir des données BASTER. L'unité est le $\mu\text{g} \cdot \text{m}^{-3}$.
Sur la deuxième ligne, en noir, les observations ; en gris, le modèle.

Ceci est à éclairer cependant avec la très bonne reproduction de la variabilité temporelle du champ : les écarts types modélisés sont équivalents à ceux des observations (sauf dans le cas des concentrations urbaines et péri-urbaines horaires comme déjà noté plus haut pour lesquelles une part de la variabilité est sous-maille). Ce qui explique également d'ailleurs les bons scores pour le taux de recouvrement.

	Corr	<i>obs.</i>	<i>prev.</i>	Biais	EQM	EQMc	FOM	Var	Nb Obs
Rurales	0,71	104,9	115,2	10,3	27,7	25,7	72,4	1,18	5800
Rurales persis	0,70	104,9	105,6	0,7	24,4	24,4	96,3	0,97	5800
Rurales clim	0,38	104,9	96,6	-8,3	30,5	29,4	5,6	0,13	5800
Péri-urbaines	0,69	101,3	107,9	6,5	26,5	25,7	80,8	1,01	12335
Pur persis	0,70	101,3	101,8	0,5	25,1	25,1	96,2	0,98	12335
Pur clim	0,36	101,3	93,8	-7,5	31,1	30,2	4,9	0,13	12335
Urbaines	0,67	98,1	107,7	9,5	28,2	26,5	76,3	1,11	24724
Urbaines persis	0,68	98,1	98,8	0,7	25,2	25,2	97,0	0,98	24724
Urbaines clim	0,39	98,1	90,2	-7,9	30,1	29,0	14,9	0,15	24724

TABLEAU 4.4 – Scores globaux sur la période du 01/06 au 30/09/2005 pour la série des pics journaliers d'ozone par type de stations. L'unité est le $\mu\text{g.m}^{-3}$. Les indicateurs statistiques et les sigles sont définis dans l'annexe B.

	Corr	<i>obs.</i>	<i>prev.</i>	Biais	EQM	EQMc	FOM	Var	Nb Obs
Rurales	0,68	73,4	83,1	9,7	29,5	27,8	80,7	1,05	136941
Rurales persis	0,75	73,4	74,1	0,7	24,2	24,2	98,4	1,00	136941
Rurales clim	0,69	73,4	73,5	0,1	24,9	24,9	59,0	0,47	136941
Péri-urbaines	0,62	62,9	72,8	9,9	31,1	29,5	73,9	0,79	291256
Pur persis	0,74	62,9	63,2	0,3	25,9	25,9	98,0	1,01	291256
Pur clim	0,69	62,9	63,3	0,4	26,0	26,0	58,5	0,46	291256
Urbaines	0,62	61,4	72,0	10,6	31,2	29,3	76,3	0,91	582791
Urbaines persis	0,72	61,4	61,7	0,3	25,6	25,6	98,3	1,00	582791
Urbaines clim	0,67	61,4	61,6	0,2	25,3	25,3	59,5	0,44	582791

TABLEAU 4.5 – Scores globaux sur la période du 01/06 au 30/09/2005 pour la série des valeurs horaires d'ozone par type de stations. L'unité est le $\mu\text{g.m}^{-3}$. Les indicateurs statistiques et les sigles sont définis dans l'annexe B.

Ces mêmes scores sont présentés pour chaque site sur les cartes 4.4, 4.5 et 4.6. Pour le biais, une signature régionale se superpose à celle déjà notée vis à vis du type de site : en effet, le modèle a tendance à sous-estimer les concentrations dans le département du Nord et les sur-estimer sur le littoral de la côte d'azur.

Pour les EQM, les performances sont relativement homogènes : les stations qui ressortent sont celles des régions où se produisent les pics les plus élevés en intensité et les épisodes de pollution les plus fréquents (PACA). En effet, dans ce cas, une erreur de prévision peut entraîner un poids important dans l'EQM total, puisque cet indicateur fait intervenir le carré des erreurs alors que dans des régions à écart type plus faible, une erreur de

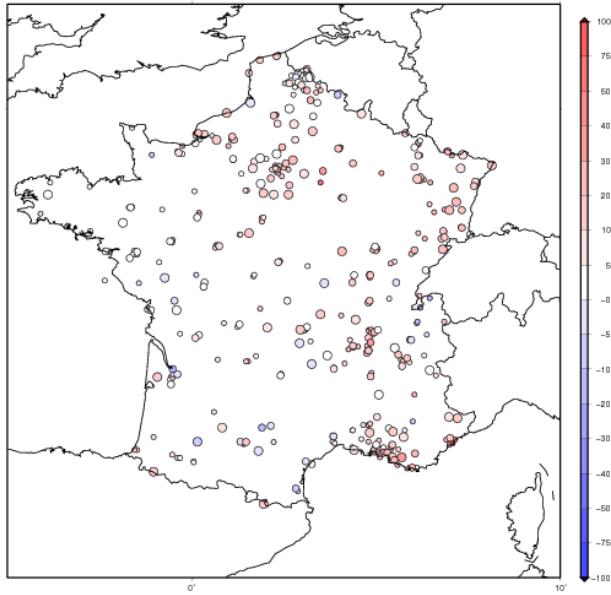
prévision sera moins préjudiciable. La corrélation, elle, est meilleure dans les régions à forte variabilité. Ailleurs, le modèle génère un faible "bruit" parasite qui dégrade la corrélation ; il est probablement à relier en partie à l'absence de resimulation et à l'accumulation d'erreurs dues au forçage météorologique et, en partie, à la résolution très fine des structures spatiales simulées par cette version.

Pour la variabilité, que ce soit sur la FOM ou le rapport des écarts types, il faut noter essentiellement la très forte disparité des stations au sein d'une même région ainsi que la surestimation de la variabilité dans le modèle pour la région parisienne et la côte de la région PACA : les panaches d'ozone modélisés y sont trop étendus géographiquement (ils empiètent dans les simulations beaucoup trop sur les zones urbaines et péri-urbaines) et la fréquence d'occurrence trop élevée.

L'extension géographique trop importante des panaches dans le modèle pourrait être reliée avec le développement temporel des panaches et les régimes chimiques simulés. En effet, une interprétation plausible est la suivante : les émissions étant diluées directement dans les mailles de $0,1^\circ \times 0,1^\circ$, la production d'ozone dans les simulations va pouvoir avoir lieu quasiment dans les mêmes mailles que celles présentant de fortes émissions, voire dans les mailles juste voisines alors que dans la réalité, le panache a besoin de plus de temps (et donc de distance) pour passer dans un régime de production active d'ozone, sans compter que la titration dans ces zones est sous-estimée et donc les concentrations d'ozone sur-estimées. Or, la majorité des stations du réseau sont implantées en zones urbaines, péri-urbaines et industrielles : le panache n'est pas encore "actif" dans la réalité, mais l'est déjà dans les simulations. Pour les stations plus éloignées, l'accord est meilleur puisque cet effet est plus important que l'existence de panaches très fins que la résolution du modèle ne pourrait reproduire.

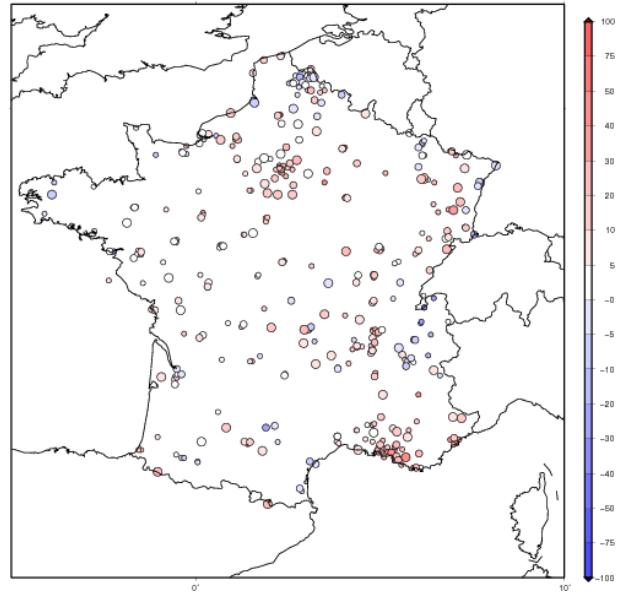
Enfin, l'occurrence trop fréquente des épisodes de pollution est partiellement à relier avec une sous-estimation de la nébulosité par le modèle météorologique forceur (voir §4.3.2 et figure 4.17) qui favorise la production photochimique.

biais: O3 obs du 20050601 au 20050930 ech:J0



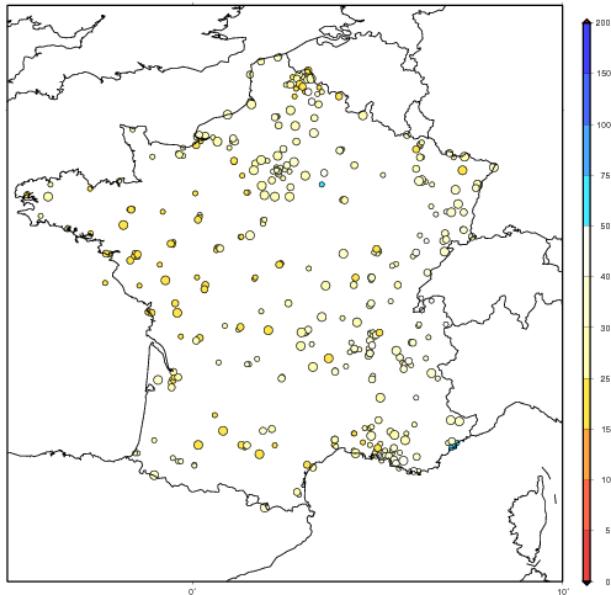
(a) Biais Série horaire

biais: O3 obs du 20050601 au 20050930 ech:J0



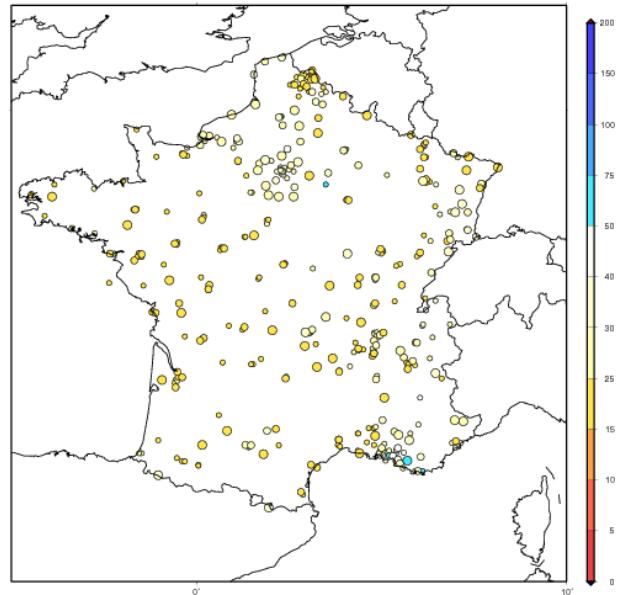
(b) Biais Série des pics

rmse: O3 obs du 20050601 au 20050930 ech:J0



(c) EQM Série horaire

rmse: O3 obs du 20050601 au 20050930 ech:J0



(d) EQM Série des pics

FIGURE 4.4 – Indicateurs site à site des performances du modèle pour l'échéance 00-24 heures sur la période du 01/06 au 30/09/2005 pour les séries horaires de concentration d'ozone (à gauche) et les séries des pics (à droite). L'unité est le $\mu\text{g.m}^{-3}$. Les indicateurs statistiques et les sigles sont définis dans l'annexe B.

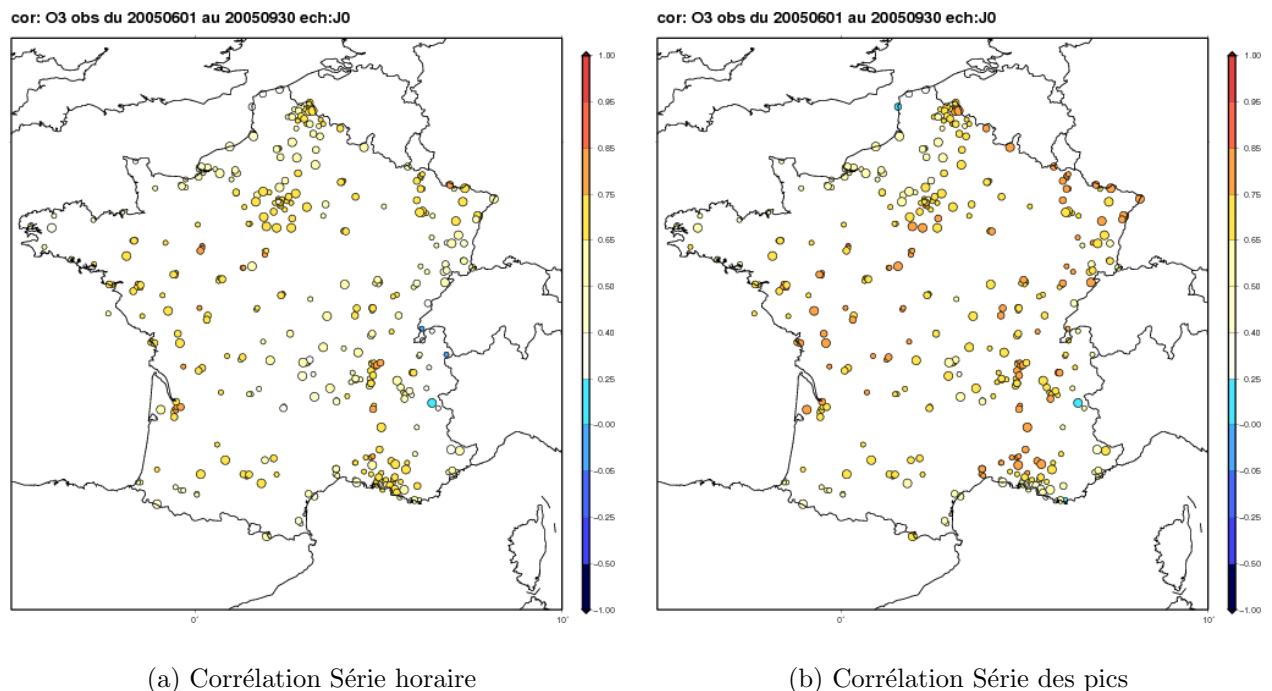
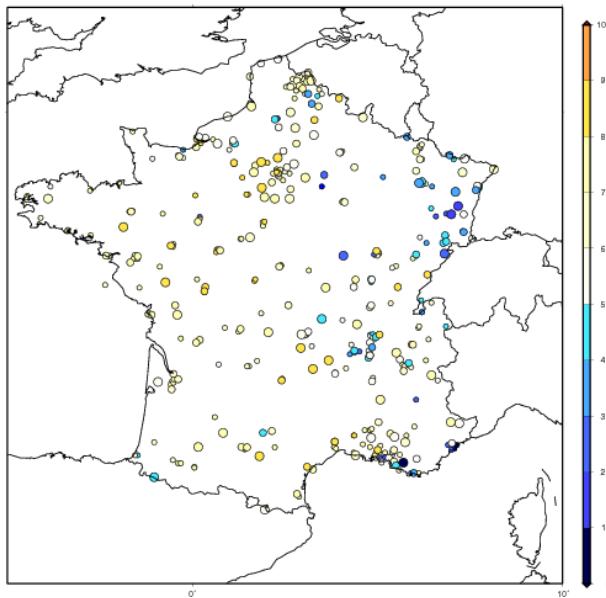


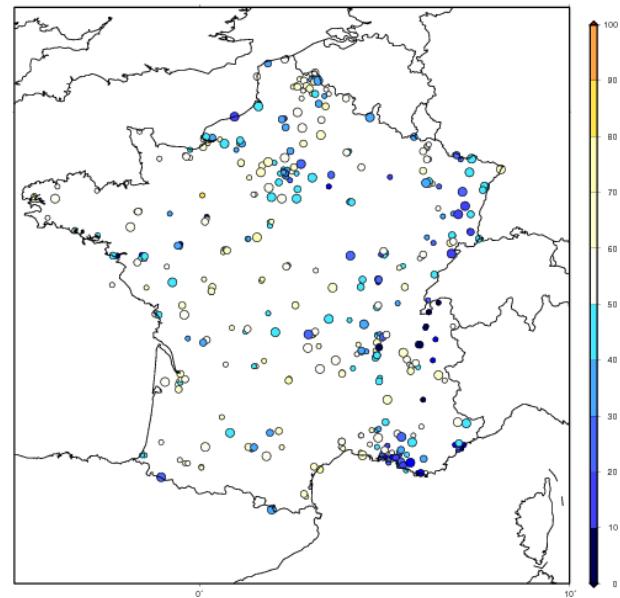
FIGURE 4.5 – Comme figure 4.4 pour la corrélation.

fom: O3 obs du 20050601 au 20050930 ech:J0



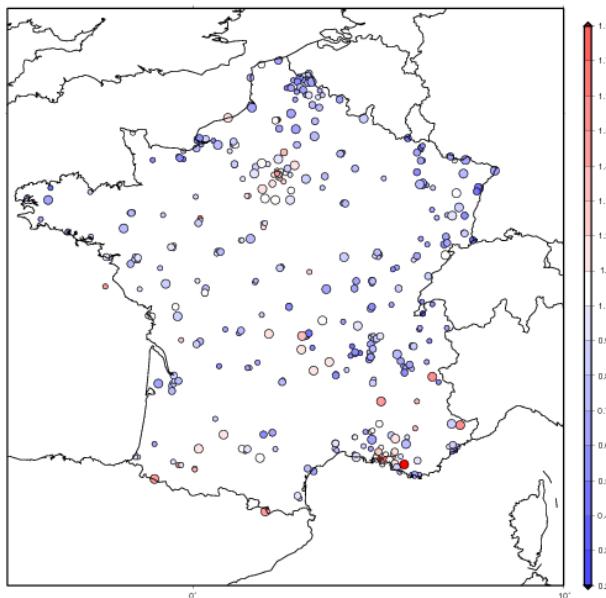
(a) FOM Série horaire

fom: O3 obs du 20050601 au 20050930 ech:J0



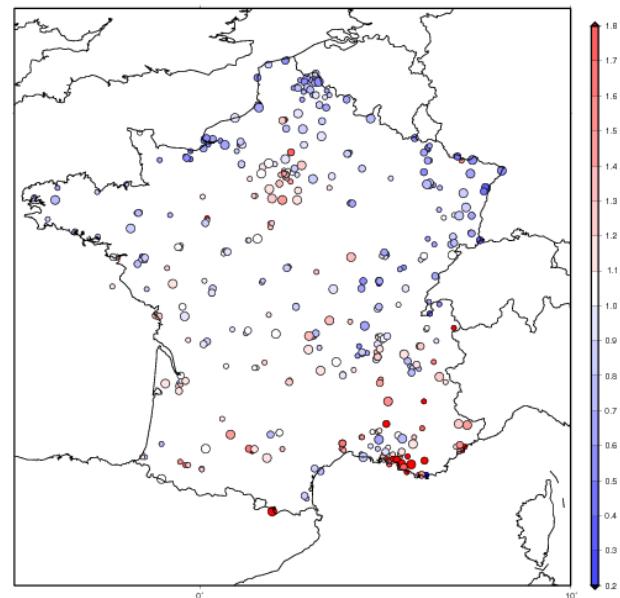
(b) FOM Série des pics

var: O3 obs du 20050601 au 20050930 ech:J0



(c) F-ratio Série horaire

var: O3 obs du 20050601 au 20050930 ech:J0



(d) F-ratio Série des pics

FIGURE 4.6 – Comme figure 4.4 pour les indicateurs de la variabilité temporelle des champs simulés : taux de recouvrement (ou FOM Figure Of Merit) en haut et rapport des variances en bas (F-ratio).

Les résultats relatifs à l'amplitude diurne (c'est à dire la différence locale entre le maximum et le minimum de la journée) des concentrations d'ozone sont consignés dans le tableau 4.6.

Tout d'abord, il apparaît que l'évolution de ce paramètre est plus difficile à prévoir que celle des séries horaires ou des séries des pics (tableaux 4.5 et 4.4), à la fois pour le modèle, la persistance ou la climatologie : en effet, les corrélations ainsi que les EQM sont moins bonnes pour ce paramètre que les deux autres. Le modèle a des scores équivalents voire légèrement supérieurs à la persistance, mais avec une variabilité plus faible, ce qui est également une différence avec les autres paramètres pour lesquels la persistance avait les meilleurs scores. Les erreurs de scénarios peuvent en effet pénaliser les scores du modèle sur plusieurs jours pour les séries horaires ou les séries des maxima mais uniquement pour le jour concerné pour la série des amplitudes, d'où comparativement une meilleure performance du modèle.

La climatologie a un biais très important. Ses écarts types relativement faibles par rapport aux observations (dans une moindre mesure pour les stations rurales) montrent que les hétérogénéités géographiques n'expliquent que peu la variabilité des amplitudes.

Le biais du modèle est très dépendant de la typologie : très faible pour les stations rurales, négatif pour les stations urbaines ou péri-urbaines. Cela semble indiquer une estimation relativement juste de la "production photochimique" à l'échelle régionale mais une sous-estimation de la titration à l'échelle locale. L'examen station par station du biais et de la variabilité (par comparaison des écarts types observés et modélisés) est satisfaisant, notamment concernant la reproduction des extrema (voir figure 4.7).

Le modèle obtient de bons scores relatifs au taux de recouvrement, avec notamment une capacité à reproduire les particularités régionales (voir figure 4.8). Ces histogrammes permettent en outre de détecter les régions pour lesquelles la simulation est plus problématique pour MOCAGE : notamment les région Nord-Est et Rhône-Alpes, sûrement à relier à la faiblesse du cadastre d'émissions utilisé. En effet, il n'y a pas au CNRM d'inventaire spécifique disponible pour ces régions pourtant fortement émettrices.

	Corr	<i>obs.</i>	<i>prev.</i>	Biais	EQM	EQMc	FOM	Var	Nb Obs
Rurales	0,61	63,9	61,7	-2,2	27,2	27,1	87,1	0,76	4223
Rurales persis	0,64	63,9	64,6	0,7	27,3	27,3	96,0	0,97	4223
Rurales clim	0,55	63,9	46,1	-17,8	32,5	27,2	24,4	0,39	4223
Péri-urbaines	0,61	78,1	66,6	-11,4	30,5	28,2	69,4	0,74	8633
Pur persis	0,57	78,1	79,1	1,0	31,4	31,4	94,1	0,96	8633
Pur clim	0,32	78,1	61,8	-16,3	36,2	32,3	-1,5	0,11	8633
Urbaines	0,58	75,9	67,9	-8,0	30,0	28,9	76,2	0,83	17941
Urbaines persis	0,55	75,9	76,7	0,8	30,9	30,9	96,5	1,00	17941
Urbaines clim	0,33	75,9	60,0	-15,9	34,8	30,9	2,1	0,12	17941

TABLEAU 4.6 – Scores globaux sur la période du 01/06 au 30/09/2005 pour la série des amplitudes journalières d'ozone par type de stations. L'unité est le $\mu\text{g.m}^{-3}$. Les indicateurs statistiques et les sigles sont définis dans l'annexe B.

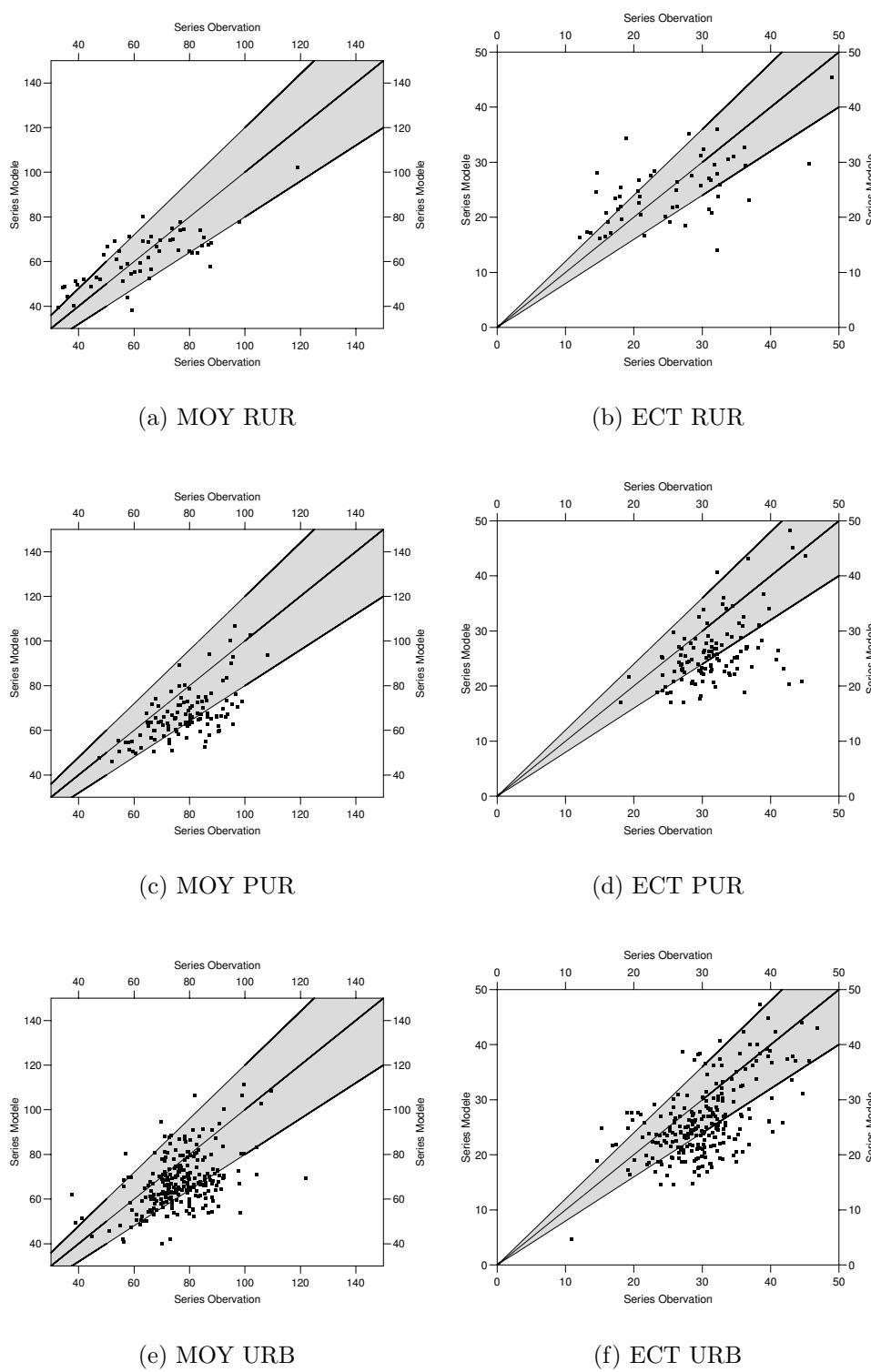


FIGURE 4.7 – Scores station par station pour les amplitudes journalières des concentrations d'ozone sur la période du 01/06 au 30/09/2005 : moyenne à gauche et écart type à droite.

Les grandeurs observées sont en abscisses et les grandeurs modélisées en ordonnées ; la bissectrice tracée en noir représente une prévision parfaite et la zone grisée correspond à des grandeurs modélisées comprises dans une marge de $\pm 20\%$ par rapport aux grandeurs observées.

L'unité est le $\mu\text{g.m}^{-3}$. Les indicateurs statistiques et les sigles sont définis dans l'annexe B.

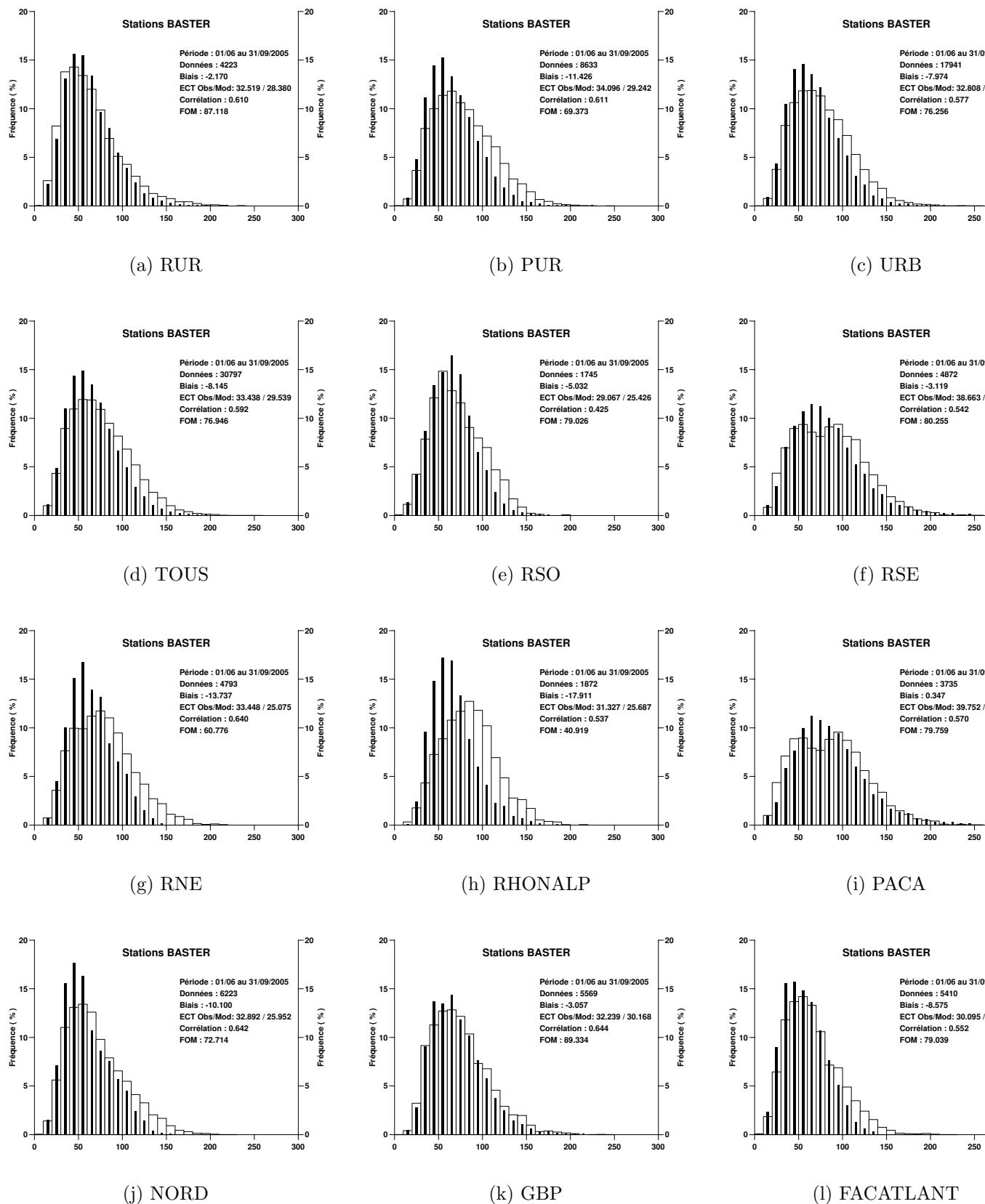


FIGURE 4.8 – Histogrammes et statistiques associées des séries des amplitudes journalières de concentration d'ozone, sur la période du 01/06 au 30/09/2005. L'unité est le $\mu\text{g.m}^{-3}$. Les indicateurs statistiques et les sigles sont définis dans l'annexe B.

Les échantillons disponibles pour les dépassements de seuils sont relativement limités, exceptés pour la région PACA et la vallée du Rhône pour l'été 2005, et dans une moindre mesure pour les régions parisienne et alsacienne : le nombre de jours avec dépassement du seuil horaire d'information de $180 \mu\text{g.m}^{-3}$ dans les observations est tracé sur la figure 4.9 à gauche pour chaque site sur la période de 122 jours de la saison estivale 2005. L'équivalent modèle (figure 4.9 à droite) montre que les grandes caractéristiques régionales

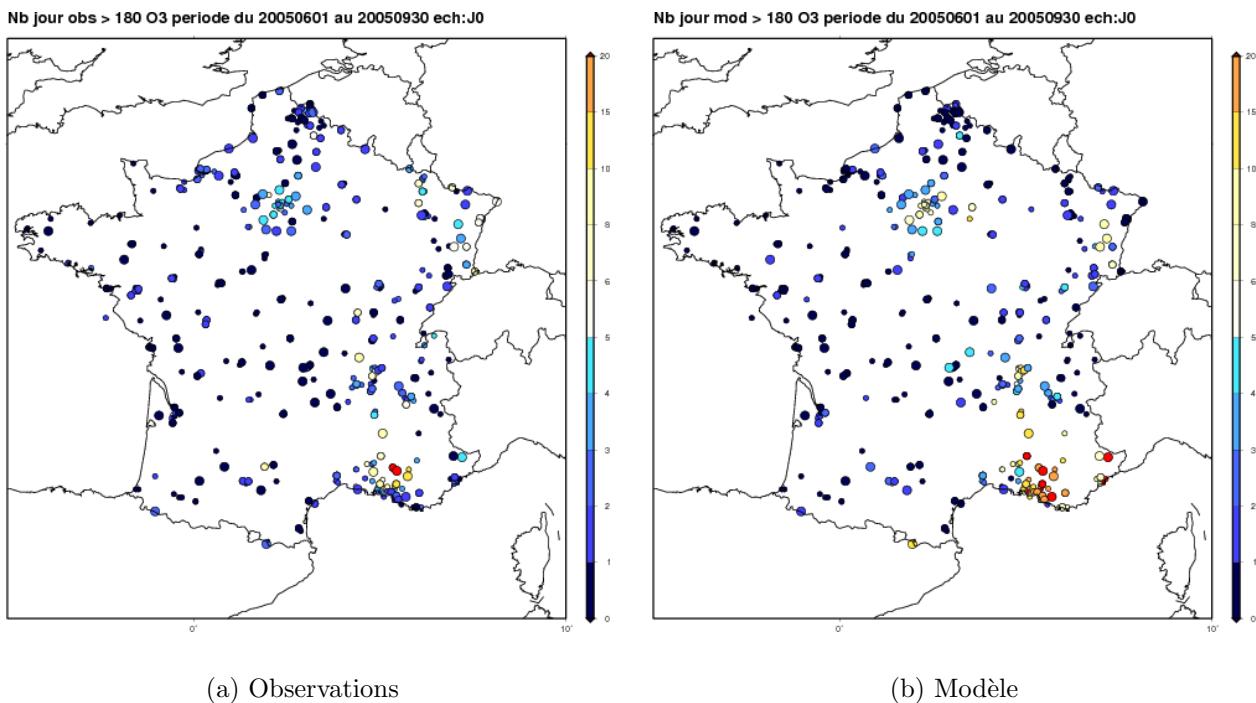


FIGURE 4.9 – Nombre de jours avec dépassement du seuil d'information de $180 \mu\text{g.m}^{-3}$ pour l'ozone à l'échelle régionale dans les observations et pour la simulation 00-24 heures sur la période du 1/6/2005 au 30/9/2005.

sont respectées. Toutefois, on note une nette tendance sur le littoral du Sud-Est de la France à surestimer le nombre de dépassements dans le modèle surtout pour les stations péri-urbaines et urbaines comme cela a été discuté dans le paragraphe précédent.

Aussi les différents critères quantitatifs seront donnés à la fois pour chacune des stations séparément mais également pour chacune des AASQA prise globalement. Dans ce dernier cas, on considère qu'il y a dépassement du seuil si au moins une des stations de l'AASQA est en dépassement au moins une heure sur la journée en délocalisant simulations et observations. Ce choix d'une seule station ne correspond pas forcément aux procédures mises en place par les AASQA ou même PREV'AIR pour l'information de la population : généralement, les AASQA ne déclenchent leurs alertes que si plusieurs capteurs dépassent les seuils simultanément et PREV'AIR agit avec un principe de persistance de l'alerte sur plusieurs régions et plusieurs jours.

Pour notre propos cependant, qui est de savoir si il y a eu ou non un panache dépassant un certain seuil sur une région donnée, au vu de la couverture et de la spécificité des sites, inclure la condition sur plusieurs capteurs conduit à une sous-estimation de la pollution photochimique de la région. Par contre, cette méthode est moins robuste vis à vis des erreurs de mesures puisqu'elle peut ne s'appuyer sur les mesures que d'un seul capteur, qui plus

est dans un mode "temps quasi-réel" sans contrôle de qualité sur les données (c'est à dire récupération via la base de données BASTER et non la BDQA). Pour exemple, l'AASQA ASQUADRA qui gère Valence et ses environs dispose de quatre capteurs pour l'ozone dont deux en zone urbaine, un en zone péri-urbaine avec des émissions locales relativement importantes (titration très marquée la nuit) et un seul en zone rurale. Si l'on considère le nombre de jours de dépassement sur juin/juillet/août/septembre 2005, on obtient onze cas en prenant le critère de dépassement sur seule station et seulement quatre cas sinon : les onze cas déclenchent sur la station rurale, alors que les concentrations d'ozone pour les trois autres sites sont fortement influencés par la proximité des zones de fortes émissions et la production d'ozone de la journée ne suffit pas à leur faire atteindre le seuil considéré. Cet état de fait nous pousse à ne considérer qu'une seule station afin de rendre compte au mieux de la pollution rencontrée sur l'ensemble de la région, d'autant plus que les zones rurales sont les moins bien documentées du point de vue de la densité d'observation (mais aussi les moins peuplées, mais ceci est une autre question...).

Inversement, le cas du 7 septembre 2005 pour l'AASQA AIR NORMAND - REMAPPA de Normandie en charge de l'agglomération rouennaise montre les limites de cette approche. Pour cette date, la station rurale du Phare d'Ailly mesure un dépassement soudain et très marqué à midi, assimilable à une bouffée, sans que les autres stations de la région ne notent une activité photochimique particulière (voir la figure 4.10). De plus, ce site de mesure est relativement éloigné des autres ce qui ne nous permet pas de conclure sur la validité de la mesure, d'autant que de tels pics en relation avec la présence de COV très réactifs a déjà été référencé e.g. durant TexAQS 2000 à Houston (Daum (2002)).

On ne présente les résultats ici que pour les regroupements d'AASQA par grande région géographique et uniquement pour le dépassement du seuil d'information. En effet, trop peu de cas de dépassement du seuil d'alerte ont été répertoriés durant l'été 2005 : uniquement 13 cas sur les 122 jours et l'ensemble des stations dont 6 en PACA, 2 en Alsace, 2 en Bourgogne et 3 en région parisienne. Le modèle est capable de reproduire ces très fortes concentrations même si, en général, ses panaches sont trop étendus géographiquement (plus de sites de mesure touchés que dans les observations) et sur un nombre de jours plus important.

Le tableau 4.7 donne les tables de contingence et les scores associés pour les régions définies en début de section.

Le premier degré d'analyse provient de la lecture directe des tables : indépendamment de la simultanéité des épisodes, le modèle J0 produit un nombre de jours avec dépassement du seuil semblable à celui des observations sauf pour la région Sud-Est où il le surestime largement. Le taux de détection est globalement relativement bon, mais à mettre en parallèle avec un taux de fausse alarme non négligeable. Phénoménologiquement, il s'agit d'erreurs de scénario des prévisions mais également d'un déficit chronique de la couverture nuageuse dans le forçage météorologique utilisé (d'un facteur deux en moyenne sur la période, comme décrit au paragraphe 4.3.1. Ceci est cohérent avec la tendance du modèle à surestimer la durée des épisodes pollués mais aussi leur nombre notamment sur la région PACA. Par exemple, sur l'été 2005, le modèle y simule à tort des alertes pour les périodes du 11 au 12 ainsi que du 26 au 29 août.

Ensuite, les indicateurs positionnent les performances du modèle dans l'absolu pour les différents taux mais également par rapport à des prévisions aléatoires (respectant la climatologie dans le cas de l'indice de Rousseau). Les résultats sont assez satisfaisants sauf pour les régions du Sud-Ouest et du Centre. Pour le Sud-Ouest, 6 des fausses alertes sont localisées sur la région Toulousaine. On pense tout d'abord à un problème d'intensité des

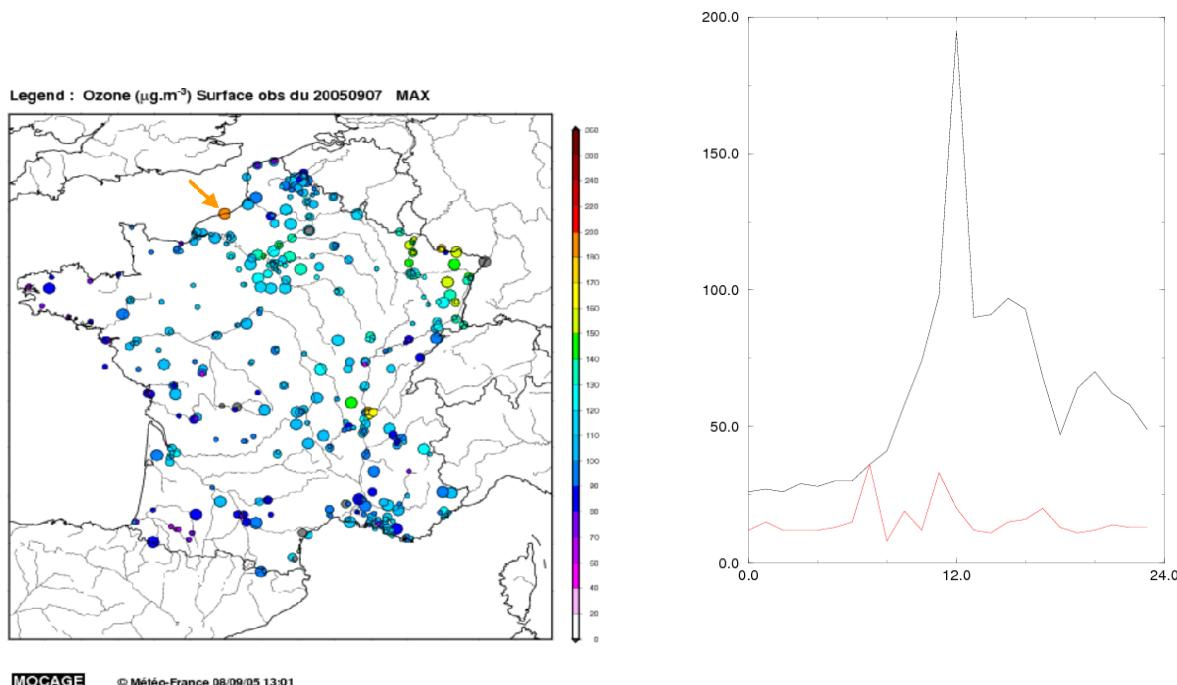


FIGURE 4.10 – Cas d'une bouffée d'ozone sur le site du Phare d'Ailly le 7 septembre 2005 vu par les données récupérées en temps réel de la base de données BASTER.

sources d'émissions et leur répartition ou à un problème de forçage dynamique puisque cette zone a subi de nombreux systèmes orageux cet été là, pas forcément reproduits par les modèles météorologiques. Quant au Centre, les fausses alertes sont dues à un biais systématique sur la station du Puy de Dôme (de $20 \mu\text{g.m}^{-3}$ sur la période) entraînant des dépassements de seuils injustifiés. Cette station est en altitude, et notre interpolateur localise la station dans une couche du modèle trop haute : en prenant la couche du modèle inférieure, ce problème disparaît.

La comparaison des résultats à ceux de la persistance apportent un éclairage supplémentaire à la fois sur la spécificité de chaque région (notamment, meilleurs sont les scores de la persistance, plus la région est pilotée par les conditions synoptiques) mais aussi ils permettent de mieux évaluer les performances de la modélisation déterministe en donnant un référent : ainsi, cela relativise les mauvais scores sur la région Centre, dus également aussi à la taille très petite de l'échantillon, mais aussi les bons scores sur le Sud-Est ou la région Parisienne. Inversement, on peut s'estimer plus que satisfait des résultats sur la région Rhône-Alpes ou le Nord-Est. D'une manière générale, le taux de détection est meilleur pour la prévision que pour la persistance, mais simultanément, le taux de fausses alarmes est plus élevé.

D'autre part, il est important de noter que, sur les cas observés pendant été 2005, le nombre de cas où simulations ou observations sont justes au-delà ou en-deça du seuil est assez important (en prenant une marge de $10 \mu\text{g.m}^{-3}$), et qu'une part des erreurs relevées plus haut ne sont pas effectives (au sens de l'incertitude sur les mesures des capteurs, présentée figure 1.3). En effet, en effectuant les mêmes calculs que précédemment, mais en considérant systématiquement favorables au modèle les cas où les concentrations flirtent avec la barre du seuil, on obtient les indices consignés dans le tableau 4.8. Les très bon scores de la persistance dans ce cas illustre le caractère "cumulatif" des épisodes de pollution photochimique estivaux. En effet, en rendant plus flou le seuil, le taux de détection augmente : en général, la veille d'un épisode est déjà plus polluée que la moyenne ; le taux de fausses alertes, lui, diminue : à moins d'un changement de type de temps radical, comme l'arrivée rapide d'une perturbation, les lendemains d'épisodes sont aussi plus pollués que la moyenne.

En conclusion partielle, nous pouvons donc souligner pour ces simulations un EQM correct, une bonne variabilité, un biais moyen légèrement positif sur le pic mais avec un creusement nocturne pas assez fort, ce qui donne une amplitude correcte.

Il est à noter, que, comme en météorologie, la très bonne performance de la persistance.

MOCAGE s'avère donc être un modèle "généreux" lors des épisodes de pollution, présentant une tendance à trop élargir les épisodes photochimiques à la fois dans le temps et l'espace.

RÉGION SUD-EST

	Prev > seuil	Prev < seuil	Total
Obs > seuil	29 23	3 9	32
Obs < seuil	38 10	41 69	79
Total	67 33	44 78	111

TBP : 63,1 82,9
 TS : 0,414 0,548
 TD : 90,6 71,9
 ETS : 0,191 0,415
 TFA : 56,7 30,3
 Heidke : 0,321 0,587
 Rousseau : 0,253 0,587

GRAND BASSIN PARISIEN

	Prev > seuil	Prev < seuil	Total
Obs > seuil	11 10	4 5	15
Obs < seuil	10 5	86 91	97
Total	21 15	90 96	111

TBP : 87,4 91,0
 TS : 0,440 0,500
 TD : 73,3 66,7
 ETS : 0,368 0,444
 TFA : 47,6 33,3
 Heidke : 0,538 0,615
 Rousseau : 0,536 0,615

NORD

	Prev > seuil	Prev < seuil	Total
Obs > seuil	4 6	8 6	12
Obs < seuil	4 6	95 93	99
Total	8 12	103 99	111

TBP : 89,2 89,2
 TS : 0,250 0,333
 TD : 33,3 50,0
 ETS : 0,207 0,282
 TFA : 50,0 50,0
 Heidke : 0,343 0,439
 Rousseau : 0,341 0,439

RÉGION RHÔNE ALPES

	Prev > seuil	Prev < seuil	Total
Obs > seuil	17 13	5 9	22
Obs < seuil	9 9	80 80	89
Total	26 22	85 89	111

TBP : 87,4 83,8
 TS : 0,548 0,419
 TD : 77,3 59,1
 ETS : 0,458 0,324
 TFA : 34,6 40,9
 Heidke : 0,629 0,490
 Rousseau : 0,628 0,490

RÉGION NORD-EST

	Prev > seuil	Prev < seuil	Total
Obs > seuil	9 7	3 5	12
Obs < seuil	9 4	90 95	99
Total	18 11	93 100	111

TBP : 89,2 91,9
 TS : 0,429 0,438
 TD : 75,0 58,3
 ETS : 0,370 0,392
 TFA : 50,0 36,4
 Heidke : 0,540 0,564
 Rousseau : 0,538 0,563

RÉGION SUD-OUEST

	Prev > seuil	Prev < seuil	Total
Obs > seuil	2 2	7 7	9
Obs < seuil	9 6	93 96	102
Total	11 8	100 103	111

TBP : 85,6 88,3
 TS : 0,111 0,133
 TD : 22,2 22,2
 ETS : 0,065 0,094
 TFA : 81,8 75,0
 Heidke : 0,122 0,172
 Rousseau : 0,121 0,172

CENTRE

	Prev > seuil	Prev < seuil	Total
Obs > seuil	0 0	5 5	5
Obs < seuil	7 4	99 102	106
Total	7 4	104 107	111

TBP : 89,2 91,9
 TS : 0,000 0,000
 TD : 00,0 00,0
 ETS : -0,027 -0,020
 TFA : 100,0 100,0
 Heidke : -0,055 -0,042
 Rousseau : -0,057 -0,042

TABLEAU 4.7 – Table de contingence pour le seuil de $180 \mu\text{g.m}^{-3}$ sur le pic d'ozone et scores associés c'est à dire le Taux de Bonnes Prévisions (TBP), le Taux de Détections (TD), le Taux de Fausses Alertes (TFA), le Threat Score (TS), l'Equitable Threat Score (ETS), le score de Heidke et celui de Rousseau. En caractères normaux noirs les résultats pour la simulation J0 et en italique gris ceux pour la persistance.

RSE

	TBP	TD	TFA	TS	ETS	Heidke
Sans marge	0.631 <i>0.829</i>	0.906 <i>0.719</i>	0.567 <i>0.303</i>	0.414 <i>0.548</i>	0.191 <i>0.415</i>	0.321 <i>0.587</i>
Avec O	0.730 <i>0.883</i>	0.939 <i>0.818</i>	0.475 <i>0.206</i>	0.508 <i>0.675</i>	0.310 <i>0.565</i>	0.473 <i>0.722</i>
Avec O&M	0.784 <i>0.928</i>	0.970 <i>0.879</i>	0.418 <i>0.121</i>	0.571 <i>0.784</i>	0.395 <i>0.706</i>	0.566 <i>0.828</i>

GBP

	TBP	TD	TFA	TS	ETS	Heidke
Sans marge	0.874 <i>0.910</i>	0.733 <i>0.667</i>	0.476 <i>0.333</i>	0.440 <i>0.500</i>	0.368 <i>0.444</i>	0.538 <i>0.615</i>
Avec O	0.946 <i>0.964</i>	0.933 <i>0.933</i>	0.263 <i>0.176</i>	0.700 <i>0.778</i>	0.656 <i>0.745</i>	0.792 <i>0.854</i>
Avec O&M	0.964 <i>0.982</i>	1.000 <i>0.933</i>	0.211 <i>0.067</i>	0.789 <i>0.875</i>	0.757 <i>0.857</i>	0.861 <i>0.923</i>

NORD

	TBP	TD	TFA	TS	ETS	Heidke
Sans marge	0.892 <i>0.892</i>	0.333 <i>0.500</i>	0.500 <i>0.500</i>	0.250 <i>0.333</i>	0.207 <i>0.282</i>	0.343 <i>0.439</i>
Avec O	0.937 <i>0.910</i>	0.692 <i>0.692</i>	0.250 <i>0.400</i>	0.563 <i>0.474</i>	0.520 <i>0.420</i>	0.685 <i>0.592</i>
Avec O&M	0.973 <i>0.937</i>	0.923 <i>0.769</i>	0.143 <i>0.286</i>	0.800 <i>0.588</i>	0.775 <i>0.544</i>	0.874 <i>0.705</i>

RHONALP

	TBP	TD	TFA	TS	ETS	Heidke
Sans marge	0.874 <i>0.838</i>	0.773 <i>0.591</i>	0.346 <i>0.409</i>	0.548 <i>0.419</i>	0.458 <i>0.324</i>	0.629 <i>0.490</i>
Avec O	0.955 <i>0.901</i>	0.955 <i>0.818</i>	0.160 <i>0.280</i>	0.808 <i>0.621</i>	0.762 <i>0.543</i>	0.865 <i>0.703</i>
Avec O&M	0.973 <i>0.955</i>	1.000 <i>0.909</i>	0.120 <i>0.130</i>	0.880 <i>0.800</i>	0.850 <i>0.755</i>	0.919 <i>0.861</i>

RNE

	TBP	TD	TFA	TS	ETS	Heidke
Sans marge	0.892 <i>0.919</i>	0.750 <i>0.583</i>	0.500 <i>0.364</i>	0.429 <i>0.438</i>	0.370 <i>0.392</i>	0.540 <i>0.564</i>
Avec O	0.928 <i>0.937</i>	0.929 <i>0.786</i>	0.350 <i>0.267</i>	0.619 <i>0.611</i>	0.567 <i>0.565</i>	0.724 <i>0.722</i>
Avec O&M	0.964 <i>0.955</i>	1.000 <i>0.786</i>	0.222 <i>0.154</i>	0.778 <i>0.688</i>	0.746 <i>0.652</i>	0.854 <i>0.789</i>

RSO

	TBP	TD	TFA	TS	ETS	Heidke
Sans marge	0.856 <i>0.883</i>	0.222 <i>0.222</i>	0.818 <i>0.750</i>	0.111 <i>0.133</i>	0.065 <i>0.094</i>	0.122 <i>0.172</i>
Avec O	0.910 <i>0.946</i>	0.700 <i>0.700</i>	0.500 <i>0.300</i>	0.412 <i>0.538</i>	0.365 <i>0.504</i>	0.534 <i>0.670</i>
Avec O&M	0.937 <i>0.964</i>	0.700 <i>0.800</i>	0.364 <i>0.200</i>	0.500 <i>0.667</i>	0.462 <i>0.640</i>	0.632 <i>0.780</i>

CENTRE

	TBP	TD	TFA	TS	ETS	Heidke
Sans marge	0.892 <i>0.919</i>	0.000 <i>0.000</i>	1.000 <i>1.000</i>	0.000 <i>0.000</i>	-0.027 <i>-0.020</i>	-0.055 <i>-0.042</i>
Avec O	0.910 <i>0.946</i>	0.400 <i>0.400</i>	0.778 <i>0.600</i>	0.167 <i>0.250</i>	0.138 <i>0.228</i>	0.242 <i>0.372</i>
Avec O&M	0.955 <i>0.964</i>	0.600 <i>0.400</i>	0.500 <i>0.333</i>	0.375 <i>0.333</i>	0.353 <i>0.318</i>	0.522 <i>0.483</i>

TABLEAU 4.8 – Comme 4.7 en tenant compte de la marge d'erreur des mesures soit uniquement dans les observations (Avec O) soit à la fois dans les observations et les simulations (Avec O&M).

4.2.3 Variabilité interannuelle et intermensuelle

Dans cette partie, les données d'observations utilisées sont les données continentales du réseau PIONEER incluses dans le domaine régional pour les mois juin, juillet et août des années 2002, 2003 et 2005.

La même version du modèle MOCAGE est utilisée, mais la version des modèles météorologiques forceurs n'est pas identique d'une année à l'autre puisqu'est utilisée la version du modèle opérationnel à Météo-France pour l'année considérée. D'autre part, pour 2002 et 2003, on utilise les analyses (toutes les 6 heures) et prévisions à 3 heures d'échéances intermédiaires tandis que pour 2005 ce sont les prévisions du réseau de 12 heures de la veille (c'est à dire de 12 à 36 heures d'échéance). Le forçage météorologique est donc à priori de meilleure qualité pour 2002 et 2003 que 2005.

Le tableau 4.10 compile quelques indicateurs statistiques pour les 3 années étudiées. Le modèle ne hiérarchise pas les années correctement : il simule notamment contrairement aux observations des moyennes quasiment équivalentes sur les 3 ans ; en outre, il montre des performances très dépendantes de l'année étudiée. Les caractéristiques observées (moyenne et écart type), elles, mettent surtout en valeur le caractère exceptionnel de l'été 2003, associé à une vague de chaleur intense fin juillet et début août qui est d'ailleurs relativement mal simulée par cette version du modèle (seul le nombre de jours de dépassement du seuil d'information est bien reproduit montrant que malgré la sous-estimation très importante, le modèle produit un épisode photochimique étendu sur la France et la Suisse. Par contre, l'épisode est sous-estimé pour l'Europe du Nord). Notons ici qu'août 2003 est traité différemment des autres mois : les simulations s'arrêtent le 20 août pour des raisons techniques (et donc se concentrent sur la période la plus polluée) et d'autre part, durant cette période, la base de donnée présente quelques manques surtout pour l'Allemagne et la Belgique, mais aussi sur la France (600 données sur 20 jours contre 1800 données minimum pour les autres mois entiers). Nous ne nous pencherons donc pas spécifiquement sur ce mois très particulier qui a par ailleurs fait l'objet d'une étude spécifique avec la version utilisée en opérationnel cette année-là (Peuch et al. (2003), article repris dans l'annexe E). Il est curieux de noter que la version employée alors (domaine régional de $0,25^\circ$ de résolution horizontale forcé par la dynamique d'ARPEGE) avait simulé l'épisode de façon beaucoup plus satisfaisante que la version utilisée pour cette étude (domaine régional de $0,1^\circ$ de résolution horizontale forcé par ALADIN). Il est possible que la propension d'ALADIN à déclencher la convection de manière quasi-systématique sur et à proximité les reliefs en situation quasi convective puisse jouer un rôle sur une période comme celle de début août 2003 par l'impact des structures convectives sur le rayonnement, les températures et le brassage des basses couches de la troposphère.

La variabilité mensuelle est, elle, beaucoup plus importante, les deux extrêmes étant août 2005 pour le mois le moins pollué (à l'exception du Royaume-Uni) et août 2003 pour le plus pollué (correspondant à une canicule continentale sévère). L'éventail de valeurs observées sur les 7 mois étudiés est donc assez large à la fois pour les moyennes, les écarts types et le nombre de jours de dépassement du seuil d'information (cf tableau 4.9).

Ces mêmes grandeurs modélisées montrent un spectre généralement plus étroit que les observations. Les performances du modèle sont très inégales d'un mois à l'autre. Cela nous permet de vérifier qu'il n'y a pas de biais systématique sur les pays renseignés en moyenne si ce n'est une sur-estimation sur l'Allemagne visible sur la moyenne mais également sur

le nombre de jours où le seuil d'information est dépassé, qui est quasiment doublé dans les simulations : ce défaut est d'ailleurs présent également sur le domaine continental (voir section précédente).

Il apparaît dans ce tableau que la bonne reproduction de la variance observée est fortement reliée à l'adéquation des épisodes photochimiques intenses observés et modélisés (relayés ici par le nombre de jour de dépassement du seuil d'alerte). En effet, le modèle présente plus ou moins la même variabilité que les observations lorsque le nombre de jours de pollution sévère est reproduit ; une variabilité plus forte lorsqu'il est surestimé (typiquement sur l'Allemagne surtout en 2002) ; et une variabilité plus faible quand on le sous-estime ou que les épisodes ne sont pas assez intenses (e.g. août 2003). La variabilité est donc un indicateur synthétique très pertinent pour évaluer le modèle.

En conclusion, il apparaît donc nécessaire pour valider et tester un modèle de qualité de l'air de travailler à l'échelle de la saison et pluri-annuellement afin de rendre compte de la variabilité naturelle des situations. Cela montre aussi la valeur assez relative des scores calculés sur une saison particulière.

ALLEMAGNE

ALLEMAGNE						ECT		Jours > 180				
Mois	obs.	prev.	Biais	EQMc	FOM	obs	mod	Var	Nb	obs	mod	Tot
200206	109.8	123.6	13.8	37.4	62.0	33.9	42.6	1.58	869	6	17	30
200207	102.1	129.2	27.1	38.6	48.9	33.2	42.0	1.60	767	4	13	26
200208	102.4	131.5	29.1	34.0	24.3	24.1	33.9	1.98	750	0	17	27
200306	137.4	130.4	-7.0	34.4	67.2	24.2	31.6	1.70	713	13	15	28
200307	132.2	121.4	-10.8	32.1	67.6	33.5	32.1	0.92	506	10	11	19
200308	178.2	111.9	-66.3	39.0	-52.3	42.1	26.5	0.40	197	6	2	7
200506	118.4	132.9	14.5	33.3	61.9	37.7	37.2	0.98	783	8	14	26
200507	97.4	125.8	28.4	35.3	25.8	32.5	32.2	0.98	426	4	9	22
200508	93.9	110.3	16.3	28.6	52.7	25.5	29.4	1.32	528	0	5	23

BELGIQUE

200206	93.2	91.1	-2.1	25.8	61.0	24.2	29.5	1.49	210	0	1	30
200207	90.9	99.2	8.3	24.9	70.2	32.6	35.6	1.20	215	2	3	28
200208	92.3	96.7	4.4	26.1	70.3	27.2	25.9	0.91	236	0	1	30
200306	114.7	99.8	-14.9	28.2	43.7	26.5	23.0	0.75	174	1	0	30
200307	113.5	101.4	-12.1	33.1	65.0	37.4	27.5	0.54	177	5	3	24
200308	146.9	89.4	-57.5	52.9	4.7	48.2	39.6	0.68	86	6	1	11
200506	113.3	110.6	-2.7	28.6	59.8	42.4	33.5	0.62	189	4	1	26
200507	94.7	108.0	13.3	27.0	46.6	32.7	26.3	0.65	206	1	2	26
200508	79.9	85.0	5.1	21.2	68.0	27.5	26.4	0.92	206	0	1	27

FRANCE

200206	107.7	97.1	-10.6	29.9	66.9	35.3	37.6	1.13	1941	14	15	30
200207	100.2	102.2	2.1	31.2	78.0	34.1	38.9	1.30	1817	9	16	28
200208	99.0	105.8	6.8	27.5	83.8	27.1	33.9	1.56	1702	8	15	30
200306	121.5	110.1	-11.4	29.1	64.7	29.0	32.3	1.24	2083	17	20	30
200307	119.9	103.8	-16.1	27.7	61.6	38.2	31.5	0.68	1811	12	12	26
200308	167.5	106.0	-61.5	39.7	-25.0	42.3	40.5	0.92	579	15	15	19
200506	117.1	120.8	3.7	27.5	87.5	32.9	34.1	1.07	2280	14	20	27
200507	103.2	118.6	15.4	26.9	58.0	33.9	34.7	1.05	2514	10	14	29
200508	92.9	102.1	9.2	22.1	72.1	24.3	29.3	1.45	2156	2	5	25

PAYS-BAS

200206	82.9	85.4	2.5	25.2	51.7	24.2	32.7	1.83	120	0	0	25
200207	87.9	101.7	13.8	31.5	43.9	36.8	40.4	1.20	139	2	3	26
200208	88.8	89.9	1.1	28.2	72.7	28.5	27.4	0.92	176	1	2	30
200306	106.7	92.9	-13.8	34.2	51.0	28.2	26.9	0.91	147	2	2	28
200307	103.2	91.9	-11.3	32.3	55.0	38.2	25.8	0.45	151	4	1	26
200308	117.8	71.8	-46.0	43.4	-15.5	39.8	32.1	0.65	71	2	1	12
200506	112.2	109.6	-2.6	28.2	35.5	45.7	34.0	0.55	124	4	3	23
200507	77.3	99.0	21.7	22.9	9.8	21.8	19.0	0.76	51	0	0	9

Mois	<i>obs.</i>	<i>prev.</i>	Biais	EQMc	FOM	obs	mod	Var	Nb	obs	mod	Tot	
						ECT				Jours > 180			

ROYAUME-UNI						ECT			Jours > 180			
Mois	obs.	prev.	Biais	EQMc	FOM	obs	mod	Var	Nb	obs	mod	Tot
200206	82.5	67.1	-15.4	24.3	-8.9	16.9	23.5	1.92	156	0	0	30
200207	72.3	67.6	-4.7	23.0	40.4	21.1	25.4	1.44	151	1	0	28
200208	75.3	80.1	4.8	25.7	58.2	25.7	24.3	0.94	177	0	0	30
200306	99.5	77.6	-21.9	30.7	15.7	29.3	24.5	0.70	178	1	0	30
200307	90.2	77.1	-13.0	32.9	55.9	37.6	25.6	0.47	145	2	1	26
200308	126.8	66.6	-60.4	43.3	-36.4	45.3	31.9	0.50	110	8	2	19
200506	87.1	88.7	1.5	26.6	72.0	26.8	28.7	1.15	143	1	2	29
200507	82.4	91.0	8.6	23.3	64.4	25.0	27.8	1.24	146	0	0	30
200508	76.7	79.8	3.1	19.3	59.7	23.0	25.6	1.24	134	1	1	27
SUISSE												
200206	123.6	125.0	1.4	35.1	54.4	32.4	37.2	1.32	215	10	9	27
200207	116.4	122.6	6.2	36.6	52.4	24.8	41.2	2.75	168	1	9	21
200208	106.2	122.9	16.7	34.3	28.2	23.4	32.6	1.93	195	0	3	25
200306	136.6	134.8	-1.8	36.4	61.6	26.1	29.9	1.32	172	9	7	22
200307	133.8	108.6	-25.2	34.8	38.5	33.1	30.3	0.84	208	12	6	26
200308	147.2	105.1	-42.0	39.4	-21.9	29.0	32.6	1.26	64	5	4	8
200506	131.0	134.3	3.3	43.2	42.5	30.4	35.6	1.37	181	7	9	23
200507	113.6	121.6	8.0	36.7	39.7	32.5	39.3	1.46	136	4	6	17

TABLEAU 4.9 – Variabilité inter-mensuelle des scores des séries des pics journaliers de concentration d'ozone pour le domaine régional de MOCAGE. De gauche à droite : le mois considéré (Année Mois), les moyennes observées et modélisées, le biais, l'erreur quadratique moyenne centrée, le taux de recouvrement, les écarts types observés et modélisés, le rapport des variances (Var) ainsi que le nombre de données utilisées. Après la double barre sont présentés les nombres de jours où une station au moins a dépassé le seuil de $180 \mu\text{g.m}^{-3}$ dans les observations et les simulations sur la période documentée de "Tot" jours.

						ECT			Jours > 180			
Année	<i>obs.</i>	<i>prev.</i>	Biais	EQMc	FOM	obs	mod	Var	Nb	obs	mod	Tot
2002	105.2	128.2	23.0	37.3	49.9	31.2	40.2	1.66	2324	10	46	81
2003	141.2	124.6	-16.6	39.7	63.8	34.2	31.8	0.87	1416	29	28	54
2005	106.3	124.6	18.3	33.1	55.5	35.1	35.2	1.01	1708	12	28	70
BELGIQUE												
2002	91.8	96.1	4.3	25.8	79.2	28.4	30.8	1.18	645	2	5	86
2003	120.5	98.4	-22.1	45.9	51.5	38.4	29.1	0.57	437	12	4	65
2005	95.9	101.2	5.3	26.6	65.6	37.1	31.1	0.70	593	5	4	78
FRANCE												
2002	102.2	101.6	-0.6	30.4	85.0	32.9	37.3	1.29	5330	30	45	86
2003	126.9	107.1	-19.8	34.2	58.6	38.2	33.3	0.76	4473	44	47	75
2005	105.0	114.7	9.7	26.2	74.2	32.4	33.8	1.09	6863	26	39	80
PAYS-BAS												
2002	86.9	93.2	6.3	29.1	71.2	30.9	34.2	1.23	423	3	5	79
2003	107.4	86.5	-20.9	39.4	56.6	35.4	30.1	0.72	369	8	4	66
2005	102.9	107.1	4.2	29.3	43.5	43.5	31.0	0.51	170	4	3	31
ROYAUME-UNI												
2002	76.4	71.9	-4.5	25.8	48.5	22.0	25.2	1.32	474	1	0	86
2003	103.2	72.0	-31.2	39.5.2	19.2	39.4	28.4	0.52	433	11	3	75
2005	82.5	86.8	4.3	23.6	76.1	25.4	27.9	1.21	418	2	3	85
SUISSE												
2002	115.7	123.5	7.8	35.8	53.7	28.2	37.2	1.74	562	10	21	71
2003	136.8	118.2	-18.5	38.9	54.1	30.3	33.2	1.21	444	26	17	56
2005	124.4	129.5	5.1	41.0	61.2	32.4	38.0	1.37	309	11	15	39

TABLEAU 4.10 – Variabilité inter-annuelle des scores des séries des pics journaliers de concentration d'ozone pour le domaine régional de MOCAGE. De gauche à droite : l'année considérée (sachant que cela correspond aux mois de juin, juillet et août), les moyennes observées et modélisées, le biais, l'erreur quadratique moyenne centrée, le taux de recouvrement, les écarts types observés et modélisés, le rapport des variances (Var) ainsi que le nombre de données utilisées. Après la double barre sont présentés les nombres de jours où une station au moins a dépassé le seuil de $180 \mu\text{g.m}^{-3}$ dans les observations et les simulations sur la période documentée de "Tot" jours.

4.2.4 Variabilité des conditions aux limites du domaine continental

L'extension géographique de MOCAGE sur la verticale et l'horizontale est plus importante que celle généralement employée pour simuler la qualité de l'air puisqu'il simule le globe dans son intégralité et traite la basse stratosphère alors que les modèles traitant ce thème sont plutôt continentaux et centrés sur la basse troposphère (e.g. CHIMERE, EMEP, EURAD, RAMS, Méso-NH-C).

Aussi, la variabilité des conditions aux limites chimiques aux bords du domaine continental est examinée à la fois pour l'ozone et le PAN, une de ses espèces réservoirs à durée de vie synoptique pouvant être transportée sur de grandes distances notamment dans la troposphère libre. Pour chaque bord du domaine continental, on considère tous les points de grille du domaine global qui le compose ; les profils verticaux des moyennes et les écarts types associés sont reportés figure 4.13 pour les séries de concentrations d'ozone et 4.14 pour les séries de concentrations de PAN.

On ne fait ici que reporter la variabilité **simulée** par le domaine global de MOCAGE sur le bord ouest (noté Atlantique dans la suite) situé à 12° Ouest et entièrement océanique, le bord au Nord (appelé bord septentrional) du domaine à 62°N au niveau du Sud de la Norvège et de la Suède, le bord Est (appelé bord oriental), essentiellement continental à 28°E et le bord sud (appelé bord Méditerranée) à 34°N à la fois continental (Portugal, Espagne et Italie du Sud) et maritime. Il aurait bien sûr été intéressant d'avoir un équivalent **observé** de la variabilité des conditions aux limites de ce domaine, mais peu de données de validation sont disponibles aux échelles spatiales et temporelles visées ici. En effet, si de nombreuses campagnes de mesures s'intéressent au transport intercontinental de polluant, elles restent limitées dans le temps (de l'ordre du mois) et l'espace. On peut notamment citer les expériences PEM-West (Pacific Exploratory Missions) (e.g. Hoell et al. (1996), Hoell et al. (1997), Xiao et al. (1997)) et TRACE-P (TRansport and Chemical Evolution over the Pacific, Schultz and the Trace-P Science Team (2002)) qui concernent le Pacifique Nord-Ouest et les exports du continent asiatique ; TRACE-A (TRansport And Chemistry near the Equator in the Atlantic, Fishman et al. (1996)) qui s'intéresse à l'Atlantique Tropical Sud (influence à la fois des continents sud-américain et africain) ou plus récemment ICARTT-ITOP (International Consortium for Atmospheric Research on Transport and Transformation- International Transport of Ozone and Precursors, Fehsenfeld et al. (2006)) qui étudie le transport de masses d'air polluées sur l'Atlantique Nord. Une étude est d'ailleurs en cours au Laboratoire d'Aérologie (N. Bousserez, thèse prévue pour 2008, Université Toulouse III, Paul Sabatier) sur la validation des champs MOCAGE à partir des données de cette campagne.

Les **concentrations d'ozone** simulées présentent des profils attendus : des valeurs plus faibles dans la première couche du modèle par dépôt sec à la surface bien prononcé pour les bords oriental et Méditerranée, un maximum dans la couche limite et des valeurs plus faibles en moyenne dans la troposphère libre. Par ailleurs, le bord zonal Nord présente les concentrations les plus faibles sur l'ensemble de la colonne et le bord zonal méditerranéen parmi les plus fortes en accord avec le gradient zonal d'ozone. Les profils des deux bords méridiens sont similaires dans la haute troposphère libre mais le

bord présentant le plus de surface continentale (c'est à dire à l'Est) est celui dont les concentrations sont les plus élevées dans la basse troposphère. Les transects les plus maritimes sont ceux qui présentent les profils les plus plats. Les profils les plus plats correspondent aux transects les moins actifs photochimiquement, c'est à dire, le transect océanique et celui du Nord du domaine. Les signaux sont équivalents entre concentrations horaires et maximales journalières.

Les **écart types d'ozone** simulés sont plus importants dans la couche limite. Il est intéressant de constater que la variabilité des séries horaires dans la couche limite est fortement corrélée avec la présence de surface continentale : en effet, pour le bord atlantique, entièrement constitué de points océaniques, les écarts types sont équivalents entre séries des pics et séries horaires, ils sont beaucoup plus prononcés pour le bord continental oriental mais surtout le bord méditerranéen. Enfin, le dernier point important à souligner est la plus forte variabilité relative du bord septentrional (voir rapport de l'écart type sur la moyenne en bas sur la figure) et ce, jusqu'à 4-5 km, que ce soit sur les valeurs horaires ou journalières. Cette variabilité est due à deux raisons principales : la première est que cette partie du globe peut enregistrer des concentrations extrêmement faibles d'ozone par flux de nord marqué (inférieures à $30 \mu\text{g.m}^{-3}$ alors que la moyenne se situe autour de $50/60 \mu\text{g.m}^{-3}$) ; la seconde réside dans l'alternance plus rapide des régimes de temps avec notamment des passages plus fréquents de perturbations qui apportent des concentrations relativement élevées dans les basses couches par intrusion puis filamentation stratosphérique suivi d'apport d'air très propre troposphérique. Ce raisonnement est également valable pour le bord océanique. La variabilité de l'ozone est donc relativement importante : de 20 à 35 % dans la couche limite et de 15 à 25 % dans la troposphère libre.

La forme des profils simulés de **concentrations de PAN** est la même quelque soit le bord considérés : un maximum relatif dans la couche limite, puis un minimum dans la basse troposphère libre et enfin un maximum vers le niveau 17 ($\sim 6 \text{ km}$). Les distributions des concentrations et des écarts types sont plus homogènes que celles de l'ozone sur les 4 bords dans la haute troposphère, signature d'une concentration de fond homogène sur l'ensemble du domaine, pilotée par les mêmes processus. Par exemple, le cas de la deuxième quinzaine de juillet 2005 est illustré sur la planche 4.11. Il correspond à l'anomalie de la troposphère libre visible sur les profils verticaux temporels de quasiment l'ensemble des points du domaine continental (voir figure 4.12 à gauche) qui est relié à un export de PAN des côtes de l'Amérique du Nord : en effet, un fort épisode photochimique y est simulé du 16 au 19 juillet 2005 conduisant à une production importante de PAN, dont une fraction se retrouve dans la troposphère libre et est advecté sur l'Atlantique en altitude du 19 au 23 juillet (les températures de la couche limite sont trop élevées pour permettre un export de polluants sur d'aussi longues distances) ; le panache arrive sur l'Europe à partir du 23 juillet.

Par contre, des différences notables sont constatées dans la couche limite, entre bords continentaux et océaniques à la fois sur la forme du profil (avec une accumulation de PAN en zone continentale en haut de la couche de mélange) et également sur l'intensité, par apport de PAN produit localement. La figure 4.12 l'illustre en opposant un point continental (bord oriental) d'un point océanique (bord Atlantique) : la respiration de la

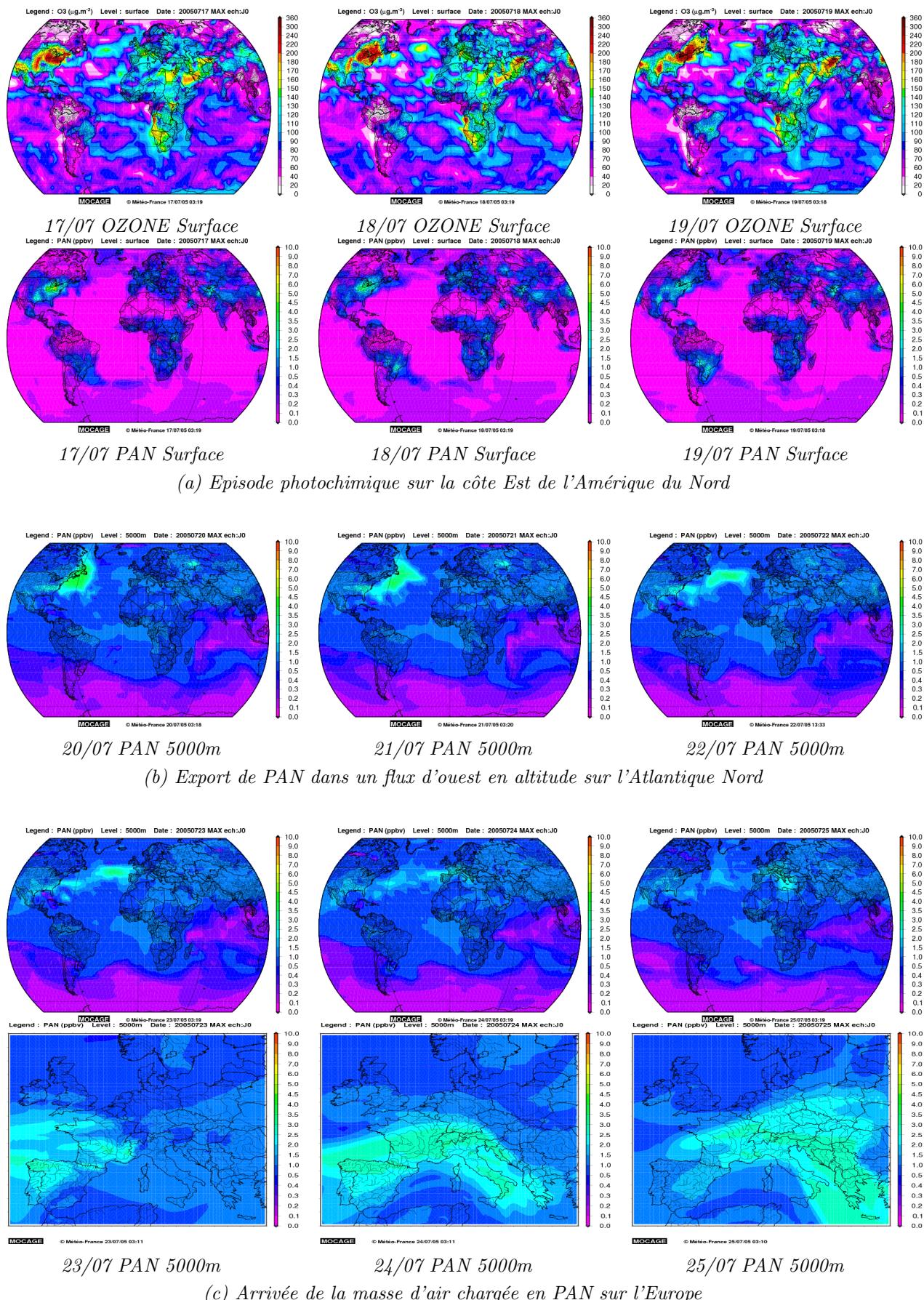


FIGURE 4.11 – Episode de pollution transatlantique nord du 17 au 24 juillet 2005. Champs 2D en surface et en altitude (5000 mètres) des maxima journaliers des concentrations d'ozone et de PAN issus des simulations J0 globales et continentales. L'unité est le $\mu\text{g.m}^{-3}$.

couche limite est visible avec l'épisode très pollué de la première quinzaine de juin pour le point situé dans les Etats Baltes. Alors que le point situé au large du Portugal, s'il présente parfois des bouffées d'air un peu plus chargées en PAN provenant du continent (2^e semaine de juillet), présente pour les autres périodes des concentrations beaucoup plus faibles. Les concentrations relativement plus élevées du bord septentrional sont peut-être reliées à des températures plus froides, pour lequelle le PAN se décompose moins vite.

Les profils simulés des **écart types de PAN** présentent la même forme que les concentrations. En valeur relative, c'est le bord océanique qui exhibe le plus de variabilité : en effet, pour les basses couches, selon la provenance du vent, soit la masse d'air va provenir de l'atlantique soit de la côte. Dans le premier cas, les concentrations en PAN vont être excessivement faibles puisque la température dans cette tranche de l'atmosphère est relativement chaude alors que la source de PAN est très lointaine (côte des Etats-Unis majoritairement) : le PAN est donc totalement dégradé. Dans le second cas, la source est à la fois plus proche et plus récente, conduisant donc à des concentrations plutôt de type continental. Le rapport de l'écart type sur la moyenne est plus élevé que pour l'ozone puisqu'il est de l'ordre de 40 à 60 % dans la troposphère libre et atteint 70/80 % dans la couche limite.

Très peu de données de validation sont disponibles pour ce composé. Cela illustre tout l'intérêt de projets de mesures spatiales de PAN.

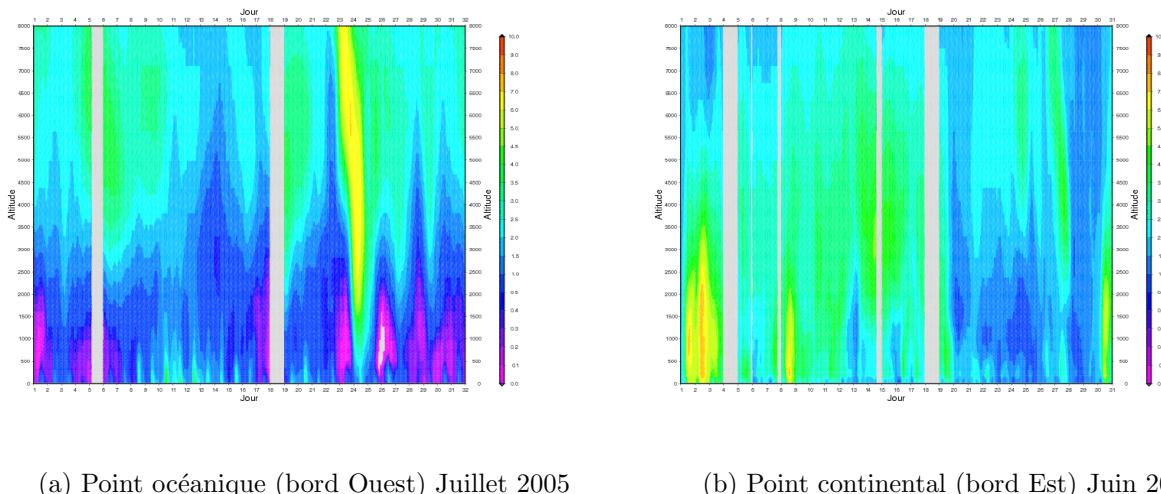


FIGURE 4.12 – Profils de PAN aux bords du domaine continental. A gauche, un point océanique sur le bord Ouest pour le mois de juillet 2005. A droite, un point continental sur le bord Est pour le mois de juin 2005. L'unité est le $\mu\text{g.m}^{-3}$.

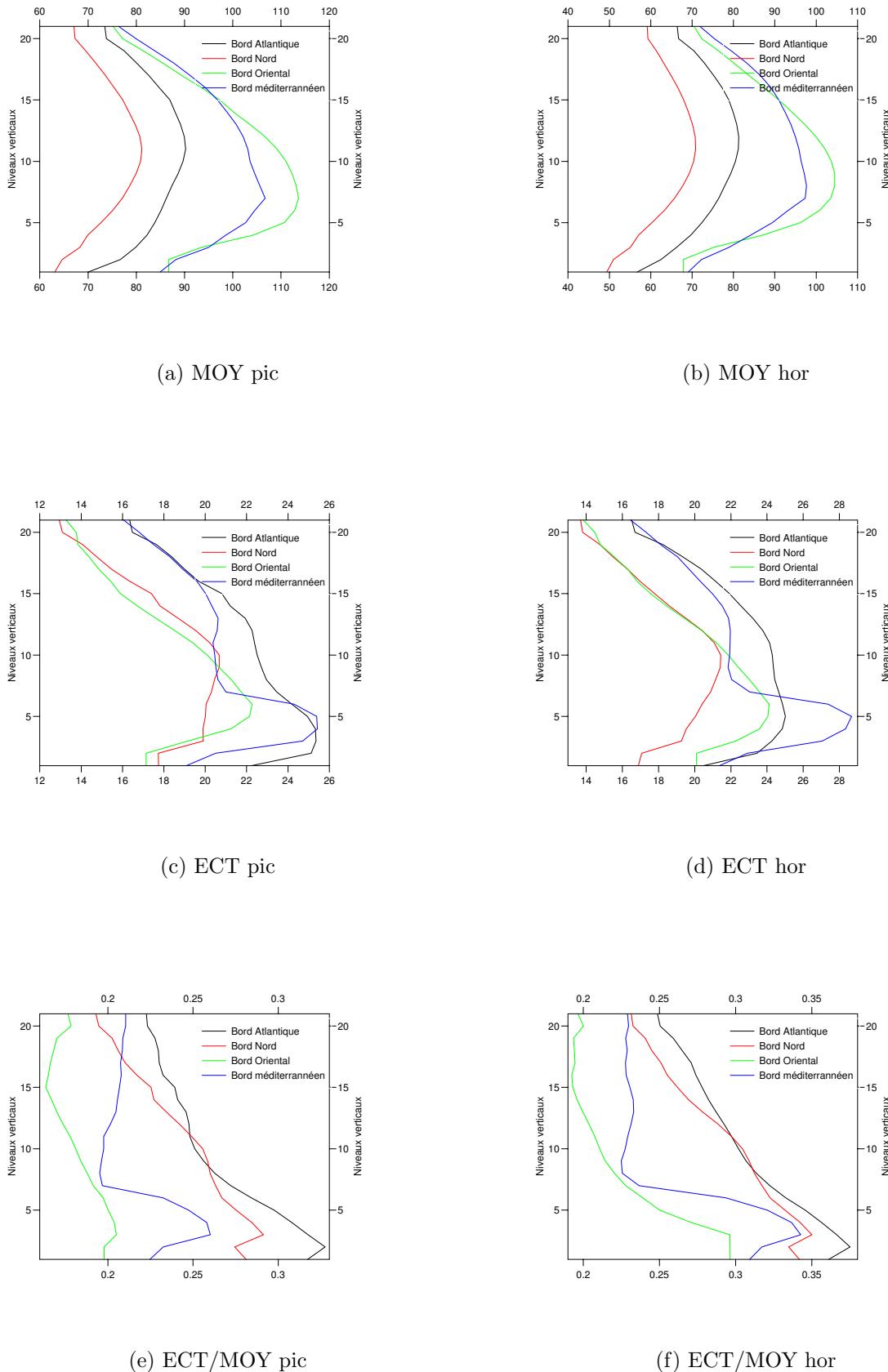
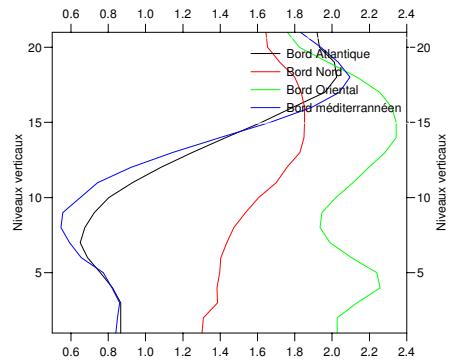
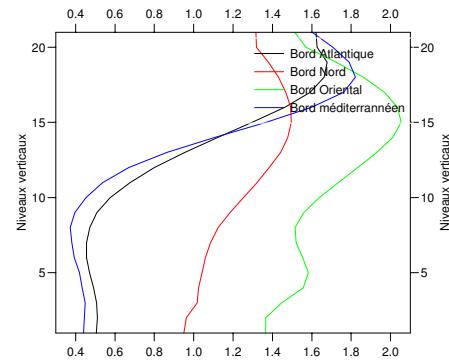


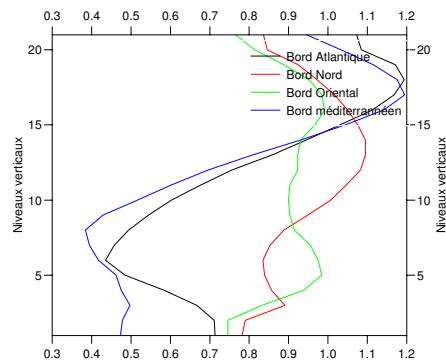
FIGURE 4.13 – Variabilité des conditions aux limites du domaine Européen. Pour les séries de concentrations OZONE. L'unité est le $\mu\text{g.m}^{-3}$.



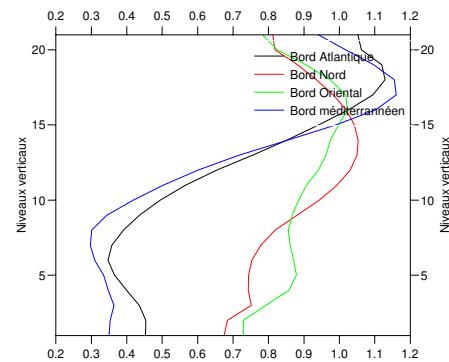
(a) MOY pic



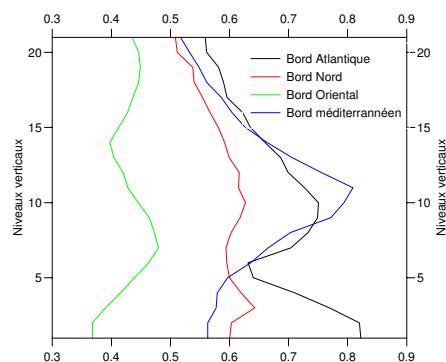
(b) MOY hor



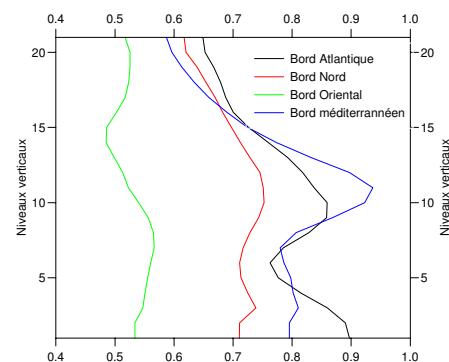
(c) ECT pic



(d) ECT hor



(e) ECT/MOY pic



(f) ECT/MOY hor

FIGURE 4.14 – Variabilité des conditions aux limites du domaine Européen. Pour les séries de concentrations de PAN. L’unité est le $\mu\text{g.m}^{-3}$.

4.2.5 Analyse conjointe des différents indicateurs

L'idée ici est de caractériser la dépendance des indicateurs statistiques usuels à la "résolution effective" des structures simulées dans les champs horizontaux 2D du modèle. En effet, d'une part, ces indicateurs sont mathématiquement liés (biais et EQM ; moyenne et EQM ; variabilité des champs, corrélation et EQM ; etc) et d'autre part, ils dépendent de l'adéquation entre la taille des structures observables par le réseau et la taille des structures simulées. Seule leur analyse conjointe permet de caractériser quantitativement les performances des simulations.

Ce phénomène est bien identifié en météorologie comme en témoigne par exemple la revue de P. Bougeault² (2003) qui traite de simulations météorologique à fine échelle. Le contrôle objectif des champs à méso-échelle est en effet complexe, et souvent les indicateurs "moyens" sont au bénéfice des prévisions à basse résolution.

Il va se trouver complexifié en modélisation de la chimie par le paramètre structurant supplémentaire que sont les émissions, qui imposent près de la surface des structures à leur résolution, outre la résolution du modèle proprement dit.

Une étude de sensibilité des scores des simulations du domaine régional de MOCAGE à la résolution horizontale des structures simulées a été menée : les champs 2D en surface sont progressivement lissés par itérations successives d'une interpolation linéaire simple des plus proches voisins (voir figure 4.15). L'impact sur les scores est reporté sur la figure 4.16. On est donc dans le cas où la résolution horizontale du modèle est inchangée ($0,1^\circ \times 0,1^\circ$), mais la résolution des structures simulées (que l'on appelle "résolution effective") est artificiellement et progressivement dégradée.

Logiquement, le lissage améliore la corrélation et l'EQM : on voit notamment que l'on n'atteint pas le point où les scores se re-dégradent même avec un lissage qui paraît extrême. Parallèlement par contre, le lissage dégrade l'écart-type (et donc le rapport des variances) et la FOM.

L'impact sur les scores relatifs aux tables de contingence est plus nuancé : pour les scores calculés stations par stations (figure 4.16 à droite), on a une amélioration du taux de bonnes prévisions : en effet, au total, tellement peu de stations sont touchées (672 dépassements sur 43 452 données) qu'il vaut mieux, en terme de scores, ne produire aucun dépassement plutôt que risquer de faire des faux dépassements ; logiquement, le taux de fausses alertes est également amélioré par lissage. Par contre, pour les indices intégrés (exemple figure 4.16 en bas à droite de l'indice de Rousseau), un lissage excessif fini par dégrader complètement le score (puisque plus aucun dépassement n'est prévu), mais on note une amélioration pour les premières itérations. Ce phénomène est étudié plus en détail en considérant les différentes grandes régions photochimiques définies en début de chapitre : la Région Sud Est (RSE), la Grand Bassin Parisien (GBP), le Nord, la région Rhône-Alpes (RH-ALP), la région Nord-Est (RNE), la région Sud-Ouest (RSO) et le Centre, et un utilisant comme critère de dépassement sur l'ensemble de la région le dépassement d'au moins une station sur la journée.

Le tableau 4.11 donne l'ETS (défini en annexe B) en fonction du nombre d'itérations du lissage et le tableau 4.12 le nombre de jours de dépassement dans les observations, les nombres de jours de bonne prévision, de fausses alertes et de non détection. Deux

²http://www.bom.gov.au/bmrc/wefor/staff/eee/verif/Bougeault_Bougeault_Verification-methods.htm

comportements sont observés : soit une dégradation des scores en continu et ce, dès le premier lissage (cas de la Région Nord-Est et du Nord), soit une amélioration des scores avec les premiers lissages avant une dégradation quand le lissage devient trop important (cas des régions Sud-Est, Grand Bassin Parisien, Rhône-Alpes et Centre). Dans ce dernier cas, l'étude du tableau 4.12 permet de pointer sur la diminution plus rapide du nombre de jours avec fausses alertes que celui de réussite : les structures de fortes concentrations de très fines échelles visibles dans les champs 2D sont alors noyées dans les cas tangents à la barre du seuil, alors que les épisodes plus importants (soit en intensité soit en extension spatiale) sont conservés par les premiers lissages (très net sur la Région Sud-Est ou le Centre). Aussi, pour les régions où MOCAGE présente une bonne qualité prédictive, le lissage améliore les scores dans un 1^{er} temps par élimination des structures très fines et localisées, avant de les dégrader par disparition des panaches par lissage. Pour le 1^{er} temps (élimination des cas tangents où les panaches sont en limite de détection), on retrouve les résultats vus au §4.2.2 -ÉCHELLE RÉGIONALE où les scores étaient améliorés en appliquant un seuil flottant (tableau 4.8).

La quantification des performances de simulations chimiques est donc bien relative à la taille horizontale des structures effectivement simulées par le modèle. Une des façons de la prendre en compte est d'inclure des indicateurs qui se sont montrés sensibles aux lissages appliqués, à savoir la reproduction des écarts types observés ainsi que la reproduction de la forme des fonctions de distributions des concentrations (FOM).

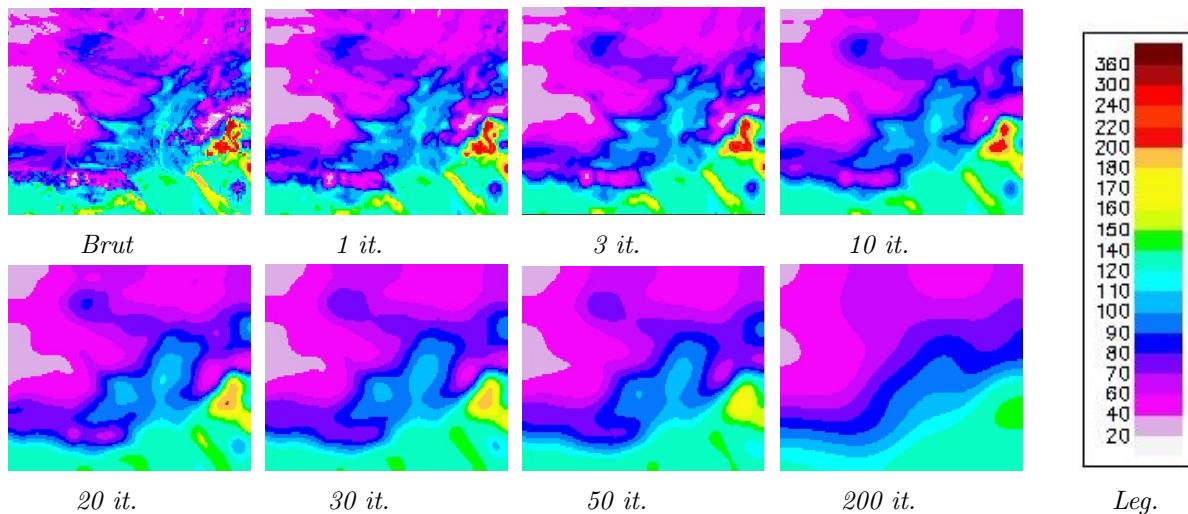


FIGURE 4.15 – *Impact d'un lissage spatial sur les champs de concentrations d'ozone en surface. Le lissage (moyenne plate des points voisins immédiats) est itéré plusieurs fois (nombre indiqué sous chaque figure).*

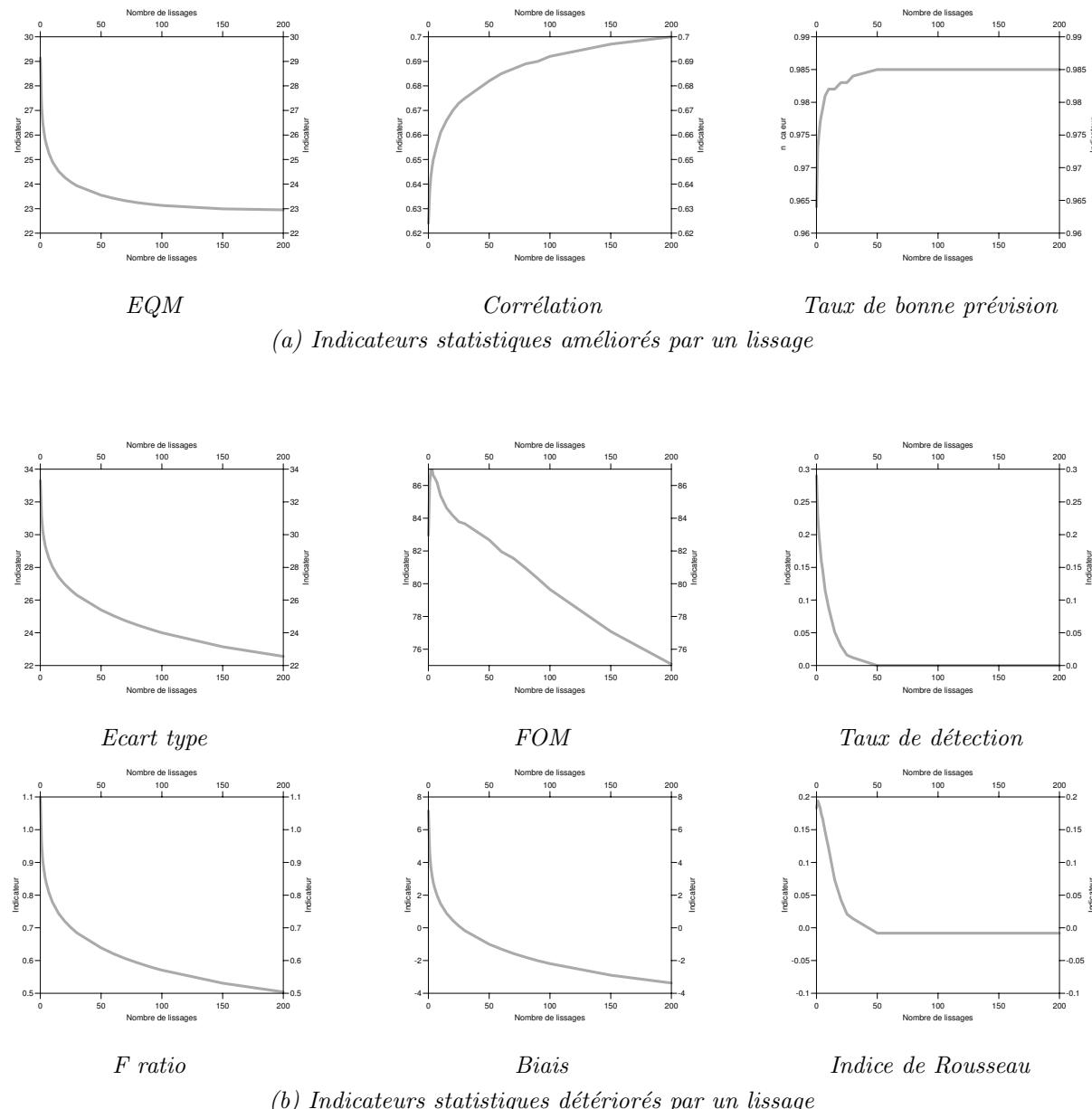


FIGURE 4.16 – Impact d'un lissage spatial sur les indicateurs statistiques usuels relatifs aux séries des pics journaliers de concentrations d'ozone.

Un lissage (moyenne plate des points voisins immédiats) est itéré plusieurs fois (l'impact sur le champ 2D est présenté sur la figure 4.15). L'évolution des indicateurs statistiques (définis dans l'annexe B) est donnée en fonction du nombre d'itérations de la procédure de lissage. Il s'agit du modèle régional de MOCAGE sur la période du 1/6 au 30/9/2005 évalué par rapport à l'ensemble des données BASTER. Les Taux de Bonne Prévision (TBP) et les Equitable Threat Scores (ETS) sont calculés sur l'ensemble des stations prises séparément (voir le tableau 4.11 pour des scores observations/simulations délocalisées par région).

	RSE	GBP	NORD	RH-ALP	RNE	RSO	CENTRE
0	0.227	0.550	0.338	0.344	0.353	-0.034	0.113
1	0.415	0.570	0.115	0.345	0.265	∅	0.130
2	0.350	0.513	0.057	0.305	0.217	∅	0.167
3	0.332	0.436	-0.019	0.305	0.064	∅	0.192
4	0.322	0.436	-0.019	0.304	0.064	∅	0.222
5	0.331	0.436	-0.010	0.304	0.080	∅	0.262
7	0.280	0.447	-0.010	0.276	0.080	∅	0.262
10	0.197	0.385	∅	0.271	0.080	∅	0.262
15	0.085	0.356	∅	0.133	0.080	∅	0.314
20	0.070	0.232	∅	0.133	∅	∅	0.314
25	0.043	0.232	∅	0.042	∅	∅	-0.010
30	0.043	0.232	∅	∅	∅	∅	∅
50	∅	∅	∅	∅	∅	∅	∅

TABLEAU 4.11 – *Impact du lissage sur les scores de dépassement du seuil d’information relatif à l’ozone.* Le critère pour un jour donné est un dépassement du seuil de $180 \mu\text{g.m}^{-3}$ sur seule station pour une heure au moins, sans colocalisation du dépassement dans les observations et les simulations. L’Equitable Threat Score (défini dans l’annexe B) est donné pour les grandes régions photochimiques en fonction du nombre d’itérations d’un lissage (moyenne plate des points voisins immédiats dont l’impact sur les champs 2D est présenté sur la figure 4.15). Le symbole ∅ signifie que le score ne peut pas être calculé car les simulations ne présentent aucun dépassement. Il s’agit du lissage du modèle régional de MOCAGE à J0 sur la période du 1/6 au 30/9/2005 évalué par rapport aux données BASTER.

Obs	RSE			GBP			NORD			RH-ALP			RNE			RSO			CENTRE		
	26			15			10			15			11			7			5		
0	23	26	3	13	6	2	5	3	5	13	14	2	8	8	3	0	5	7	3	14	2
1	23	14	3	12	4	3	2	3	8	12	12	3	4	2	7	0	0	7	2	7	3
2	20	13	6	11	4	4	1	2	9	10	10	5	3	1	8	0	0	7	2	5	3
3	18	11	8	9	3	6	0	2	10	10	10	5	1	1	10	0	0	7	2	4	3
4	17	10	9	9	3	6	0	2	10	9	8	6	1	1	10	0	0	7	2	3	3
5	16	8	10	9	3	6	0	1	10	9	8	6	1	0	10	0	0	7	2	2	3
7	13	6	13	8	1	7	0	1	10	7	5	8	1	0	10	0	0	7	2	2	3
10	9	4	17	7	1	8	0	0	10	6	3	9	1	0	10	0	0	7	2	2	3
15	4	2	22	6	0	9	0	0	10	3	2	12	1	0	10	0	0	7	2	1	3
20	3	1	23	4	0	11	0	0	10	3	2	12	0	0	11	0	0	7	2	1	3
25	2	1	24	4	0	11	0	0	10	1	1	14	0	0	11	0	0	7	0	1	5
30	2	1	24	4	0	11	0	0	10	0	0	15	0	0	11	0	0	7	0	0	5
50	0	0	26	0	0	15	0	0	10	0	0	15	0	0	11	0	0	7	0	0	5
	bp	fa	nd	bp	fa	nd	bp	fa	nd												

TABLEAU 4.12 – Impact du lissage sur le nombre de jours de dépassement du seuil d’information relatif à l’ozone. Le critère pour un jour donné est un dépassement du seuil de $180 \mu\text{g.m}^{-3}$ sur seule station pour une heure au moins, sans colocalisation du dépassement dans les observations et les simulations. Sur la deuxième ligne en gras est indiqué le nombre de jours de dépassement du seuil dans les observations. Les nombres de jours de bonne prévision (bp), fausse alerte (fa) et non détection (nd) sont donnés pour les grandes régions photochimiques en fonction du nombre d’itération d’un lissage (moyenne plate des points voisins immédiats dont l’impact sur les champs 2D est présenté sur la figure 4.15). Il s’agit du lissage du modèle régional de MOCAGE à J0 sur la période du 1/6 au 30/9/2005 évalué par rapport aux données BASTER.

4.3 Impact de la qualité du forçage météorologique sur la simulation de la qualité de l'air

Le forçage météorologique est un des paramètres clé conditionnant la prévision de la qualité de l'air. De nombreuses études existent dans la littérature à ce sujet, notamment l'impact de la résolution et de la formulation (hydrostatique ou non) du forçage météorologique (e.g. Menut et al. (2005)).

Nous aborderons cette problématique à l'aide des simulations opérationnelles sous deux angles : d'une part l'impact du réseau des prévisions météorologiques sur la qualité des prévisions de qualité de l'air à l'échelle d'une saison puisque nous disposons des prévisions chimiques de 00 à 96 heures d'échéance et d'autre part l'impact de la qualité de différents champs météorologiques sur celle des champs chimiques à l'échelle journalière pour un réseau donné, sachant que dans ce cas, l'effet est cumulatif puisque outre l'effet de détérioration des forçages météorologiques avec l'échéance, il y a aussi l'accumulation des erreurs chimiques associées.

4.3.1 Qualité intrinsèque du forçage météorologique

La simulation des paramètres d'intérêt pour la chimie est globalement satisfaisante : quelques indicateurs sont reportés dans le tableau 4.13 pour les paramètres température, humidité, force du vent et nébulosité (source DP (2005a) et DP (2005b)).

	T (K)			NEBT (%)			FF ($m.s^{-1}$)			HU (%)		
	<i>prev</i>	biais	EQM	<i>prev</i>	biais	EQM	<i>prev</i>	biais	EQM	<i>prev</i>	biais	EQM
J0 ^a	23.09	0.44	2.41	25.47	-30.86	43.87	3.73	0.03	1.73	54.39	-0.70	14.13
J1 ^b	23.01	0.36	2.82	32.99	-23.46	41.55	3.77	0.06	1.93	56.39	1.33	16.18
J2 ^c	23.40	0.75	3.04	32.92	-23.48	43.19	3.75	0.04	2.03	55.01	-0.06	16.89
J3 ^d	23.26	0.61	3.19	33.59	-22.95	43.50	3.72	0.01	2.09	55.98	0.91	17.99
<i>obs</i>	22.66			55.95			3.70			55.08		

TABLEAU 4.13 – Moyennes et scores (biais et EQM) des prévisions météorologiques utilisées pour quelques paramètres d'intérêt pour la simulation de la qualité de l'air : température (T), Humidité (Hu), force du vent (FF) et nébulosité (NEBT). Il s'agit des prévisions (des divers réseaux utilisés) et des observations du réseau SYNOP + RADOME à 12h TU. La période est celle du 01/06 au 30/09/2005. Les valeurs indiquées sont les moyennes des valeurs journalières.

^a ALADIN r12 J-1 ech 24

^b ARPEGE r12 J-1 ech 48

^c ARPEGE r12 J-1 ech 72

^d ARPEGE r12 J0 ech 84

Il n'y a pas de biais important systématique si ce n'est pour la nébulosité avec une sous-estimation relativement forte des nébulosités fortes ou moyennes (voir figure 4.17). A noter également pour la période d'intérêt (du 01/06 au 30/09/2005) le caractère convectif de la majorité des épisodes pluvieux associés à des écoulements très instables dont la simulation est critique pour le genre de modèles et de paramétrisations utilisés. En effet, l'une des limites du forçage est la formulation hydrostatique des modèles employés.

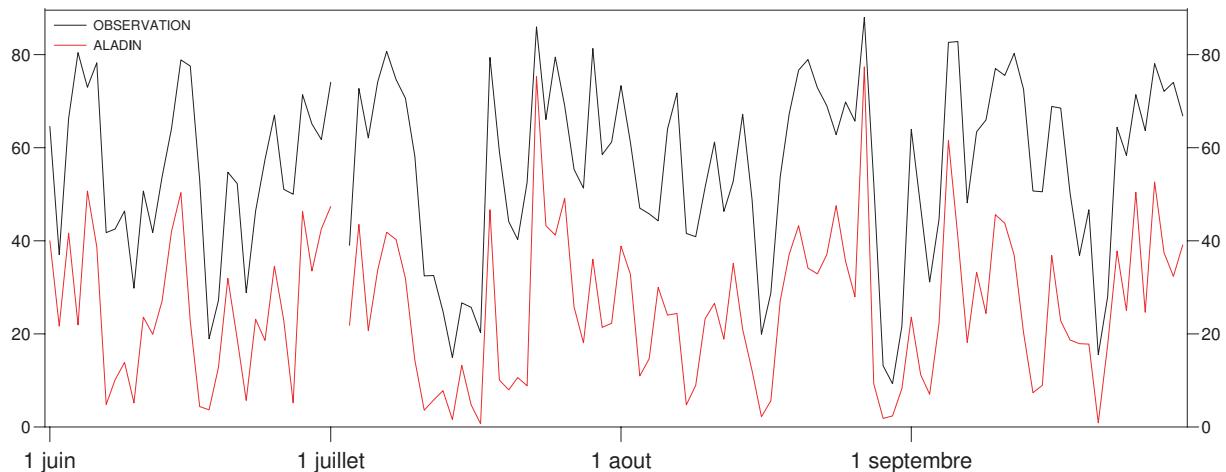


FIGURE 4.17 – Moyenne à 12HTU sur la France de la nébulosité observée par les réseaux SYNOP + RADOME (en noir) et prévue à l'échéance 00H du réseau de 12HTU ALADIN (en rouge) pour les mois de juin à septembre 2005. L'unité est le pourcentage de ciel couvert.

4.3.2 Différents réseaux de prévisions météorologiques

Cette section s'appuie sur les résultats des simulations opérationnelles dont les forçages météorologiques sont consignés tableau 4.1.

De J0 à J3, sont accumulées à la fois les erreurs dues à la météorologie, mais également à la chimie : en effet, les performances de J3 par exemple sont conditionnées par le fait que les échéances météorologiques sont les plus lointaines par rapport à une analyse (72 à 96 heures), mais également par le fait que l'échéance de son "état initial chimique" est plus grande (72H). En effet, à cause du caractère chaotique du forçage météorologique, le scénario chimique à 72H a plus de chance d'être éloigné de la réalité que celui de l'échéance chimique 00H bien qu'il n'y ait pas d'assimilation chimique. Aussi, l'impact du forçage météorologique sur les performances de qualité de l'air est cumulatif.

On illustre le propos sur les résultats globaux (figure 4.18), sachant que les résultats sites à sites conduisent aux mêmes conclusions.

L'analyse est présentée en deux parties : d'une part pour les indicateurs qui évaluent l'adéquation spatiale et temporelle des simulations par rapport aux observations (corrélation et EQM) et d'autre part pour les indicateurs qui caractérisent l'état moyen de ces prévisions (FOM, biais et rapport des variances).

Pour le premier groupe, on s'attend à une dégradation des scores avec l'échéance ; pour le second groupe, à une stabilité de ses scores si tant est que la période choisie est assez longue et que les différents forçages sont équivalents en terme de type de temps sur l'ensemble de la période, même si la chronologie des évènements n'est pas, elle, équivalente d'une échéance à l'autre.

En remarque préliminaire, on note que l'évolution des scores se comporte de façon quasiment équivalente pour les différents types de stations.

COHÉRENCE SPATIALE ET TEMPORELLE

Tout d'abord, sans surprise, les scores de corrélation et EQM du modèle se dégradent avec

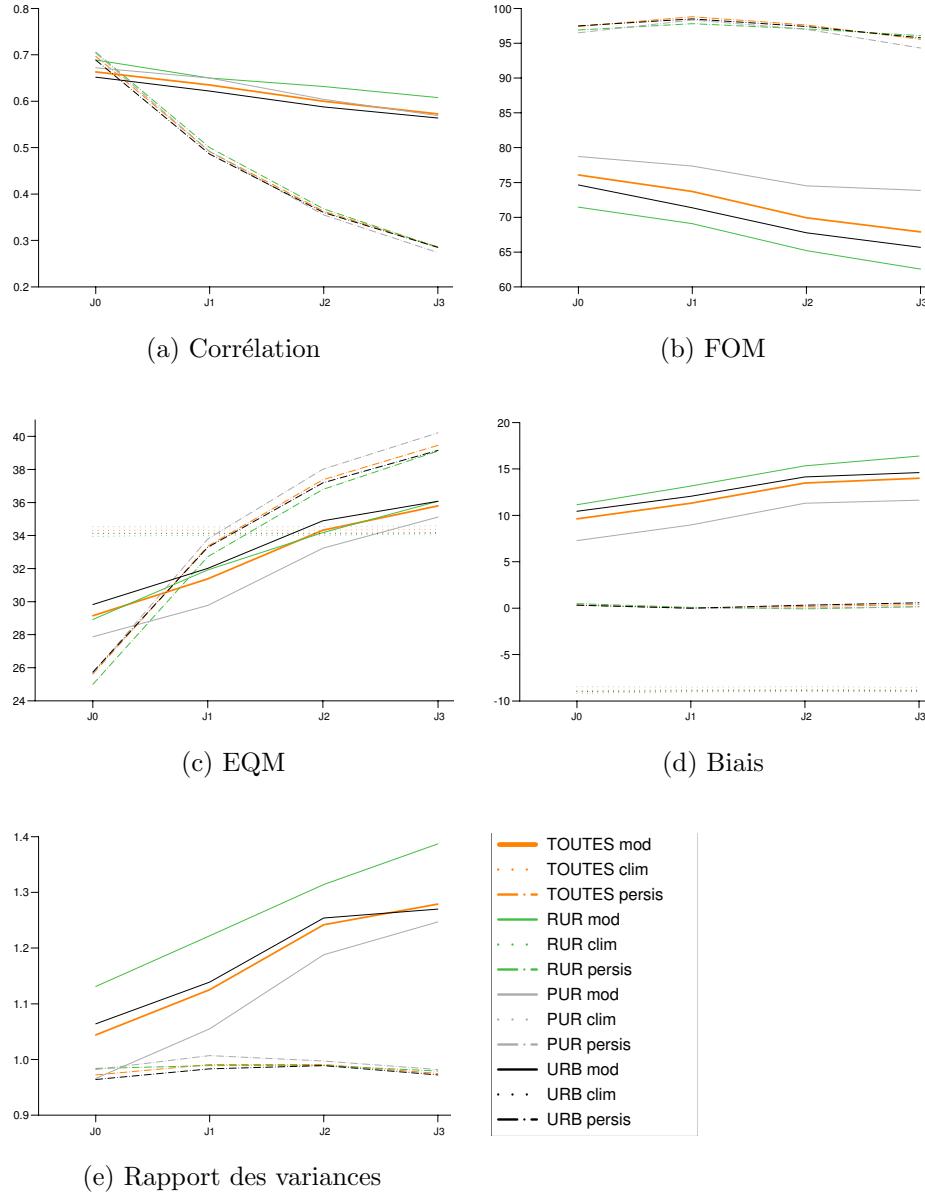


FIGURE 4.18 – Evolution des scores des pics journaliers d'ozone avec l'échéance (de J0 à J3). Ils sont calculés à partir de la base de données BASTER sur la période du 01/06 au 30/09/2005 et sont présentés lorsque cela est pertinent pour la climatologie et la persistance.

l'échéance, dû au caractère chaotique de la prévision météorologique. Cette dégradation est constatée quelque soit le groupe de stations considérées et quelque soit l'indicateur statistique.

La dégradation la plus forte d'une échéance par rapport à la précédente pour les simulations se fait entre J1 et J2 et la plus faible entre J2 et J3. Ceci pourrait être relié en partie à une dégradation plus forte entre J1 et J2 de la température simulée par les différents réseaux utilisés (voir tableau 4.13). Pour la persistance, par contre, la dégradation la plus nette se fait entre J0 et J1 montrant que la persistance est une prévision informative à un jour d'échéance uniquement. A J0, elle est équivalente à notre prévision déterministe pour la corrélation et meilleure pour l'EQM, et moins performante sinon. Les scores de la climatologie sont stables avec les échéances par définition, aussi, nous ne les commenterons que pour l'EQM : le modèle est légèrement plus performant pour J0 et J1 (de $5 \mu\text{g.m}^{-3}$ au moins) , de qualité équivalente à J2 et moins bon à J3 (de quelques $\mu\text{g.m}^{-3}$). Pour cet indicateur (EQM) en effet, il a déjà été constaté que les comportements déviants aux scénarios observés étaient très pénalisants. Aussi, il est préférable d'avoir un comportement moyen plutôt que des scénarios réalistes, mais différant fortement de la réalité, ce qui est plus le cas à J3 qu'à J2, à J2 qu'à J1, etc. C'est pour cela que la persistance voit également ses performances se dégrader fortement avec les échéances, et ce, beaucoup plus rapidement que les simulations (puisque elle est équivalente à la climatologie dès J1 contre J2 pour les simulations).

REPRODUCTION DES CARACTÉRISTIQUES GÉNÉRALES SUR UN ÉTÉ

Par contre, il est moins logique que les scores évoluent avec les échéances pour les indicateurs de FOM, de biais et de rapport des variances. Les scores stables de la persistance l'illustrent, même si l'on voit que simplement 2 jours différents sur une période de 122 jours suffisent à faire perdre de 3 à 5 points de FOM et faire tomber le rapport des variances à 0.97. Ces 2 jours sont ceux du début et fin de période ; or, fin mai/ début juin était particulièrement pollué (surtout sur l'Est du pays) alors que fin septembre l'était très peu, notamment sur le Nord de la France. Aussi, ce sont les queues haute et basse des distributions qui sont perturbées, expliquant l'impact relativement "fort" sur la FOM de ces 2 journées.

Plus les échéances avancent, plus le biais du modèle devient positif, plus sa variance sur-estime celle des observations et plus ses distributions s'écartent des observations en s'étalant vers les classes de plus fortes valeurs tout en conservant la même répartition pour les valeurs les plus faibles (voir les distribution des pics journaliers pour les observations, J0 et J3 sur la figure 4.19).

On constate notamment que les classes de valeurs extrêmement fortes sont plus fournies. Ce n'est pas forcément que les panaches sont plus étendus géographiquement, mais plutôt que le nombre de jours subissant des épisodes de pollutions donnant lieu à des alertes est plus important aux échéances les plus lointaines. Le tableau 4.14 précise d'ailleurs le nombre de jours de dépassement du seuil d'information par grande région photochimique sur la période ainsi que le nombre de stations touchées.

Comme déjà noté plus haut, sur cet été, il semblerait que les forçages utilisés à J2 et J3 soient en moyenne plus chauds, et, qui plus est, avec des valeurs chaudes extrêmes plus fréquentes : la figure 4.20 présente les températures au sol à 12HTU (un point correspond à une journée de l'été) pour les différents jours de prévision, montrant bien que J2 et J3 ont tendance à plus surestimer les valeurs que J0 et J1, surtout pour les valeurs les plus chaudes.

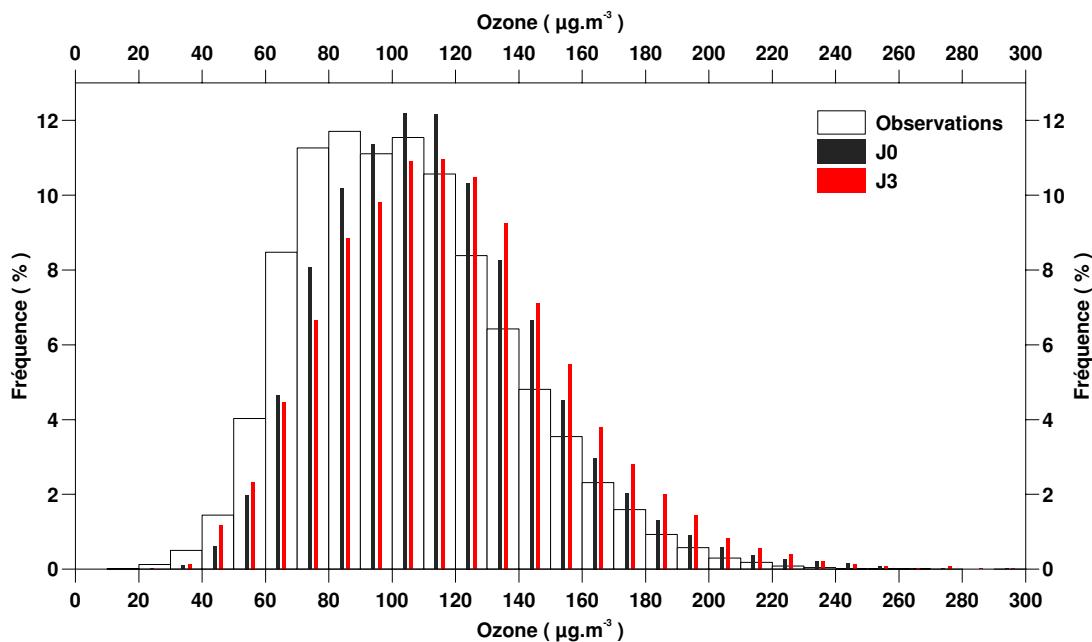


FIGURE 4.19 – *Histogrammes des séries des pics journaliers de concentration d'ozone sur la période du 01/06 au 30/09/2005 pour les échéances J0(en noir) et J3(en rouge).*

Par contre, les différentes échéances sont relativement similaires pour les valeurs les plus froides ; comme les journées correspondantes sont associées en général au passage d'une perturbation ou à un flux de Nord , et par conséquent à des concentrations d'ozone faibles, cela rejoint la constatation de la stabilité de la queue basse de la distribution d'ozone vis à vis de l'échéance.

Le nombre de jours présentant une forte pollution à l'ozone est donc d'autant plus important que l'échéance est lointaine, ce qui justifie que le rapport des variances modélisée et observée augmente.

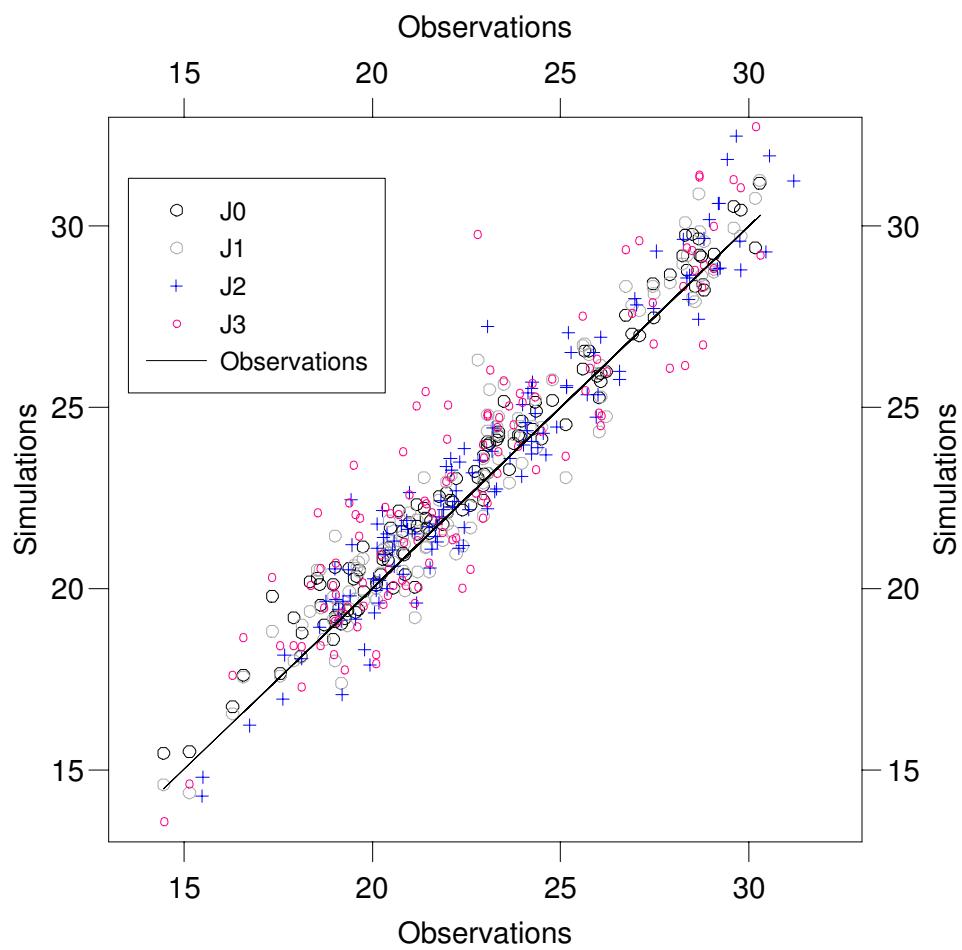


FIGURE 4.20 – Nuage de points des températures à 12HTU par rapport aux observations du réseau SYNOP + RADOME pour les échéances de J0 à J3 sur la période du 01/06 au 30/09/2005.

	France	GBP	RSE	RNE	RH-ALP	RSO	Nord	Centre
OBS	38 (672)	15 (115)	29 (170)	13 (134)	20 (99)	9 (14)	13 (60)	4 (6)
J0	52 (1228)	18 (193)	42 (532)	17 (74)	23 (171)	7 (31)	9 (28)	5 (10)
J1	59 (1407)	23 (237)	41 (459)	17 (128)	26 (280)	6 (41)	11 (38)	5 (9)
J2	61 (1660)	24 (327)	49 (521)	19 (152)	28 (301)	7 (50)	13 (60)	8 (38)
J3	65 (1805)	27 (357)	49 (496)	22 (226)	25 (268)	9 (80)	12 (96)	6 (20)

TABLEAU 4.14 – Nombre de jours où une station au moins présente un dépassement du seuil d’information relatif à l’ozone pour les échéances J0, J1, J2 et J3 ainsi que le nombre de stations touchées en italique et entre parenthèses. Les résultats sont présentés pour la France entière et quelques grandes régions photochimiques : le Grand Bassin Parisien (GBP), la Région Sud-Est (RSE), la Région Nord-Est (RNE), la région Rhône-Alpes (RH-ALP), la Région Sud-Ouest (RSO), la Région Nord et le Centre. La période considérée va du 1/6/2005 au 30/9/2005 mais ne comporte que 84 jours où simulations et observations sont disponibles simultanément.

4.3.3 Même réseau de prévisions météorologiques : variabilité journalière

L'étude qui suit concerne les prévisions de 0 à 24 heures d'échéance de MOCAGE (J0) ainsi que les prévisions à 0 heure d'échéance du réseau de 12 heures d'ALADIN. Pour la chimie, on considère à la fois les séries des pics et les séries horaires pour l'ensemble des stations BASTER du territoire métropolitain, et ce, uniquement pour l'ozone pour la saison estivale 2005. Les indicateurs utilisés sont les moyennes et les écarts types observés et prévus (ECT), le biais, la corrélation, la FOM, l'EQM ainsi que le rapport des écarts types. Concernant la météorologie, il s'agit d'une évaluation en surface du modèle par rapport aux réseaux SYNOP et RADOME à 12HTU. Sont disponibles le biais, l'erreur absolue, l'écart type de la prévision, l'EQM ainsi que les moyennes observées et prévues.

Deux limites à cette approche sont inhérentes aux données disponibles :

- la répartition et la représentativité des mesures chimiques et météorologiques ne sont pas identiques (on peut tenter de se rapprocher du cas idéal de co-localisation des données en ne considérant que les stations rurales des AASQA)
- l'évaluation météorologique porte sur 12HTU. Il serait intéressant de reconduire cette étude en mettant en regard les performances chimiques sur le pic d'ozone avec les performances météorologiques sur l'ensemble de la journée ou la tranche photochimique 6h-16hTU.

Enfin, un dernier aspect à garder en mémoire est l'hétérogénéité de la France à la fois pour la météorologie mais également pour la qualité de l'air. Les résultats ont donc une portée très générale et il serait intéressant de les décliner également par région ou par AASQA.

Trois points seront successivement examinés : tout d'abord, les erreurs systématiques du forçage météorologique ainsi que ses principaux défauts avérés ; ensuite, en dehors du fait que les modèles soient justes ou non, les relations des couples paramètre météorologique / paramètre chimique seront comparées entre observations et prévisions ; et enfin, sera présenté l'impact de la qualité de la prévision des différents paramètres météorologiques sur la qualité des prévisions de concentration d'ozone.

COMPARAISON DES RELATIONS RELIANT LES PARAMÈTRES MÉTÉOROLOGIQUES À L'OZONE, DANS LES OBSERVATIONS ET DANS LES SIMULATIONS

L'intérêt de cette partie est de pouvoir évaluer le réalisme du système de modélisation au-delà des erreurs sur le forçage météorologique. En effet, les comparaisons portent sur les relations observées et modélisées entre paramètres météorologiques et concentrations d'ozone. Elles sont comparées au travers de leurs régressions linéaires, consignées dans le tableau 4.15.

Sur la période considérée, le profil horaire moyen modélisé a un retard de 1 à 2 heures par rapport au profil observé. Aussi, afin d'analyser des comportements chimiquement équivalents, la concentration d'ozone modélisée sera prise à 14 hTU contre 12HTU pour les observations et les paramètres météorologiques. L'impact de cette mesure est contenu dans le tableau 4.15, qui présente les résultats que l'ozone modèle soit pris à 14HTU ou 12HTU.

Tout d'abord, notons que mis à part le paramètre nébulosité, l'ordre relatif des dépendances aux différents paramètres météorologiques (voir la corrélation) ainsi que la

		HU	NEBT	NEBT _{<50}	DD	FF	T
Corr	O	-0.64	-0.64	-0.50	-0.52	-0.40	0.78
	M14h	-0.43	-0.29	-0.26	-0.41	-0.41	0.83
	M12h	-0.41	-0.27	-0.24	-0.36	-0.33	0.83
a	O	-1.49 ± 0.17	-0.72 ± 0.08	-0.91 ± 0.27	-0.21 ± 0.03	-10.47 ± 2.33	4.64 ± 0.36
	M14h	-0.85 ± 0.17	-0.38 ± 0.12	-0.71 ± 0.45	-0.15 ± 0.03	-9.84 ± 2.13	5.11 ± 0.33
	M12h	-0.78 ± 0.17	-0.34 ± 0.12	-0.61 ± 0.44	-0.13 ± 0.03	-7.82 ± 2.13	4.96 ± 0.32
b	O	175.25 ± 9.64	133.52 ± 4.94	138.74 ± 9.62	136.38 ± 7.08	131.68 ± 8.81	-13.3 ± 8.38
	M14h	148.8 ± 9.42	112.36 ± 3.69	119.45 ± 5.99	134.48 ± 7.09	139.11 ± 8.1	-16.85 ± 7.69
	M12h	139.17 ± 9.24	105.47 ± 3.60	111.38 ± 5.77	123.66 ± 7.04	125.66 ± 7.04	-19.19 ± 7.46
χ^2	O	1.55	1.55	2.97	1.73	1.86	1.27
	M14h	1.83	1.95	3.27	1.85	1.86	1.12
	M12h	1.80	1.90	3.15	1.84	1.86	1.09

TABLEAU 4.15 – Coefficients des régressions liant l'ozone et les paramètres météorologiques respectivement dans les observations et dans les simulations : corrélation, puis coefficients a et b de la régression linéaire $y=ax+b$ avec leur incertitude respective ainsi que le poids total du χ^2 . Les paramètres météorologiques sont l'humidité (HU), la nébulosité (NEBT), la nébulosité pour les valeurs inférieures à 50 % à la fois dans les observations et le modèle (NEBT_{<50}) la direction et la force du vent (resp. DD et FF) ainsi que la température (T). La variable ozone modèle est prise à 12 HTU mais aussi à 14 HTU pour tenir compte de la dérive temporelle observée sur le profil journalier moyen dans cette version du modèle. Les autres variables sont celles de 12HTU.

plus ou moins bonne adéquation à une régression linéaire (χ^2) sont respectés dans les simulations vis à vis des observations.

Le comportement de l'ozone vis à vis de la **température** est équivalent dans les observations et les prévisions, avec toutefois une légère sur-dépendance du modèle à ce paramètre (visible notamment sur la corrélation ou le χ^2).

La relation à la **force du vent** est équivalente en terme de régression linéaire à la fois pour les coefficients et la dispersion à cette loi. Pour la **direction du vent**, l'anti-corrélation est moins marquée dans les simulations. Les roses des concentrations d'ozone présentées en première ligne de la figure 4.21 apportent un élément d'explication : le contraste entre les flux d'ouest (directions comprises entre 240 et 300° caractérisées par des concentrations faibles) et le reste des situations est beaucoup plus net dans les observations que dans les simulations. Ces cas constituent la queue basse de la distribution d'ozone et la queue haute de la distribution de la direction, aussi, la pente de la régression est plus faible dans le modèle que dans les observations. Afin de trancher sur un problème éventuel de niveaux de fond des flux d'ozone en provenance de l'atlantique, les roses des vents limitées aux stations de la façade atlantique et de la Manche sont présentées sur la deuxième ligne de la figure 4.21. Pour les flux d'ouest, à force de vent égale, les moyennes modélisées et observées sont du même ordre de grandeur sauf pour les flux faibles que le modèle semble surestimer. Le biais est plus net pour les flux de Sud-Ouest (directions comprises entre 200 et 240°). La forte anticorrélation avec l'**humidité** est reproduite dans le modèle mais plus faiblement. D'autre part, la dispersion des points par rapport à la régression linéaire est plus grande dans les simulations, et la pente est trop faible alors qu'il n'y a pas de biais systématique pour le modèle météorologique.

La relation la moins bien reproduite est celle concernant la **nébulosité**. Cela est dû en

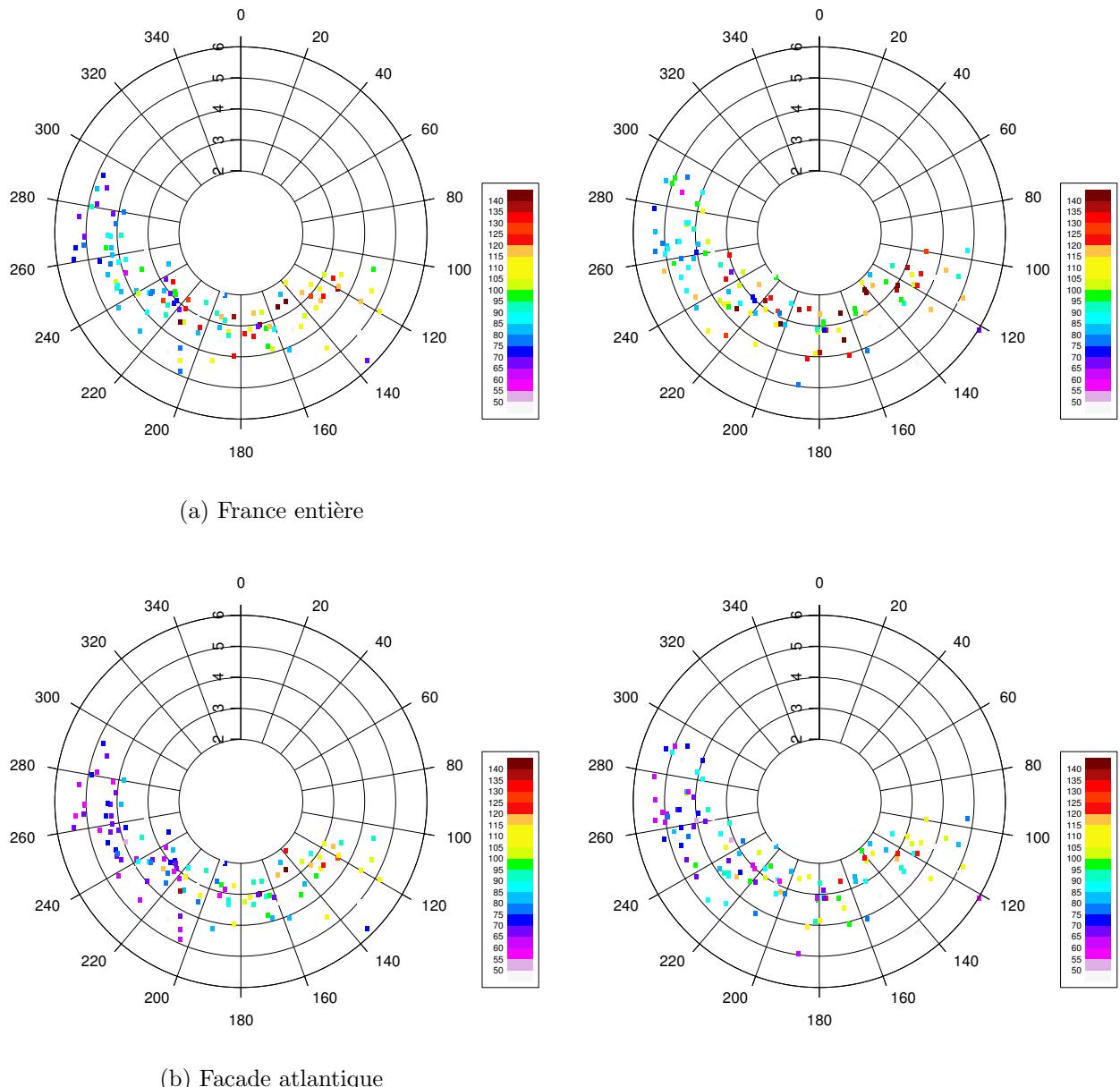


FIGURE 4.21 – Roses des vents à 12HTU (en degré et m/s) calculées sur l'ensemble des stations SY-NOP+RADOME de France métropolitaine et concentration d'ozone (palette de couleur), calculée en haut sur l'ensemble des stations RURALES de la France, en bas, uniquement sur les stations des AASQA de la façade atlantique et de la Manche. Observations à gauche et simulations à droite.

grande partie au biais reporté au paragraphe précédent. La nébulosité intervient dans la formulation du modèle pour le calcul des coefficients de photolyse. Il est donc logique qu'un facteur 2 sur le paramètre de nébulosité dans les prévisions par rapport aux observations biaise la relation nébulosité/ozone puisque les cas de fortes nébulosités ne seront jamais modélisés (même si par le biais d'autres paramètres tel que le vent, les concentrations d'ozone peuvent rester modérées). Par contre, il est rassurant de noter que la similitude de la relation Nébulosité/ozone entre observations et simulations s'améliore beaucoup lorsque l'on se limite aux cas de nébulosité faible et moyenne (inférieure à 50%).

En conclusion partielle, nous pouvons donc souligner le réalisme de la réaction du modèle MOCAGE aux différents paramètres météorologiques, avec une difficulté pour les paramètres relatifs aux hydrométéores et à l'humidité .

Un autre score d'intérêt, outre la moyenne, est l'écart type. Les questions auxquelles nous nous sommes intéressées sont les suivantes : Quelles sont les variables météorologiques qui pilotent la variabilité à l'échelle du territoire national dans les observations chimiques et dans quelle mesure ? Sont-ce les mêmes que dans les simulations et dans les mêmes proportions ?

On s'intéresse ici aux moyennes observées et simulées des paramètres météorologiques ainsi qu'à leur écart type simulé (les écarts types observés n'étant pas disponibles). La figure 4.22 présente les corrélations entre ces paramètres et les écarts types des concentrations d'ozone. Pour une variable météorologique donnée, c'est l'écart type qui se corrèle le mieux avec l'écart type des concentrations d'ozone, sauf pour la température à la fois dans les observations et les simulations. D'autre part, le poids relatif des différents paramètres météorologiques est globalement respecté, bien que l'éventail des valeurs soit plus resserré dans les simulations.

Il est intéressant de noter que l'écart type des concentrations d'ozone est piloté essentiellement par l'écart type de la pression et la moyenne des températures, et ce, selon des processus différents. En effet, les nuages de points de la figure 4.23 semblent indiquer que :

- pour la température : plus les températures sont élevées, plus l'activité photochimique est importante et donc plus les concentrations d'ozone dans les panaches *in fine* sont élevées. Aussi, les différentes stations d'une même région vont présenter des concentrations maximales très différentes selon leur position sur la trajectoire du panache (proches des valeurs de fond pour celles que le panache survole tôt, et élevée pour celles que le panache survole en phase mature). L'écart type va donc être plus fort. En effet, la concentration d'ozone (représentée par la couleur des points) est d'autant plus élevée que la température et l'écart type sont élevés.

- pour la pression : plus le champ de pression est hétérogène, plus les conditions météorologiques rencontrées vont être différentes spatialement et plus les conditions photochimiques vont être différentes d'une région à l'autre, ce qui a aussi pour effet d'augmenter l'écart type. Cela se traduit par une plus grande mixité des couleurs et donc des valeurs de concentration d'ozone au sein du nuage de points.

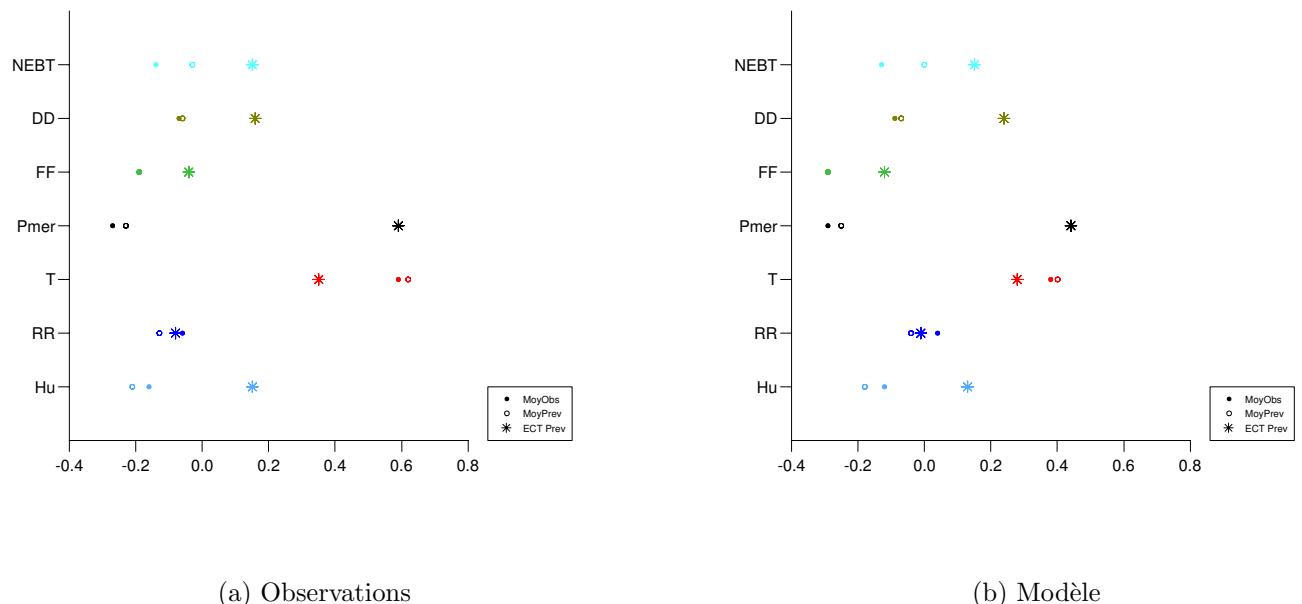


FIGURE 4.22 – Corrélation entre l'écart type des concentrations d'ozone et écart type et moyenne des différents paramètres météorologiques : humidité (Hu), précipitations (RR), température (T), pression de surface (Pmer) force (FF) et direction du vent (DD) ainsi que la nébulosité (NEBT) vu par le réseau SYNOP + RADOME pour la période du 01/06 au 30/09/2005. A droite pour les simulations, à gauche pour les observations. Les étoiles représentent l'écart type prévu du paramètre considéré, les cercles sa moyenne prévue et les disques pleins sa moyenne observée.

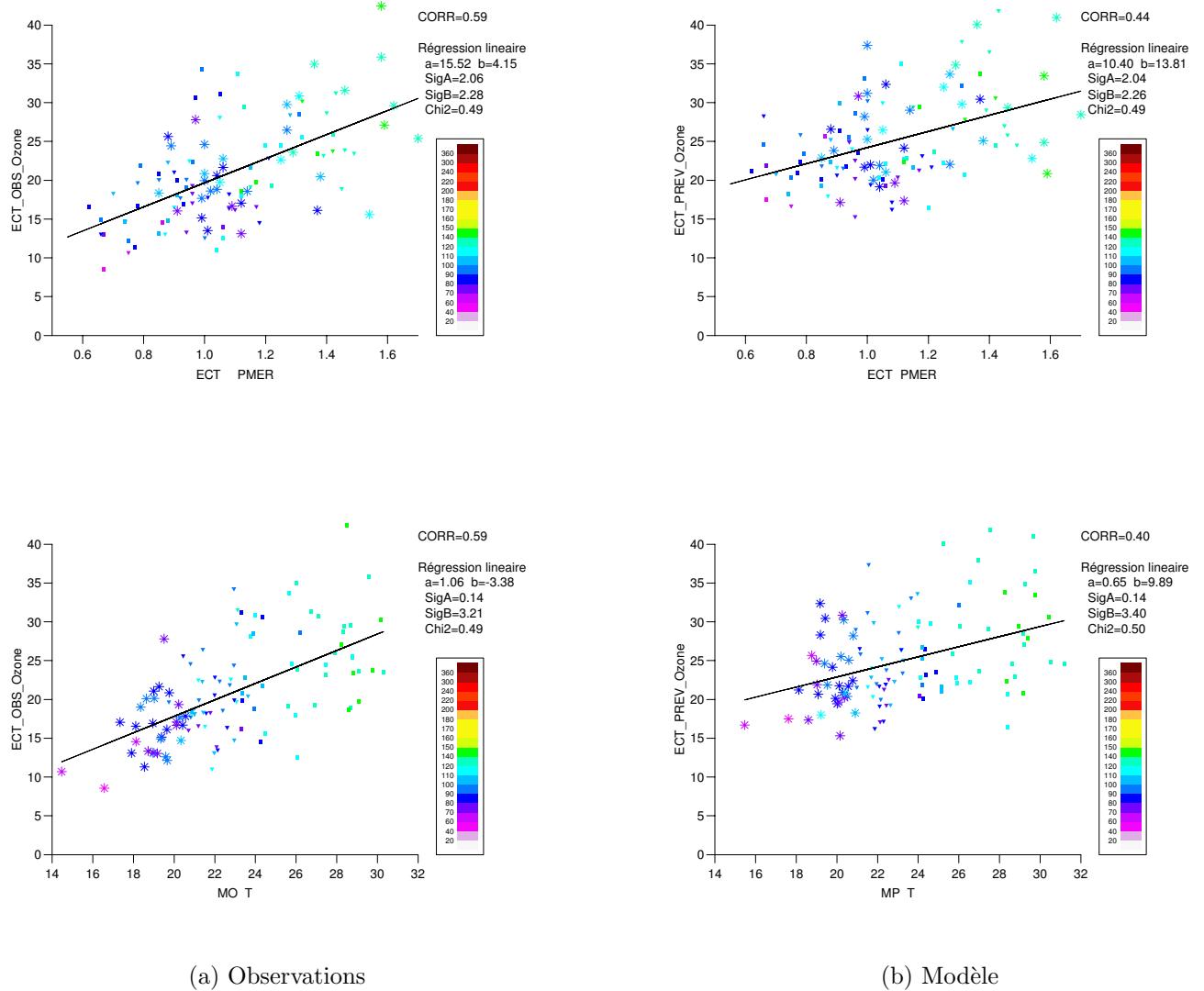


FIGURE 4.23 – Nuages de points et régression linéaire entre l'écart type des concentrations d'ozone et deux paramètres liés à la météorologie : en haut l'écart type de la pression de surface et en bas la moyenne des températures. A droite pour les simulations, à gauche pour les observations (sauf en haut où l'écart type de la pression de surface est celle des simulations). Chaque point représente l'un des 122 jours de la période du 01/06 au 30/09/2005. La couleur du point représente la concentration d'ozone simulée pour le jour considéré. La forme du point correspond à un découpage en tiercentile de la distribution modélisée du paramètre météorologique considéré : les étoiles sont les valeurs les plus faibles, les triangles, les valeurs intermédiaires et les carrés les valeurs les plus fortes.

RELATION RELIANT LES ERREURS DES SIMULATIONS CHIMIQUES AUX ERREURS DES SIMULATIONS DYNAMIQUES

L'objectif ici est de mettre en regard les indicateurs de qualité des simulations chimiques avec ceux du forçage météorologique (dans un premier temps sur un jeu de paramètres relativement simple) afin de déterminer quels sont les paramètres météorologiques dont la simulation est primordiale pour la qualité des prévisions chimiques, avec sous-jacente, la question de la part d'erreur des simulations chimiques imputable au forçage météorologique.

Seront examinés le biais, l'erreur quadratique moyenne, le rapport des variances ainsi que la FOM des concentrations d'ozone simulées à J0, toujours sur une base journalière et à l'échelle de la France. Les paramètres météorologiques sont l'humidité, les précipitations, la température, la pression de surface, la force et la direction du vent ainsi que la nébulosité modélisés par le réseau de 12HTU d'ALADIN et observés par les réseaux SYNOP et RADOME. On dispose des indicateurs suivants pour ces paramètres : erreur quadratique moyenne des prévisions, moyenne des observations, moyenne des simulations, biais, biais absolu, et écart type prévu.

Les résultats sont présentés sous la forme des valeurs absolues des corrélations entre les différents indicateurs sur les 122 jours de l'été 2005 (figures 4.24 à 4.27) et sont à examiner en tenant compte des résultats liant concentrations d'ozone et paramètres météorologiques du tableau 4.15.

Il est intéressant de noter tout d'abord que les 4 indicateurs chimiques considérés ne sont régis ni par les mêmes indicateurs, ni par les mêmes paramètres météorologiques bien que la température s'impose comme paramètre déterminant.

Le **biais** des concentrations d'ozone est fortement corrélé avec le biais en température, ce qui paraît logique tant ce paramètre est conditionné par le rayonnement qui, lui, conditionne la photochimie. Ensuite viennent l'erreur quadratique moyenne en température (même remarque que précédemment) et la moyenne observée de nébulosité, ce qui s'explique par le biais du modèle météorologique forceur sur ce paramètre : les fortes nébulosités observées sont sous-estimées par le modèle météorologique ce qui entraîne alors la surestimation des concentrations d'ozone. Inversement, le modèle semble sous-estimer les concentrations lors d'épisodes de très faible nébulosité généralement associés à des concentrations élevées sur l'ensemble du territoire (comme la période du 13 au 16 juillet 2005 par exemple). Enfin, notons également que les erreurs sur l'humidité impactent significativement le biais.

L'**écart quadratique moyen** quant à lui est piloté par l'hétérogénéité des champs forceurs : en effet, pour tous les paramètres météorologiques sauf la force du vent, l'écart quadratique moyen est l'indicateur le plus (ou l'un des plus) pertinent(s). Cela tient de la difficulté pour le modèle forceur à bien positionner les différentes structures d'un champ hétérogène dans le temps mais aussi dans l'espace. Or, ce forçage météorologique hétérogène va induire des conditions photochimiques également hétérogènes. Une zone d'éventuelle "erreur météorologique" va alors engendrer des erreurs chimiques pouvant s'avérer très importantes. L'étude de cas du 25 juillet 2005 exposée en annexe F en est une illustration : un décalage en latitude de la trajectoire d'une perturbation active sur la France a entraîné de fortes erreurs dans les simulations de MOCAGE. En effet, la région

parisienne était balayé par la perturbation dans la réalité alors qu'elle était en marge du flux perturbé dans les simulations, bénéficiant même d'un temps assez chaud et ensoleillé pour produire un épisode de pollution avec dépassement du seuil d'information relatif à l'ozone. La moyenne prévue de la force du vent est un autre paramètre clé. Comme noté précédemment sur les études de cas ESQUIF (voir 2.3.2), pour les situations de vent faible souvent associés à des épisodes photochimiques importants si le ciel est clair, l'incertitude sur la direction du vent est grande. Or, un panache à la fois observé et modélisé mais dans des directions différentes conduit à un EQM fort.

La **FOM**, dont les variations jour à jour sont beaucoup plus rapides que les autres paramètres, présente des corrélations plus faibles que les autres indicateurs chimiques et a la particularité également d'être mieux corrélée avec le biais comme indicateur, et ce, pour tous les paramètres météorologiques sauf la nébulosité.

Le **rapport des variances**, lui, est fortement corrélé aux mêmes paramètres que les écarts types modélisés et observés de concentrations d'ozone, à savoir moyenne des températures et écart type de la pression. Ceci est probablement dû uniquement au fait que la variance d'ozone observée présente des corrélations aux paramètres météorologiques plus fortes que celles que présente la variance d'ozone simulée. Aussi, le ratio des carrés des variances modélisée et observée a la même dépendance que la variance observée.

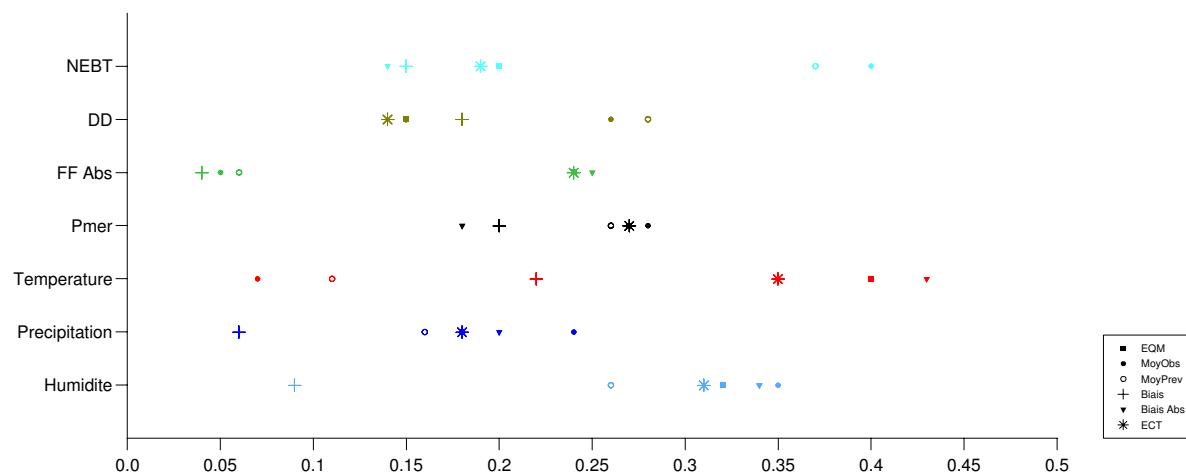


FIGURE 4.24 – Valeur absolue des corrélations sur la période du 01/06 au 30/09/2005 entre le biais des concentrations d'ozone et les indicateurs météorologiques suivants : écart quadratique moyen (EQM, carrés), moyenne des observations (MoyObs, disques pleins), moyenne des simulations (MoyPrev, cercles), biais (Biais, signes plus), biais absolu (Biais Abs, triangles), et écart type prévu(ECT, étoiles). Les paramètres météorologiques, vu par le réseau SYNOP + RADOME sont : l'humidité, les précipitations, la température, la pression de surface (Pmer), la force (FF) et la direction du vent (DD) ainsi que la nébulosité (NEBT).

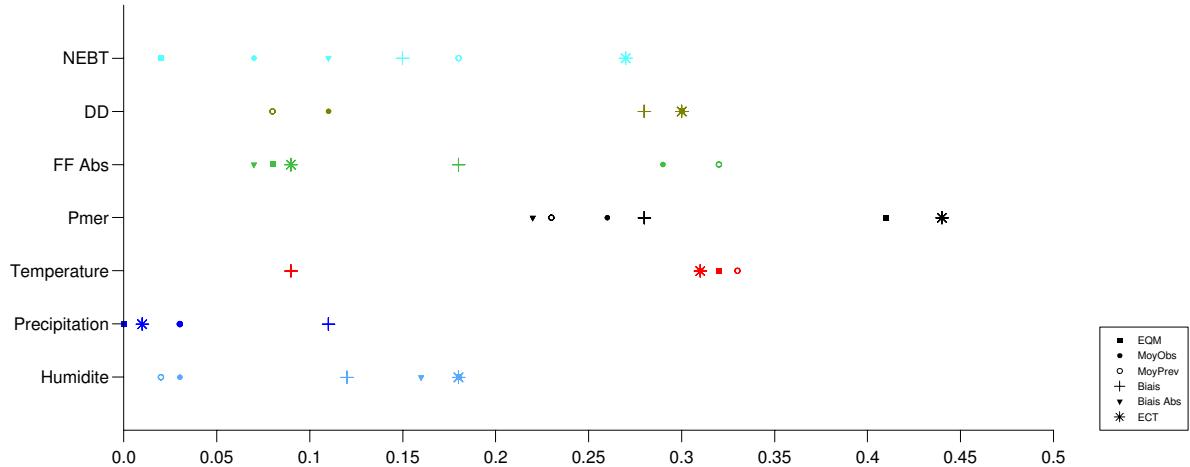


FIGURE 4.25 – Comme figure 4.24 pour l'erreur quadratique moyenne des concentrations d'ozone.

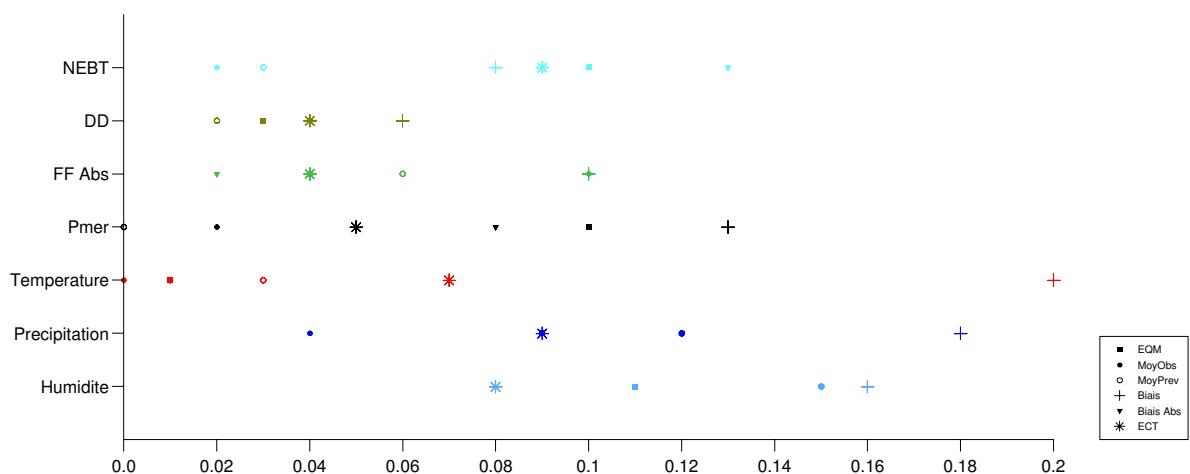


FIGURE 4.26 – Comme figure 4.24 pour la Figure Of Merit des concentrations d'ozone.

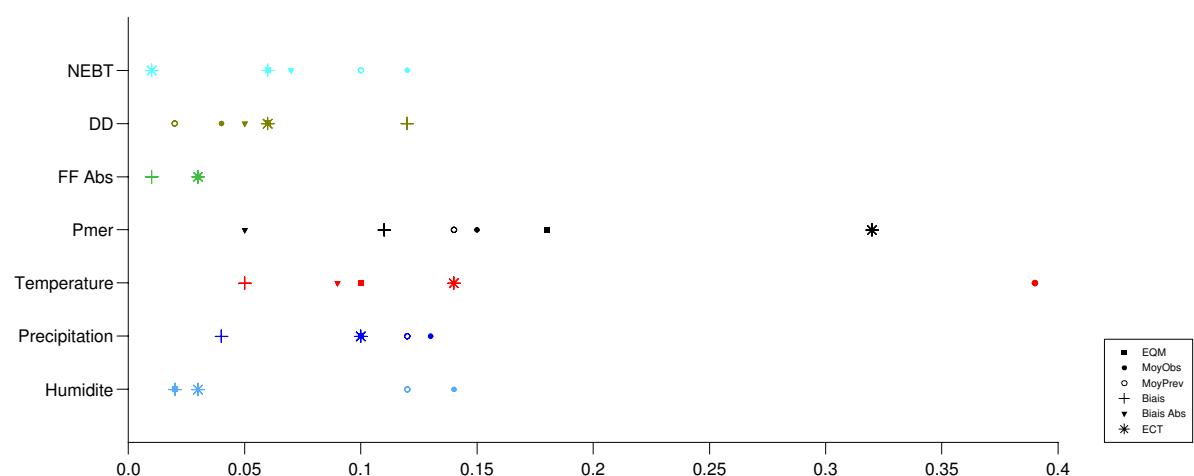


FIGURE 4.27 – Comme figure 4.24 pour le rapport des variances des concentrations d'ozone.

4.4 Prévisions sur site : adaptation statistique

Historiquement, les premiers outils de prévision des épisodes de pollution ont été les systèmes de prévisions statistiques, de complexités diverses et variées, le pic d'ozone quotidien se prêtant fort bien à de tels exercices. Les méthodes sont diverses : régression, classification, arbre de décision et réseau de neurones (e.g. Zeldin and Thomas (1975), Simpson and Layton (1983), Robeson and Steyn (1990)). L'inconvénient des méthodes statistiques est qu'elles reposent sur des relations statistiques mais non causales de la pollution avec différentes variables. Ces relations sont établies sur une phase d'apprentissage d'épisodes passés. Aussi, plus la situation à prévoir s'écarte de la normale, moins elle s'avère prévisible.

Parallèlement, les échelles spatiales atteintes actuellement par la prévision déterministe opérationnelle de la qualité de l'air sont de l'ordre de la dizaine de kilomètres sur l'horizontale, ce qui correspond à la résolution des forçages fournis par les modèles météorologiques opérationnels. D'autre part, l'inventaire d'émissions utilisé à l'échelle nationale procède à de grosses approximations à la fois spatiales (cadastre EMEP respatialisé par l'urbanisation) et temporelles (application de profils horaires constants sur l'ensemble du domaine aux émissions mensuelles calculées sur l'année de référence 1999). Ces approximations limitent également de fait la précision des structures modélisées.

Aussi, à l'heure actuelle, la prévision déterministe ne délivre pas une information pertinente à l'échelle locale, notamment pour la plupart des sites urbains. Il paraît donc potentiellement intéressant, comme cela est fait en météorologie, d'affiner les prévisions déterministes **sur site** par Adaptation Statistique (AS).

La méthode est empruntée à Peuch and Plu (2002) et est appliquée depuis la saison estivale 2002 aux prévisions opérationnelles de Mocage (Dufour et al. (2004)), ainsi que depuis 2004 par l'INERIS aux simulations du modèle CHIMERE tournant sur la plate-forme nationale PREV'AIR.

4.4.1 Méthodologie

L'approche choisie pour cette étude est une régression linéaire multiple mixant prédicteurs quantitatifs (météorologiques et chimiques) et qualitatifs. Le prédictand visé est la concentration horaire d'ozone. Un modèle est construit pour chaque échéance et chaque station sur la base d'une période d'apprentissage disjointe de la période d'évaluation : les modèles sont en effet construits sur les mois de juin/juillet 2002, août 2003 et mai/juin/juillet 2005 (ce qui assure une bonne représentativité des situations rencontrées) et évalués sur la période juillet/août/septembre 2005.

PREDICTEURS

Pour prévoir une concentration d'ozone en un site donné à une échéance H, nous disposons, dans un contexte de type opérationnel, des paramètres prévus par MOCAGE ainsi que des paramètres prévus par les modèles météorologiques forceurs. Les prédicteurs retenus pour leur potentiel explicatif mais aussi par leur disponibilité sont les suivants :

- la prévision brute d'ozone $[O_3]$ à l'échéance H,
- les paramètres météorologiques température T, humidité HU et force du vent FF, prévus à H,

- les extrema et l'amplitude de température prévus pour le jour étudié,
- la prévision de la force du vent à 00HTU précédent H, FF(0h),
- une variable qualitative : le type de jour dans la semaine possédant deux modalités (week-end ou non).

La température minimale donne en effet une indication sur la stratification nocturne. Celle-ci, tout comme le vent en cours de nuit, participe à l'accumulation (ou la dilution) des polluants primaires et secondaires d'un jour sur l'autre. La température maximale, quant à elle, conditionne en partie la chimie de l'ozone (les constantes de vitesse des réactions en dépendent). L'amplitude thermique, elle, reflète l'accumulation de rayonnement solaire, source de production photochimique d'ozone. Toutefois, il faut remarquer que les variables température minimale, température maximale et amplitude de température ne peuvent pas être considérées toutes trois dans un même modèle de régression (problème de non inversibilité de la matrice des données explicatives). Un choix est donc à faire pour ne conserver que deux de ces trois variables. La variable qualitative (le type de jour dans la semaine) est ajoutée afin d'introduire un lien statistique entre la pollution et la variation hebdomadaire d'une source importante de précurseurs d'ozone : le trafic routier. Un apport notable de cette variable est attendu. En effet, la modulation entre jours de semaine et de week-end est déjà prise en compte dans le cadastre utilisé par le modèle, mais à l'échelle de l'Europe alors que cette modulation peut être très locale, bien en-deça de l'échelle du cadastre utilisé. Par exemple, les comportements des émissions d'un lieu de villégiature et d'une zone industrielle seront inversés l'un par rapport à l'autre entre jours et semaine et de week-end.

CHOIX DU MODÈLE DE RÉGRESSION

Le modèle de régression complet s'écrit donc pour la station i à l'heure j :

$$[\text{O}_3]_{ij}^{\text{adap}} = \beta_0 + \beta_1 [\text{O}_3]_{ij} + \beta_2 \text{T}_{ij} + \beta_3 \text{HU}_{ij} + \beta_4 \text{FF}_{ij} + \beta_5 \text{TJ1}_{ij} + \beta_6 \text{TJ2}_{ij} + \beta_7 \text{FF}(0\text{h})_{ij} + \nu_j + e_{ij} \quad (4.1)$$

Dans cette équation, β_0 est le coefficient à l'origine, TJ1 et TJ2 désignent deux variables explicatives parmi les trois que sont les extrema de température et l'amplitude thermique. e_{ij} est le résidu du modèle. ν_j est l'effet de la $j^{\text{ème}}$ modalité du type de jour. Comme les paramètres ν_1 et ν_2 ne sont pas estimables directement (matrice des données explicatives non de plein rang), on impose la contrainte $\nu_1 + \nu_2 = 0$.

Compte-tenu du nombre $q_t = 8$ relativement faible de variables explicatives à tester, une procédure de sélection exhaustive est appliquée : les $2^{q_t} - 1$ modèles possibles sont envisagés. Le modèle retenu est le meilleur au sens du critère du C_p de Mallows. Ce critère est fondé sur les erreurs quadratiques moyennes de prévision commises avec le modèle complet (MSE) et avec les divers modèles à j variables successivement testés (MSE_j). Il est d'usage de retenir le modèle qui minimise la valeur de C_p sous certaines conditions (Besse (2001)).

Une fois sélectionnés les q prédicteurs pertinents pour le site et l'échéance considérés, l'équation de régression est déterminée sur les données du fichier d'apprentissage par la méthode des moindres carrés. Le modèle obtenu est de dimension $q + 1$.

4.4.2 Résultats et discussion

MODÈLES OBTENUS

La figure 4.28 présente pour chacun des prédicteurs potentiels le pourcentage de sélections en fonction de l'heure. Exceptée l'amplitude thermique journalière, la sélection des prédicteurs présente des cycles diurnes très marqués, généralement explicables par la physique et/ou le comportement du modèle :

- les prédicteurs liées à la température (1^{ère} ligne) sont les plus choisis : étant étroitement liés au rayonnement solaire, il semble naturel de mettre en évidence un fort lien statistique entre eux et la concentration d'ozone. D'autre part, la température présente un cycle diurne très marqué comme la concentration en ozone : la courbe de rayonnement est retrouvée de 7 à 15 heures (voir encart c). Pour les échéances suivantes, c'est la production de la journée qui est importante et non plus la température à l'heure h : le paramètre d'intérêt principal devient la température maximale journalière (encart b)
- la force du vent pilote la dispersion des polluants, et donc pilote de façon majoritaire les concentrations d'espèces chimiques la nuit en l'absence de photochimie. Aussi, le prédicteur force du vent est choisi de façon plus marquée la nuit avec un minimum en milieu de journée ; de même, la force du vent à minuit joue un rôle important sur les heures suivantes jusqu'au démarrage de la photochimie vers 6HTU.
- le prédicteur d'humidité prévue à H est relativement important dans les régressions, avec un pic en fin de matinée (encart f). Cela peut s'interpréter comme un marqueur de l'origine des masses d'air arrivant sur le site (océanique ou continentale) ou du type de temps (perturbé ou anticyclonique). Ce pic, noté en tout début de matinée, est fortement corrélé avec le pic observé également sur le choix de la variable "type de jour" pointant vers un lien avec les primaires, et donc probablement également du type de temps (couche limite stable, brouillard, ...).
- le prédicteur type de jour est sélectionné lors des pics d'émissions : massivement le matin (pour quasiment 80% des stations de 7 à 9 heures) et le soir, mais de façon moins visible, vers 19 heures.
- la prévision brute d'ozone à l'échéance H (encart h) est la plus choisie aux échéances où elle est la plus pertinente c'est à dire en milieu de journée et ni en matinée (problèmes évoqués au paragraphe précédent de décalage temporel du démarrage de la photochimie) ni la nuit (difficultés de restitution des valeurs nocturnes).

Il est intéressant de noter que les modèles statistiques sont pilotés la nuit plutôt par les prédicteurs météorologiques, et en milieu de journée par l'ensemble des prédicteurs.

PERFORMANCES DE L'ADAPTATION STATISTIQUE VERSUS SIMULATIONS BRUTES

Les performances de l'Adaptation Statistique (AS) sont étudiées sous 3 angles : l'évaluation des séries horaires (profils diurnes et statistiques générales), l'évaluation des séries des pics journaliers (statistiques générales), et enfin l'évaluation des performances relatives aux dépassements de seuil.

Les résultats chiffrés sont consignés dans le tableau 4.16. Ils sont moyennés sur l'ensemble des stations pour des raisons de lisibilité. Cependant, comme l'AS vise une amélioration à l'échelle de la station, les résultats seront présentés site à site sur les graphiques des sous-paragraphe suivants.

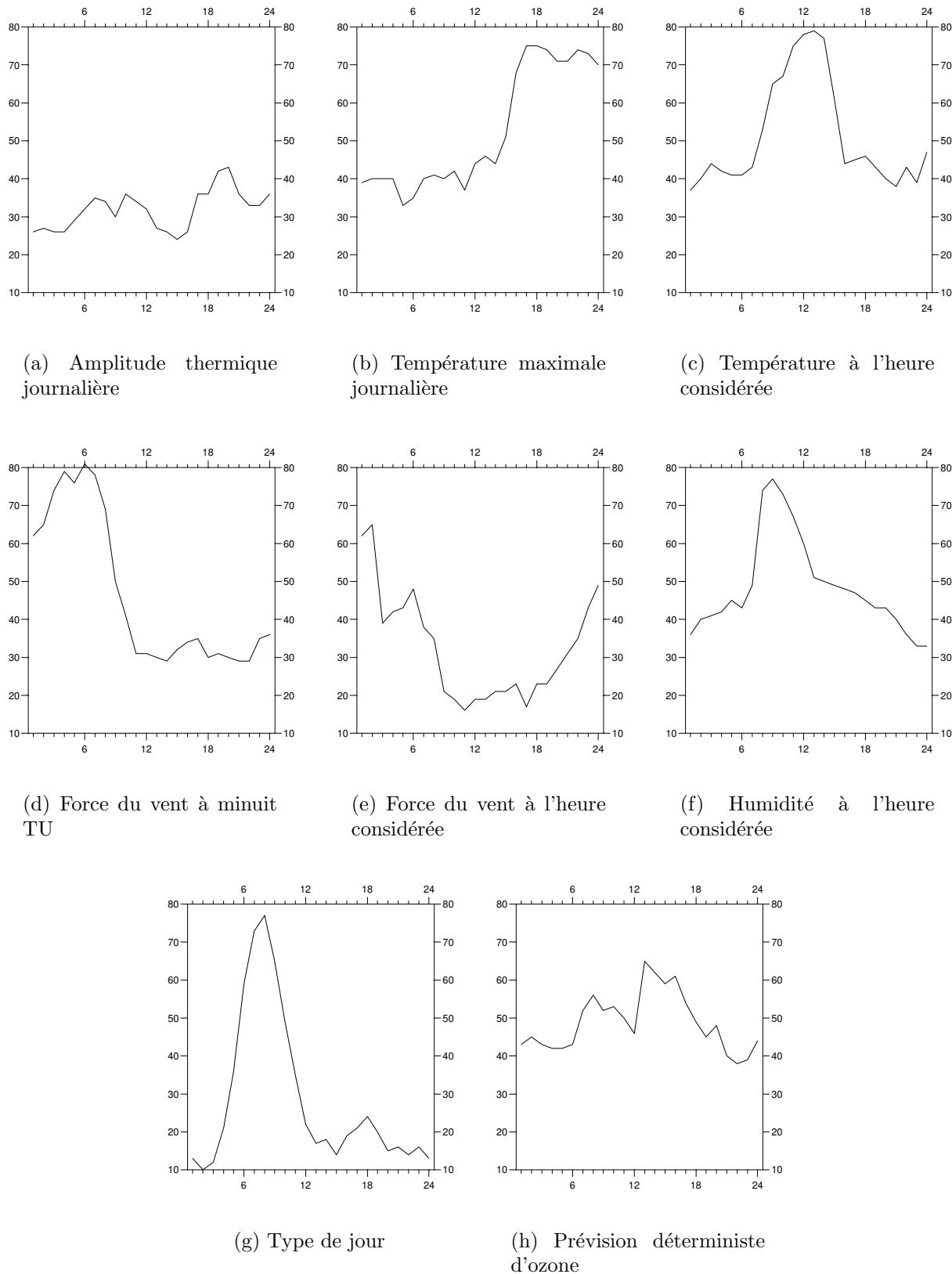


FIGURE 4.28 – Pourcentage de fois où un prédicteur est effectivement sélectionné pour les modèles de régression (ici calculé sur l'ensemble des stations) en fonction de l'heure.

	Corr	<i>obs.</i>	<i>prev.</i>	Biais	EQMc	FOM	ECTo	ECTm	Var	Nb Obs
SÉRIES HORAIRES										
Brut	0,64	63,5	74,5	11,0	28,9	76,0	34,9	33,4	0,91	716 753
AS	0,75	63,5	72,4	8,9	21,7	74,4	34,9	29,9	0,73	716 753
ASMTO	0,74	63,5	73,0	9,5	22,2	72,5	34,9	29,5	0,71	716 753
SÉRIES DES PICS JOURNALIER										
Brut	0,68	99,8	109,6	9,8	26,5	76,2	32,3	34,1	1,11	30 517
AS	0,75	99,8	105,8	6,0	21,5	60,9	32,3	24,4	0,57	30 517
ASMTO	0,72	99,8	106,1	6,3	22,5	57,1	32,2	23,6	0,53	30 517
SÉRIES DES AMPLITUDES JOURNALIÈRES										
Brut	0,60	75,7	67,5	-8,2	29,2	77,3	34,3	30,6	0,80	21 805
AS	0,73	75,7	69,9	-5,8	23,5	73,2	34,3	25,8	0,57	21 805
ASMTO	0,71	75,7	68,8	-6,9	24,1	71,0	34,3	25,2	0,53	21 805

TABLEAU 4.16 – Scores globaux sur la période du 01/06 au 30/09/2005 relativement aux données de la BDQA pour les séries horaires, les séries des pics journaliers d'ozone et les séries des amplitudes journalières d'ozone. La simulation brute J0 de MOCAGE est notée Brut, son adaptation statistique nominale AS, et son adaptation statistique limitée aux prédicteurs météorologiques ASMTO. L'unité est le $\mu\text{g.m}^{-3}$. Les indicateurs statistiques et les sigles sont définis dans l'annexe B.

Profils diurne

L'adaptation statistique permet d'améliorer les profils diurnes (cf figure 4.29) :

- **temporellement** : en effet, le retard de 1 à 2 heures au démarrage de la photochimie présent dans les simulations brutes est corrigé pour les profils AS.
- **vis à vis des valeurs minimales nocturnes** : celles-ci sont mieux reproduites.

Cependant, la surestimation des valeurs maximales du profil n'est pas diminuée par l'AS.

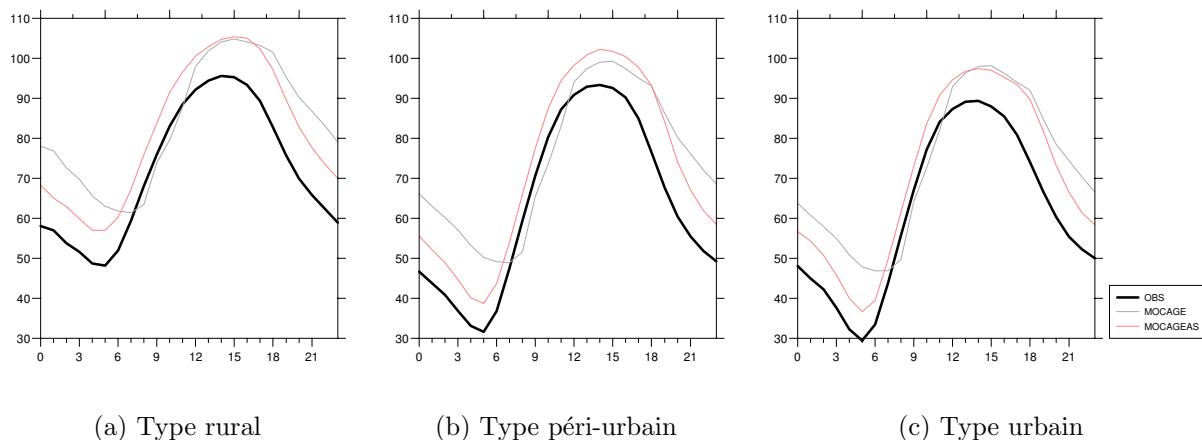


FIGURE 4.29 – Profils journaliers de concentration d'ozone pour les 3 types de stations : rural, péri-urbain et urbain. Les observations sont en noir, la simulation brute en gris clair et l'adaptation statistique en rouge. L'unité est le $\mu\text{g.m}^{-3}$.

Evaluation statistique des séries horaires

La figure 4.30 présente les scores de l'AS par rapport aux simulations brutes station par station. Les zones grisées correspondent à une meilleure performance de l'AS.

Les résultats sont mitigés : en effet, on note une amélioration des biais (ce qui est obtenu "par construction" même de la méthode), de la corrélation et de l'EQM mais conjointement une détérioration de la variabilité (i.e. du rapport des variances) et de la FOM. Cela est cohérent avec le fait que les queues haute et basse de la distribution soient tronquées.

D'autre part, il faut souligner le biais positif d'une dizaine de $\mu\text{g.m}^{-3}$ constant sur l'ensemble des stations. Il est à relier entre autre au fait que la moyenne des moyennes pour l'ensemble des stations sur la période d'apprentissage est plus élevée d'une quinzaine de $\mu\text{g.m}^{-3}$ par rapport à celle de la période de test : ce biais "chaud" est donc inhérent à la construction des différents modèles statistiques.

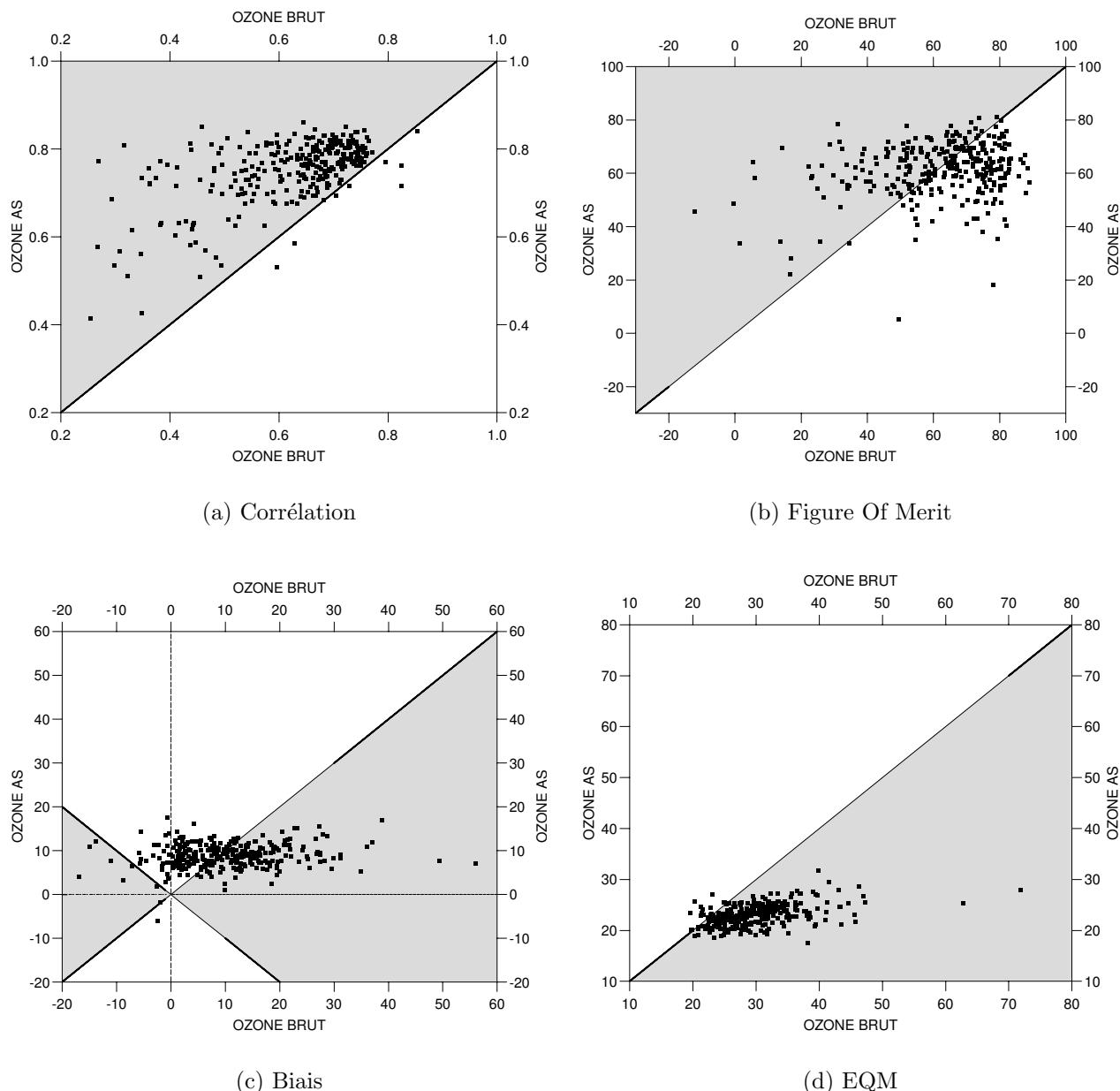


FIGURE 4.30 – Comparaison des scores simulation brute versus adaptation statistique pour les séries horaires de concentration d'ozone. Chaque station est représentée par un carré. Les zones grisées correspondent à une meilleure performance de l'adaptation statistique. L'unité pour le biais et l'EQM est le $\mu\text{g.m}^{-3}$. Les indicateurs statistiques et les sigles sont définis dans l'annexe B.

Pics et dépassements de seuils

De la même façon que pour les séries horaires, l'AS améliore nettement le biais, la corrélation et l'EQM mais, conjointement, dégrade la variabilité et la FOM (voire figure 4.34).

L'écrêtage du signal est illustré sur la fonction de distribution des valeurs des séries observées, brutes et statistiques sur la figure 4.32. Ce phénomène est beaucoup plus sensible sur les pics que sur les séries horaires. En effet, la meilleure reproduction par l'AS de la partie nocturne du cycle journalier permet de maintenir une FOM proche de celle des séries brutes pour les séries horaires adaptées statistiquement. Or, cette partie du signal n'est pas prise en compte lorsque l'on considère les pics, d'où la nette dégradation de ce score pour une majorité de stations.

Ce comportement de l'AS est également visible en terme de dépassement de seuil sur la figure 4.33 : les taux de bonnes prévisions et de fausses alarmes sont meilleurs au détriment du taux de détection (le nombre de points peu important est lié au fait que le score doit pouvoir être calculé pour les 2 configurations et les observations.).

Conclusion partielle.

Une telle méthode de couplage entre prévision déterministe et statistique présente une piste intéressante. En effet, elle permet de corriger certains défauts du modèle notamment le biais nocturne et le décalage temporel de la branche ascendante du profil.

Cependant elle se heurte :

- à la taille des périodes d'apprentissage. En effet, la variabilité interannuelle pose le problème de la stratégie à adopter pour les AS puisque les différences d'une année à l'autre sont du même ordre de grandeur que les biais (voir §4.2.3)
- à l'homogénéité du système de modélisation lors de ces périodes d'apprentissage (notamment l'homogénéité du forçage météorologique : changement de la microphysique par exemple ou des données assimilées)
- à la taille extrêmement réduite des sous-échantillons de journées fortement polluées (sauf sur quelques régions) impliquant un poids faible de ces journées dans la construction des modèles statistiques par cette méthodologie. Or, la prévision des cas fortement pollués est justement l'un des enjeux majeurs de la prévision de la qualité de l'air, d'où l'intérêt de tester d'autres méthodes mieux adaptées aux problèmes d'extrême (Besse et al. (soumis en juillet 2006)).

TEST DE SENSIBLITÉ : APPOINT DU PRÉDICTEUR "OZONE DÉTERMINISTE"

Le but de cette partie est d'évaluer le potentiel et l'apport spécifique du prédicteur "*ozone déterministe*" dans les modèles statistiques construits par la méthode utilisée ici (c'est à dire régression linéaire multiple). Toutefois, ce n'est pas une évaluation dans l'absolu de l'approche statistique utilisant la météorologie seule par rapport à l'approche mixte statistique/déterministe développée ici.

Pour la majorité des stations, l'ensemble des indicateurs présente des scores équivalents ou meilleurs en prenant en compte la prévision déterministe d'ozone : on note en effet à la fois de meilleurs scores pour la corrélation et l'EQM (les biais restant équivalents) mais aussi pour la variabilité et la FOM. Ceci permet de justifier le choix pris d'imposer ce prédicteur dans tous les cas.

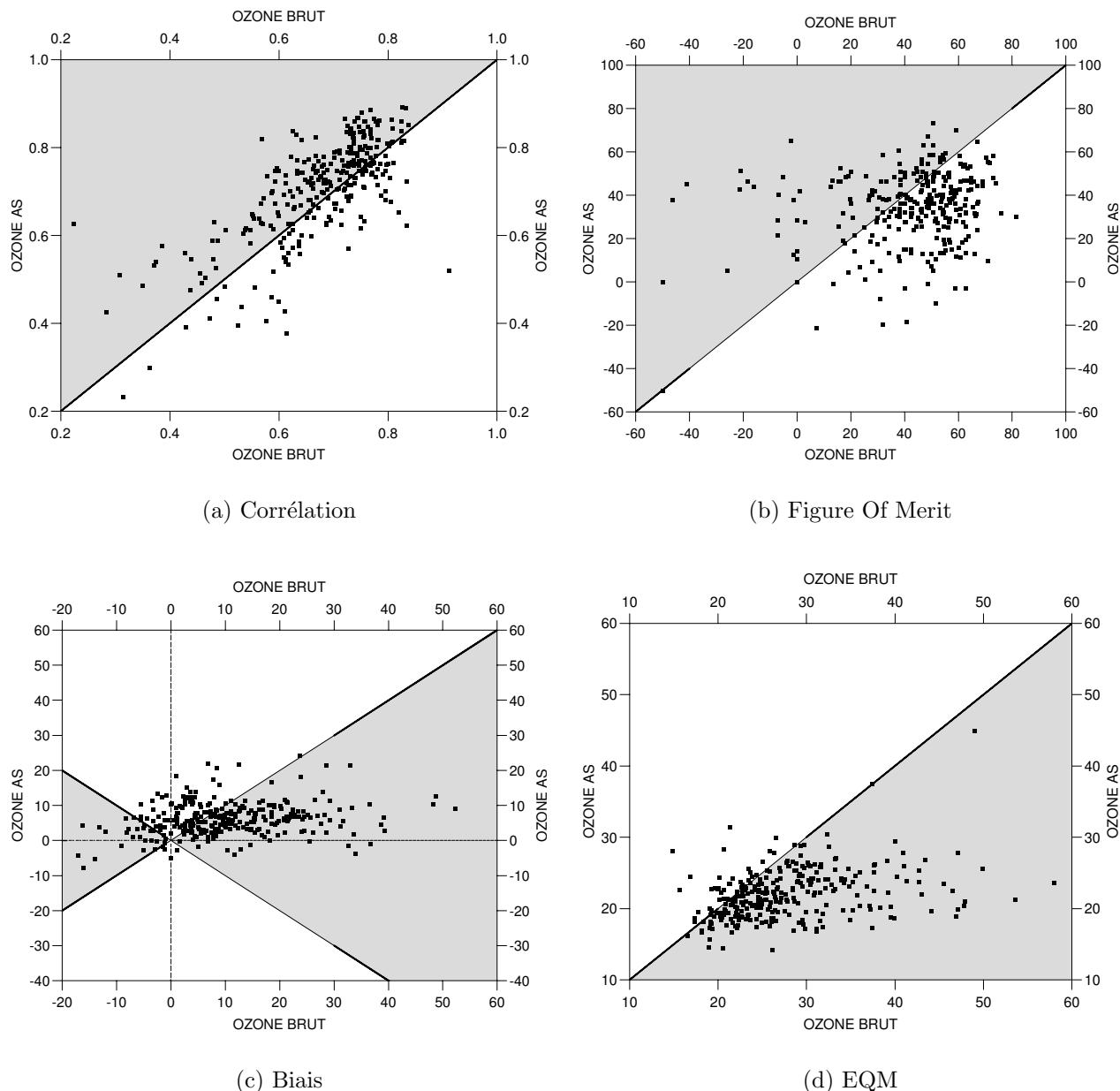


FIGURE 4.31 – Comparaison des scores : simulation brute versus adaptation statistique pour les séries des pics journaliers de concentration d'ozone. Chaque station est représentée par un carré. Les zones grisées correspondent à une meilleure performance de l'adaptation statistique. L'unité pour le biais et l'EQM est le $\mu\text{g.m}^{-3}$. Les indicateurs statistiques et les sigles sont définis dans l'annexe B.

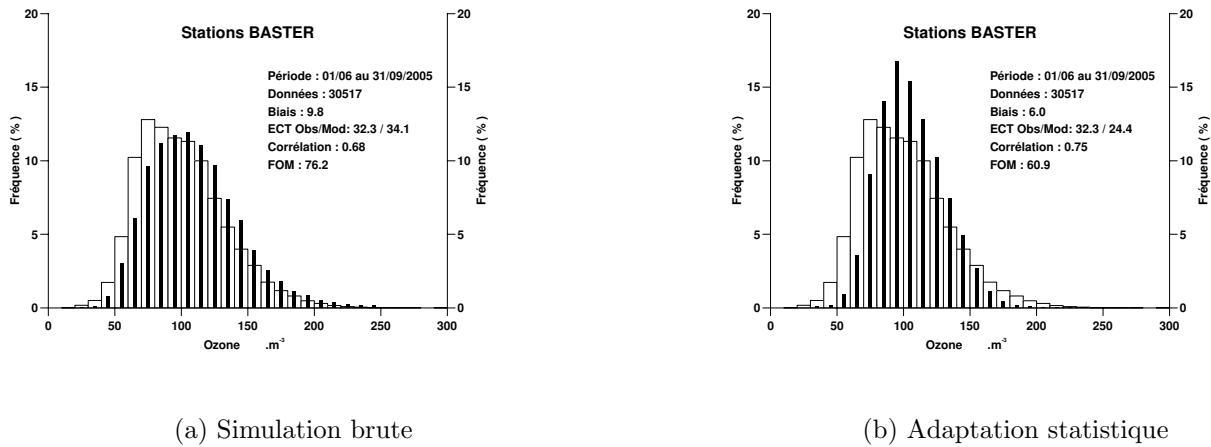


FIGURE 4.32 – Histogramme des pics journaliers de concentration d'ozone pour l'ensemble des stations : simulation brute (à gauche) et l'adaptation statistique (à droite). Les observations sont représentées en barres creuses. L'unité est le pourcentage avec une distribution par classe de $10 \mu\text{g.m}^{-3}$.

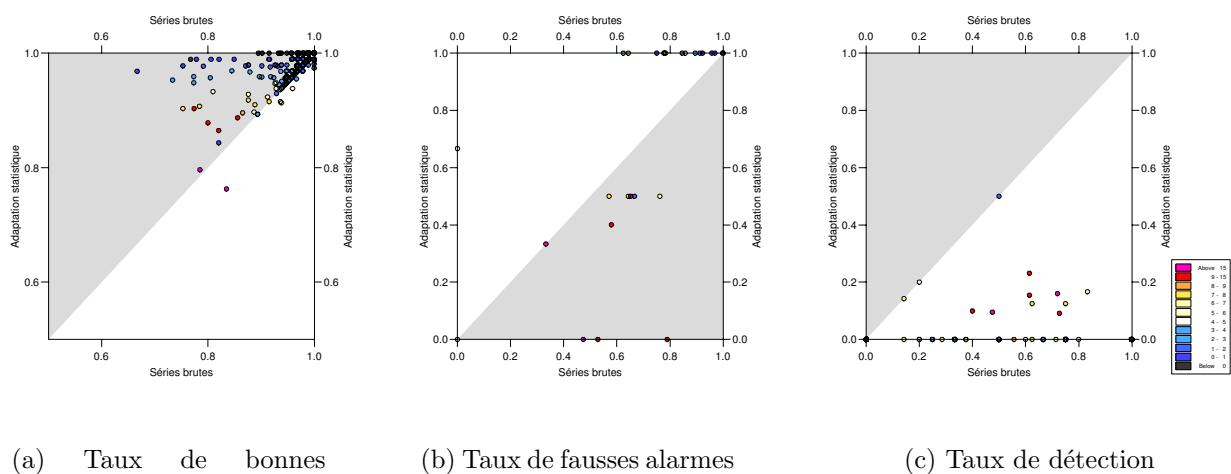


FIGURE 4.33 – Comparaison de scores relatifs au dépassement du seuil d'alerte d'ozone, simulation brute versus adaptation statistique. Chaque station est représentée par un cercle dont la couleur représente le nombre de jour de dépassement du seuil considéré. Les zones grisées correspondent à une meilleure performance de l'adaptation statistique.

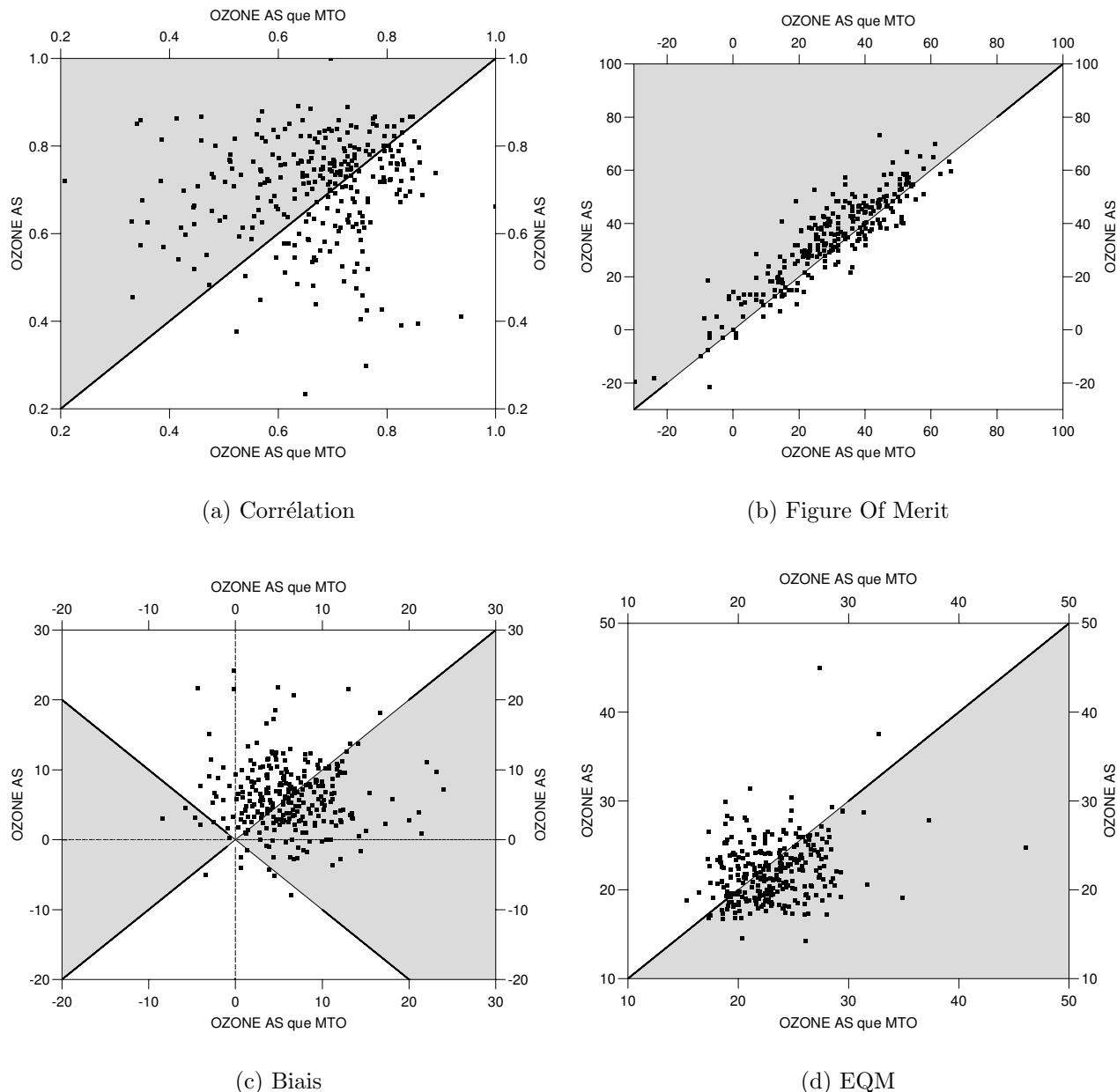


FIGURE 4.34 – Comparaison des scores pour les séries des pics journaliers de concentration d'ozone : adaptation statistique "classique" versus adaptation statistique en ôtant l'ozone prévu comme prédicteur potentiel (et donc, en ne gardant que les prédicteurs météorologiques ainsi que le type de jour) pour les séries des pics journaliers de concentration d'ozone. Chaque station est représentée par un carré. Les zones grisées correspondent à une meilleure performance de l'adaptation statistique "classique". L'unité pour le biais et l'EQM est le $\mu\text{g.m}^{-3}$. Les indicateurs statistiques et les sigles sont définis dans l'annexe B.

Chapitre 5

Production de cartes d'analyse de concentration d'ozone à l'aide d'une méthode d'Interpolation Optimale anisotrope

Sommaire

5.1	Position du problème	173
5.2	L'Interpolation Optimale (IO)	174
5.3	L'Interpolation Optimale anisotrope	175
5.3.1	La matrice de variance-covariance des erreurs d'ébauche B	176
5.3.2	La matrice de variance-covariance des erreurs d'observation R	180
5.3.3	Etape de débiaisage	181
5.4	Etude des corrélations spatiales	181
5.4.1	Corrélation spatiale des observations	181
5.4.2	Etude des cartes de corrélation de sortie de MOCAGE	186
5.5	Prise en compte de la typologie des sites	188
5.6	Discussion des cartes d'analyse	190
5.6.1	Cartes d'analyse a posteriori	190
5.6.2	Cartes de prévision	197
5.7	Conclusion	200

5.1 Position du problème

Depuis l'été 2001, le modèle MOCAGE effectue quotidiennement des prévisions horaires de qualité de l'air sur la France, l'Europe ainsi qu'à l'échelle planétaire. Les prévisions sont naturellement entachées d'un certain nombre d'erreurs : représentation simplifiée de certains processus à la fois dynamique et chimique ou erreur dans les forcages (émissions, météorologie). Les observations sont également entachées d'erreurs : intrinsèques à la mesure (voir figure 1.3), représentativité, ... Ces deux sources d'informations ont donc des sources d'erreur d'origines différentes et parfois du même ordre de grandeur. Aussi,

il est intéressant de construire des cartes d'analyse bidimensionnelles en combinant les sorties du modèle avec les observations in-situ disponibles afin de dresser un tableau plus fidèle des conditions de pollution photochimique rencontrées en surface. Le succès de cette combinaison repose sur la caractérisation de la covariance des erreurs de l'ébauche et des observations. Ces analyses pourront notamment être utilisées comme références pour des bilans de la qualité de l'air ou des climatologies.

Pour ce faire, nous avons appliqué une méthode classique en assimilation de données : l'Interpolation Optimale (IO). Partant du champ de concentration d'ozone fourni par le modèle (l'ébauche) et des observations en toutes les stations de mesure, l'IO donne le champ analysé qui minimise la variance d'erreur sur le domaine. La partie 5.2 détaille la méthode générale de l'Interpolation Optimale. La méthode d'Interpolation Optimale que nous utilisons est dite anisotrope car on suppose que la corrélation d'un point avec les autres ne dépend pas seulement de la distance mais aussi d'autres paramètres. Nous appliquons ici la méthode décrite dans Blond et al. (2003), d'après le travail initié par Peuch and Plu (2002). La méthode est exposée dans la partie 5.3, où nous détaillons les spécificités de cette méthode à laquelle nous avons apporté une légère modification. La partie 5.4 détaille l'étude des corrélations spatiales d'erreur entre les stations d'observation d'une part et les points de grilles d'autre part. Enfin, nous présentons les cartes d'analyse que nous avons obtenues et nous les discutons dans la partie 5.6. Il est enfin question d'amélioration des cartes de prévision en combinant l'analyse avec le résultat de l'adaptation statistique sur sites décrite au paragraphe 4.4.

5.2 L'Interpolation Optimale (IO)

Le but de l'IO est d'approcher au mieux un champ réel x^t en combinant à la fois des observations et les simulations d'un modèle connaissant les matrices de variance-covariance d'erreur d'ébauche et d'observation.

Soit l'ébauche x^b , qui est la sortie brute du modèle. Il s'agit d'un vecteur colonne de taille n . On note l'erreur de l'ébauche :

$$\zeta^b = x^b - x^t$$

Cette erreur doit être centrée ; ce n'est pas le cas en général (et dans notre cas en particulier), et il faut alors débiaiser cette ébauche. Cela impose de caractériser au préalable le biais du modèle, par exemple sur une période représentative de la période étudiée. On peut alors définir la matrice de variance-covariance des erreurs de l'ébauche :

$$B = E(\zeta^b \zeta^{bT})$$

Soit y^o le vecteur colonne des observations, de taille p , p étant le nombre de stations d'observation dans le domaine. Pour faire le lien entre les points d'observation et les points de grille, il faut définir la matrice H de taille (n, p) , appelée "opérateur d'observation". On note alors ϵ le vecteur des erreurs du modèle par rapport aux observations :

$$\epsilon = y^o - Hx^t$$

On suppose que les erreurs d'observation sont centrées (pas d'erreur systématique) et qu'elles sont décorrélées entre les stations. En effet, ce sont principalement des erreurs

de mesure et des erreurs de représentativité. Bien que les observations soient souvent faites avec les mêmes instruments (ce qui implique à priori les même défauts dans la mesure chimique) et soient établies à partir des mêmes procédures de calibration, nous supposerons les erreurs aux observations sans biais et décorrélées les unes des autres.

Soit R la matrice de variance-covariance des erreurs d'observation. Les hypothèses précédentes conduisent à ce que R soit diagonale.

$$R = E(\epsilon\epsilon^T)$$

Pour construire H , on décide simplement que l'observation à la station S_i se répercute au point de grille s le plus proche, évitant ainsi une interpolation spatiale, au détriment d'erreur de représentativité potentielle supplémentaire. Formellement :

$$H \begin{pmatrix} 0 \\ \vdots \\ 0 \\ 1_i \\ 0 \\ \vdots \\ 0 \end{pmatrix} = \begin{pmatrix} 0 \\ \vdots \\ 1_s \\ \vdots \\ 0 \end{pmatrix} \quad (5.1)$$

Ainsi, la matrice HH^T vaut l'identité par blocs ; elle est donc inversible.

Si plusieurs stations ont le même point de grille le plus proche, ce qui est le cas dans certaines agglomérations, la station du type le plus "représentatif" est conservée : les stations rurales priment donc sur les stations péri-urbaines, qui elles, priment sur les stations urbaines, industrielles ou d'observation spécifique. Cette hypothèse comporte forcément un risque d'erreurs : en effet, la résolution horizontale du modèle étant d'une dizaine de kilomètres, pour certaines mailles proches des grandes agglomérations, les stations rurales peuvent être les moins représentatives. Toutefois, l'objectif est la cartographie à l'échelle nationale, ce qui motive ce choix.

Les matrices B et R sont définies par l'utilisateur. Le choix de leur construction influe directement sur les résultats de l'interpolation, comme nous le détaillons dans la partie suivante.

La formule de l'IO donne alors le champ analysé optimal :

$$x^a = x^b + BH^T[HBH^T + R]^{-1}(y^o - Hx^b) \quad (5.2)$$

On voit que cette opération consiste à ajouter à l'ébauche une combinaison linéaire des composantes du vecteur $y^o - Hx^b$, appelé *vecteur innovation*. A chaque point d'observation apparaît une innovation qui va corriger l'ébauche.

5.3 L'Interpolation Optimale anisotrope

Tout le travail à présent consiste à construire les matrices de variance-covariance d'erreur B et R . La période d'apprentissage couvre les mois de juin et juillet de l'année 2002, le mois d'août 2003 ainsi que les mois de mai et juin 2005. Cet échantillon permet en effet une représentativité à la fois de périodes peu, assez et extrêmement polluées (voir le

paragraphe 4.2.3 sur la variabilité intermensuelle et interannuelle). Les statistiques sont calculées sur toute la durée de la période d'apprentissage ; la méthode est testée à la fois sur cette même période mais également sur une période indépendante couvrant juillet, août et septembre 2005. Les matrices de variance-covariance sont définies pour chaque heure de la journée, car elles sont sujettes à de fortes variations diurnes.

La figure 5.1 schématisse les différentes étapes et hypothèses de la construction des matrices qui sont détaillées dans les paragraphes suivants (de 5.3.1 à 5.3.3) .

5.3.1 La matrice de variance-covariance des erreurs d'ébauche B

La matrice B de variance-covariance d'erreur de l'ébauche se construit en deux étapes. Dans un premier temps, on calcule les corrélations entre les points de grille de l'ébauche. Dans un deuxième temps, on calcule la variance d'erreur de l'ébauche à chaque point de grille. La covariance d'erreur entre les deux points de grille découle de la formule définissant la corrélation entre les points de grille i et j :

$$\text{corr}(\zeta_i, \zeta_j) = \text{corr}(x_i^b - x_i^t, x_j^b - x_j^t) = \frac{\text{cov}(x_i^b - x_i^t, x_j^b - x_j^t)}{\sqrt{\text{var}(x_i^b - x_i^t) \cdot \text{var}(x_j^b - x_j^t)}}$$

On n'a évidemment pas accès à l'état réel x^t du champ d'ozone. L'erreur de l'ébauche est donc calculée par rapport aux observations, ce qui suppose que les erreurs d'observation sont faibles devant les erreurs de l'ébauche. En outre, il n'y a pas d'observation en tout point de grille. Il faut donc opérer des régressions entre les différents paramètres (corrélation, biais, variance etc) de l'ensemble des stations pour interpoler ces paramètres à tous les points de grille.

Correlation des innovations.

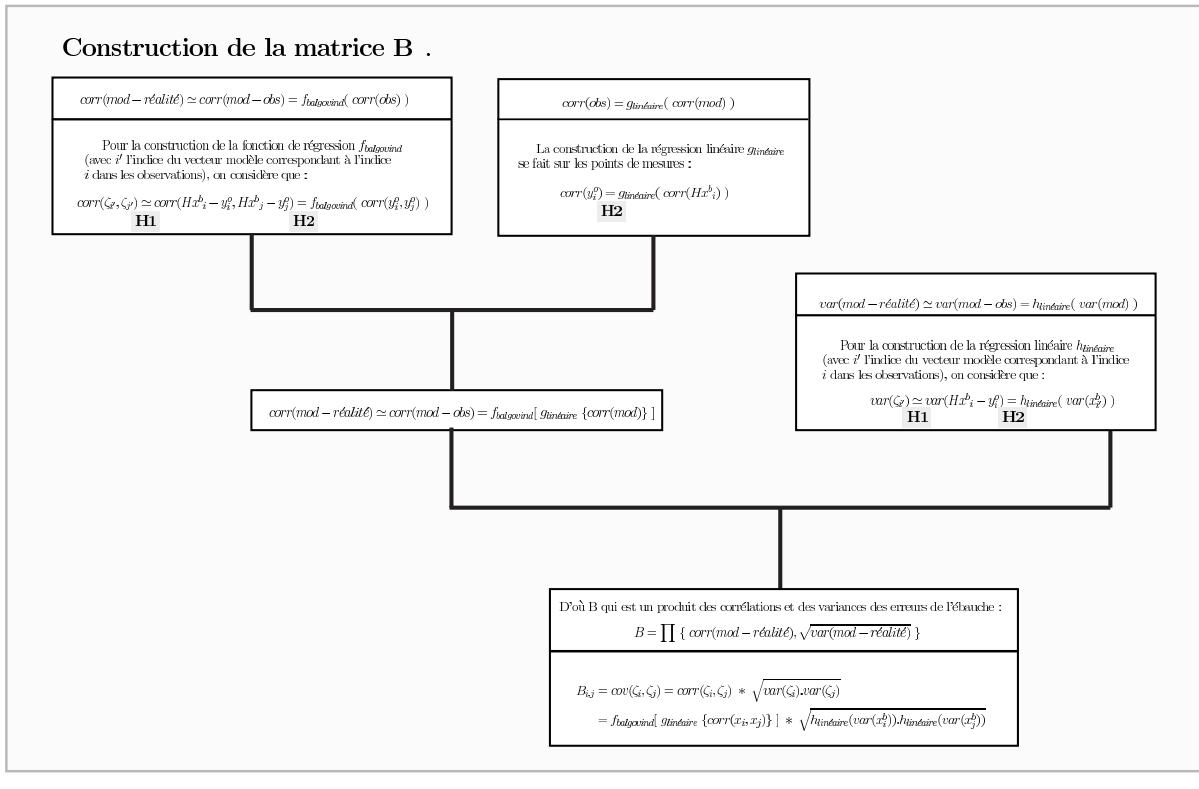
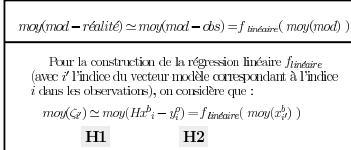
L'originalité de la méthode anisotrope de Blond et al. (2003) consiste à supposer que la corrélation d'erreur de l'ébauche entre deux stations dépend de leur corrélation en concentration d'ozone et non pas uniquement de la distance qui les sépare comme dans la méthode isotrope, couramment employée pour d'autres applications. Cela permet de prendre en compte le fait que certains couples de stations ont tendance à appartenir à la même masse d'air pour laquelle les erreurs du modèle sont donc similaires.

On effectue une régression exponentielle entre la corrélation des innovations et la corrélation d'ozone observée (voir figure 5.2, à gauche) sur l'ensemble des couples de stations pour lesquelles il y a suffisamment de données. Pour ce faire, on utilise la fonction de corrélation de Balgovind (Balgovind et al. (1983)) :

$$f(h) = f(0)(1 + \frac{h}{L})\exp(-\frac{h}{L})$$

avec pour coefficients de la régression le terme à l'origine, $f(0)$ et L , appelé longueur de corrélation.

De plus, pour obtenir une estimation de "la corrélation d'ozone observée" en tout point de grille, on opère une régression linéaire entre la corrélation d'ozone observé et la corrélation d'ozone prévu par MOCAGE (voir 5.2, à droite).

**Débiaisage des erreurs de l'ébauche .****Construction de la matrice R .**

r est défini comme l'ordonnée à l'origine de $h_{linéaire}$ **H3**

$$\begin{aligned}
 R &= (1 - r) * variance_{totale} \\
 R_{i,j} &= (1 - r) * corr(\zeta_i, \zeta_j) * \sqrt{var(\zeta_i)var(\zeta_j)} \\
 &= f_{holocore}[g_{linéaire} \{corr(x_i, x_j)\}] * \sqrt{h_{linéaire}(var(x_i^b))h_{linéaire}(var(x_j^b))}
 \end{aligned}$$

HYPOTHESES:

H1 : les erreurs d'observations sont négligeables par rapport à l'erreur de l'ébauche cad $\epsilon \ll H\zeta^b$

H2 : régression considérée valable sur l'ensemble des stations (sans distinction liée e.g. à la typologie, l'altitude ou la localisation)

H3 : indépendance des erreurs d'observation et d'ébauche

FIGURE 5.1 – Représentation schématique des différentes étapes de construction des matrices nécessaires à l'Interpolation Optimale : matrice de variance-covariance des erreurs d'ébauche B , d'observation R , ainsi que le débiaisage des erreurs d'ébauche.

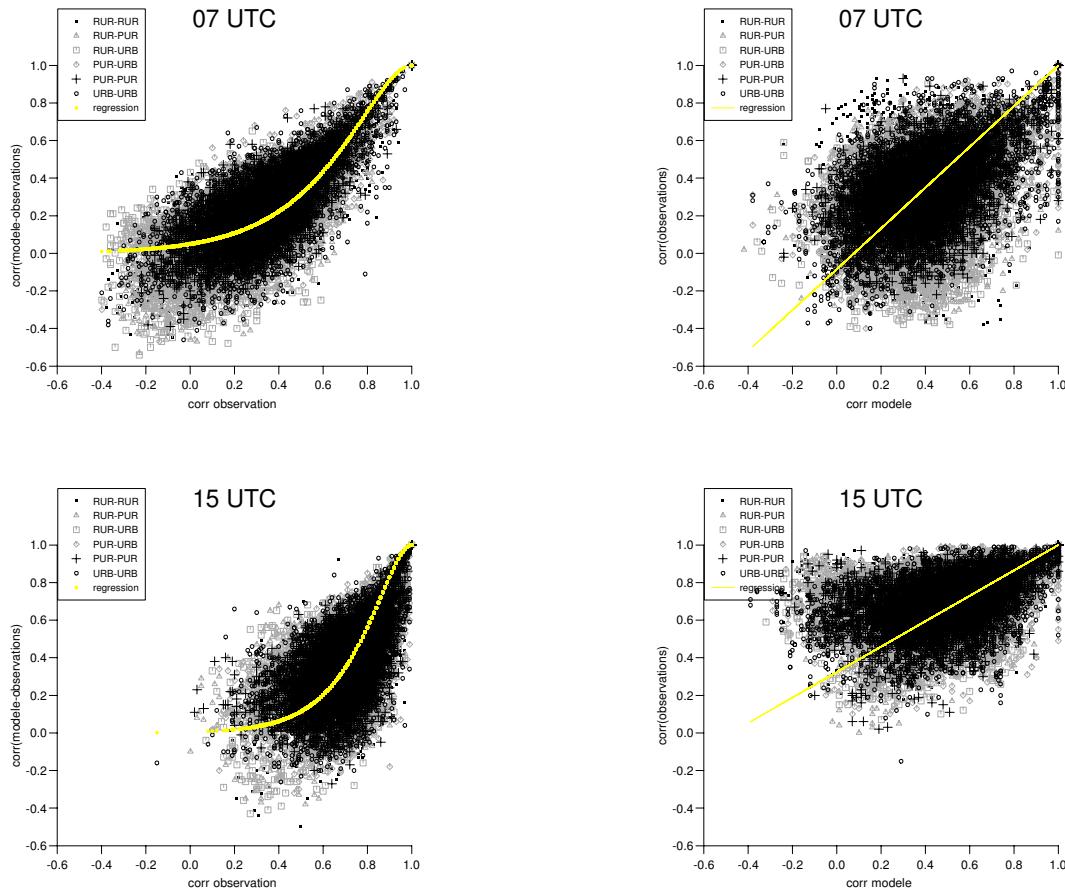


FIGURE 5.2 – A gauche, corrélation d'erreur d'ozone en fonction de la corrélation d'ozone observée entre couples de stations et régression par une fonction de Balgovind (fonction $f_{\text{balgovind}}$ du schéma de la figure 5.1). A droite, corrélation d'ozone observée en fonction de la corrélation d'ozone prévue entre couples de stations et régression linéaire (fonction $g_{\text{linéaire}}$ du schéma de la figure 5.1). En haut à 07 HTU et en bas à 15 HTU.

On obtient ainsi la corrélation d'erreur de l'ébauche en tout point de grille. Nous verrons plus loin que cette corrélation anisotrope sera multipliée par un facteur d'atténuation dépendant de la distance pour éviter certains effets à grande distance.

Variance des innovations.

La variance d'erreur de l'ébauche est différente à chaque point de grille. Elle est obtenue par une régression, effectuée sur toutes les stations de mesure, entre la variance d'erreur totale et la variance du modèle (voir la figure 5.3, à gauche). Cette variance d'erreur totale est la somme de la variance d'erreur de l'ébauche et d'erreur des observations. On pose r le rapport de la variance d'erreur de l'ébauche sur la variance d'erreur totale en un point i :

$$r_i = \frac{Var(\zeta_i^b)}{Var(\epsilon_i + \zeta_i^b)} \text{ et finalement } = \frac{Var(\zeta_i^b)}{Var(\epsilon_i) + var(\zeta_i^b)}$$

car on considère que les erreurs d'observation et d'ébauche sont indépendantes.

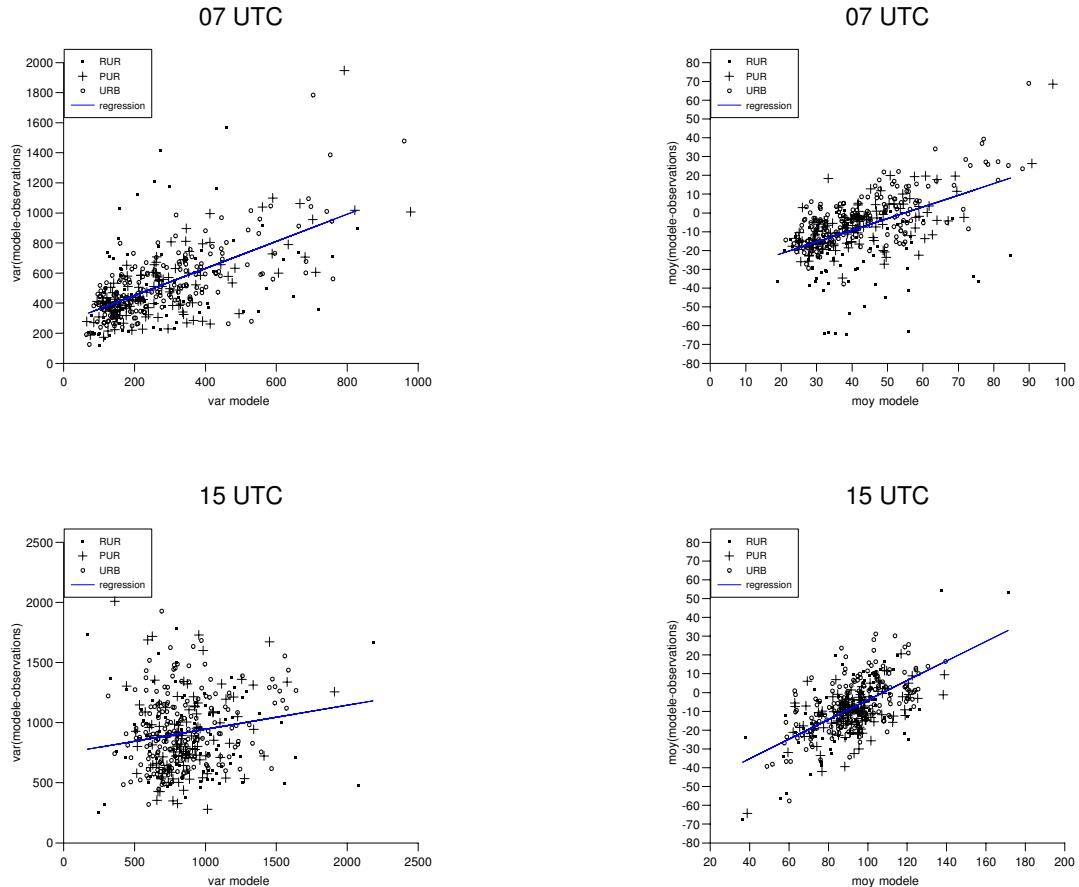


FIGURE 5.3 – A gauche, variance d'erreur d'ozone en fonction de la variance d'ozone observée en chaque station et régression linéaire (fonction $h_{linéaire}$ du schéma de la figure 5.1). A droite, biais du modèle sur les concentrations d'ozone fonction de la moyenne du modèle en chaque station et régression linéaire (fonction $f_{linéaire}$ du schéma de la figure 5.1). En haut à 07 HTU et en bas à 15 HTU.

r est un paramètre ajustable de la méthode d'analyse et on l'impose identique en tout point de grille en moyennant cette valeur sur l'ensemble des stations.

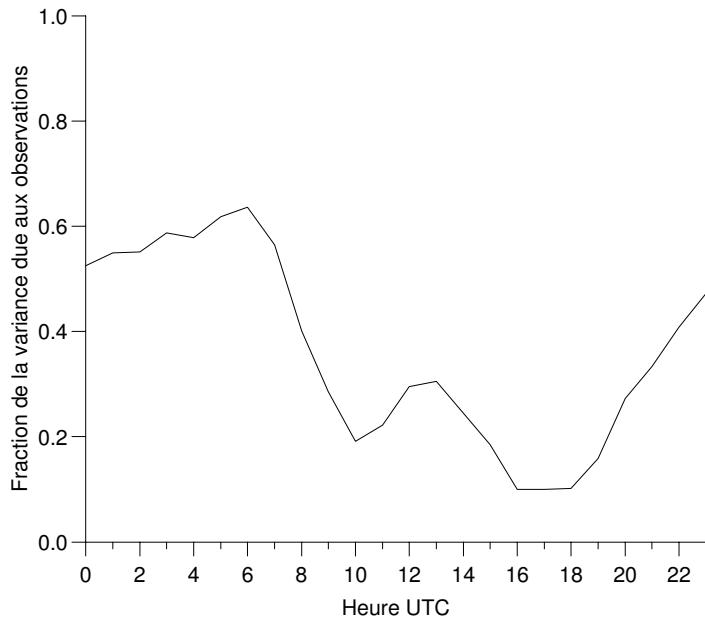


FIGURE 5.4 – Evolution temporelle du rapport de la variance d'erreur de l'ébauche sur la variance d'erreur totale.

On prend comme variance des observations la valeur à l'origine de la régression des variances des innovations par les variances modèles en utilisant l'hypothèse selon laquelle les erreurs d'observations et d'ébauche sont indépendantes. Aussi, on a sur les sites d'observations la relation :

$$\text{Var}(Hx^b - y^o) = \text{Var}((Hx^b - Hx^t) - (y^o - Hx^t)) = \text{Var}((\zeta^b) - (\epsilon)) = \text{Var}(\zeta^b) + \text{Var}(\epsilon)$$

La valeur à l'origine est alors une estimation de $\text{Var}(\epsilon)$.

Ce coefficient varie selon l'heure de la journée (figure 5.4) pour être minimal en fin d'après-midi, cad aux environs du maximum journalier : le modèle y a une marge d'erreur beaucoup plus importante que la nuit par exemple, ce qui explique que la part donnée aux observations à ces échéances-là est plus importante. Il est intéressant également de noter le minimum relatif de 8 heures à 11 heures : physiquement, on peut le relier à la fois au pic matinal d'émissions mais également au démarrage de la photochimie, qui sont deux éléments sensibles du système de modélisation.

5.3.2 La matrice de variance-covariance des erreurs d'observation R

R est diagonale, puisque les erreurs d'observation sont supposées décorrélées entre elles. La variance d'erreur d'observation en un point i est obtenue à partir de la variance d'erreur

totale et du rapport r , défini dans le paragraphe précédent. Par indépendance des erreurs d'observation et d'ébauche, $Var(\epsilon_i + \zeta_i^b) = Var(\zeta_i^b) + Var(\epsilon_i)$, d'où

$$Var(\epsilon_i) = (1 - r)Var(\epsilon_i + \zeta_i^b)$$

5.3.3 Etape de débiaisage

Les observations sont supposées sans biais. En revanche, il faut débiaiser l'ébauche avant le calcul. Pour calculer le biais de l'ébauche, on effectue une régression linéaire entre le biais du modèle et la moyenne des sorties de modèle en chaque station. Voir la figure 5.3, à droite.

Il s'agit de l'étape pour laquelle une classification des points de grille en fonction de leur typologie se fait le plus ressentir. Une étude de sensibilité des résultats de la méthode à ce raffinement supplémentaire est présentée au paragraphe 5.5.

5.4 Etude des corrélations spatiales

5.4.1 Corrélation spatiale des observations

Afin de construire les matrices de corrélation spatiale nécessaires à l'interpolation optimale, les corrélations spatiales des stations d'observation entre elles sont étudiées, notamment pour déterminer à quelle distance les concentrations d'ozone observées sont corrélées significativement.

Pour chaque station, un graphe de corrélation spatiale donne la corrélation des observations en fonction de la distance entre les deux stations. Les corrélations sont calculées sur toute la période d'étude, à toute heure de la journée.

Les graphes de corrélation diffèrent d'une station à l'autre, et d'une heure à l'autre. Cependant, des comportements similaires apparaissent : vis à vis de la typologie pour les heures matinales et vis à vis des régions géographiques pour l'après-midi. Quelques stations sortent du lot soit par la typicité de leurs caractéristiques soit par leur indépendance des autres stations. C'est notamment le cas des stations d'altitude.

Voici un aperçu des graphes de corrélation représentatifs de l'ensemble des stations pour le matin (à 07 UTC) ainsi que pour l'après-midi (à 15 UTC). Pour cela, nous avons sélectionné 7 stations : 2 de chaque type plus une station d'altitude (voir figures 5.5, 5.6 et 5.7), de régions plus ou moins densément équipées en capteurs et surtout plus ou moins hétérogènes (en termes de comportement des champs d'ozone à l'échelle locale, de météorologie, d'émissions) :

- 2 stations rurales : Saint-Rémy-de-Provence dans les Bouches-du-Rhône, région caractérisée par de fortes émissions et une orographie très particulière (delta du Rhône) et la forêt de Chizé dans les Deux-Sèvres, relativement proche de la façade atlantique, sans relief ou émissions particulières
- 1 station rurale d'altitude : Iraty située dans les Pyrénées Atlantiques près du littoral, à 1400 m d'altitude
- 2 stations péri-urbaines : Genevilliers en région parisienne, zone de fortes émissions à l'orographie plutôt simple et disposant d'un des réseaux les plus denses du territoire national, et Coubertin, à Saint-Etienne dans la Loire, proche de la vallée du Rhône.
- 2 stations urbaines : Le Pontet dans les Bouches du Rhône ainsi que Cachan en région parisienne. Les différentes couleurs représentent le type de la station considérée : vert pour

rural, gris pour péri-urbain et noir pour urbain, le bleu désignant les stations au type non référencé.

07 heures, titration et effets locaux

Tout d'abord, notons que les nuages de points à 7 heures sont plus dispersés que ceux de 15 heures et ce, quelle que soit la station considérée.

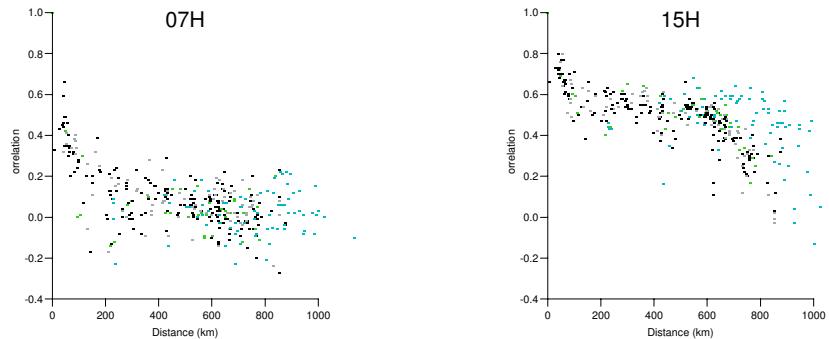
Le second constat concerne le fait que, d'une manière générale, les stations rurales sont très mal corrélées avec les stations urbaines et péri-urbaines, même lorsqu'elles sont relativement proches. En effet, les phénomènes pilotant les concentrations d'ozone à cette heure matinale sont différents selon la typologie puisque la photochimie n'a pas encore démarré et que l'on se situe dans le pic matinal des émissions. Pour les stations éloignées des sources d'émissions, l'advection prime alors que plus près des villes, la titration par ces mêmes émissions est le processus principal. Ceci est exacerbé lorsque la station est une station d'altitude : la couche limite n'étant pas encore développée, le capteur échantillonne la troposphère libre pilotée quasi-exclusivement par les phénomènes synoptiques. Ainsi, la station d'Iraty n'est corrélée de façon très nette qu'avec la station rurale du sommet du Puy de Dôme en Auvergne (seule corrélation supérieure à 0,6 en bas à gauche sur la figure 5.5).

Il faut noter à ce stade, hormis ces cas particuliers, que les corrélations à très longue distance (typiquement >500 km) pour des sites de surface ne sont en général qu'accidentelles. En effet, pour la raison que les mêmes causes produisent les mêmes effets, il peut y avoir développement simultané de pic de pollution à l'ozone (si des conditions anticycloniques et bien ensoleillées prévalent sur tout le pays, par exemple) mais sans lien réel entre des sites éloignés. Ce n'est que si deux stations appartiennent à la même masse d'air continentale ou régionale qu'il est souhaitable d'utiliser les corrélations entre elles. Aussi, le troisième constat concerne la "distance de coupure", cad la distance au-delà de laquelle les corrélations sont considérées, soit trop faibles, soit fortuites. Cette distance de coupure dépend fortement de la région considérée, et ce, indifféremment du type de la station : par exemple, pour la région parisienne le nuage reste compact jusqu'à 300-400 kilomètres, alors qu'au delà d'une centaine de kilomètres, le nuage des stations des Bouches-du-Rhône devient bien trop diffus. Cela illustre l'importance des effets locaux dans l'explication des corrélations de concentration d'ozone, que ce soit les sources d'émissions ou les caractéristiques géographiques, et l'intérêt de couper les corrélations au-delà d'une certaine distance.

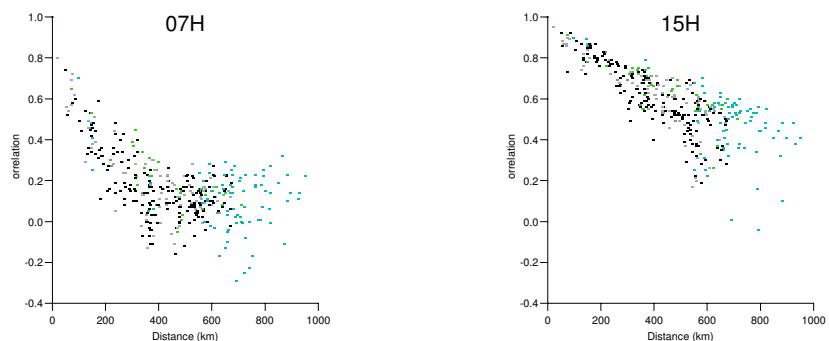
14 heures, panaches et situation régionale

A 14 heures, la corrélation entre les stations est plus forte et beaucoup moins sensible à la typologie des stations. En effet, à cette heure là, d'une part les flux émissions sont relativement plus faibles et d'autre part les concentrations d'ozone sont pilotées par la photochimie et les panaches sont déjà formés. Or, leur taille caractéristique sur l'horizontale est de l'ordre de la cinquantaine de kilomètres c'est à dire à une échelle beaucoup plus large que la taille caractéristique des émissions de polluants primaires qui pilotait les différences à 7 heures.

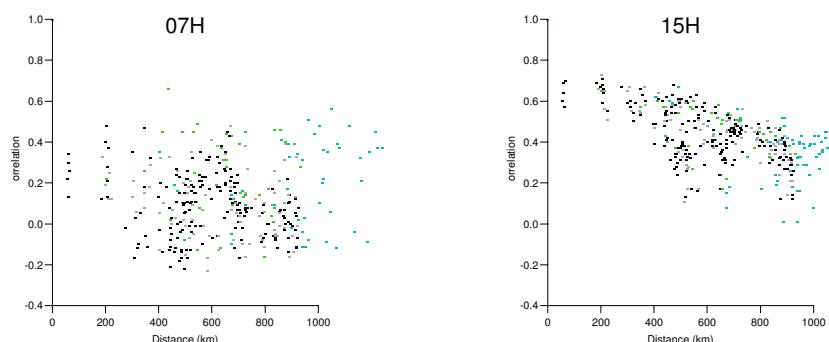
On retrouve néanmoins la notion de "distance de coupure" dépendant de la région : plus



(a) Saint-Rémy-de-Provence (13)

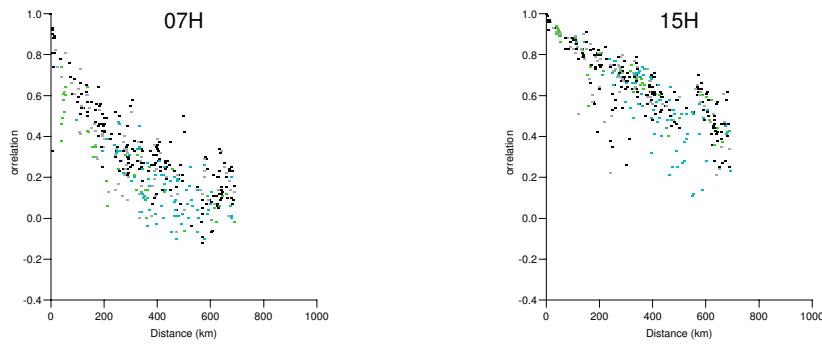


(b) Chize (79)

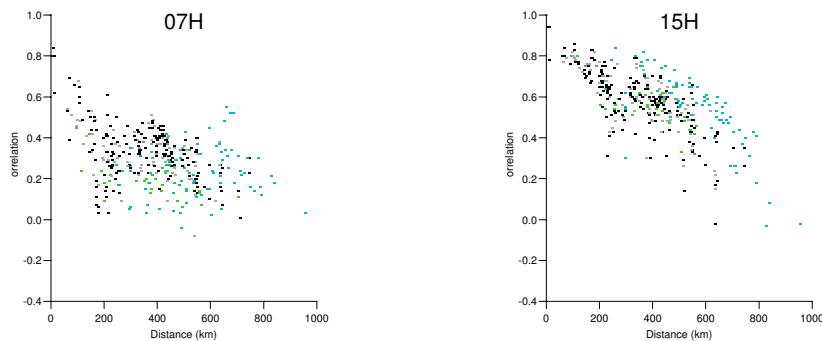


(c) Iraty (64)

FIGURE 5.5 – Graphes de corrélation spatiale à 07 heures UTC de la série temporelle d’observation d’ozone en 3 stations rurales avec les autres stations prises en compte dans cette étude. Le nom de la station est suivi du numéro du département dans lequel elle se situe.

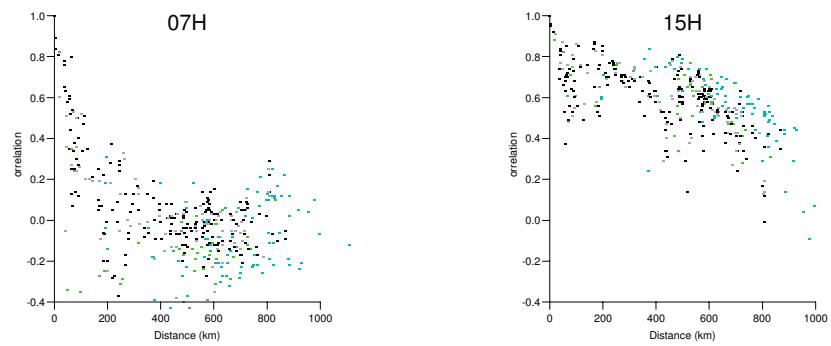


(a) Genevilliers (92)

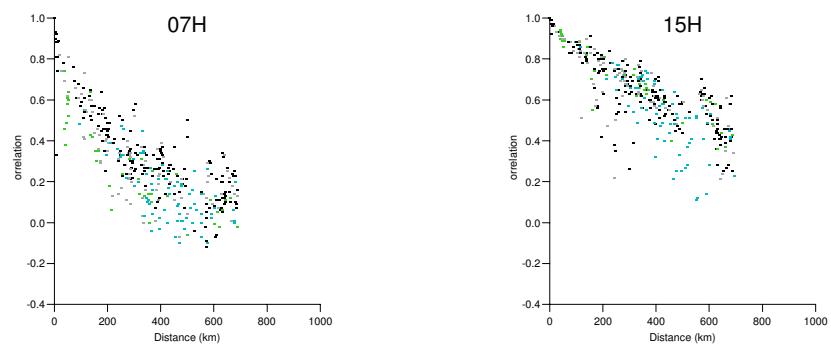


(b) Coubertin (42)

FIGURE 5.6 – Graphes de corrélation spatiale à 07 heures UTC de la série temporelle d'observation d'ozone en 2 stations péri-urbaines avec les autres stations prises en compte dans cette étude. Le nom de la station est suivi du numéro du département dans lequel elle se situe.



(a) Le Pontet (84)



(b) Cachan (92)

FIGURE 5.7 – Graphes de corrélation spatiale à 07 heures UTC de la série temporelle d'observation d'ozone en 2 stations urbaines avec les autres stations prises en compte dans cette étude. Le nom de la station est suivi du numéro du département dans lequel elle se situe.

l'environnement de la station et de sa région est homogène et plus cette distance est grande (comme en région parisienne ou en Bretagne) et inversement, plus celui-ci est particulier, plus elle est petite. C'est le cas pour Le Pontet et Saint-Rémy-de-Provence dans les Bouches-du-Rhône par exemple où une régression est possible, mais pas au-delà d'une centaine de kilomètres, dû à la fois au cadastre d'émissions mais également aux barrières physiques des différents massifs encerclant et enclavant la région PACA ; pour la station de Saint-Etienne, les stations les plus proches sont situées soit en vallée du Rhône soit en Auvergne, donc, à priori, représentatives de deux masses d'air complètement différentes, d'où l'aspect très diffus du nuage de points.

5.4.2 Etude des cartes de corrélation de sortie de MOCAGE

Une étape préliminaire à l'obtention de la matrice de variance-covariance d'erreur de l'ébauche est le calcul des corrélations d'erreur d'ébauche entre les points de grille.

Des cartes ont été établies afin de décrire la corrélation d'un point avec tous les autres points de grille. Elles permettent de rendre compte de l'anisotropie des corrélations, à la base de cette méthode particulière de l'Interpolation Optimale.

Des exemples sont présentés sur la figure 5.8 pour trois points représentatifs situés en vallée du Rhône, en Bourgogne et en Bretagne. La corrélation est logiquement forte autour du point d'étude et décroît avec la distance quel que soit le site considéré. Par contre, la vitesse de cette décroissance est différente selon le point d'étude, mais également selon l'heure considérée. Ces cartes illustrent en outre l'aspect "directionnel" des corrélations.

Dans le cas de Valence, la zone de corrélation forte est oblongue, dirigée dans l'axe de la vallée du Rhône. Dans le cas du point en Bourgogne, la vallée de la Saône et le Jura (situé au Sud-Est du point) délimitent les corrélations importantes. Pour le point breton, les corrélations fortes sont dirigées davantage vers l'Ouest que vers l'Est : les vents dominants venant de l'Ouest, ce point est en effet rarement touché par les panaches continentaux et est davantage piloté par les flux d'ozone venant de l'Atlantique. De même, selon les points étudiés, le pilotage des concentrations soit par titration locale soit par advection façonne la carte des corrélations. Ainsi, les corrélations à 7 heures sont plus faibles qu'à 14 heures de façon globale sur la France pour les 3 points étudiés, et de façon plus marqué pour Valence (émissions et canalisation dans la vallée du Rhône).

Ces trois exemples illustrent le fait que cette méthode permet de construire des cartes de corrélations cohérentes avec le transport des masses d'air dans le modèle et le relief ; elle conduit donc sans doute à des résultats plus réalistes qu'une méthode isotrope, relativement arbitraire.

On trouve aussi des régions éloignées qui restent corrélées de façon non négligeable. Par exemple, le point breton demeure corrélé avec la Grande-Bretagne et même le Golfe de Gascogne à 14 heures. En effet, la situation à l'échelle synoptique est souvent pilotée par les phénomènes venant de l'Atlantique (en provenance du domaine continental de MOCAGE) et influe sur les concentrations d'ozone. Autre exemple : Valence est corrélée avec le Sud-Ouest de Paris. Ceci est dû au fait que la formation d'ozone est similaire à Paris et dans la vallée du Rhône quand les conditions atmosphériques sont identiques. Il s'agit donc plus d'une corrélation "accidentelle", qui comme discuté précédemment provient du fait que les mêmes causes produisent les mêmes effets.

On retrouve ici l'idée émise lors de l'étude des graphes de corrélations : il faudrait atténuer les corrélations au-delà d'une certaine distance. Nous l'avons fait en multipliant les corrélations par une fonction G gaussienne qui dépend uniquement de la distance. La

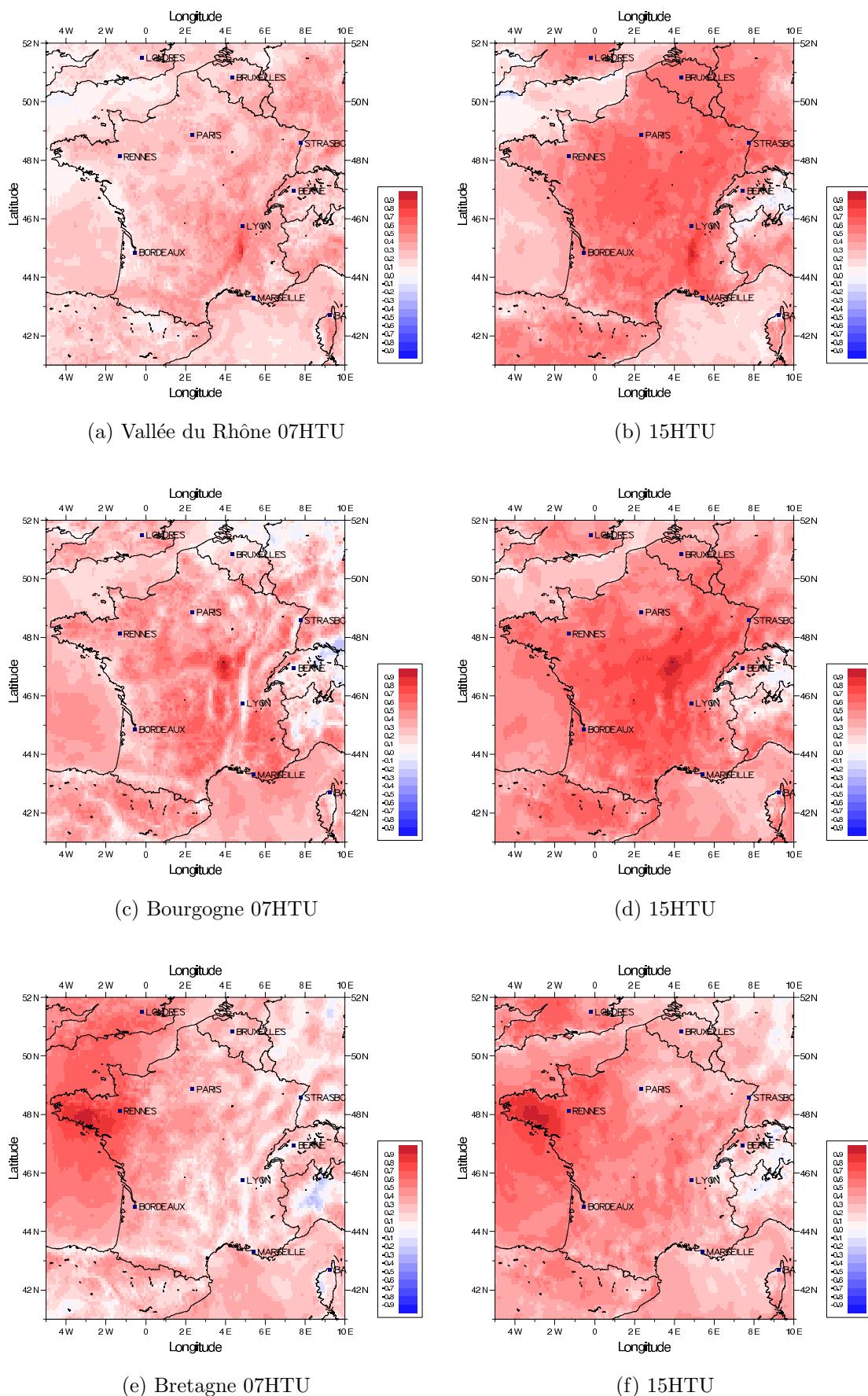


FIGURE 5.8 – Cartes de corrélation de l'erreur de l'ébauche pour différents points à 07 heures TU à gauche et 14 heures TU à droite.

structure gaussienne, continue et dérivable, n'introduit pas d'effet de seuil. La portée de la gaussienne a été choisie empiriquement de telle façon que $G(400 \text{ km}) = 0,01$. Les résultats des corrélations corrigées sont présentés sur les figures 5.9.

Le choix de la coupure est un compromis entre les corrélations à longue distance que l'on voulait supprimer, telle Valence-Paris, et celles que l'on veut conserver, entre sites d'altitude notamment (cf §5.4.1). Elle découle aussi des graphes de corrélations vus précédemment. Il aurait été sans doute intéressant de différencier la coupure en fonction de l'heure d'une part (cette distance est beaucoup plus grande lorsque la photochimie est activée et les panaches formés) et du point d'étude d'autre part (par exemple, pour 15 heures, la station de Cadarache n'est corrélée qu'avec les stations proches de moins de 100 km alors que Chizé est corrélée jusqu'à 400 km). Cependant, cette différenciation devrait être effectuée sur tous les points de grille ; elle paraît donc difficile, et de toute façon empirique et arbitraire. Nous n'avons pas fait ce choix. Cette "coupure" engendre aussi une perte d'information, comme par exemple la corrélation d'échelle synoptique Iraty-Puy de Dôme, ou la corrélation de l'Ouest de l'Angleterre avec le Golfe de Gascogne. On peut supposer que ces pertes sont toutefois faibles au bilan et compensées par la densité du réseau.

5.5 Prise en compte de la typologie des sites dans la construction des matrices

Les résultats présentés aux chapitres précédents illustrent l'hétérogénéité du champ d'ozone en surface, à la fois dans les observations et dans les simulations.

Or, une des sources de cette hétérogénéité est directement reliée aux zones de fortes émissions d'oxydes d'azote. L'idée est donc de s'appuyer sur la typologie des stations pour affiner l'assimilation des observations en incluant les spécificités liées à chacun des types à différentes étapes de la méthode : d'une part pour la construction même des régressions intervenant dans les matrices **B** et **R** mais également pour définir la distance de coupure au-delà de laquelle on coupe les interactions entre sites.

Si l'on reprend la représentation schématique de la figure 5.1, cela correspond à l'hypothèse notée **H2**, qui intervient à la fois dans :

- le débiaisage des erreurs de l'ébauche pour la construction de la régression linéaire entre biais d'ozone en fonction de la moyenne simulée, fonction notée $f_{linéaire}$ (voir le nuage de point figure 5.3 à droite, où les différents types de stations sont représentés)
- la construction de la matrice **B** à trois reprises :
 - pour la construction de la fonction de régression de la corrélation d'ozone observé entre couples de station en fonction de la corrélation d'ozone prévue, fonction notée $g_{linéaire}$ (voir figure 5.2 à droite)
 - pour la construction de la régression entre corrélation d'erreur d'ozone et corrélation d'ozone observée (fonction notée $f_{balgovind}$) (voir figure 5.2 à gauche)
 - pour la fonction de régression entre variance d'erreur d'ozone et variance d'ozone observée (fonction notée $h_{linéaire}$) (voir figure 5.3 à gauche)

L'attribution du type à chacun des points de grille s'appuie sur la carte des émissions d'oxydes d'azote utilisée par le modèle dans sa configuration qualité de l'air (cad inventaire EMEP respatialisé d'après la proportion d'urbanisation d'ALADIN). Elle est basée sur un simple critère de seuils établis sur le réseau des AASQA. Il a été choisi de ne conserver que 3 types : rural, péri-urbain et urbain (qui englobe donc les dénominations "urbain",

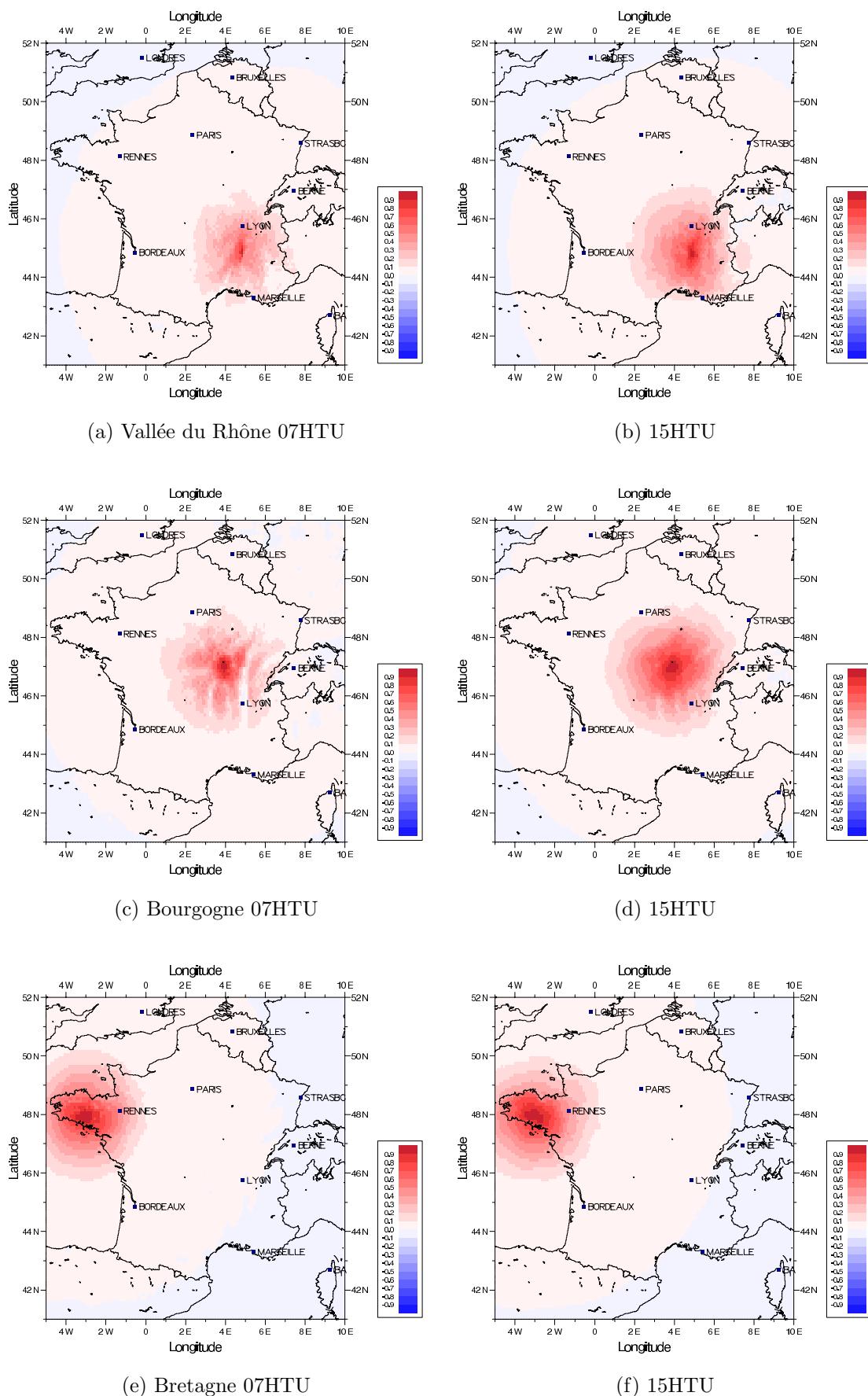


FIGURE 5.9 – Cartes de corrélation de l'erreur de l'ébauche atténuée par une fonction gaussienne décroissante fonction de la distance pour différents points à 07 heures TU à gauche et 14 heures TU à droite.

”trafic”, ”industriel” et ”observation spécifique”).

La matrice des biais était obtenue en effectuant une régression entre biais et moyenne du modèle sur l'ensemble des stations. Une régression spécifique est maintenant effectuée pour chacun des 3 types. En effet, en zone urbaine, la moyenne générale des maxima journaliers (resp. des séries horaires) est inférieure d'environ $7 \mu\text{g.m}^{-3}$ (resp. $12 \mu\text{g.m}^{-3}$) à celle des sites ruraux (cf tableau 5.1).

	Rural	Péri-urbain	Urbain
Séries horaires	74	64	62
Séries des pics	105	101	98
Aire de représentativité	25 (rurale régionale) à 50 km (rurale nationale)	Aire urbaine sur laquelle est la station	Unité urbaine
Distance d'extinction (1/100 ^{ème})	400	200	50

TABLEAU 5.1 – *Moyennes observées des concentrations d'ozone en $\mu\text{g.m}^{-3}$ calculées sur la période du 1er juin au 31 septembre 2005 pour l'ensemble des stations classées selon leur typologie ainsi que la moyenne des rayons d'action et la distance pour laquelle la gaussienne atténue le signal initial d'un rapport 100.*

D'autre part, concernant la matrice de variance-covariance d'erreur, il paraît logique de prendre en compte la représentativité de chaque point de grille. A l'instar de la coupure des corrélations à grande distance, la corrélation d'une station trafic n'a de sens qu'avec les stations immédiatement proches : en effet, elle n'est représentative (au mieux) que d'une maille de modèle puisqu'elle rend compte d'une distribution sous-maille des émissions. A l'opposé, une station rurale nationale sera corrélée significativement sur de plus grandes distances avec d'autres stations à condition que celles-ci ne soient pas trop spécifiques non plus (i.e. elle ne le sera pas avec une station industrielle, quelle que soit la distance les séparant). Pour les stations renseignées, l'ADEME définit une ”aire de représentativité” dont la taille s'avère, elle aussi, fortement dépendante de la typologie (cf tableau 5.1). La typologie est donc retenue comme critère de représentativité.

Les variances-covariances sont donc calculées, non plus sur des régressions concernant l'ensemble des stations, mais sur les couples typologiques existants (RUR-RUR, RUR-PUR, RUR-URB, PUR-PUR, PUR-URB et URB-URB) et la portée de la gaussienne utilisée pour atténuer les corrélations avec la distance devient spécifique à chaque type (voir dernière ligne du tableau 5.1).

Cette distance d'extinction est constante quelle que soit l'heure d'analyse.

5.6 Discussion des cartes d'analyse

5.6.1 Cartes d'analyse a posteriori

Les cartes d'analyse sont produites pour toutes les heures de la journée. L'évaluation porte donc à la fois sur les séries horaires et les séries des pics journaliers.

ANALYSE QUALITATIVE

Trois cas majoritaires sont rencontrés (concernant, soit l'ensemble de la France soit uniquement une région géographique) :

1. les structures de l'ébauche du modèle ainsi que les concentrations simulées sont globalement correctes (voir figure 5.11)
2. les structures de l'ébauche du modèle sont correctes, mais le biais du modèle est important (voir figure 5.10)
3. les structures de l'ébauche du modèle sont erronées, et dans ce cas, généralement, le biais du modèle est important (voir figure 5.12)

La méthode ne dégrade que très rarement l'ébauche du modèle, même dans le cas 1, et uniquement localement ; par exemple, c'est le cas du 22 juin 2005 pour les environs d'Albi, au Nord-Est de Toulouse (voir ellipse noire sur la figure 5.11) : la station assimilée dans l'analyse enregistre des niveaux très élevés d'ozone (flèche rouge sur la figure), contrairement aux 3 autres stations alentours pour lesquelles le modèle brut évaluait correctement les maxima alors que l'analyse les sur-estime d'une trentaine de $\mu\text{g.m}^{-3}$.

Pour les cas "type 2" (bonnes structures de l'ébauche mais biais), la méthode s'avère extrêmement efficace sur les cas rencontrés sur l'été 2005.

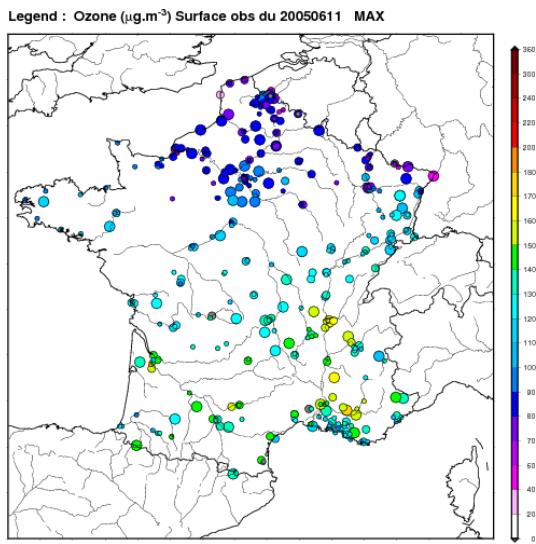
Enfin, dans les cas les plus défavorables (type 3) où l'ébauche ne présente pas les bonnes structures à grande échelle, le réseau est en général suffisamment dense pour remodeler la structure synoptique du champ (voir exemple sur la figure 5.12). Aussi, cette méthode fait converger vers une même analyse des ébauches dissemblables de 2 modèles différents ... dans les zones géographiques suffisamment renseignées. La figure 5.12 présente par exemple les analyses et les ébauches des modèles CHIMERE et MOCAGE pour le 20 juillet 2005 (source PREV'AIR¹). Les analyses convergent, sauf sur les zones non documentées comme les Alpes ou l'Ouest des Pyrénées.

ANALYSE QUANTITATIVE

Pour l'approche quantitative et statistique, les séries temporelles sont extraites des cartes 2D en considérant le point de grille le plus proche de la station, à la fois pour les ébauches et les analyses. Les résultats globaux sont consignés dans les tableaux 5.2 pour les séries des pics journaliers et 5.3 pour les séries horaires. Une amélioration de tous les scores est visible, avec notamment, une meilleure performance à la climatologie ou la persistance quand cela est pertinent. L'analyse fait ainsi "gagner" par rapport à l'ébauche 10 points de FOM, 10 $\mu\text{g.m}^{-3}$ d'EQM et 0.2 point de corrélation, et ce, sans dégrader fortement le F-ratio (il était légèrement sur-estimé de 0,1 par l'ébauche et est légèrement sous-estimé de 0,07 par l'analyse pour les pics, et la différence sur les séries horaires est de seulement 0,02).

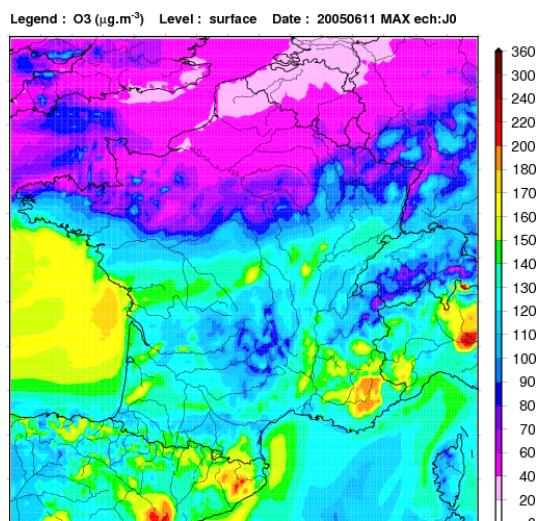
D'autre part, il est intéressant de noter que les scores sont moins bons pour les stations urbaines que pour les stations rurales ou péri-urbaines notamment en terme de biais et de FOM (cf tableau 5.4). Aussi, il semble que le choix de prendre en compte les stations péri-urbaines plutôt que les stations urbaines en cas de proximité géographique (§5.2) ait un impact. La résolution horizontale "effective" obtenue au final est donc encore trop grossière pour reproduire correctement les champs à l'échelle de l'agglomération. A l'échelle de la journée sur la France, l'ensemble des scores (à savoir biais, corrélation, EQM, EQMc, FOM, et écart-type) est également amélioré par l'analyse vis à vis de l'ébauche comme illustré

¹<http://www.prevair.org/fr/index.php>



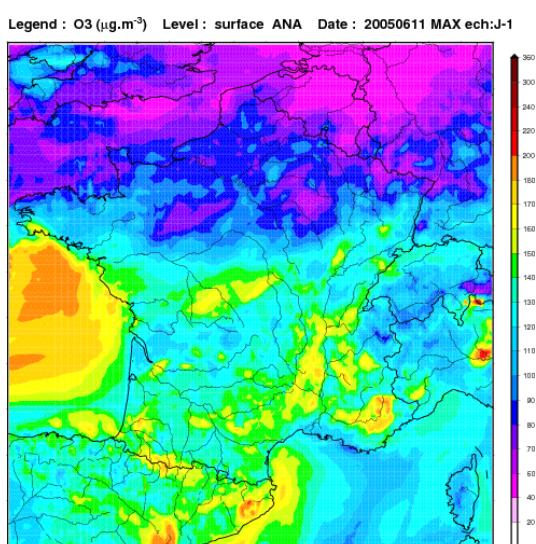
MOCAGE © Météo-France 12/06/05 13:30

(a) Observations



MOCAGE © Météo-France 11/06/05 02:45

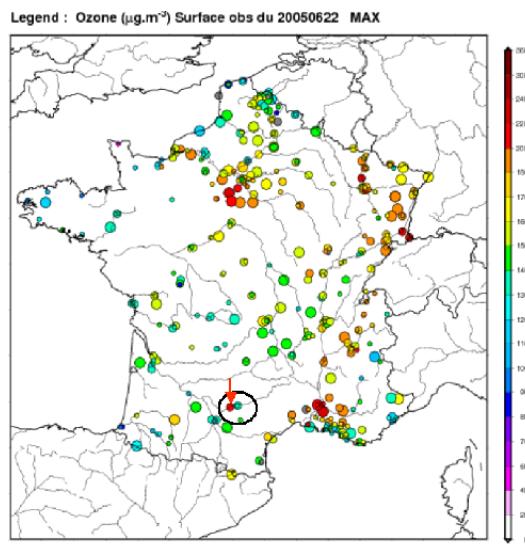
(b) Ebauche



MOCAGE © Météo-France 05/01/06 22:13

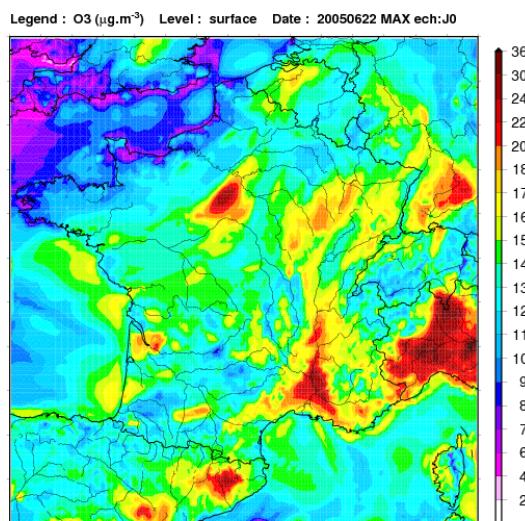
(c) Analyse

FIGURE 5.10 – Observations, simulation et analyse en surface pour les maxima journaliers d'ozone du 11 juin 2005. L'unité est le $\mu\text{g.m}^{-3}$.



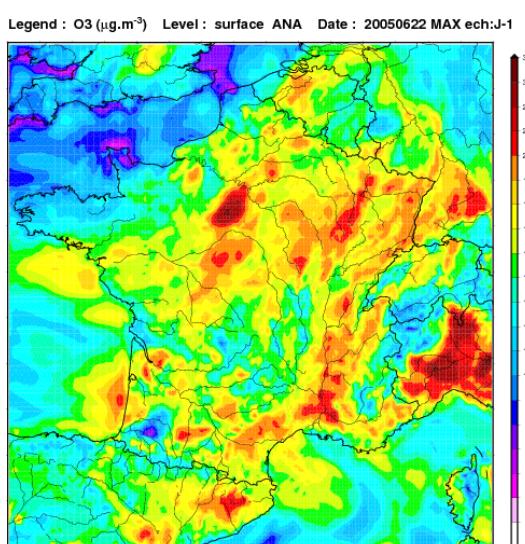
MOCAGE © Météo-France 23/06/05 13:30

(a) Observations



MOCAGE © Météo-France 22/06/05 02:45

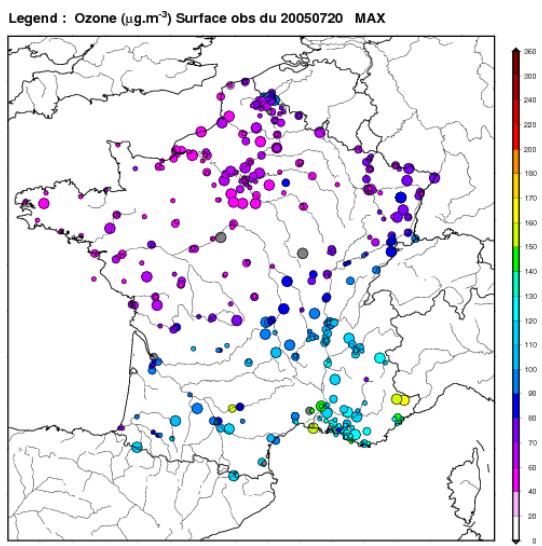
(b) Ebauche



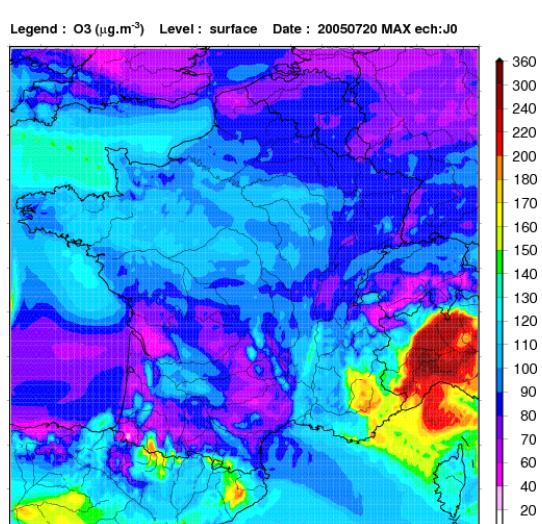
MOCAGE © Météo-France 05/01/06 22:13

(c) Analyse

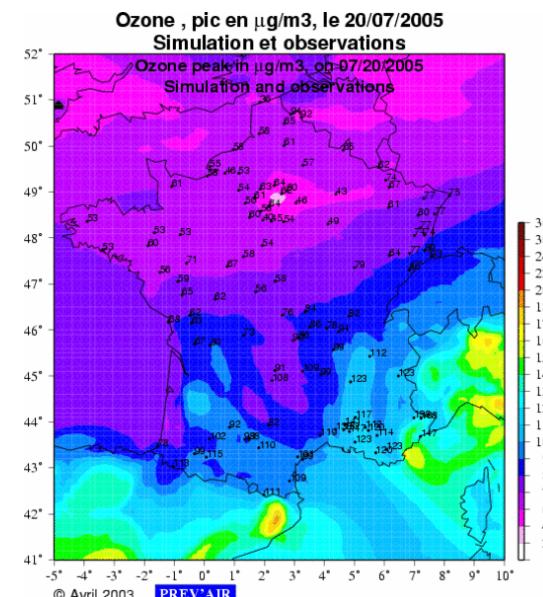
FIGURE 5.11 – Observations, simulation et analyse en surface pour les maxima journaliers d'ozone du 22 juin 2005. L'unité est le $\mu\text{g.m}^{-3}$.



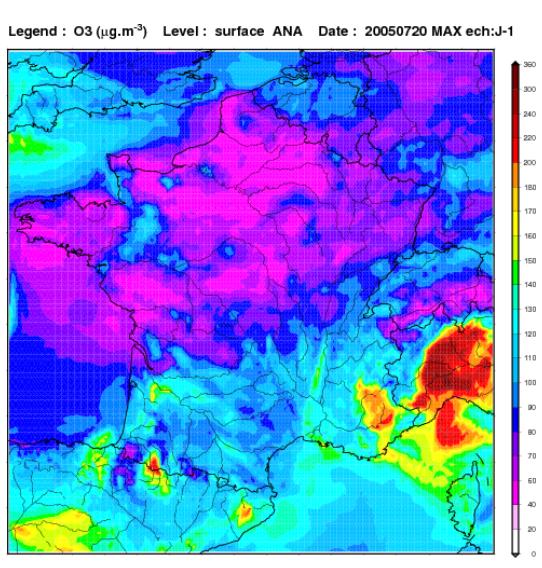
(a) Observations



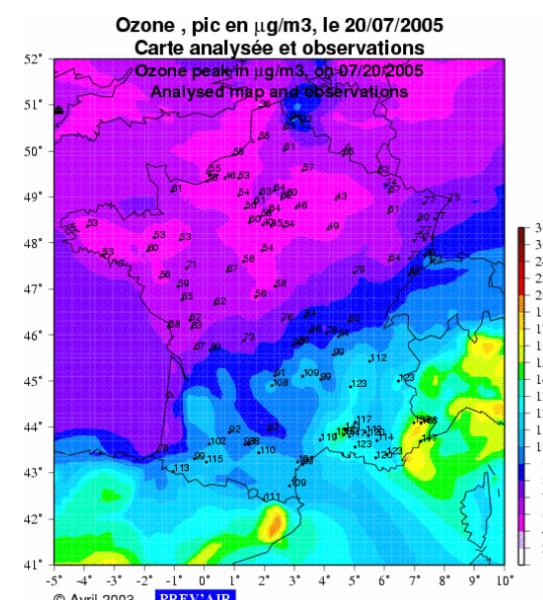
(b) Ebauche MOCAGE



(c) Ebauche CHIMERE



(d) Analyse MOCAGE



(e) Analyse CHIMERE

FIGURE 5.12 – Observations, simulation et analyse en surface pour les maxima journaliers d'ozone du 20 juillet 2005. L'unité est le $\mu\text{g.m}^{-3}$. A gauche pour MOCAGE, à droite pour CHIMERE.

sur la figure 5.13. Il apparaît clairement sur ces séries temporelles des scores journaliers que la qualité de l'analyse est conditionnée par la qualité de l'ébauche.

	Corr	Biais	EQM	EQMc	FOM	Var
Ebauche	0,63	7,3	29,3	28,4	82,3	1,10
Analyse	0,82	3,1	19,2	18,9	91,3	0,93
Persistante	0,69	-0,3	24,7	24,7	97,9	0,97
Climatologie	X	15,9	35,7	32,0	-79,7	X

TABLEAU 5.2 – Scores globaux sur la période de 122 jours pour la série des pics journaliers (42 313 données).

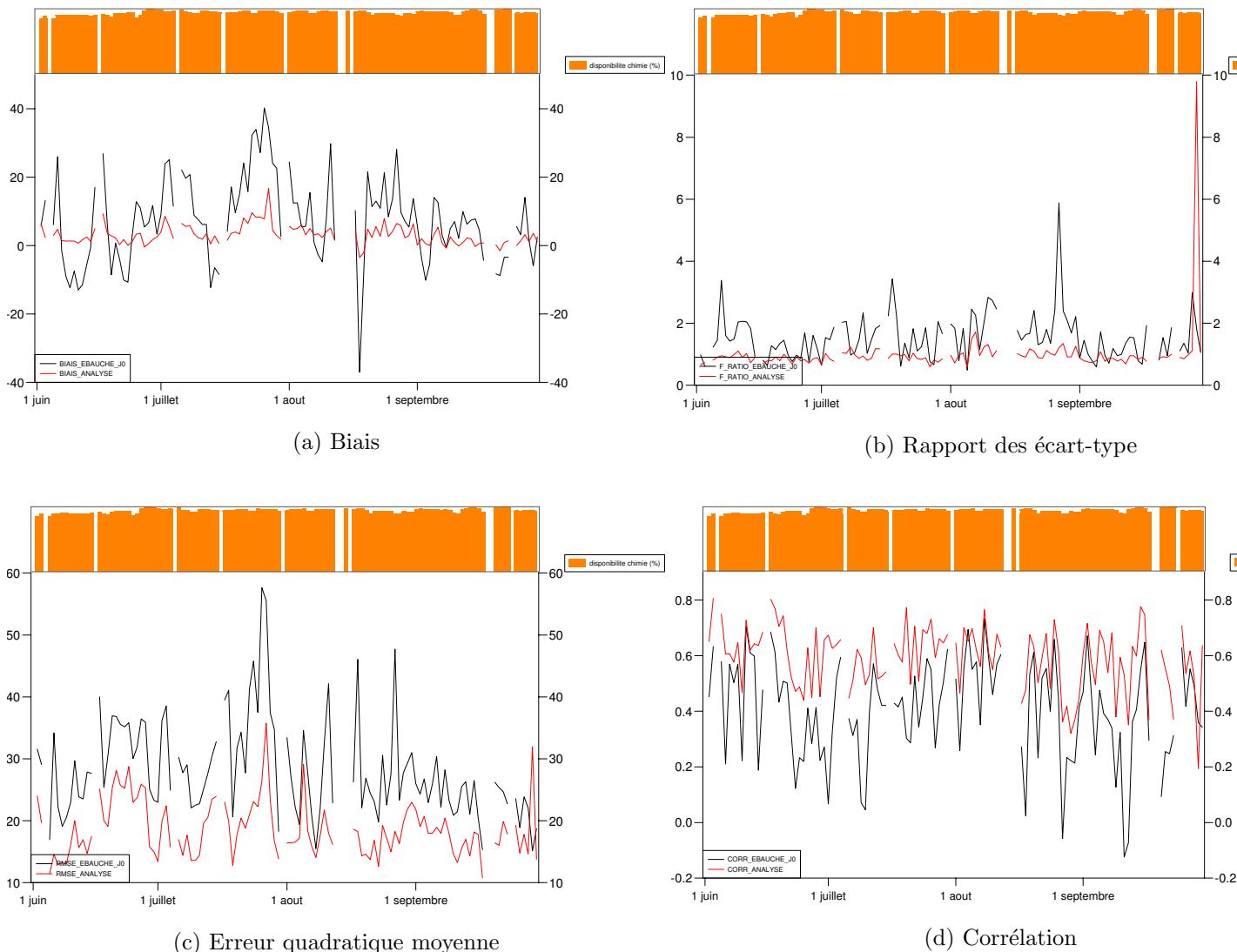


FIGURE 5.13 – Série temporelle de scores journaliers pour les pics d'ozone établis sur l'ensemble des observations BASTER disponible sur la France métropolitaine pour l'été 2005. La courbe noire correspond à l'ébauche, la rouge à l'analyse. Les barres oranges correspondent au pourcentage d'observations disponibles pour chaque jour.

	Corr	Biais	EQM	EQMc	FOM	Var
Ebauche	0,57	0,6	31,9	30,9	80,7	0,86
Analyse	0,81	2,3	20,5	20,4	87,6	0,84
Persistante	0,73	-0,1	25,4	25,4	98,9	0,98
Climatologie	X	0,0	28,6	28,6	31,9	X

TABLEAU 5.3 – Scores globaux sur la période de 122 jours pour la série des valeurs horaires (978 071 données).

	Corr	Biais	EQM	EQMc	FOM	Var	Nombre de données
Rurales	0,81	-1,4	19,2	19,2	92,7	0,97	5651
Péri-urbaines	0,85	0,9	17,2	17,2	92,5	0,89	12234
Urbaines	0,80	5,1	20,1	19,4	87,1	0,94	24428

TABLEAU 5.4 – Scores globaux par type de stations sur la période de 122 jours pour la série des maxima journaliers analysés.

Il est également pertinent de regarder les performances de la méthode vis à vis des dépassements de seuils. On se contentera du seuil réglementaire d'information de $180 \mu\text{g.m}^{-3}$ à l'échelle de chacune des AASQA. Là encore, on a bien une amélioration des scores comme le montre la figure 5.14, notamment en terme de fausses alertes qui était l'un des défauts mis en évidence au paragraphe 4.2.2. Par contre, cette amélioration s'accompagne d'une légère hausse du taux de non-détection pour les AASQA ayant le plus grand nombre de jours de dépassement.

ÉTUDE DE SENSIBILITÉ À LA PRISE EN COMPTE DE LA TYPOLOGIE

Si l'on s'intéresse maintenant à la comparaison des résultats obtenus avec ou non prise en compte de la typologie des points pour construire les matrices de l'IO (§5.5), il s'avère que ce raffinement supplémentaire, contrairement à ce que l'on attendait ne permet pas de se rapprocher des observations en terme de différenciation des moyennes rurale, péri-urbaine et urbaine sur l'ensemble de la période comme consigné dans le tableau 5.5. Par contre, les écarts types observés sont plus proche de ceux des observations, ce qui entraîne d'ailleurs une légère augmentation de l'erreur quadratique moyenne ($3 \text{ à } 4 \mu\text{g.m}^{-3}$) à la fois sur les résultats à l'échelle de la France mais également pour chaque AASQA prise séparément.

	Moyennes						Variabilité		EQM	
	Horaires			Pics journaliers			Hor	Pics	Hor	Pics
	RUR	PUR	URB	RUR	PUR	URB				
Observations	73.3	63.7	61.8	104.8	101.7	98.3				
Ebauche	70.5	71.5	72.4	106.4	106.3	108.2	0.86	1.10	30.8	29.3
Analyse	66.9	65.9	66.2	103.5	102.9	103.5	0.84	0.93	20.3	19.1
Analyse TYPE	66.1	66.7	66.9	103.8	106.0	105.9	0.95	1.10	23.4	23.2

TABLEAU 5.5 – Moyennes par type de stations sur la période de 122 jours pour les séries horaires et les séries des maxima journaliers. Les différentes lignes reprennent les résultats pour les différentes analyses effectuées comparées aux résultats de l'ébauche.

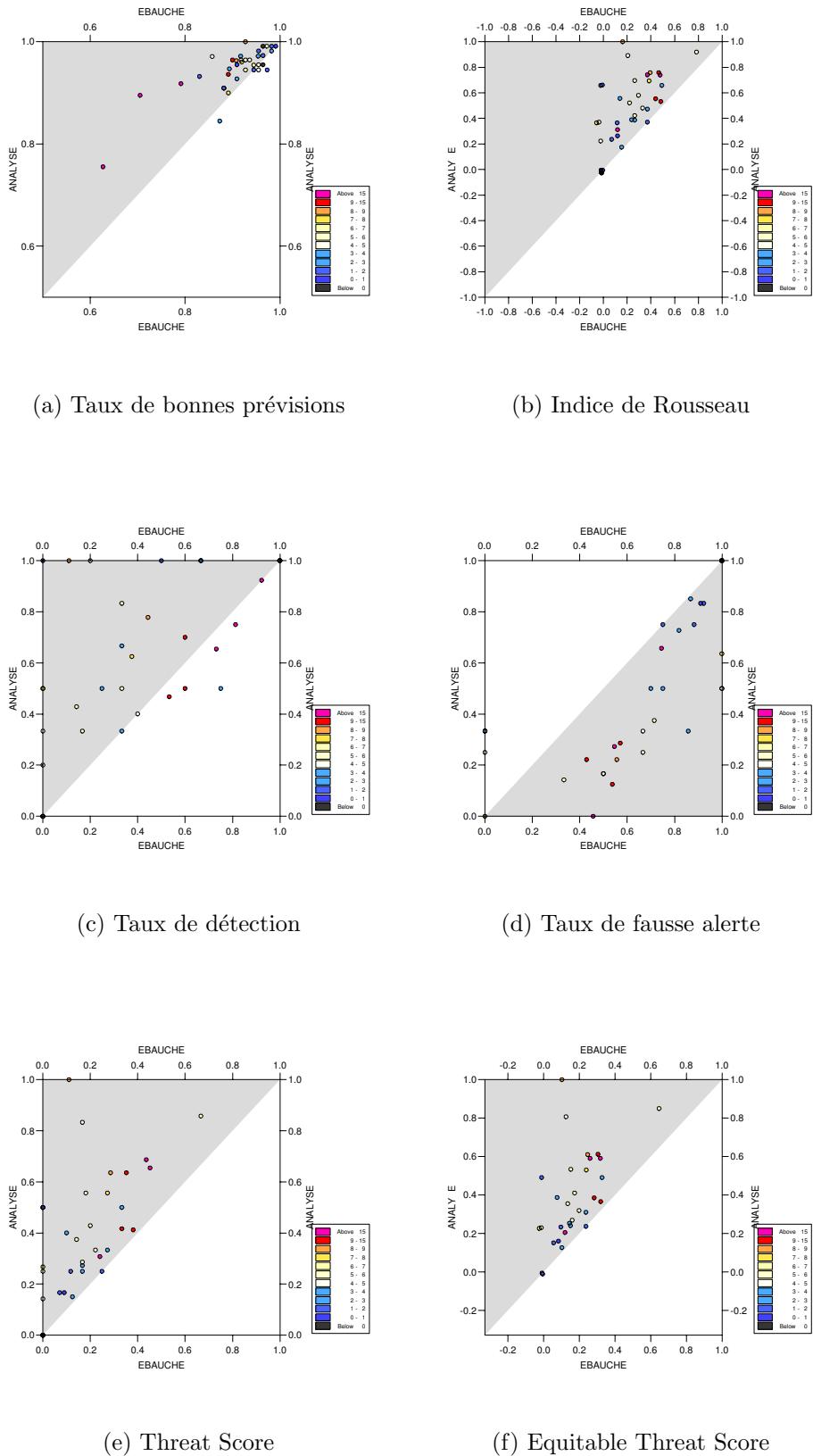


FIGURE 5.14 – Comparaison des scores associés aux tables de contingence du seuil $180 \mu\text{g.m}^{-3}$ pour l'ébauche et l'analyse. La partie griseée correspond à une meilleure performance de l'analyse. Chaque point représente une AASQA et le code de couleur correspond au nombre de jours de dépassement du seuil dans les observations.

5.6.2 Cartes de prévision

L'idée ici est de combiner les résultats des paragraphes 4.4 et 5.2 en mode prévision cad de cartographier à l'aide de la méthode de l'Interpolation Optimale les améliorations des prévisions sur site engendrées par la technique de l'Adaptation Statistique.

La méthode d'analyse est utilisée avec pour ébauche la sortie brute de MOCAGE à J0 (resp. J1, J2 ou J3) et pour vecteur observation l'adaptation statistique de MOCAGE à l'échéance correspondante, cad 00-24 (resp. J1, J2 ou J3). On appellera dans la suite AIOAS pour Analyse par Interpolation Optimale anisotrope assimilant les Adaptations Statistiques sur site. On corrige ainsi la sortie brute par le résultat de l'adaptation statistique si bien qu'une amélioration de la prévision cartographiée 2D est attendue.

Pour ces nouvelles cartes d'"*analyse*"¹, les matrices utilisées dans l'interpolation optimale n'ont pas été modifiées. Cela implique trois hypothèses implicites :

1. les erreurs de MOCAGE aux différentes échéances sont similaires aux erreurs de MOCAGE à J0
2. les erreurs de l'adaptation statistique sont les mêmes que les erreurs d'observation
3. on maintient l'hypothèse d'indépendance des erreurs d'observations et d'ébauche (celle qui est notée **H3** sur le schéma 5.1)

La première hypothèse n'est pas tout à fait vraie, du moins sur la période de l'été 2005 (voir §4.3.2).

La seconde hypothèse est particulièrement forte dans la mesure où les erreurs de l'adaptation statistique sont potentiellement corrélées spatialement de part leur composante modélisation alors que l'une des hypothèses de la méthode d'analyse est justement de considérer que les erreurs d'observation sont décorrélées les unes des autres.

Enfin, la troisième hypothèse est encore plus difficilement défendable dans la mesure où l'ébauche sert directement dans la régression multi-linéaire qui donne les valeurs d'"*observations*"¹

Les résultats de cette approche sont doublement conditionnés par la qualité de la simulation brute : en effet, soit le modèle produit un scénario voisin de la réalité et dans ce cas, la méthode permet d'affiner la prévision puisque les adaptations statistiques seront pertinentes, soit le modèle diverge de la réalité et auquel cas, l'étape d'interpolation optimale/adaptation statistique ne peut pas améliorer la simulation sinon qu'accidentellement. Le cas du 27 août 2005 est révélateur à cet égard (cf annexe F) : une couverture nuageuse s'étend sur l'ensemble du sud-est de la France dès la mi-journée, mais n'est pas reproduite par le modèle météorologique forceur, entraînant la modélisation d'un épisode de pollution photochimique intense non observé (d'où le très fort EQM pour ce jour là) ; l'assimilation des adaptations statistiques a conduit à une diminution de l'intensité de l'épisode puisque le modèle a tendance à trop "chauffer" sur cette région. Aussi, l'EQM diminue, mais la prévision en soi n'est pas "meilleure".

Ceci est illustré clairement sur la série temporelle des différents scores journaliers à la fois pour les pics (figure 5.15) ou les valeurs horaires (non montrées ici) : lorsque le modèle est relativement bon comme mi-juin ou autour du 10 juillet, l'assimilation des adaptations statistiques sur site permet d'améliorer les résultats sur l'ensemble des indicateurs (périodes

¹On utilise des guillemets dans la mesure où l'on reprend le vocabulaire des parties précédentes alors que ce ne sont pas de *vraies* observations qui sont assimilées, mais des adaptations statistiques.

indiquées en vert). A contrario, si l'ébauche est mauvaise, l'IO dégrade certains indicateurs, notamment la FOM et la corrélation (période indiquées en rouge). Il est intéressant de noter que l'EQM est quasiment toujours améliorée, ce qui relève plus de l'effet de lissage que d'une réelle amélioration de la qualité du champ 2D. Enfin, une autre limite de la méthode est visible notamment mi-septembre (période grisée) où les niveaux d'ozone ont été particulièrement bas (pics journaliers inférieurs à $60 \mu\text{g.m}^{-3}$ sur plusieurs régions avec un fort contraste avec le reste du territoire). En effet, lorsque la situation est particulière (au sens de la climatologie), l'approche déterministe seule est plus pertinente puisque, par construction, l'interpolation optimale rappelle la simulation vers la climatologie de la période d'apprentissage.

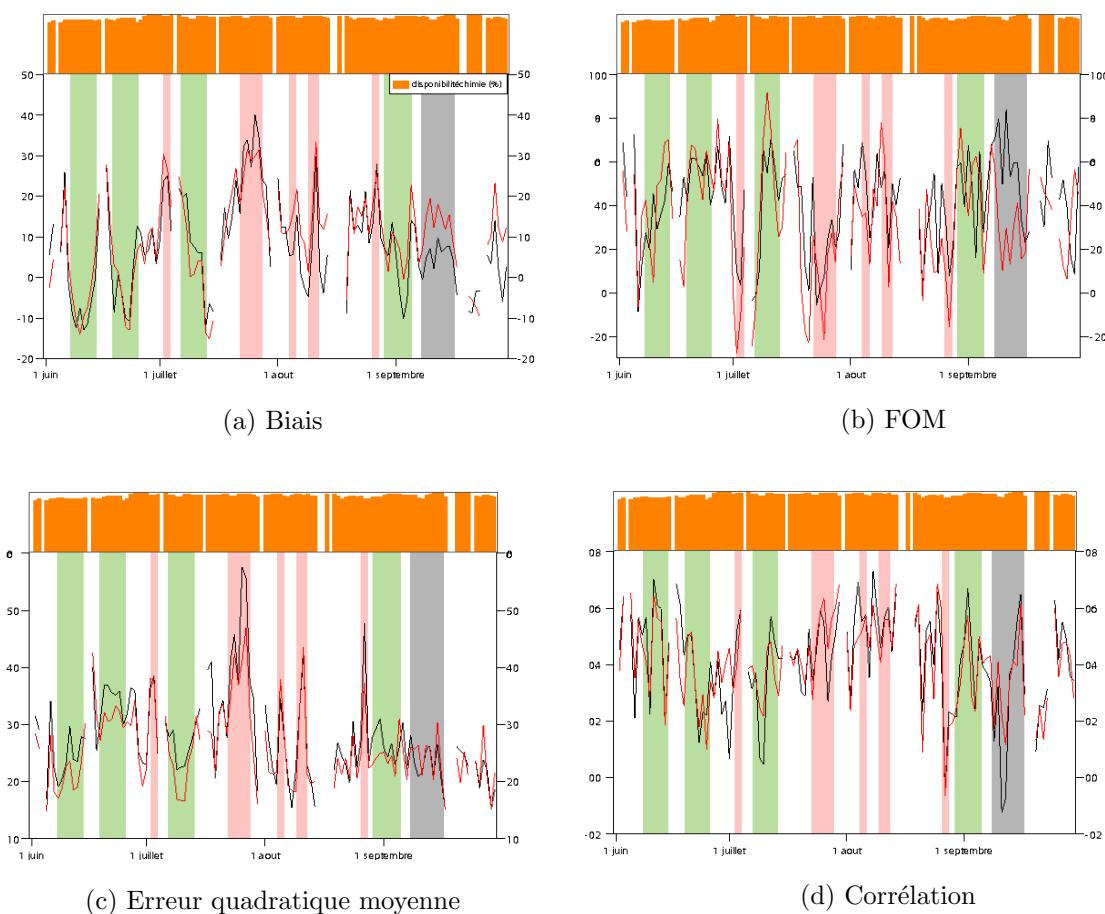


FIGURE 5.15 – Séries temporelles de scores journaliers pour les pics d'ozone établis sur l'ensemble des observations BASTER disponible sur la France métropolitaine pour l'été 2005. La courbe noire correspond à l'ébauche, la rouge à l'Interpolation Optimale utilisant les sorties de l'adaptation statistique. Les barres oranges correspondent au pourcentage d'observations disponibles pour chaque jour.

Les cartes 2D brutes et "analysées" par adaptation statistique sont comparées aux observations pour trois journées représentatives sur la figure 5.16. Pour la journée du 9 juillet 2005 (en haut), les concentrations sont relativement homogènes et assez bien reproduites par le modèle, si ce n'est la présence d'un léger panache au sud-ouest de Paris et sur la côte en PACA. L'AIOAS permet de corriger ces deux points tout en améliorant les concentrations de fond sur le reste du territoire. Le cas du 27 août 2005 (au milieu) déjà discuté précédemment illustre sur la région PACA que l'AIOAS ne peut que suivre le scénario

proposé par l'ébauche illustrant bien que la qualité de l'ébauche préside avant tout sur le résultat final. Enfin, en bas, les concentrations sur le nord de la France le 15 septembre 2005 étaient beaucoup plus faibles que la normale à la fois dans les observations et dans l'ébauche. L'AIOAS brise cette anomalie pour proposer des concentrations plus élevées, ce qui explique notamment une très nette dégradation de la FOM puisque la queue basse de la distribution n'est plus du tout représentée dans la cartographie finale.

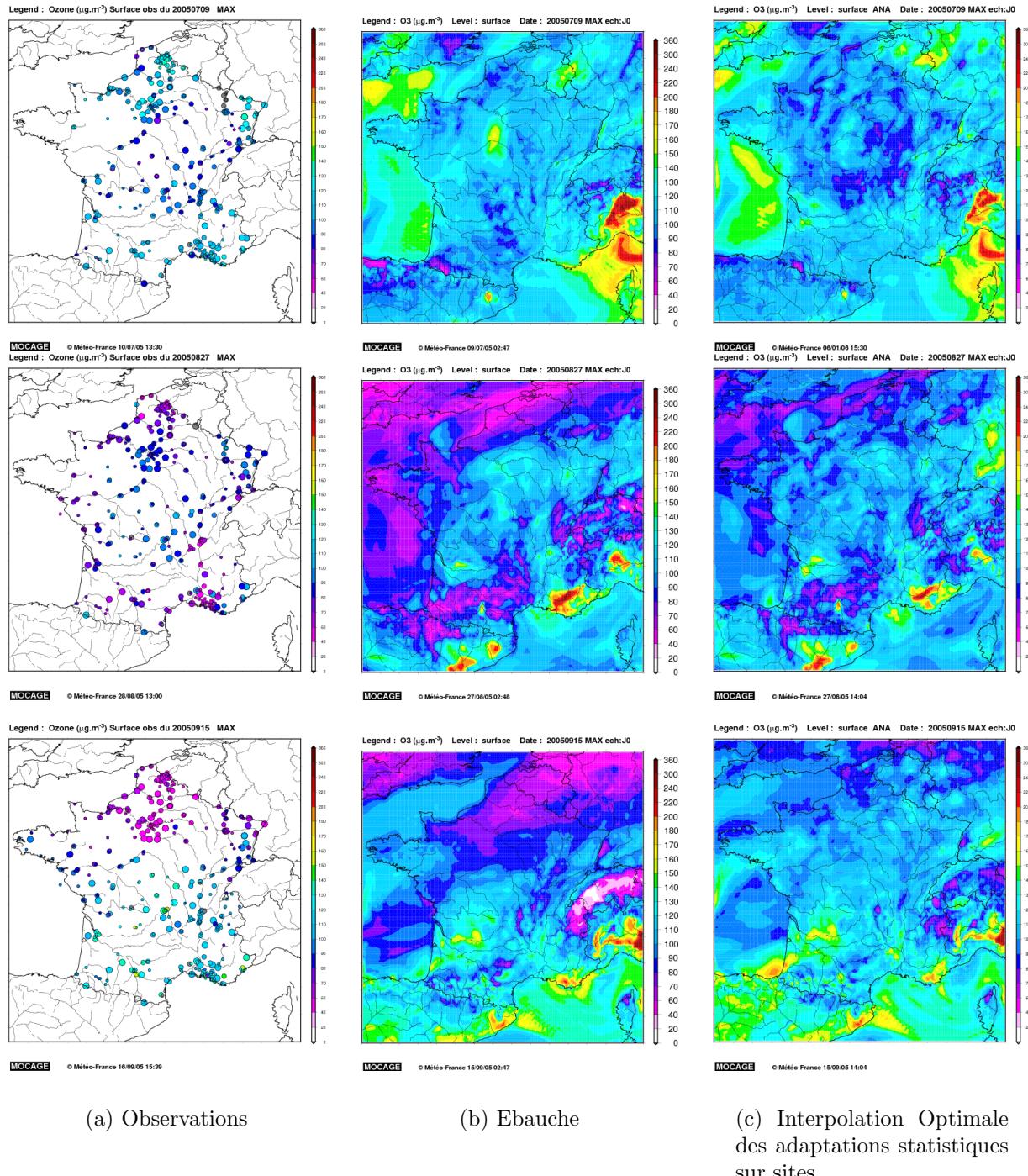


FIGURE 5.16 – Cartes 2D au sol du pic d'ozone journalier. De gauche à droite : observations, simulation 00-24 et interpolation optimale des adaptations statistiques sur sites. En haut pour le 9 juillet 2005, au milieu pour le 27 août et en bas pour le 15 septembre 2005. L'unité est le $\mu\text{g} \cdot \text{m}^{-3}$.

5.7 Conclusion

La méthode d'Interpolation Optimale anisotrope a permis la construction de cartes d'analyse a posteriori. Les résultats sont satisfaisants et améliorent la répartition cartographique de concentration d'ozone en assurant la cohérence avec les observations. La prise en compte de l'anisotropie semble être un facteur non négligeable de l'amélioration.

Appliquée en mode prévision jusqu'à 3 jours d'échéance avec, en entrée, l'adaptation statistique sur les sites BDQA, cette méthode permet d'améliorer dans une certaine mesure les résultats pour les cas où la simulation brute propose un scénario similaire à la réalité.

Chapitre 6

Conclusions et perspectives

Nous avons dans ce travail mis en place et évalué une configuration multi-domaines du modèle de chimie-transport global MOCAGE à des fins de prévision de la qualité de l'air à courte et moyenne échéances.

Chronologiquement, les toutes premières simulations du modèle ont été effectuées dans le cadre d'ESQUIF avec une résolution maximale de $0,25^\circ$ et un cadastre d'émissions grossier puisque de résolution spatiale 1° et de résolution temporelle mensuelle (i.e. sans profils diurnes). Nous avons alors constaté que cette configuration était suffisante pour représenter les grandes lignes de la photochimie en Ile-de-France ; par exemple, les simulations s'avèrent capables de reproduire la présence ou non d'un panache d'ozone et son intensité ; par contre, la configuration a montré de fortes limitations au niveau de la représentation des zones urbaines tant pour les oxydes d'azote que pour l'ozone.

La campagne ESCOMPTE a ensuite fourni un ensemble d'observations extrêmement riche et un cadastre d'émissions spécifique (résolution kilométrique et horaire) utilisés afin de tester le réalisme des simulations sur la région PACA et leur sensibilité à différentes paramétrisations et configurations du système : les conditions aux limites chimiques à la fois horizontales et verticales, la résolution du cadastre d'émissions utilisé ainsi que la représentation de la chimie. Pour les polluants primaires, le raffinement du cadastre a un impact bien plus marqué que les autres perturbations de la configuration du modèle. Par contre, de façon intéressante, l'impact de ces trois composantes du système est du même ordre de grandeur sur les concentrations d'ozone simulées in fine, illustrant bien le caractère secondaire de ce polluant. En effet, l'ozone (et encore plus le maximum d'ozone journalier) agit comme une grandeur intégrale à la fois sur le temps et l'espace du comportement des simulations. Ainsi, il apparaît à la fois comme un paramètre pertinent pour évaluer le modèle dans son ensemble, mais, en même temps, comme un paramètre particulièrement exposé à diverses compensations d'erreurs. L'exercice de modélisation illustre bien ce propos. Malgré des champs de paramètres phénoménologiquement importants dans le cycle de l'ozone extrêmement hétérogènes sur l'ensemble des modèles (comme le dépôt sec, les concentrations en radicaux hydroxyl ou les taux de photolyses), les comportements en concentrations d'ozone en surface sont relativement similaires.

Néanmoins, c'est sur ce paramètre phare que nous avons axé la validation des simulations opérationnelles de qualité de l'air à trois jours d'échéances. Cette validation est effectuée à l'échelle de la France et de l'Europe sur la base de réseaux permanents

de la qualité de l'air. Une des difficultés rencontrées réside d'ailleurs dans l'implantation géographique de ces réseaux, prioritairement destinés à la surveillance de l'exposition des populations et par conséquent non adaptés à des fins de validation de systèmes de modélisation à grande échelle tel que le nôtre : la concentration des sites de mesure en zones urbaines et industrielles provoque à la fois un déséquilibre de la répartition géographique sur le territoire national et pose le problème de la représentativité des mesures pour un modèle dont la maille la plus fine est de 10 kilomètres. Nous présentons la méthodologie utilisée pour apprécier la qualité des simulations en compensant par la durée des périodes de validation le fait de ne regarder que l'ozone. Les paramètres jugés sont les concentrations horaires, les maxima journaliers mais également l'amplitude journalière puisqu'elle représente ce que le modèle "calcule" véritablement sur une journée en intégrant dans le temps les tendances chimiques et dynamiques. Outre les indicateurs statistiques moyens usuels (corrélation, biais, erreur quadratique moyenne, écart-type), une attention particulière est apportée aux distributions des populations, qui permettent à la fois de caractériser le comportement moyen du modèle, mais également les extrêmes (situations très ou très peu polluées). Les dépassements de seuils réglementaires sont également traités puisque c'est l'un des attendus de la modélisation au niveau national : nous conseillons d'utiliser ce critère en appliquant une zone tampon autour de la valeur du seuil et en délocalisant les maxima entre observations et simulations à l'échelle de "régions photochimiques" ; cette évaluation est par ailleurs rendue difficile par la faible densité du réseau en zone rurale, où sont majoritairement localisés les panaches.

Des adaptations statistiques sont effectuées sur chaque site de mesure en post-traitement : elles permettent d'une part de corriger les simulations brutes de biais récurrents (site en altitude par exemple) et d'autre part, de prendre en compte les particularités sous-mailles et les spécificités de chaque site. Une régression linéaire multiple est effectuée heure par heure en tenant compte à la fois des simulations des concentrations chimiques, de variables météorologiques (dont des variables intégrées sur la journée) ainsi que quelques variables qualitatives.

La variabilité inter-annuelle et inter-mensuelle constatée dans les observations prêche en faveur d'une validation des modèles de chimie-transport sur plus d'un été, et même, de sélectionner parmi les périodes à simuler les extrêmes tels que les mois d'août 2003 ou juillet 2005 pour la queue haute des distributions et août 2002 et 2005 pour la queue basse ; les simulations de MOCAGE reproduisent mais sous-estiment cette variabilité basse fréquence.

D'autre part, nous avons étudié qualitativement et quantitativement, sur la base de l'été 2005, les relations entre le forçage météorologique et les prévisions chimiques. Les erreurs des prévisions chimiques sont majoritairement pilotées par les erreurs sur la température et la nébulosité. On attend d'ailleurs une amélioration des scores du run opérationnel dès 2006 grâce à un nouveau schéma de microphysique des nuages dans la paramétrisation d'ARPEGE et d'ALADIN. Nous avons par ailleurs montré que la variabilité des champs d'ozone était majoritairement pilotée par la variabilité des champs de température et de pression.

Enfin, une réflexion a été initiée sur la dépendance des scores statistiques utilisés (corrélation, écart-type, erreur quadratique moyenne, figure de mérite) à la taille des structures des champs modélisés (que nous appelons résolution "effective" et qui peut être différente de la résolution horizontale du modèle) : comment en effet évaluer l'impact de post-traitements appliqués aux simulations si les résolutions "effectives" des deux versions

à comparer ne sont pas identiques (cas rencontré lors de l'évaluation des cartes analysées d'ozone en surface) ? Et, à fortiori, comment comparer deux modèles différents ? Ce second problème est posé par l'évaluation de systèmes de modélisation différents dans le cadre de PREV'AIR notamment mais également par l'évaluation des versions successives d'un même modèle.

La cinquième partie montre l'utilisation d'une méthode de cartographie des concentrations d'ozone en mode prévision : une méthode d'interpolation optimale permettant de combiner simulations numériques et observations in-situ est en effet appliquée aux simulations en mode prévision et aux adaptations statistiques sur site. Les résultats de la méthode sont encourageants et devraient bénéficier de l'amélioration de la qualité des adaptations sur site.

Les perspectives de ce travail sont larges et s'inscrivent dans un contexte national et international stimulant.

Tout d'abord, le passage en opérationnel du modèle méso-échelle AROME (Applications de la Recherche à l'Opérationnel à Mésoéchelle) au sein de Météo-France à l'horizon 2008 va permettre d'aborder le thème du mélange des basses couches et de la chimie dans la continuité du travail de prévisions chimiques quotidiennes en aval des modèles météorologiques opérationnels.

Simultanément à cette augmentation de résolution du forçage dynamique, des projets d'élaboration de cadastres d'émissions à l'échelle nationale et européenne à des buts de modélisation numérique de la qualité de l'air sont en cours. En effet, un inventaire national spatialisé des émissions de polluants atmosphériques, réalisé pour le compte du MEDD, sera livré à la fin 2007. Initié en 2004, ce projet est réalisé dans le cadre de la mise en oeuvre du Plan "Air" rendu public en novembre 2003. Il vise notamment l'amélioration des prévisions de pollution réalisées avec le système PREV'AIR (pour le cadastre, la résolution spatiale est de 1 kilomètre et la résolution temporelle de 1 heure) et devrait répondre à des besoins relatifs à la gestion de la qualité de l'air comme l'élaboration ou la réactualisation de PPA par exemple (Seigneur (2005)). A l'échelle continentale, le projet européen GEMS/RAQ (voir paragraphe suivant) a financé l'élaboration d'un inventaire horaire à 5 kilomètres de résolution par le TNO pour début 2007.

Durant la décennie 2000-2010, la Commission Européenne et l'Agence Spatiale Européenne (ESA) se sont engagées dans la mise en oeuvre de l'initiative GMES (Global Monitoring for Environment and Security). Elle vise à doter l'Europe d'une capacité de surveillance globale de l'environnement, ce qui passe par de nouvelles capacités opérationnelles dans le domaine environnemental : entre autres, gestion des risques naturels et accidentels ; suivi des surfaces continentales ; prévisions océaniques et côtières ainsi que le suivi de la composition chimique de l'atmosphère. Ce dernier objectif est réalisé par le biais de deux projets : PROMOTE (PROtocol MOonitoring for the GMES Service Teledetection), piloté par l'ESA qui gère l'opérationnalité des mesures satellites et GEMS (Global Environmental Monitoring using Satellite and In-situ data), piloté par le CEPMMT, qui vise à transposer et décliner le savoir-faire et les méthodes appliquées en météorologie au domaine de la composition chimique de l'atmosphère :

- **acquisition et centralisation en temps réel des données d'observation** afin notamment de construire un système d'assimilation comprenant à la fois des mesures de

télédétection spatiale et in-situ

- élaboration quotidienne de prévisions déterministes et de prévisions d'ensemble

- **réalisation d'analyses et de ré-analyses (période 1999-2007)**

Le système concerne les gaz à effet de serre, les gaz réactifs et les aérosols à l'échelle globale ainsi que la qualité de l'air aux échelles continentale et régionale. Le sous projet RAQ (Regional Air Quality) vise des prévisions de qualité de l'air (gaz et particules) sur l'Europe et sur plusieurs zones urbaines à plus haute résolution. Il s'appuie sur 3 modèles globaux pour fournir les conditions aux limites chimiques à une dizaine de modèles à aire limitée qui permettront d'aborder les questions de prévisions d'ensemble dans le domaine de la qualité de l'air. Il est prévu d'utiliser 5 de ces modèles pour effectuer de l'assimilation de données à haute résolution (satellite et in-situ). La dimension de l'impact sanitaire de la qualité de l'air est également intégrée.

MOCAGE participe aux sous-projets GRG (Global Reactive Gaz) et RAQ, à la fois par son domaine global, ses sous-domaines imbriqués centrés sur l'Europe ainsi que l'utilisation du logiciel d'assimilation PALM.

Références

- Auger, L., 2006 : *Influence de la dynamique turbulente sur la cinétique chimique dans une couche limite atmosphérique polluée*, Ph.D. thesis, Université Toulouse III.
- Balgovind, R., A. Dalcher, M. Ghil, and E. Kalnay, 1983 : A stochastic-dynamic model for the spatial structure of the forecast error statistics, *Mon. Wea. Rev.*, **111**, 701–722.
- Bechtold, P., E. Bazile, F. Guichard, P. Mascart, and E. Richard, 2001 : A mass flux convection scheme for regional and global models, *Quater. J. Roy. Meteor. Soc.*, **127**, 869–886.
- Bergthorsson, P. and B. Döös, 1955 : Numerical weather map analysis, *Tellus*, **38A**, 439–447.
- Besse, P., 2001 : *Pratique de la modélisation statistique*, Université Paul Sabatier Toulouse III, publications du laboratoire de statistique et probabilités édition.
- Besse, P., H. Milhem, O. Mestre, A. Dufour, and V.-H. Peuch, soumis en juillet 2006 : Comparaison de techniques de "data mining" pour l'adaptation statistique du modèle de prévision déterministe d'ozone MOCAGE, *Pollution Atmosphérique*.
- Bjerknes, V., 1904 : Das problem von der Wettervorhersage, betrachtet vom Standpunkt der Mechanik und der Physik, *Meteor. Zeitschrift*, **21**, 1–7.
- Blond, N., L. Bel, and R. Vautard, 2003 : Three-dimensionnal ozone data analysis with an air quality model over the Paris area, *J. Geophys. Res.*, **108**(D23), 4744.
- Bolin, B., 1972 : Air pollution across National Boundaries : The Impact of Sulfur in Air and Precipitation, in *1rst United Nations Conference on the Human Environment, Stockholm*.
- Brocheton, F. and V.-H. Peuch, 2006 : Report on the ESCOMPTE modelling exercise.
- Cariolle, D., 1982 : Présentation d'un modèle bidimensionnel photochimique de l'ozone stratosphérique, Technical Report 27, Note de travail de l'Etablissement d'Etudes et de Recherches Météorologiques.
- Cariolle, D. and M. Déqué, 1986 : Southern hemisphere medium-scale waves and total ozone disturbances in a spectral general circulation model, *J. Geophys. Res.*, **91**(10), 825–846.
- Carter, W. P. L., 1999 : Documentation of the SAPRC-99 chemical mechanism for VOC reactivity assessment, Technical report, Final Report to California Air Resources Board Contract No. 92-329 and (in part) No. 95-308.

- Cathala, M.-L., J. Pailleux, and V.-H. Peuch, 2003 : Improving global simulations of the upper troposphere - lower stratosphere with sequential assimilation of MOZAIC data, *Tellus*, **55B**, 1–10.
- Charney, J., R. Fjörtoft, and J. von Neumann, 1950 : Numerical integration of the barotropic vorticity equation, *Tellus*, **2**, 237–254.
- Clark, H., M.-L. Cathala, H. Teyssedre, J.-P. Cammas, and V.-H. Peuch, Submitted 2006 : Cross-tropopause fluxes of ozone using assimilation of MOZAIC observations in a global CTM, *Tellus*.
- Clerbaux, C., J. Hadji-Lazaro, D. Hauglustaine, G. Megie, B. V. Khattatov, and J.-F. Lamarque, 2001 : Assimilation of carbon monoxide measured from satellite in a three-dimensional chemistry-transport model, *J. Geophys. Res.*, **106**(15), 385–394.
- Crassier, V., K. Suhre, P. Tulet, and R. Rosset, 2000 : Developement of a reduced chemical scheme for use in mesoscale meteorological models, *Atmos. Environ.*, **34**, 2633–2644.
- Cressman, G., 1959 : An operational objective analysis system, *Mon. Wea. Rev.*, **87**, 367–374.
- Cros, B., P. Durand, H. Cachier, P. Drobinski, E. Frejafon, C. Kottmeier, P. Perros, V.-H. Peuch, J.-L. Ponche, D. Robin, F. Saïd, G. Toupancre, and H. Wortham, 2003 : The ESCOMPTE Program : an Overview, *Atmos. Res.*, **69**(3-4), 241–279.
- Cros, B., P. Durand, F. Marin, and X. Vergé, 2001 : Cahier d'opérations de la campagne de terrain ESCOMPTE, 5 juin - 16 juillet 2001, Technical report, Medias France.
- Daum, P., 2002 : An Overview of TexAQS 2000, in *Fourth Conference on Atmospheric Chemistry*.
- Delmas, R., G. Mégie, and V.-H. Peuch, 2005 : Physique et chimie de l'atmosphère, Belin.
- Dodge, M., 1977 : Combined use of modeling techniques and smog chamber data to derive ozone-precursor relationships, in B. Dimitriades, ed., *International Conference on Photochemical Oxidant Pollution and its Control : Proceedings*, U.S. Environmental Protection Agency, Environmental Sciences Research Laboratory, ed. EPA/600/3/77-001b, Research Triangle Park, NC, volume II, pp. 881–889.
- DP, 2005a : Contrôle des produits numériques utilisés pour la prévision météorologique, série contrôle et diagnostics n°74, 2ème trimestre 2005, Technical report, Direction de la Production, Météo-France.
- DP, 2005b : Contrôle des produits numériques utilisés pour la prévision météorologique, série contrôle et diagnostics n°75, 3ème trimestre 2005, Technical report, Direction de la Production, Météo-France.
- Dufour, A., A. Peuch, V.-H. Peuch, and M. Plu, 2004 : Hybrid deterministic and statistic chemical routine forecasts, IGAC 8th Conference, Christchurch (New-Zealand).
- Elbern, H. and H. Schmidt, 2000 : Ozone episode analysis by four-dimensional variational chemistry data assimilation, *J. Geophys. Res.*, **105**, 538–548.

- Fehsenfeld, F. C., G. Aucellet, T. S. Bates, A. H. Goldstein, R. M. Hardesty, R. Honrath, K. S. Law, A. C. Lewis, R. Leaitch, S. McKeen, J. Meagher, D. D. Parrish, A. A. P. Pszenny, P. B. Russell, H. Schlager, J. Seinfeld, R. Talbot, and R. Zbinden, 2006 : International Consortium for Atmospheric Research on Transport and Transformation (ICARTT) : North America to Europe. Overview of the 2004 summer field study, *J. Geophys. Res.*, **111**(D23S01).
- Fisher, M. and D. Lary, 1995 : Lagrangian four dimensional variational data assimilation of chemical species, *Quater. J. Roy. Meteor. Soc.*, **121**(527), 1681–1704.
- Fishman, J., J. M. Hoell, R. D. Bendura, R. J. McNeal, and V. W. J. H. Kirchhoff, 1996 : NASA GTE TRACE A Experiment (September-October 1992) : Overview, *J. Geophys. Res.*, **101**(D19), 23865–23879.
- Frejafon, E., A. Brut, J. Caccia, H. Cachier, C. Jambert, P. Laj, P. Perros, and F. Lohou, 2005 : Global uncertainties of the 2001 ESCOMPTE field campaign database : expected confidence intervals, in B. Cros and P. Durand, eds., *Proceedings of the 6th ESCOMPTE workshop, Marseille, 2-4 Feb 2005*.
- Giorgi, F. and W. Chameides, 1986 : Rainout lifetimes of highly soluble aerosols and gases as inferred from simulations with a general circulation model, *J. Geophys. Res.*, **91**(D13), 14 367–14 376.
- Guenther, A., C. Hewitt, D. Erickson, R. Fall, C. Geron, T. Graedel, P. Harley, L. Klinger, M. Lerdau, W. McKay, T. Pierce, B. Scholes, R. Steinbrecher, R. Tallamraju, J. Taylor, and P. Zimmerman, 1995 : A global model of natural volatile compound emissions, *J. Geophys. Res.*, **100**(D5), 8873–8892.
- Hansel, A., A. Whisthaler, R. Fall, P. Goldan, M. Trainer, T. Ryerson, D. Parish, G. Huebler, A. Fried, and F. Fehsenfeld, 2002 : Airborne in situ observations of VOCs over Houston area during TexAQS 2000, in *EGS Conference, Nice, France, 22-26 April*.
- Hoell, J. M., D. D. Davis, S. C. Liu, R. E. Newell, H. Akimoto, R. J. McNeal, and R. J. Bendura, 1997 : The Pacific Exploratory Mission West Phase B : February-March 1994, *J. Geophys. Res.*, **102**(D23), 28223–28240.
- Hoell, J. M., D. D. Davis, S. C. Liu, R. E. Newell, M. Shipham, H. Akimoto, R. J. McNeal, R. J. Bendura, and J. W. Drewry, 1996 : Pacific Exploratory Mission West-A(PEM West-A) : September-October 1991, *J. Geophys. Res.*, **101**(D1), 1891–1906.
- Honoré, C., 2000 : *La photochimie de l'ozone à l'échelle urbaine, un système dynamique non-linéaire*, Ph.D. thesis, Université Paris 6.
- Honoré, C. and A. Dufour, 2005 : Bilan des performances des modèles mis en oeuvre dans le cadre de PREV'AIR pendant l'été 2004. Rapport d'étude 45998-N°33, INERIS-DRC/MECA.
- Ide, K., P. Courtier, M. Ghil, and A. Lorenc, 1997 : Unified notation for data assimilation : Operational, sequential and variational, *J. Met. Soc. Japan*, **75**(AB), 181–189, Special issue on "Data Assimilation in Meteorology and Oceanography : Theory and Practice.

- IMP and LANL, 1994 : Mexico City Air Quality Research Initiative (MARI) Institut Mexicano del Petroleo and Los Alamos National Laboratory, Vol II, Technical Report LA 12699 (UC-902), Los Alamos National Laboratory, Los Alamos, NM.
- IPCC, 1995 : Intergovernmental Panel on Climate Change, Climate change 1994 : radiative forcing of climate change and an evaluation of the IPCC IS92 emissions scenarios, Cambridge, U.K.
- IPSL, LISA, Météo-France, L. d'Aérologie, Airparif, and F. Julich, 2001 : Etude et Simulation de la QUalité de l'air en Ile-de-France, Rapport Final.
- Jaecker-Voirol, A., M. Lippardt, B. Martin, P. Quandalle, J. Sallès, B. Carissimo, E. Dupont, L. Musson-Genon, P. Riboud, B. Aumont, G. Bergametti, I. Bey, and G. Toupance, 1998 : A 3D regional scale photochemical air quality model. Application to a 3 day summertime episode over Paris., *Rev. Inst. Fr. Pet.*, **53**(2), 225–237.
- Josse, B., 2004b : *Représentation des processus de transport et de lessivage pour la modélisation et la composition chimique de l'atmosphère à l'échelle planétaire.*, Ph.D. thesis, Université Toulouse III Paul Sabatier.
- Josse, B., P. Simon, and V.-H. Peuch, 2004a : Radon global simulations with the multiscale chemistry and transport model MOCAGE, *Tellus*, **56B**, 339–356.
- Kaminski, J., D. Plummer, L. Neary, J. McConnell, J. Struzewska, and L. Lobocki, 2002 : First application of MC2AQ to multiscale air quality modelling over Europe, *Physics and Chemistry of the Earth*, **27**, 1517–1524.
- Konovalov, I., M. Beekmann, R. Vautard, J. Burrows, A. Richter, H. Nuess, , and N. Neelansky, 2004 : The comparison and evaluation of modelled and GOME measurement derived tropospheric NO₂ columns over Western and Eastern Europe, *Atmospheric Chemistry and Physics*, **in press**.
- Lafore, J., J. Stein, N. Asencio, N. Bougeault, V. Ducrocq, J. Duron, C. Fischer, P. Hereil, P. Mascart, J. Pinty, J. Redelsperger, E. Richard, and J. Vila-Guerau de Arellano, 1998 : The Meso-NH atmospheric simulation system : Part I. Adiabatic formulation and control simulations, *Ann. Geophysicae*, **16**, 90–109.
- Langmann, B., S. Bauer, and I. Bey, 2003 : The influence of the global photochemical composition of the troposphere on European summer smog, part I : Application of a global to mesoscale model chain, *J. Geophys. Res.*, **108**(D4).
- Lary, D. J., M. Chipperfield, J. Pyle, W. A. Norton, and L. P. Riishojaard, 1995 : Three dimensional tracer initialisation and general diagnostics using equivalent PV latitude-potential temperature coordinates, *Quater. J. Roy. Meteor. Soc.*, **121**, 187–210.
- Lefèvre, F., G. Brasseur, I. Folkins, A. Smith, and P. Simon, 1994 : Chemistry of the 1991-1992 stratospheric winter : three-dimensional model simulations, *J. Geophys. Res.*, **99**(D4), 8183–8195.
- Louis, J.-F., 1979 : A parametric model of vertical eddy fluxes in the atmosphere, *Bound.-Layer Meteor.*, **17**, 187–202.

- Marenco, A., V. Thouret, P. Nédélec, H. Smit, M. Helten, D. Kley, F. Karcher, P. Simon, K. Law, J. Pyle, G. Poschmann, R. Von Wrede, C. Hume, and T. Cook, 1998 : Measurement of ozone and water vapor by Airbus in-service aircraft : The MOZAIC airborne program, An overview, *J. Geophys. Res.*, **103**(25), 631–642.
- Mari, C., D. J. Jacob, and P. Bechtold, 2000 : Transport and scavenging of soluble gases in a deep convective cloud, *J. Geophys. Res.*, **105**(D17), 22 255–22 267.
- Martet, M., 2004 : Introduction des différentes composantes de l'aérosol dans le modèle MOCAGE, rapport de stage de fin d'études de l'ENM n°942, Technical report, Ecole Nationale de la Météorologie, Météo France.
- Martet, M. and V.-H. Peuch, 2006 : Validation of the chemistry-transport model MOCAGE using satellite observations, in *Proceedings of The European Space Agency Atmospheric Science Conference, 8-12 May 2006*.
- Marticorena, B. and G. Bergametti, 1995 : Modeling the atmospheric dust cycle : 1-design of a soil derived dust production scheme, *J. Geophys. Res.*, **100**, 16415–16430.
- Massart, S., D. Cariolle, and V.-H. Peuch, 2005 : Vers une meilleure représentation de la distribution et de la variabilité de l'ozone atmosphérique par l'assimilation des données satellitaires, *CR Acad. Sci. Paris, Earth and Planetary Sciences*, **337**(15), 1305–1310.
- Meagher, J., E. Cowling, F. Fehsenfeld, and W. Parkhurst, 1998 : Ozone formation and transport in southeastern United States : Overview of the SOS Nashville/Middle Tennessee Ozone Study, *J. Geophys. Res.*, **103**(D17), 22 213–22 223.
- Meleux, F., 2002 : *Modélisation de la pollution atmosphérique à différentes échelles. Confrontations simulations/mesures pour la préparation d'ESCOMPTE 2001*, Ph.D. thesis, Université Toulouse III Paul Sabatier.
- Menut, L., I. Coll, and S. Cautenet, 2005 : Impact of meteorological data resolution on the forecasted ozone concentrations during the ESCOMPTE IOP 2a and 2b, *Atmos. Res.*, **74**, 139–159, ESCOMPTE special issue.
- Menut, L., R. Vautard, C. Flamant, M. Abonnel, M. Beekmann, P. Chazette, P. Flamant, D. Gombert, D. Guedalia, D. Kley, M. Lefèvre, B. Lossec, D. Martin, G. Mégie, P. Perros, M. Sicard, and G. Toupane, 2000 : Measurements and modelling of atmospheric pollution over the Paris area : an overview of the ESQUIF project, *Ann. Geophysicae*, **18**, 1467–1481.
- Michou, M., 2005 : *Modélisation du dépôt sec et des émissions d'espèces chimiques d'intérêt pour la qualité de l'air et pour la composition de la troposphère*, Ph.D. thesis, Université Toulouse III Paul Sabatier.
- Milford, J., D. Gao, S. Sillman, P. Blossey, and A. Russell, 1994 : Total reactive nitrogen (NOy) as an indicator of the sensitivity of ozone to reductions in hydrocarbon and NOx emissions, *J. Geophys. Res.*, **99**, 3533–3542.
- Nedelec, P., J. P. Cammas, V. Thouret, G. Athier, J. M. Cousin, C. Legrand, C. Abonnel, F. Lecoeur, G. Cayez, and C. Marizy, 2003 : An improved infra-red carbon monoxide

- analyser for routine measurements aboard commercial Airbus aircraft : Technical validation and first scientific results of the MOZAIC III program, *Atmospheric Chemistry and Physics*, pp. 1551–1564.
- Neftel, A., 1999 : Examples of the importance of trace gas measurements in the Milan ozone plume, *Anulusis*, **27**, 325–327.
- Nho-Kim, E.-Y., M. Michou, and V.-H. Peuch, 2004 : Parameterization of size dependent particle dry deposition velocities for global modeling, *Atmos. Environ.*, **38**(13), 1933–1942.
- Nho-Kim, E.-Y., A. Peuch, M. Plu, and V.-H. Peuch, 2003 : Développement du modèle MOCAGE de chimie atmosphérique à grande échelle, rapport final ADEME contrat n°9962018, Technical report, CNRM, Météo-France.
- Olivier, J., A. Bouwman, C. Van der Maas, J. Berdowski, C. Veldt, J. Bloos, A. Visschedijk, P. Zandveld, and J. Haverlag, 1996 : Description of EDGAR Version 2.0 : A set of global emission inventories of greenhouse gases and ozone-depleting substances for all anthropogenic and most natural sources on a per country basis and on $1^\circ \times 1^\circ$ grid, RIVM Rep 771060002/TNO MEP R96/119, RIVM, Bilthoven, The Netherlands.
- Peuch, A. and M. Plu, 2002 : Traitement statistique des prévisions déterministes de MOCAGE, Eipc 2001-2003 projet de climatologie, Ecole Nationale de la Météorologie.
- Peuch, V.-H., M. Amodei, T. Barthet, M.-L. Cathala, B. Josse, M. Michou, and P. Simon, 1999 : MOCAGE : MOdèle de Chimie Atmosphérique à Grande Echelle, in *Comptes-rendus des Ateliers de Modélisation de l'Atmosphère*, Centre National de Recherches Météorologiques, Toulouse.
- Peuch, V.-H., A. Dufour, and D. Martin, 2003 : La pollution, le temps et le "temps chimique", *Pollution Atmosphérique*, **179**, 361–367.
- Pilinis, C. and J. H. Seinfeld, 1988 : Development and evaluation of an eulerian photochemical gas-aerosol model, *Atmos. Environ.*, **22**, 1895–2001.
- Pradier, S., J. Attié, M. Chong, J. Escobar, V.-H. Peuch, J.-F. Lamarque, B. Khattatov, and D. Edwards, 2006 : Evaluation of 2001 springtime CO transport over West Africa using MOPITT CO measurements assimilated in a global chemistry transport model., *Tellus*, **B58**(3), 163–176.
- Queneau, R., 1959 : Zazie dans le métro, 195 pages.
- Reynolds, S., P. Roth, and J. Seinfeld, 1973 : Mathematical modeling of photochemical air pollution - I formulation of the model, *Atmos. Environ.*, **7**, 1033–1061.
- Richardson, L. F., 1922 : Weather prediction by numerical process, *Cambridge University Press, reprinted Dover, 1965*, 236 p..
- Robeson, S. and D. Steyn, 1990 : Evaluation and comparaison of statistical forecast models for daily maximum ozone concentrations, *Atmos. Environ.*, **24B**, 303–312.

- Said, F., U. Corsmeier, N. Kahltoff, C. Kottmeier, M. Lothon, A. Wieser, T. Hofherr, and P. Perros, 2005 : ESCOMPTE experiment : intercomparison of four aircraft dynamical, thermodynamical, radiative and chemical measurements, *Atmos. Environ.*, **74**, 217–252.
- Sarrat, C., 2003 : *Modélisation à l'échelle régionale de la pollution atmosphérique : application à la campagne ESQUIF*, Ph.D. thesis, Université Toulouse III Paul Sabatier.
- Schmidt, H., C. Derognat, R. Vautard, and M. Beekman, 2001 : A comparison of simulated and observed ozone mixing ratios for the summer of 1998 in Western Europe, *Atmos. Environ.*, **35**(36), 6277–6298.
- Schultz, M. and the Trace-P Science Team, 2002 : The NASA GTE TRACE-P Experiment Spring 2001 - Overview, in *EGS XXVII General Assembly, Nice, France, 22-26 April*.
- Schumann, U., 1989 : Large-eddy simulation of turbulent diffusion with chemical reactions in the convective boundary layer, *Atmos. Environ.*, **23**(8), 1713–1727.
- Seigneur, C., 2005 : Rédaction d'un cahier des charges préparatoire pour la réalisation d'un inventaire national spatialisé des émissions de polluants dans l'air. Rapport des travaux préalables, Technical Report Rapport n°CP188-05-0lc, Atmospheric & Environmental Research, Inc., 2682 Bishop Drive, Suite 120 San Ramon, Californie, Etats-Unis.
- Simpson, R. and A. Layton, 1983 : Forecasting peak ozone levels, *Atmos. Environ.*, **17**, 1649–1654.
- Slinn, S. A., 1982 : Predictions for particle deposition to vegetative canopies, *Atmos. Environ.*, **16**, 1785–1794.
- Solomon, P., E. Cowling, G. Hidy, and C. Furiness, 2000 : Comparison of scientific findings from major ozone field studies in North America and Europe, *Atmos. Environ.*, **34**, 1885–1920.
- Steyn, D. G., J. W. Bottenheim, and R. B. Thomson, 1997 : Overview of tropospheric ozone in the Lower Fraser Valley, and the PACIFIC 93 field study, *Atmos. Environ.*, **31**, 2025–2037.
- Stockwell, W., F. Kirchner, M. Khun, and S. Seefel, 1997 : A new mechanism for Regional Atmospheric Chemistry Modeling, *J. Geophys. Res.*, **102**(D22), 25847–25879.
- Teyssèdre, H., 2003 : La version climatique de MOCAGE, rapport de stage de fin d'études de l'ENM n°877, Technical report, Ecole Nationale de la Météorologie, Météo France.
- Tiedtke, M., 1981 : A comprehensive mass flux scheme for cumulus parametrization in large-scale models, *Mon. Wea. Rev.*, **117**, 1779–1800.
- Tulet, P., V. Crassier, F. Cousin, K. Suhre, and R. Rosset, 2005 : ORILAM, a three-moment lognormal aerosol scheme for mesoscale atmospheric model : Online coupling into the Meso-NH-C model and validation on the ESCOMPTE campaign, *J. Geophys. Res.*, **110**(D18), 201.

- Tulet, P., V. Crassier, F. Solmon, D. Guedalia, and R. Rosset, 2003 : Description of the mesoscale non hydrostatic chemistry model and application to a transboundary pollution episode between northern France and Southern England, *J. Geophys. Res.*, **108**(D1), 4021.
- Ulrickson, B. and C. Mass, 1990 : Numerical investigation of mesoscale circulations over the Los Angeles basin. Part II : Synoptic influences and pollutant transport, *Mon. Wea. Rev.*, **118**, 2162–2184.
- Vautard, R., M. Beekmann, J. Roux, and D. Gombert, 2001 : Validation of a deterministic forecasting system for the ozone concentrations over the Paris area, *Atmos. Environ.*, **35**, 2449–2461.
- Vautard, R., L. Menut, M. Beekmann, P. Chazette, P. Flamant, D. Gombert, D. Guedalia, D. Kley, M. Lefèvre, D. Martin, G. Mégie, P. Perros, and G. Toupance, 2003 : A synthesis of the air pollution over the Paris region (ESQUIF) field campaign, *J. Geophys. Res.*, **108**(D17), 8558.
- Volz-Thomas, A., H. Geiss, A. Hofzumahaus, and K. H. Becker, 2003 : Introduction to special section : Photochemistry experiment in BERLIOZ, *J. Geophys. Res.*, **108**(D4), 8252.
- Wayne, L., A. Kokin, and M. Weisburd, 1973 : Controlled evaluation of the Reactive Environmental simulation Model (REM), in *EPA Document No. R4-73-013a*, United States Environmental Protection Agency, NTIS Publication PB220456/8, volume I.
- Wesely, M. L., 1989 : Parameterization of surface resistances to gaseous dry deposition in regional-scale numerical models, *Atmos. Environ.*, **23**(6), 1293–1304.
- Wild, O. and M. J. Prather, 2006 : Global tropospheric ozone modeling : Quantifying errors due to grid resolution, *J. Geophys. Res.*, **111**(D11305).
- Williamson, D. L. and P. J. Rash, 1989 : Two-dimensional semi-lagrangian transport with shape-preserving interpolation, *Mon. Wea. Rev.*, **117**, 102–129.
- WMO, 1998 : Scientific assessment of ozone depletion, WMO report 44, World Meteorological Organisation.
- Xiao, H., G. Carmichael, J. Durnenwald, D. Thornton, and A. Bandy, 1997 : Long-range transport of SO_x and dust in East Asia during the PEM-B experiment, *J. Geophys. Res.*, **102**(D23), 28589–28612.
- Yamartino, R., J. Scire, G. Carmichael, and Y. Chang, 1992 : The CALGRID mesoscale photochemical grid model, *Atmos. Environ.*, **26A**, 1493–1512.
- Zeldin, M. and M. Thomas, 1975 : Ozone trends in the Eastern Los Angeles Basin corrected for meteorological variations, in *Proceedings of the International Conference on Environmental Sensing and assessment, Las Vegas, NV, September 14-19*.
- Ziomas, I., 1998 : The mediterranean campaign of photochemical tracers-transport and chemical evolution (MEDCAPHOT-TRACE) : an outline, *Atmos. Environ.*, **32**, 2045–2053.

Annexes

Annexe A

La fédération ATMO

La localisation des AASQA est donnée sur la figure 1.1.

Région	AASQA	Zone de compétence	Date de création	Date d'agr ^t
Alsace	ASPA	Alsace	1978	1999
Aquitaine	AIRAQ	Aquitaine	1995	1999
Auvergne	ATMO Auvergne ¹	Auvergne	1986*	1999
Bourgogne	ATMOSF AIR Bourgogne Nord ATMOSF AIR Bourgogne Sud	Yonne, Nièvre Côte d'Or Saône et Loire	1979 1994	1999
Bretagne	AIR BREIZH ²	Bretagne	1987*	1999
Centre	LIGAIR	Centre	1996	1999
Champagne-Ardennes	ARSQA	Champagne Ardennes	1998	1998
Corse	QUALITAIR CORSE	Corse	2003	2005
Franche-Comté	ARPAM ASQAB	Montbéliard, Territoire de Belfort, Haute-Saône Doubs, Jura	1975 1985	1999
Ile-de-France	AIRPARIF	Ile de france	1979	1999
Languedoc-Roussillon	AIR-LR ³	Languedoc-Roussillon	1973*	1999
Limousin	LIMAIR	Limousin	1996	1999
Lorraine	AIRLOR ESPOL AERFOM	Meurthe-et-Moselle sud, Meuse, Vosges, Sud de la Moselle Est de la Moselle Vallées de la Fensch, de l'Orne et de la Moselle	1992 1980 1977	1999 1999 1986
Midi-Pyrénées	ORAMIP ⁴	Midi-Pyrénées	1976*	1999
Basse-Normandie	AIR COM ⁵	Basse-Normandie	1976*	2000
Haute-Normandie	AIR NORMAND ⁶	Haute-Normandie	1974*	1999

Région	AASQA	Zone de compétence	Date de création	Date d'agr ^t
Nord-Pas-de Calais	AREMARTOIS	Arras, Béthune, Lens	1990	1999
	AREMA-LM	Lille	1999	1999
	AREMASSE	Avesnes, Cambrai, Douai, Valencienne	1996	1999
	OPAL'AIR	Flandre, Côte d'opale	1998	1999
Pays de la Loire	AIR Pays de la Loire	Pays de la Loire	1980	1999
Picardie	ATMO Picardie	Picardie	1978	1999
Poitou-Charentes	ATMO Poitou-Charentes ⁷	Poitou-Charentes	1976*	2000
PACA	AIRFOBEP	W Bouches-du-Rhône et Etang de Berre	1972	1999
	AIRMARAIX	E Bouches-du-Rhône, Vaucluse et Var	1982	1999
	QUALITAIR	Nice		1999
Rhôle-Alpes	L'AIR DE L'Ain et des pays de Savoie	Savoie et Haute-Savoie	1995	2000
	SUPAIRE	Nord de l'Isère	1990	1999
	AMPASEL	Loire	1991	1999
	COPARLY	Rhône et 14 communes de l'Ain	1979	1999
	ASQUADRA	Drôme et Ardèche	1997	1999
	ASCOPARG	Grenoble	1976	1999
Outre-Mer	ORA	Réunion	1998	1998
	GWAD'AIR	Guadeloupe	2000	2001
	MADINAIR	Martinique	1998	1998
	ORA	Guyane	1998	1998

TABLEAU A.1 – Liste, zone de compétence et date de création des AASQA ainsi que leur première date d'agrément au sein de la fédération ATMO.

Historiquement, les changements de noms et les regroupements de structures ont été nombreux. Dans la mesure du possible, la date de création tient compte de l'existence d'une structure relative à la surveillance de la qualité de l'air dans la région tandis que la première date d'agrément est celle de la structure que l'on connaît aujourd'hui au sein de la fédération ATMO. De telles interprétations sont relayées par les notes de bas de page et les astérisques sur les dates de création. Ces informations ont été compilées par F. Chéroux en 2006 sur la base des publications au Journal Officiel et des sites web de chacune des AASQA.

¹ ATMO Auvergne : AMPAC de 1986 à 1999

² AIR-LR : AMPA de 1973 à 1975 ; puis AMPADI LR de 1975 à 1999

³ ORAMIP : AREMP (Toulouse puis département 31) de 1976 à 1991

⁴ AIR COM : ESPAC (Caen puis département 14) de 1976 à 2000

⁵ AIR NORMAND : ALPA + REMAPPA qui existent depuis 1974

⁶ AIR BREIZH : ASQAR (Rennes puis département 35) de 1987 à 1996

⁷ ATMO Poitou-Charentes : 1976 AMPALR (La Rochelle), AREQUA (région PC) 1994-2000

Annexe B

Indicateurs statistiques utilisés

Soient $P_{i,i=1,N}$ les N valeurs prévues, et $R_{i,i=1,N}$ les N valeurs observées, on définit alors les différents indicateurs comme suit.

- BIAIS

$$\overline{P - R} = \frac{1}{N} \sum_{i=1}^N (P_i - R_i)$$

- CORRÉLATION

$$\overline{P - R} = \frac{\overline{XY} - \overline{X} \overline{Y}}{\sqrt{(X - \overline{X})^2} \sqrt{(Y - \overline{Y})^2}}$$

- ERREUR QUADRATIQUE MOYENNE (EQM)

$$\sqrt{\overline{(P - R)^2}}$$

- ECART TYPE (ECT)

$$\sqrt{\overline{(P - R)^2} - \overline{(P - R)}^2}$$

- VARIANCE

$$ECT^2$$

- F-RATIO (APPELÉ "VARIABILITÉ")

$$\frac{Var_{mod}}{Var_{obs}} = \frac{ECT_{mod}^2}{ECT_{obs}^2}$$

• FIGURE OF MERIT (FOM) OU TAUX DE RECOUVREMENT

Soit $(fo_j \text{ et } fp_j)_{j=1,NC}$ les fréquences observée et prévue pour NC classes de concentrations.

$$FOM = 100 - \sum_{j=1}^{NC} |fo_j - fp_j|$$

• TABLE DE CONTINGENCE

Les tables de contingence et leurs scores associés sont définis par rapport à un seuil.

Soient $o1p1$ le nombre de réussites (bonnes prévisions de dépassement de seuil), $o0p1$ celui de fausses alarmes, $o1p0$ celui de non détections de dépassement et $o0p0$ celui de rejet correct.

OBS/PREV	Prev $\geq 180\mu\text{g}/\text{m}^3$	Prev $< 180\mu\text{g}/\text{m}^3$	Total
Obs $\geq 180\mu\text{g}/\text{m}^3$	$o1p1$	$o1p0$	$O1$
Obs $< 180\mu\text{g}/\text{m}^3$	$o0p1$	$o0p0$	$O0$
Total	$P1$	$P0$	N

A ces tables sont associées un certain nombre de scores synthétiques qui permettent de les interpréter. La lecture de la table est en elle-même informative : la comparaison des cumuls en lignes et colonnes permet de vérifier si la "climatologie" du modèle est bonne. La répartition des données dans la table permet une analyse plus fine, en particulier en examinant les valeurs qui s'écartent de la diagonale.

Les scores associés aux tables de contingences utilisés dans ce manuscrit sont les suivants :

• TAUX DE BONNES PRÉVISIONS (TBP)

$$(R\acute{e}ussites+Rejets)/Somme totale , en pourcentage \\ TBP = (o1p1 + o0p0)/N$$

Varie de 0 à 100
score parfait=100.

• TAUX DE DÉTECTION (TD)

Mesure la proportion de jours pollués observés correctement prévus
S'examine avec le taux de fausses alarmes.

$$\text{Réussites / (Total Obs} > 180\text{)} , \text{en pourcentage} \\ TD = 100 \times o1p1/O1$$

Varie de 0 à 100,
score parfait=100.

- TAUX DE FAUSSES ALARMES (TFA)

Mesure la proportion de jours pollués simulés à tort
S'examine avec le taux de détection.

$$\text{Non détection} / (\text{Total Prev} > 180) \text{ , en pourcentage}$$

$$TFA = 100 \times o0p1/P1$$

Varie de 0 à 100,
score parfait=100.

- THREAT SCORE (TS)

Caractérise les détections et les fausses alarmes des prévisions.

$$\text{Réussites}/(\text{Réussites} + \text{Fausses alarmes} + \text{Manqués})$$

$$TS = o1p1/(o1p1 + o0p1 + o0p2)$$

Varie de 0 à 1
score parfait=1

- EQUITABLE THREAT SCORE (ETS)

Caractérise les prévisions du phénomène correctes par rapport à la chance

$$(\text{Réussites} - \text{Réussites}_{aleatoire}) / (\text{Réussites} + \text{Manqués} + \text{Fausses alarmes} - \text{Réussites}_{aleatoire})$$

$$\text{Réussites}_{aleatoire} = O1 \times P1 / N$$

$$ETS = (o1p1 - (O1.P1)/N) / (O1 + o0p1 - (O1.P1)/N)$$

Varie de -1/3 à 1, score parfait=1, mauvaise capacité de prévision=0.

- INDICE DE HEIDKE OU HEIDKE SKILL SCORE (HSS)

Caractérise toutes les bonnes prévisions par rapport à la chance

$$(\text{Prévis correctes} - \text{Prévis}_{aleatoire} \text{ correctes}) / (\text{Total} - \text{Prévis}_{aleatoire} \text{ correctes})$$

$$\text{Prévis}_{aleatoire} \text{ correctes} = (O1 \times P1 + O2 \times P2) / N$$

$$HSS =$$

$$(o1p1 + o0p0 - (O1.P1 + O2.P2)/N) / (N - (O1.P1 + O2.P2)/N)$$

Varie de $-\infty$ à 1
score parfait = 1 , score du hasard=0 et score < 0 si la prévision est moins bonne que le hasard.

- INDICE DE ROUSSEAU

Identique à l'indice de Heidke, mais par rapport à la persistance

Annexe C

La campagne ESCOMPTE

C.1 Précisions et incertitudes des moyens de mesure

	Plate-forme	Précision de la mesure	Incertitude globale de la mesure Erreur maximale / Valeur moyenne
Ozone	Stations sol	2 ppb	20%
	RS	2 ppb	20%
	LIDAR	2 ug/m ³	20%
	Arat	5 ppb	Problèmes sur les sondages verticaux
	Aztec	5 ppb	Problèmes sur les sondages verticaux
	Dornier	5 ppb	Problèmes sur les sondages verticaux
	Merlin	5 ppb	Problèmes sur les sondages verticaux
NO	Stations sol	2 ppb	15%
	Airplane Mona	0.5 ppb	dérive de ~ 6% / semaine pour certains instruments
	Airplane NOxTOy	2 ppb	
NO ₂	Stations sol	2 ppb	15%
	Airplane Mona	0.5 ppb	dérive de ~ 6% / semaine pour certains instruments
	Airplane NOxTOy	1 ppb	
SO ₂	Stations sol	2 ppb	15%
H ₂ O ₂	Stations sol	LD : 20 ppt	15%
RCHO	/	LD : 0.25 ppb	15%
CO	Stations sol	0.2 ppm	/
VOC	NMHC CPG/FID, SM, ECD	> 100 ppt : 20% < 100 ppt : 50% < 50 ppt : 100%	/

TABLEAU C.1 – *Synthèse de la précision et des incertitudes des mesures de composés chimiques durant la campagne ESCOMPTE. Source : Frejafon et al. (2005) et Said et al. (2005)*

C.2 Polluants mesurés et méthode de mesure pour le site chimique spécifique de Réaltor de la campagne ESCOMpte

La localisation du site est donnée sur la figure 3.1. Il est situé sur un plateau à quelques kilomètres au nord-est du site industriel de l'Etang de Berre et au nord-ouest de Marseille. Suivant la direction des vents, ce site est donc représentatif de l'émission moyenne de l'important pôle industriel de Berre ou de l'agglomération marseillaise. En phase gazeuse, les espèces dosées seront O_3 , NO/NO_2 , NO_y , PAN, HNO_3 , HONO, SO_2 , les COV, les RCHO et les RO_2O . Une mesure de j_{NO_2} a également été effectuée, ainsi que des mesures météorologiques.

Les laboratoires responsables des analyses de la phase gazeuse seront le BTU de Cottbus et le LCE.

Fiche technique.

RCHO : Prélèvement par chambre à brouillard et analyse par HPLC-UV, fréquence d'analyse : 2 heures. Composés analysés : formaldéhyde, acétaldéhyde, acroleine, propionaldéhyde, crotonaldéhyde, butyraldéhyde, benzaldéhyde, glyoxal, valeralaldéhyde.

Hydroperoxyde : Prélèvement en phase aqueuse sur un tube à écoulement, analyse par HPLC-Fluorescence, limite de détection 0,1 ng/m³, fréquence d'analyse : 8 heures.

C.3 Exercice de modélisation ESCOMPTE

C.3.1 Etude quantitative de la variabilité du champs d'ozone

Pour chaque POI, les tableaux suivants donnent la variance observée en deuxième colonne puis le rapport entre l'écart-type des concentrations d'ozone observées et modélisées pour les différentes simulations comprises dans l'exercice de modélisation (voir la signification des acronymes dans le tableau 3.4) :

- §C.3.1, pour 7 zones de la région en surface sur l'ensemble des jours de la POI concernée (voir figure C.1), chaque zone regroupant plusieurs sites de mesure sauf la Zone 1 qui n'en comporte qu'une seule ;
- §C.3.1, pour chacune des trajectoires des moyens mobiles (indiqués en première colonne).

Ces tableaux sont issus du rapport final de l'exercice d'intercomparaison (Brocheton and Peuch (2006)).

On a représenté par un surlignage en couleur la sur-estimation (en rouge) ou la sous-estimation (en bleu) de la variance des simulations par rapport à la variance des observations :

- pour les stations fixes : $\pm 20\%$
- pour les moyens mobiles : $\pm 50\%$

Le modèle MOCAGE a fourni deux simulations : **M.1** qui correspond (modulo l'utilisation du cadastre spécifique) à la version opérationnelle de l'été 2004 et **M.2** à celle de 2001.

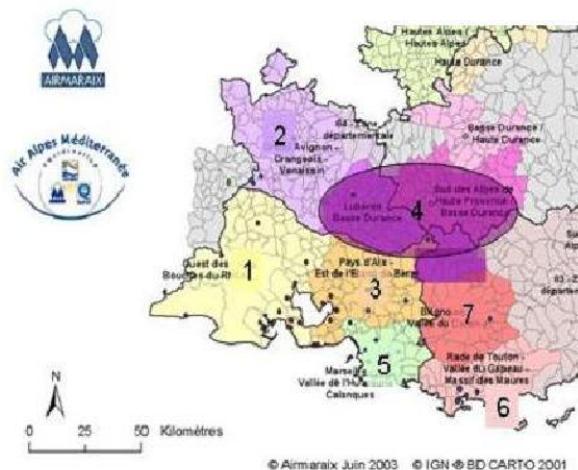


FIGURE C.1 – Zonage du domaine en régions climatologiquement homogènes

Comparaison des variances observées et modélisées : Stations fixes regroupées par zone

	Obs.	M.1	M.2	A	C.1	C.A	Map	MC2	MNH	RM1	RM2	RRa	UT1	UT2	Pol	RC1	RC2	C.2
Z 1	17.02	1.31	1.39	1.16	1.16	1.37				1.54	3.58	2.41						1.13
Z 2	20.61	1.56	1.70	1.59	1.61	1.79				1.35	4.31	3.22						1.96
Z 3	19.66	1.20	1.25	1.14	1.12	1.42				1.76	4.54	3.78						1.23
Z 4	12.88	.82	.87	1.59	1.59	1.82				1.11	2.33	2.22						1.60
Z 5	20.31	1.47	1.51	1.19	1.14	1.39				1.84	3.50	2.72						1.23
Z 6	19.85	1.92	2.11	1.91	2.08	1.84				2.51	3.05	2.45						1.61
Z 7	7.08	.42	.49	.85	1.01	.83				.71	1.28	.90						.87

TABLEAU C.2: *Rapport des variances obs/mod POI1 Stations fixes*

	Obs.	M.1	M.2	A	C.1	C.A	Map	MC2	MNH	RM1	RM2	RRa	UT1	UT2	Pol	RC1	RC2	C.2
Z 1	14.55	.90	.81	1.00	1.05	.80	.54	.98	.77	.83	1.31	2.08	.82	.99	1.34	1.05	1.28	1.18
Z 2	9.52	.93	.77	.89	.96	.66	.61	1.09	1.27	.49	1.19	3.35	1.07	.91	1.82	.70	.76	1.32
Z 3	18.81	.99	.90	1.11	1.19	.97	.75	1.68	.95	1.08	1.72	2.42	1.01	1.28	1.37	1.35	1.60	1.47
Z 4	13.52	.85	.72	1.64	2.07	1.51	1.12	1.76	1.63	1.17	1.60	3.51	1.57	1.78	2.31	1.51	1.25	1.51
Z 5	23.65	1.26	1.14	1.24	1.18	1.11	.78	1.67	1.24	1.40	2.33	2.82	.94	1.37	1.23	1.64	2.00	1.55
Z 6	22.05	1.20	1.19	1.56	1.61	1.43	1.06	1.67	1.38	1.44	2.32	2.22	1.11	1.50	1.31	1.84	2.71	1.89
Z 7	11.22	.51	.44	1.01	1.14	.89	.85	.75	.92	.94	1.36	1.61	.91	.83	1.24	1.55	1.39	1.08

TABLEAU C.3: *Rapport des variances obs/mod POI2a Stations fixes*

	Obs.	M.1	M.2	A	C.1	C.A	Map	MC2	MNH	RM1	RM2	RRa	UT1	UT2	Pol	RC1	RC2	C.2
Z 1	20.90	.97	.94	.91	.92	1.40	1.00	.87	.91	1.24	1.38	1.55	1.24	1.15	1.51	1.19	1.15	.94
Z 2	24.03	1.60	1.43	1.26	1.53	1.13	1.47	1.00	1.53	1.10	1.50	1.92	2.18	1.34	1.56	1.76	1.81	1.50
Z 3	24.19	.93	.96	.89	.95	1.09	1.03	.83	1.05	1.32	1.78	1.62	1.26	1.30	1.36	1.39	1.35	.90
Z 4	27.28	1.01	1.05	1.56	1.67	1.63	2.07	.98	2.18	1.78	1.95	2.13	2.13	1.84	1.65	2.16	2.09	1.46
Z 5	21.66	1.01	.96	.87	.82	1.18	.69	.89	1.04	1.43	1.97	1.68	.97	1.06	1.28	1.12	1.34	.93
Z 6	19.06	1.13	1.09	1.01	1.00	1.11	1.55	.99	1.14	1.23	1.69	1.54	1.16	1.13	1.18	1.31	1.80	1.27
Z 7	9.18	.36	.32	.47	.48	.81	.69	.29	.71	.53	.67	.54	.59	.51	.52	.71	.81	.44

TABLEAU C.4: *Rapport des variances obs/mod POI2b Stations fixes*

	Obs.	M.1	M.2	A	C.1	C.A	Map	MC2	MNH	RM1	RM2	RRa	UT1	UT2	Pol	RC1	RC2	C.2
Z 1		1.05	.91	.87	.90	1.23	.77	.87	1.03	1.43	2.37	2.05	1.12			1.02		
Z 2		.97	.83	1.02	1.20	1.04	.98	.80	1.24	1.03	1.64	1.39	1.44		1.26			
Z 3		1.18	1.09	.98	1.04	1.19	.81	1.08	1.07	1.82	2.61	2.54	1.12		1.13			
Z 4		.96	.88	1.19	1.43	1.45	1.19	.97	1.53	1.27	1.63	1.37	1.29		1.31			
Z 5		1.34	1.28	.93	.90	1.37	.69	1.08	1.05	1.86	2.45	2.53	1.01		1.18			
Z 6		1.43	1.36	1.19	1.25	1.50	1.09	1.00	1.22	1.71	2.21	2.62	1.42		1.30			
Z 7		.55	.55	.55	.65	.75	.56	.36	.64	.67	.79	.93	.80		.59			

TABLEAU C.5: *Rapport des variances obs/mod POI3 Stations fixes*

	Obs.	M.1	M.2	A	C.1	C.A	Map	MC2	MNH	RM1	RM2	RRa	UT1	UT2	Pol	RC1	RC2	C.2
Z 1	13.97	1.04	.74	.98	1.01	1.11				.83	1.02	1.30					1.22	
Z 2	14.79	.91	.77	1.11	1.15	1.22				.97	1.75	1.96					1.46	
Z 3	16.87	.90	.71	.95	1.04	1.06				.92	1.29	1.56					1.29	
Z 4	15.89	1.04	.83	1.39	1.51	1.55				1.24	1.78	1.83					1.96	
Z 5	15.19	.97	.69	.87	.91	.88				.88	1.12	1.40					1.20	
Z 6	12.74	.95	.84	1.05	1.05	1.00				.82	1.05	1.10					1.27	
Z 7	13.83	.60	.63	1.01	1.02	.92				.92	1.42	1.05					1.00	

TABLEAU C.6: *Rapport des variances obs/mod POI4 Stations fixes*

Comparaison des variances observées et modélisées : Moyens mobiles

,

	Obs.	M.1	M.2	A	C.1	C.A	Map	MC2	MNH	RM1	RM2	RRa	UT1	UT2	Pol	RC1	RC2	C.2
BOAT-FERRY	9.94	.91	4.92	.80	.86	.58				2.00	2.15	1.97						.87
BOAT-FERRY	5.30	1.08	1.51	.56	.40	.47				3.07	1.01	1.07						.40
AZTEC 26.85	6.92	9.86	23.07	16.00	11.34					10.36	24.99	14.87						19.91
AZTEC 15.05	1.82	1.78	2.85	3.80	2.49					1.61	5.63	2.80						2.28
ARAT	9.75	1.21	1.07	2.90	2.79	3.02				2.14	3.47	2.17						2.64
ARAT	8.38	2.27	2.60	3.71	3.75	3.86				3.87	2.32	1.09						3.15
DORNI	3.72	.76	1.03	.84	.74	1.43				1.48	1.56	1.02						.96
MERLIN 5.14	2.44	2.15	3.66	4.40	3.39					1.93	5.03	3.39						2.58
MERLIN 2.35	3.39	4.48	16.81	15.31	18.58					13.02	8.76	4.88						12.47

TABLEAU C.7: Rapport des variances obs/mod POI1 Moyens mobiles

	Obs.	M.1	M.2	A	C.1	C.A	Map	MC2	MNH	RM1	RM2	RRa	UT1	UT2	Pol	RC1	RC2	C.2	
BOAT-FERRY	5.94	.69	1.66	.70	.67	1.19				1.47	3.36	2.08	.41				.89	.61	.62
BOAT-FERRY	4.51	1.09	.77	.61	.40	.39				2.50	1.51	1.58	1.14	.81			.67	.68	.76
AZTEC 18.84	1.61	1.51	1.73	2.37	1.47					1.64	10.92	12.82	1.48				1.30	1.55	3.24
AZTEC 14.20	1.52	1.97	2.41	2.91	1.78					1.06	6.03	11.04	1.77	1.70			1.24	1.42	2.16
AZTEC 8.68	1.34	1.46	2.92	2.15	2.90					1.48	1.92	3.87	1.39	1.37			3.75	3.62	2.61
ARAT	6.29	.73	1.01	1.32	2.29	1.51				.68	1.20	3.56	.68	.84			.63	.79	1.32
ARAT	3.97	2.47	.72	1.58	2.30	1.58				.82	.67	1.85	1.08	1.15			.83	2.42	2.01
ARAT	11.58	1.46	.88	2.11	1.92	2.23				1.42	2.49	1.60	1.92	2.33			4.10	3.62	3.41
DORNI	7.76	.97	.53	1.09	1.00	1.19				1.57	2.09	1.71	1.14				1.87	1.99	1.24
DORNI	1.18	1.18	1.57	1.47	1.28					1.27	2.30	3.47	1.78	2.53			6.33	5.57	6.26
MERLIN 2.60	1.25	1.17	2.29	2.61	1.73					1.23	3.43	7.24	1.57				1.32	1.73	3.05
MERLIN 1.66	2.30	.96	2.32	1.99	1.16					1.21	2.38	2.67	2.19	2.42			4.32	5.12	2.94

TABLEAU C.8: Rapport des variances obs/mod POI2a Moyens mobiles

	Obs.	M.1	M.2	A	C.1	C.A	Map	MC2	MNH	RM1	RM2	RRa	UT1	UT2	Pol	RC1	RC2	C.2
BOAT- FERRY	3.09	.18	1.07	1.09	.78	1.12				.37	1.07	.80	.77	.37		.52	.39	.25
BOAT- FERRY	4.80	.46	.77	.52	.48	.51				1.07	1.09	1.09	.93	.55		.64	.42	.33
BOAT- FERRY	4.64	.67	1.18	.34	.28	.54				2.19	2.26	2.82	.88	.63		.57	.47	.42
BOAT- FERRY	4.30	1.31	.83	.33	.27	.43				3.42	.46	2.70	.80	.83		.58	.33	.32
BOAT- FERRY	7.21	3.98	3.58	1.08	.68	.92				2.70	1.55	1.91	1.03			1.53	1.18	.68
BOAT- FERRY	8.70	1.13	1.67	1.47	.84	.70				2.68	1.64	2.71	1.14			1.03	1.07	.40
AZTEC	8.22	.73	.75	.98	1.57	.67				1.03	1.87	7.59	1.16	.69		.71	.72	1.26
AZTEC	12.68	1.25	1.22	2.07	1.59	1.79				1.23	1.62	1.36	1.63	1.50		3.22	2.45	1.46
AZTEC	14.94	1.54	1.26	1.59	1.88	1.46				1.90	2.22	2.10	2.46	1.48		1.67	1.96	2.71
AZTEC	27.72	1.22	1.00	1.97	2.19	2.19				2.60	3.00	2.28	2.65	1.54		3.69	7.26	1.92
AZTEC	13.37	1.78	2.98	1.27	1.71	1.20				1.25	1.53	2.33	1.51			1.44	1.67	1.52
AZTEC	16.21	2.40	2.41	1.62	1.62	1.25				2.64	2.07	1.79	4.08			1.13	5.44	4.09
ARAT	7.82	1.05	.96	1.00	1.12	1.00				.93	.98	3.97	1.83	1.84		.91	.96	1.04
ARAT	17.44	.86	.81	2.45	2.48	1.26				1.78	2.53	1.97	2.23	2.69		6.08	4.52	1.22
ARAT	8.75	.81	.66	1.13	1.08	1.04				1.29	1.39	1.49	1.00	1.01		.95	1.05	1.03
ARAT	14.19	.84	.79	1.49	1.70	1.73				1.39	2.36	1.09	2.23	2.56		2.06	2.55	1.13
ARAT	9.27	1.27	1.28	.93	1.07	1.14				1.07	1.41	1.54	.78			.94	1.01	.78
ARAT	15.03	.89	1.02	1.26	1.10	1.26				2.12	2.14	1.71	2.08			2.26	3.18	1.13
DORNIER4	.42	.43	.66	.58	.82					.60	1.23	1.17	1.47	1.21		1.43	1.30	.62
DORNIER81	1.89	1.18	1.04	1.08	1.24					2.04	2.19	1.66	2.40	2.15		2.54	2.97	2.47
DORNIER65	.70	.69	.77	.82	1.02					3.52	3.43	3.45	2.66			4.11	3.10	1.02
MERLIN1.89	.94	.93	1.65	1.59	1.05					1.23	1.81	1.45	2.12	2.37		2.35	1.99	1.13
MERLIN8.51	2.23	1.37	1.54	1.56	2.05					2.16	1.97	1.68	2.46	2.46		3.53	3.44	3.22
MERLIN4.96	1.18	1.21	1.20	.98	1.15					2.58	2.20	1.68	2.43			2.14	2.95	1.29

TABLEAU C.9: Rapport des variances obs/mod POI2b Moyens mobiles

	Obs.	M.1	M.2	A	C.1	C.A	Map	MC2	MNH	RM1	RM2	RRa	UT1	UT2	Pol	RC1	RC2	C.2
BOAT-FERRY		1.52	1.25	.79	.72	.89				1.43	2.64	2.42	.63					
BOAT-FERRY		1.21	1.43	.34	.32	.33				.90	1.82	1.76	.85					
AZTEC		2.06	2.04	2.07	2.08	2.72				1.07	1.39	.97	1.90					
AZTEC		1.02	.92	2.66	2.67	3.78				1.53	2.01	1.63	2.56					
AZTEC		.95	.81	1.75	1.97	1.47				1.98	2.44	1.97	2.15					
AZTEC		1.55	1.10	1.19	1.71	3.07				1.41	2.19	3.02	1.88					
AZTEC		.87	.95	2.26	2.46	2.68				2.04	1.56	2.04	2.22					
ARAT		.77	.72	1.28	1.16	1.03				1.11	1.58	.86	1.25					
ARAT		1.87	1.14	.79	.90	1.47				.96	1.42	1.36	1.23					
ARAT		1.15	1.38	2.38	2.52	2.03				1.46	1.84	1.42	1.96					
ARAT		.97	.71	.91	1.23	2.13				.79	.85	1.32	1.24					
ARAT		.85	.90	1.25	1.70	1.72				1.50	1.60	1.57	2.36					
MERLIN		1.15	1.08	3.04	1.82	1.59				1.56	1.86	1.14	1.56					
MERLIN		.82	.78	2.39	2.37	2.86				1.16	1.34	1.54	2.18					
MERLIN		3.93	2.37	2.64	3.74	5.54				2.86	3.14	5.08	4.72					
MERLIN		1.70	2.50	2.81	3.08	4.02				2.50	1.99	2.21	3.83					

TABLEAU C.10: *Rapport des variances obs/mod POI3 Moyens mobiles*

	Obs.	M.1	M.2	A	C.1	C.A	Map	MC2	MNH	RM1	RM2	RRa	UT1	UT2	Pol	RC1	RC2	C.2
ARAT	10.03	.75	.74	1.97	1.63	1.53				1.40	.90	1.04					2.15	
ARAT	5.11	.78	.83	2.13	2.13	2.04				2.26	.76	1.03					1.00	
ARAT	5.44	.83	.73	1.68	1.96	2.30				1.07	.59	.71					1.60	
ARAT	8.11	1.80	1.27	3.92	4.20	3.34				3.35	1.93	2.38					2.96	
ARAT	6.92	.88	.96	2.33	2.42	2.32				1.41	1.75	1.45					1.41	
ARAT	9.43	.83	.77	2.81	3.29	1.96				1.64	1.58	2.28					1.79	
MERLIN4.14	.96	.85	1.54	1.98	1.76					2.55	1.89	1.17					2.14	
MERLIN0.07	1.24	1.43	5.25	5.13	4.21					3.92	1.82	2.07					2.63	
MERLIN7.99	1.85	2.70	1.19	1.54	1.22					.75	2.67	2.87					2.12	
MERLIN1.13	1.64	2.26	2.13	2.60	2.10					1.38	3.29	3.55					2.79	
MERLIN0.10	.89	.81	3.97	3.90	3.50					1.47	1.98	1.63					2.32	

TABLEAU C.11: *Rapport des variances obs/mod POI4 Moyens mobiles*

Annexe D

Les modèles météorologiques forceurs

ARPEGE (Action de Recherche Petite Echelle et Grande Echelle) et ALADIN (Aire Limitée, Adaptation dynamique, Développement InterNational) sont les deux modèles opérationnels de prévision du temps de Météo-France dont nous avons utilisé les champs, à la fois les analyses et les prévisions jusqu'à 96 heures d'échéances.

ARPEGE est un **modèle global** à grille étirée en équations primitives dont la dynamique est traitée dans l'espace spectral. Sa **Résolution spatiale** est en troncature triangulaire T358 avec un facteur d'étirement de 2,4. La résolution équivalente sur une grille non étirée varie de T859 sur la France (soit une maille en point de grille de 23 km) à T149 sur la Nouvelle-Zélande (maille de 133 km) ; elle est représentée en isolignes sur la figure D.1. La verticale (de 17 m à 1 hPa) est décrite par 41 niveaux hybrides de type (σ, P). Son **pas de temps** est de 982 secondes (~ 16 minutes).

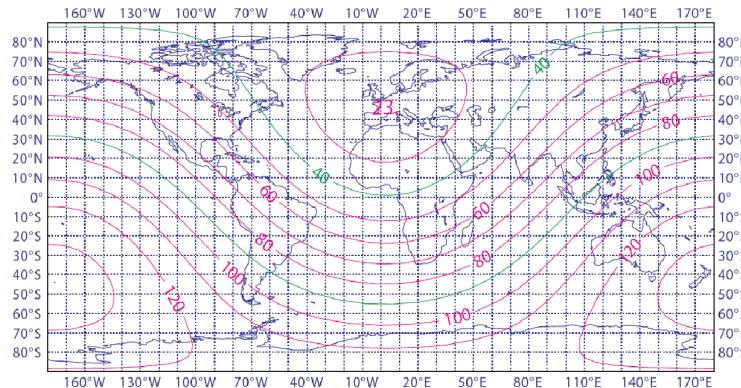


FIGURE D.1 – Résolution horizontale kilométrique équivalente d'ARPEGE sur une grille non étirée. Il s'agit de la version en troncature 358 avec un facteur d'étirement 2,4. Source : Equipe COMPAS.

ALADIN est la version à **aire limitée** d'ARPEGE. Son domaine est un carré de 2800 km de côté, centré sur la France. Il utilise toutes les 3 heures les prévisions d'ARPEGE comme **conditions initiales et aux frontières** et possède son propre cycle d'assimilation depuis l'été 2005. Sa **Résolution spatiale** est en troncature elliptique E149x149 équivalant à une troncature triangulaire T2023 ou à une maille de 9,5 km. Sa structure verticale est la même qu'ARPEGE. Son **pas de temps** est de 415 secondes (~ 7 minutes).

Le contrôle

Les sorties des deux modèles sont évaluées par le service COMPAS de la Direction de la Production de Météo-France.

Nous avons dans le manuscrit utilisé les scores à 12HTU pour les paramètres en surface de pression au niveau de la mer (Pmer), température, humidité, force et direction du vent ainsi que les précipitations et la nébulosité. Le domaine géographique de comparaison est (41°Nord - 52°Nord / 5°Ouest - 10°Est). Les scores sont calculés par rapport aux stations synoptiques et Radôme dont la couverture spatiale est documentée figure D.2.

Les stations Radôme sont des stations Françaises automatiques qui envoient des messages type "RADOME" à cadence horaire. Elles mesurent les paramètres sol dont la température, l'humidité à 2 mètres, la force et la direction du vent à 10 mètres et les précipitations cumulées sur 6 heures. Il n'y a pas de mesures de Pmer et de nébulosité. Elles sont de l'ordre de 1100.

Les stations synoptiques sont des stations météorologiques (observateur humain : Centre Départemental de la Météorologie et sémaphore) qui transmettent des messages type OMM : "SYNOP". Dans ces messages, on peut extraire les paramètres sols dont la température, l'humidité à 2 mètres, la force et la direction du vent à 10 mètres, la Pmer, la nébulosité et les précipitations cumulées sur 6 heures. Pour la vérification, toutes les stations qui n'ont pas un flag de qualité correct (calculé tous les jours par le modèle) sont rejetées. La comparaison à ces observations s'effectue avec le point du modèle le plus proche.

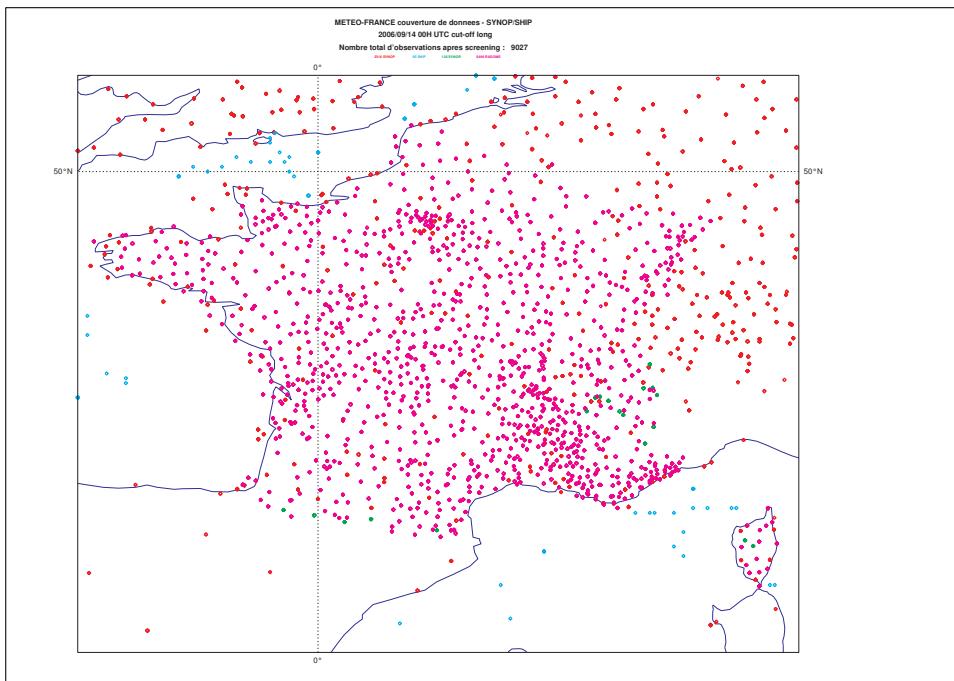


FIGURE D.2 – Couverture de données météorologiques au sol relative aux réseaux SYNOP (en rouge), RADOME (en rose), SYNOR (en vert) et SHIP (en bleu) (exemple du 14/09/2006 : 2316 messages SYNOP, 6496 messages RADOME, 120 messages SYNOR et 95 messages SHIP) Source : H. Bénichou (Météo-France/DP/COMPAS).

Annexe E

**L'épisode de la canicule d'août 2003
vu en temps réel par les prévisions de
MOCAGE**

DOCUMENTS

La pollution, le temps et le « temps chimique »

Vincent-Henri PEUCH***, Anne DUFOUR*, Daniel MARTIN*

Le « temps chimique » dépend du temps qu'il fait. En d'autres termes, les niveaux de concentration des polluants dans l'atmosphère sont intimement reliés à la météorologie : transport ou accumulation à grande échelle de polluants, rayonnement et températures, stabilité verticale... L'été caniculaire 2003 et la pollution photochimique exceptionnelle associée en sont une illustration récente. On n'imagine plus aujourd'hui la météorologie sans l'apport de modèles numériques ; mis en œuvre dans des conditions opérationnelles, ils sont aujourd'hui un maillon essentiel du processus de veille, d'alerte et de protection des personnes et des biens. Concevoir un système similaire pour la composition chimique de l'atmosphère, tel est l'enjeu du projet MOCAGE (Modèle de chimie atmosphérique à grande échelle de Météo-France), initié en 1999 et qui connaît peu d'équivalents dans le monde. En effet, la particularité de ce modèle, développé à Météo-France avec le soutien de l'ADEME, est de prendre en compte le problème de la pollution dans toute sa généralité, depuis l'échelle planétaire jusqu'à l'échelle nationale. MOCAGE présente aujourd'hui le potentiel pour fournir en temps réel une information environnementale « brute » pour les décideurs et les AASQA, qui peut être ensuite finalisée

par la prévision d'échelle fine, par des traitements statistiques ou par une expertise humaine locale.

Une canicule exceptionnelle sur la France et l'Europe

Le terme de « canicule exceptionnelle », largement relayé dans les médias, n'est pas inapproprié pour caractériser les conditions météorologiques de l'été 2003 : c'est l'été le plus chaud que la France ait connu ces 50 dernières années, tant pour les températures minimales que pour les maximales (Figure 1). Il est plus chaud d'au moins 1,5 °C pour les températures maximales que les trois derniers étés les plus chauds (1976, 1983 et 1994) ; il est plus chaud de 3,5 °C pour les températures minimales que la moyenne climatologique de 1950 à 1980, et de 1,4 °C que 1994, le second été le plus chaud dans les archives. En outre, on note sur les 15 dernières années une tendance à l'augmentation de la température minimale et, dans une moindre mesure, de la température maximale. Cette plus forte augmentation des températures minimales est cohérente avec la compréhension scientifique actuelle du changement climatique.

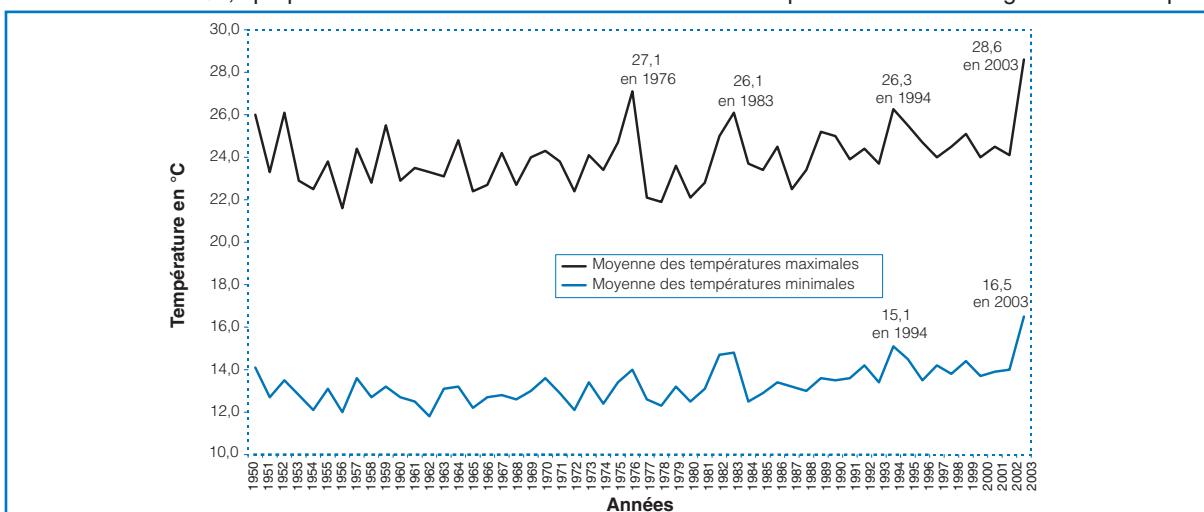


Figure 1.
Moyenne des températures sur la France pour la période du 1^{er} juin au 11 août de 1950 à 2003.
Elle est effectuée sur les stations représentatives des 22 régions économiques.
(Source : Météo-France)

* Météo-France. 1, quai Branly, 75340 Paris Cedex 07 - Site Internet : <http://www.meteo.fr>

** Correspondance : Tél. : 05 61 07 96 09 - Fax : 05 61 07 96 10 - E-mail : vincent-henri.peuch@meteo.fr

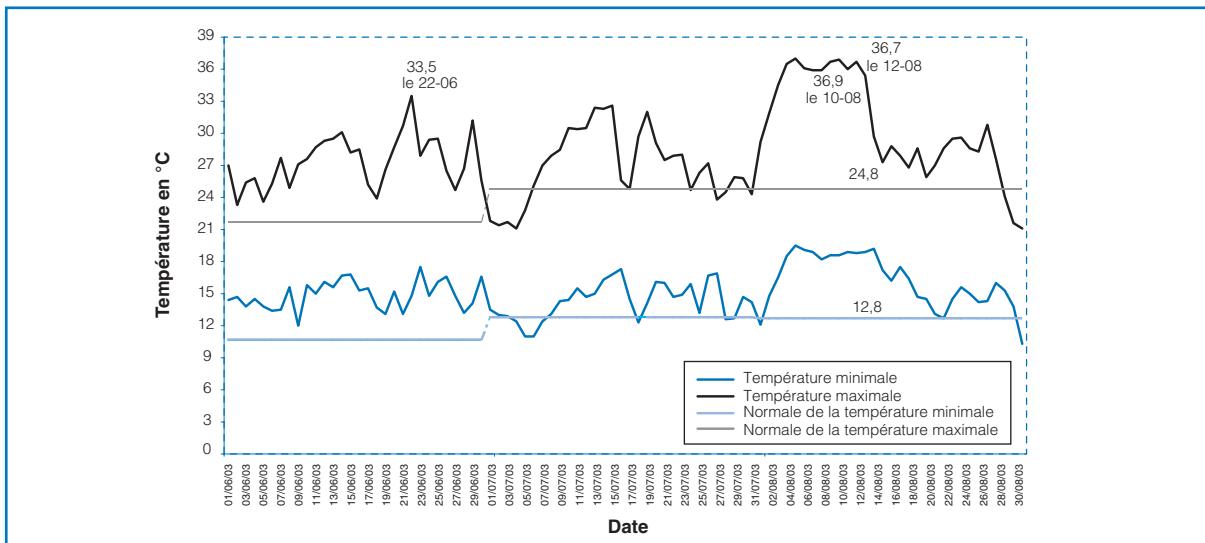


Figure 2.
Températures quotidiennes sur la France pendant l'été 2003.
(Source : Météo-France)

Sur la France, cette canicule a été exceptionnelle par sa durée, de près de deux semaines, et par son intensité (Figure 2). La situation météorologique synoptique associée à cet événement est cependant assez classique en été : des hautes pressions stagnent sur l'Europe de l'Ouest – l'anticyclone des Açores se prolongeant par une dorsale – et forment un obstacle au passage des perturbations orageuses ; on parle de phénomène de « blocage ». Le caractère tout à fait singulier de cette situation est qu'elle a duré bien plus longtemps que d'habitude, et a amené de l'air très chaud et sec en provenance du sud de la Méditerranée en surface comme en altitude. Sur les mois de juin, juillet et août 2003, presque toute la

moitié sud de la France a connu plus de 15 journées avec des températures supérieures à 35 °C (Figure 3a). Des températures supérieures à 40 °C ont été observées dans 15 % des stations (Figure 3b). Presque toutes ces journées dépassant 40 °C sont intervenues entre le 1^{er} et le 18 août (Figure 4b) et on constate, sur la même période, que des températures supérieures à 35 °C ont été observées plus d'un jour sur deux sur une fraction majoritaire du territoire (Figure 4a). D'ailleurs, les records absolus de température maximale ont été battus, au cours des 12 premiers jours d'août 2003, sur plus de 70 stations météorologiques d'un ensemble de 180 stations représentatives de la France métropolitaine.

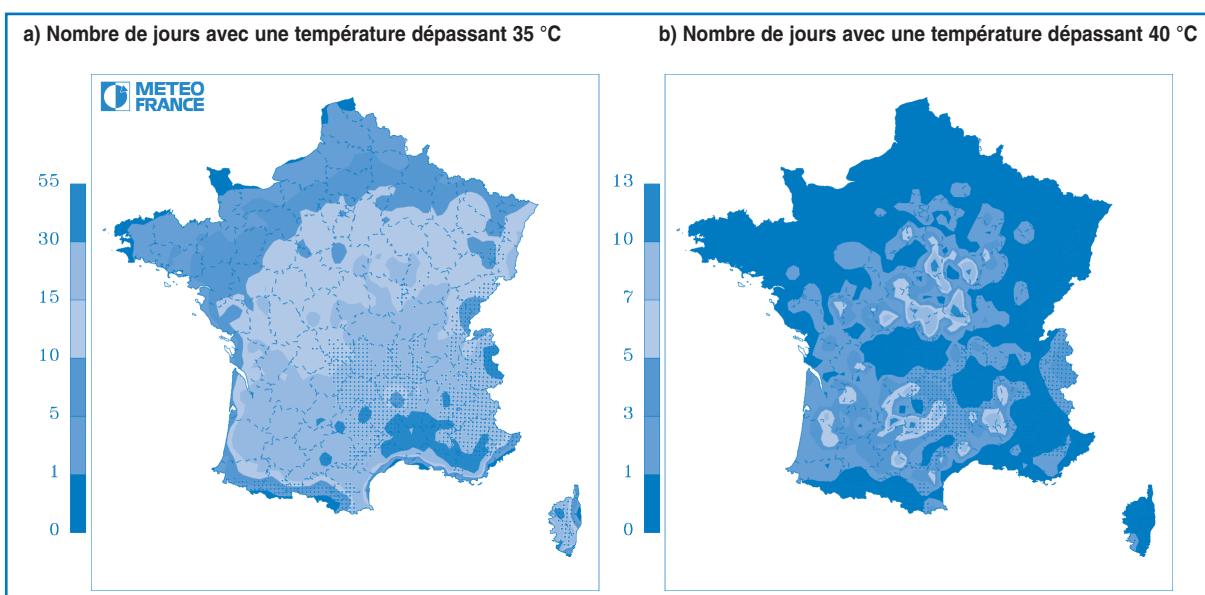


Figure 3.
Nombre de jours où la température maximale a été supérieure à 35 °C (a) et à 40 °C (b) ;
sur la période du 1^{er} juin au 31 août 2003.

Seules les stations dont l'altitude est inférieure à 500 m sont considérées (882 stations au total).
(Cartes : Météo-France)

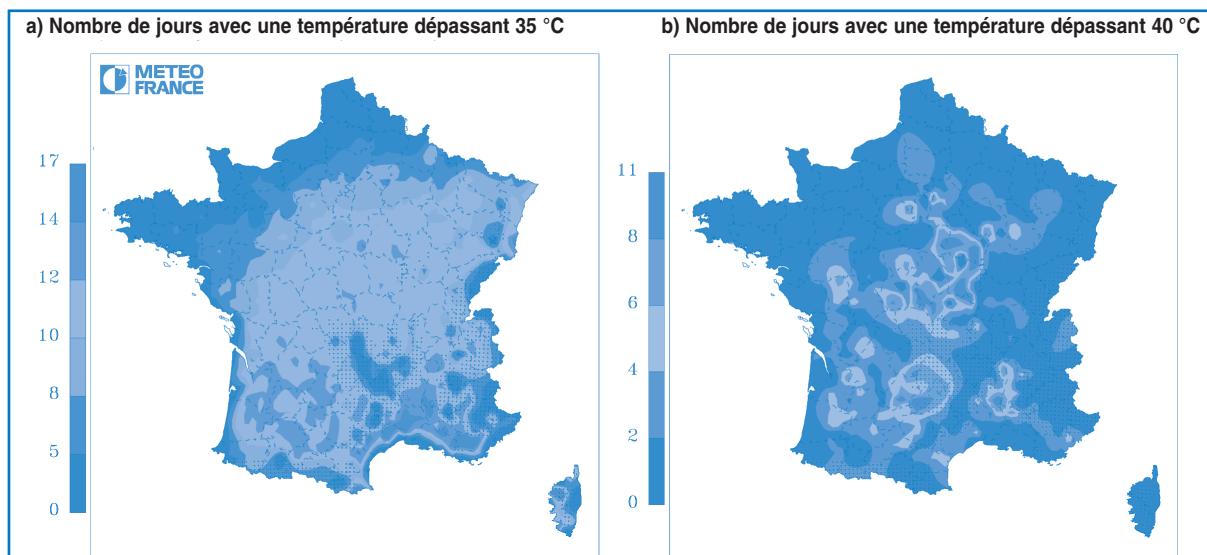


Figure 4.
Nombre de jours où la température maximale a été supérieure à 35 °C (a) et à 40 °C (b) ;
sur la période du 1^{er} au 18 août 2003.
(Cartes : Météo-France)

Cette canicule de la première quinzaine d'août a aussi touché nos voisins européens, mais dans une mesure moindre ; l'Espagne et l'Italie ont ainsi été concernées pendant cette même période. Seule l'Andalousie a connu une canicule plus sévère que la France, mais il faut noter que la population de cette région a un seuil biocritique de température bien supérieur au seuil du nord de la France : 41 °C contre 26 °C. Du 7 au 14 août 2003, à Paris-Montsouris, les températures minimales sont restées le plus souvent au-dessus des 23 °C. Parmi les stations comparées sur la figure 5, seule Lisbonne enregistre des valeurs de températures minimales de cet ordre. En ce qui concerne les températures maximales, du 4 au 12 août 2003, Paris-Montsouris et Orange restent largement au-dessus des 36 °C ; Madrid, également mais avec des températures moins élevées.

La situation de l'été 2003 a été bien prévue par Météo-France, qui, outre les prévisions habituelles, a communiqué vers le grand public, compte tenu de l'am-

pleur de l'événement prévu, le 1^{er} août (annonce de la canicule), le 7 août (poursuite pour encore une semaine), et le 13 août (fin de l'épisode). Le communiqué du 7 août attirait en outre explicitement l'attention sur le risque sanitaire associé. Un dossier complet sur la canicule et son analyse dans le contexte du changement climatique est disponible (<http://www.meteo.fr/meteonet/actu/archives/dossiers/canicule/canicule2003.htm>).

Ces températures exceptionnellement élevées ont été accompagnées d'une généralisation des épisodes photochimiques. D'ailleurs, dans un contexte de baisse des polluants primaires anthropiques sur le plan national depuis le début des années 1990, la pollution par l'ozone ne présente pas de tendance marquée ; elle est principalement caractérisée par une variabilité inter-annuelle forte liée aux conditions météorologiques, à la fois sur l'Europe et à l'échelle planétaire. La prévision de la qualité de l'air doit donc s'envisager en interaction forte avec la prévision météorologique à toutes ces échelles.

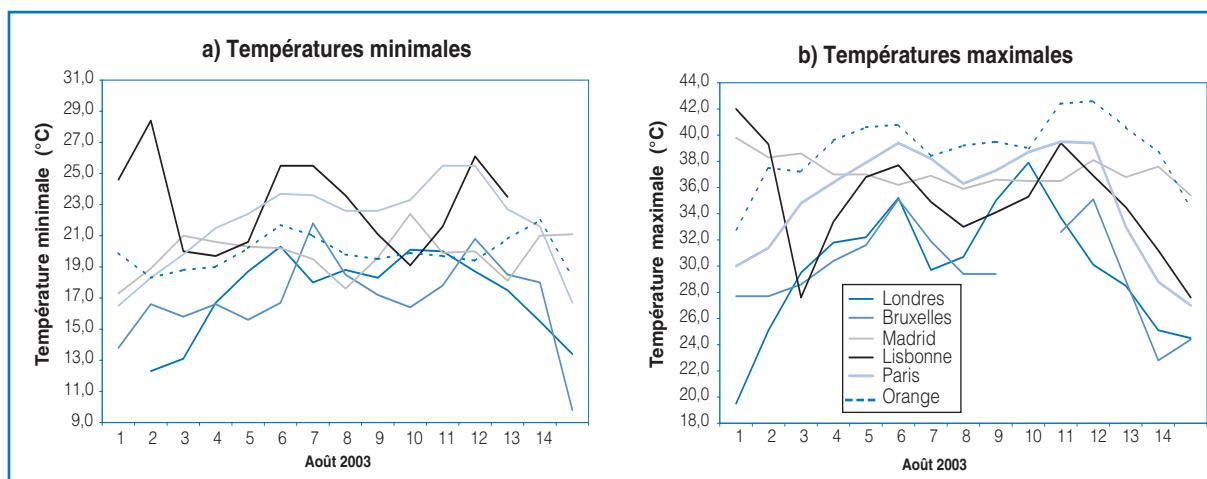


Figure 5.
Températures minimales (a) et maximales (b) dans différentes villes européennes sur la période du 1^{er} au 15 août 2003.
(Source : Météo-France)

MOCAGE, un outil pour la recherche et les applications

Le projet de développement d'un modèle de chimie atmosphérique (MOCAGE), de structure et de conception analogue aux modèles opérationnels de prévision météorologique, a été initié à Météo-France à la fin 1999. L'objectif est de prendre le problème de l'évolution de la composition chimique de l'atmosphère dans toute sa généralité, et notamment de s'affranchir du besoin de conditions aux limites latérales et supérieures, externes ou climatologiques. Les « flux chimiques » d'ozone et de ses principaux précurseurs (souvent sous forme de réservoirs, comme le peroxy-acétyl-nitrate – PAN) dépendent en effet fortement de la circulation météorologique particulière et de l'historique des masses d'air ; celles qui arrivent sur l'Europe proviennent principalement d'Amérique du Nord, région caractérisée par de fortes émissions anthropiques. Sur la France, on estime la variabilité induite sur l'ozone à une dizaine de $\mu\text{g.m}^{-3}$ en moyenne. Sur la base des campagnes de mesures récentes ESCOMPTE (région de Fos-Berre-Marseille) et Minos (Méditerranée), il existe aujourd'hui un consensus scientifique international pour reconnaître le caractère hémisphérique, voire planétaire, de la pollution ainsi que l'importance des contributions occasionnelles des couches élevées de la troposphère et de la basse stratosphère.

Le modèle MOCAGE décrit l'atmosphère à l'aide d'un ensemble de grilles de calcul imbriquées : la grille principale couvre l'ensemble du globe et s'étend jusque dans la moyenne stratosphère (35 km d'altitude environ) ; trois grilles supplémentaires permettent d'effectuer des zooms pour la prévision sur l'Europe et la France, jusqu'à une résolution horizontale de 10 km environ. Aujourd'hui, quelques projets similaires voient le jour aux États-Unis et au Canada, et MOCAGE apparaît comme un prototype tout à fait adapté aux ambitions du programme GMES (*Global Monitoring for Environment and Security*) de l'Union européenne et de l'Agence spatiale européenne. Dans ce contexte, l'évolution de la composition chimique de l'atmosphère, depuis l'échelle planétaire jusqu'à l'échelle régionale, sera envisagée à l'horizon de 2008 de façon tout à fait similaire à la météorologie opérationnelle d'aujourd'hui : concentration et diffusion des observations de télédétection spatiale et *in situ*, définition « en continu » d'un état chimique de l'atmosphère cohérent avec l'ensemble des observations disponibles, prévision jusqu'à moyenne échéance, et finalisation des prévisions suivant les échelles et les applications. Les choix faits lors de la définition de MOCAGE le placent donc aujourd'hui à la pointe de l'état de l'art ; le modèle est d'ailleurs utilisé dans le cadre de six projets européens des cinquième et sixième Programmes-cadres de Recherche et de Développement, et reçoit une part de financement très importante dans ce contexte.

Sur la verticale, les différentes grilles de MOCAGE ont une résolution identique et comportent

47 niveaux. Sept niveaux environ couvrent le premier kilomètre de l'atmosphère, ce qui permet une représentation satisfaisante des principaux effets de stabilité dans les basses couches (inversion ou au contraire turbulence et mélange développés). Cette résolution verticale est identique à celle des modèles météorologiques opérationnels de Météo-France, ARPEGE et ALADIN, qui fournissent les conditions de forçage toutes les trois ou six heures : pression, température, vents, humidité. Le modèle s'étend jusque dans la stratosphère, ce qui permet, d'une part, de simuler explicitement l'enrichissement en ozone de la troposphère par la stratosphère, et d'autre part, de prédire l'évolution du profil vertical d'ozone dans la stratosphère, qui conditionne le rayonnement ultraviolet pénétrant dans la troposphère et l'activité des réactions de photochimie. Sur l'horizontale, la grille principale couvre le globe à résolution de 2° (soit 200 km environ à nos latitudes) ; une grille imbriquée couvre l'Europe tout entière et une partie de l'Atlantique à 1° de résolution ; la France et les pays voisins sont couverts à une résolution de 0,25°, soit 25 km environ. Les résultats présentés ici correspondent à ce dernier domaine. Le modèle possède une représentation très complète des différents processus physiques (advection, diffusion turbulente, convection profonde, lessivage) et chimiques (photolyse, chimie de l'ozone troposphérique et de ses précurseurs, chimie des halogénés) d'importance pour la composition chimique de l'atmosphère. Plus de 120 espèces gazeuses sont aujourd'hui prises en compte, et une version incluant en outre les différentes composantes chimiques de l'aérosol est en cours de développement et d'évaluation.

Tous les jours, depuis mai 2001, des prévisions à 4 jours d'échéance (96 h) sont effectuées et utilisées par le Centre national de recherches météorologiques de Météo-France, notamment dans le cadre de collaborations (comme le projet Pioneer du Programme national de chimie atmosphérique en 2001 et 2002). Quelques résultats des prévisions sont montrés en temps réel, à titre de démonstration, sur le site Internet de Météo-France (<http://www.meteo.fr>). En outre, les prévisions de rayonnement et de l'index UV issues de MOCAGE sont diffusées depuis l'été 2002 dans les principaux médias nationaux (journaux, radios et télévisions), dans le cadre d'un partenariat avec l'association Sécurité solaire (<http://www.info-soleil.com>). La mise en œuvre de MOCAGE dans la chaîne de prévision opérationnelle de Météo-France, 7 jours sur 7 et 365 jours par an, est aujourd'hui envisagée dans le contexte européen (GMES) et proposée au sein du dispositif national de surveillance et de prévision de la qualité de l'air. Cette mise en œuvre opérationnelle apporterait quelques évolutions intéressantes : utilisation possible de toutes les 96 h d'échéance (en mode « recherche » la prévision, pour le jour même n'est pas disponible à temps) ; résolution de 10 km sur la France et les pays voisins ; prise en compte des besoins des AASQA et diffusion de prévisions chimiques cohérentes avec les prévisions météorologiques déjà utilisées pour l'élaboration des

bulletins de qualité de l'air, la prévision déterministe ou statistique d'échelle fine, et l'interprétation des mesures.

Pollution exceptionnelle et prévisions MOCAGE

Le modèle MOCAGE est entièrement déterministe, comme les modèles météorologiques, c'est-à-dire que tous les processus importants pour la pollution sont représentés dans le modèle, sans recours à l'information *a priori* ou à des climatologies. Pour les prévisions quantitatives sur des sites particuliers, une procédure d'adaptation statistique est appliquée, de manière à finaliser les prévisions. Comme pour la température de surface en météorologie, une régression linéaire multiple, intégrant l'ozone prévue par MOCAGE et diverses autres variables issues des prévisions météorologiques, est mise en œuvre. Les

coefficients de cette régression sont ajustés pour chaque site et chaque échéance horaire (1 à 96 h), sur la base d'une période passée – en pratique, mai à octobre 2002 pour la campagne de prévision 2003 ; la régression a ensuite été appliquée aux prévisions effectuées quotidiennement. Cette adaptation permet à la fois de corriger certains défauts intrinsèques au modèle chimique ou reliés aux problèmes de représentativité et de spécificité des différents sites de mesure. Les biais du modèle brut sont intrinsèquement très faibles, et bien que les coefficients aient été calculés sur la base de l'été 2002, moins pollué que celui de 2003, on obtient des biais moyens après adaptation statistique pour 2003 de moins de $1 \mu\text{g.m}^{-3}$ pour toutes les échéances (J à J + 3) sur les sites ruraux, et de 1 à $2,5 \mu\text{g.m}^{-3}$ pour les autres sites.

Un exemple de l'effet de cette adaptation statistique est illustré sur la figure 6 pour les prévisions à 24 h, sur le site de Cadarache (AIRMARAIX). Comme cela a été vu au cours de la campagne ESCOMPTE

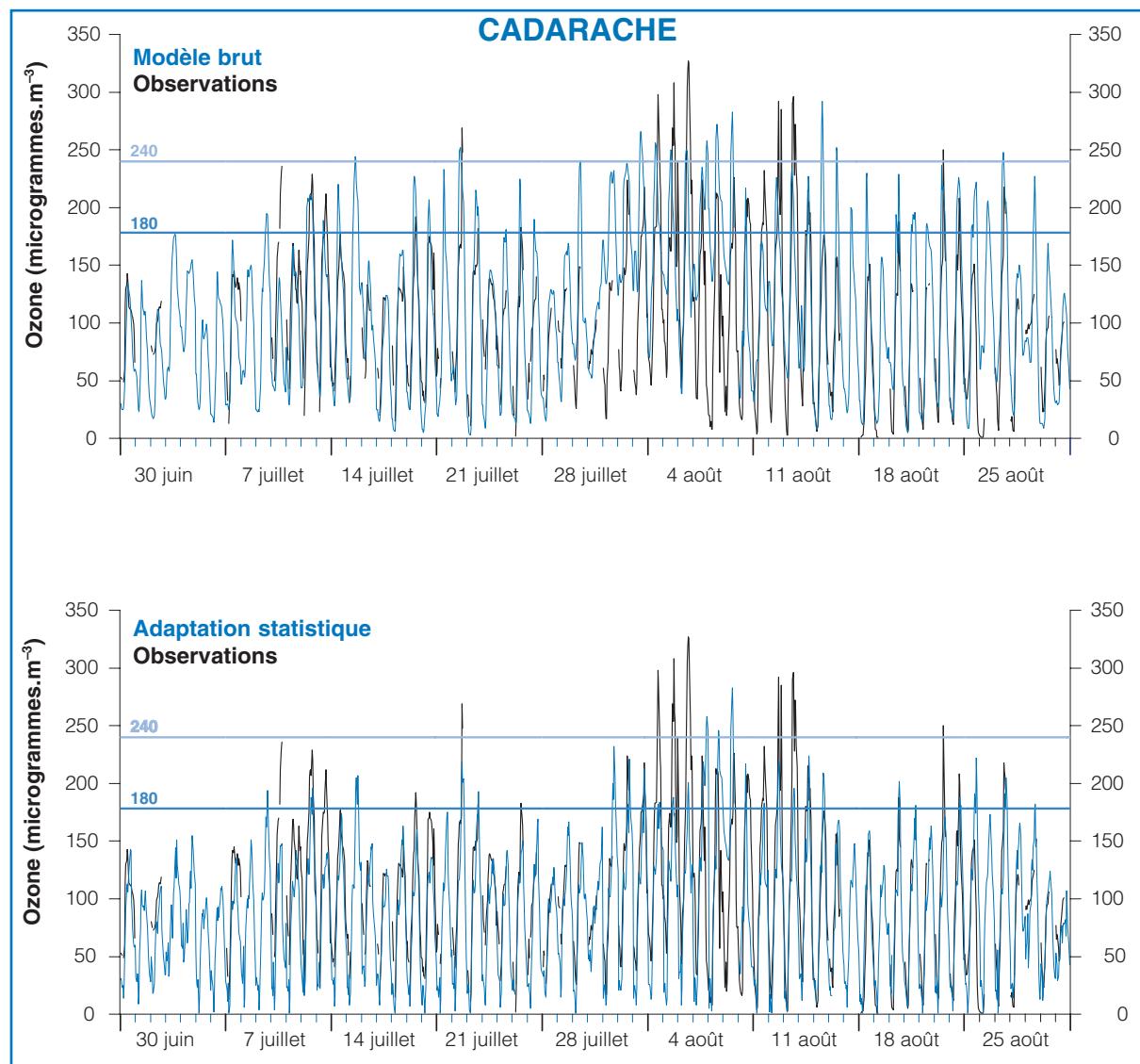


Figure 6.
Observations et prévisions (J) MOCAGE avant (haut) et après (bas) adaptation statistique à Cadarache (station AIRMARAIX) pendant la période du 1^{er} juillet au 31 août 2003.

(juin-juillet 2001), ce site est particulièrement intéressant et, bien qu'éloigné de sources directes de pollution anthropique, il reçoit des masses d'air très polluées par un effet de canalisation dans la vallée de la Durance. Ces masses d'air proviennent de l'étang de Berre et/ou de l'agglomération marseillaise en régime de flux synoptique faible (comme cela est le cas en situation de « blocage ») et en présence de brises de mer. On voit immédiatement l'effet de l'adaptation statistique, qui permet d'améliorer les prévisions : sur ce site particulièrement difficile, le taux de fausses alertes du dépassement à $180 \mu\text{g.m}^{-3}$ est grandement amélioré. Les basses valeurs

mesurées la nuit quasiment tous les jours sont également corrigées efficacement.

L'analyse des performances des prévisions sur les sites de mesure de la Banque de données sur la qualité de l'air (BDQA) de l'ADEME montre des résultats remarquables. Globalement, le taux des erreurs de moins de 20 % sur la prévision du pic quotidien est de l'ordre de 80 %, et les performances ne se dégradent que très marginalement avec les échéances ; les échéances J + 2 et J + 3, utiles pour l'anticipation et la prise éventuelle de mesures préventives par les décideurs, sont ainsi tout à fait utilisables. La figure 7

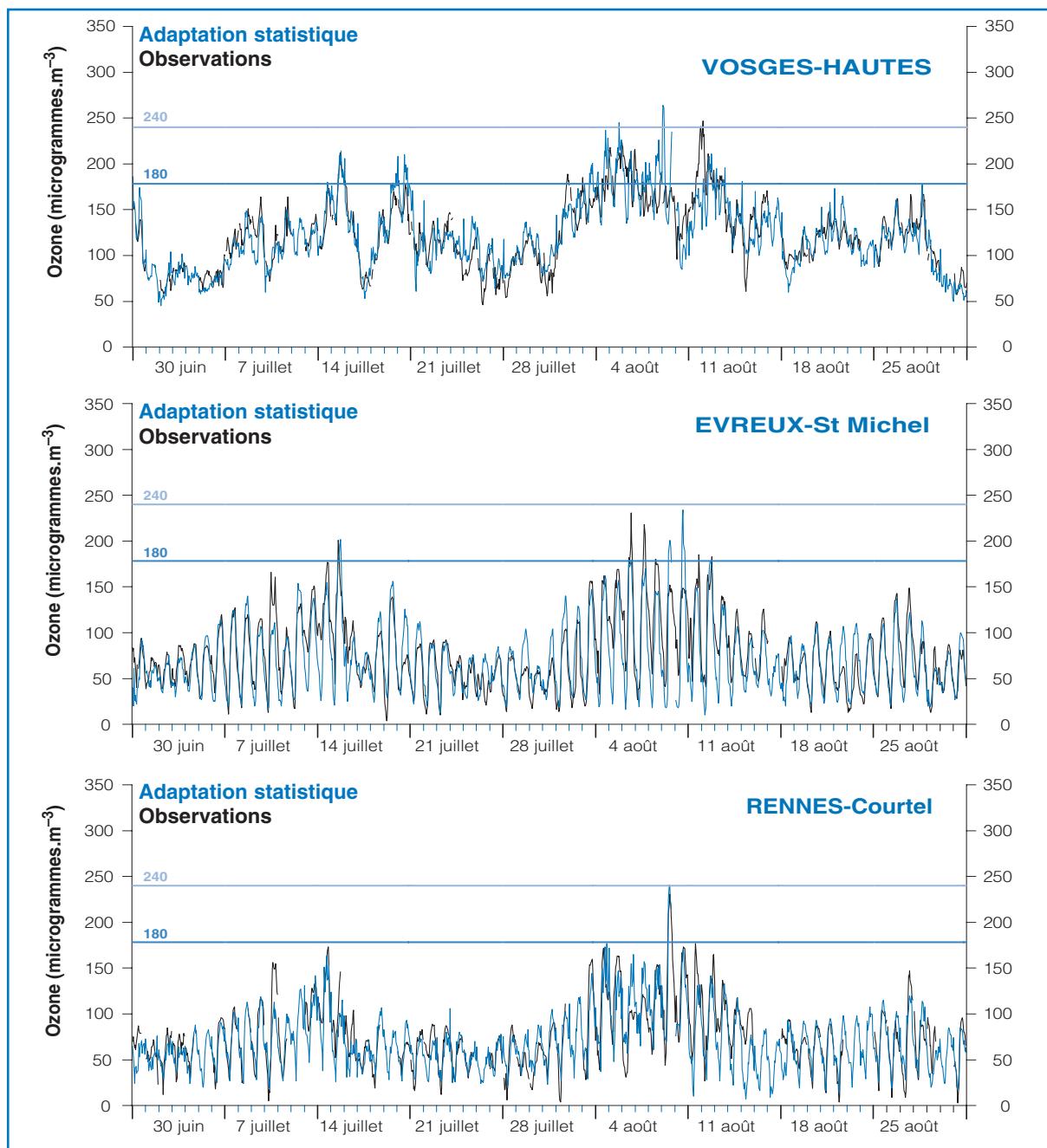


Figure 7.
Observations et prévisions (J) MOCAGE avec adaptation statistique aux Vosges-Hautes (station ASPA),
Évreux – Saint-Michel (station AIR NORMAND) et Rennes-Courtel (station AIRBREIZH),
pendant la période du 1^{er} juillet au 31 août 2003.

illustre la qualité des prévisions sur trois sites très différents de Cadarache répartis sur le territoire national. On observe sur cette figure que la prévision finalisée rend très bien compte des deux épisodes généralisés du 5 au 15 juillet et du 4 au 14 août, associés aux vagues de chaleur sur la France (Figure 2, p. 362). Si l'on entre plus avant dans l'étude des performances (Figure 8), on constate sans surprise sur un échantillon de sites que la prévision de dépassement de seuils est d'autant meilleure que le seuil est peu élevé : il est plus « facile » de prévoir un événement fréquent qu'un épisode atypique et exceptionnel. Toutefois, les taux de succès sont satisfaisants, au moins jusqu'au seuil actuel d'information de la population de $180 \mu\text{g.m}^{-3}$.

Conclusion

La pollution de l'air et la météorologie sont intimement imbriquées, comme le rappellent les épisodes photochimiques associés à la canicule de 2003. Le projet MOCAGE de Météo-France a abouti maintenant du point de vue de la recherche, et des perspectives d'application et de mise en œuvre dans des conditions similaires aux modèles météorologiques opérationnels s'ouvrent. La qualité des prévisions au cours de l'été 2003 confirme tout le potentiel de ce nouveau type de modèles pour la chimie de l'atmosphère. MOCAGE vient ainsi enrichir le paysage de la qualité de l'air en Europe et en France. Il reste à savoir si une information environnementale plus étayée saura trouver un écho dans le comportement de chaque citoyen.

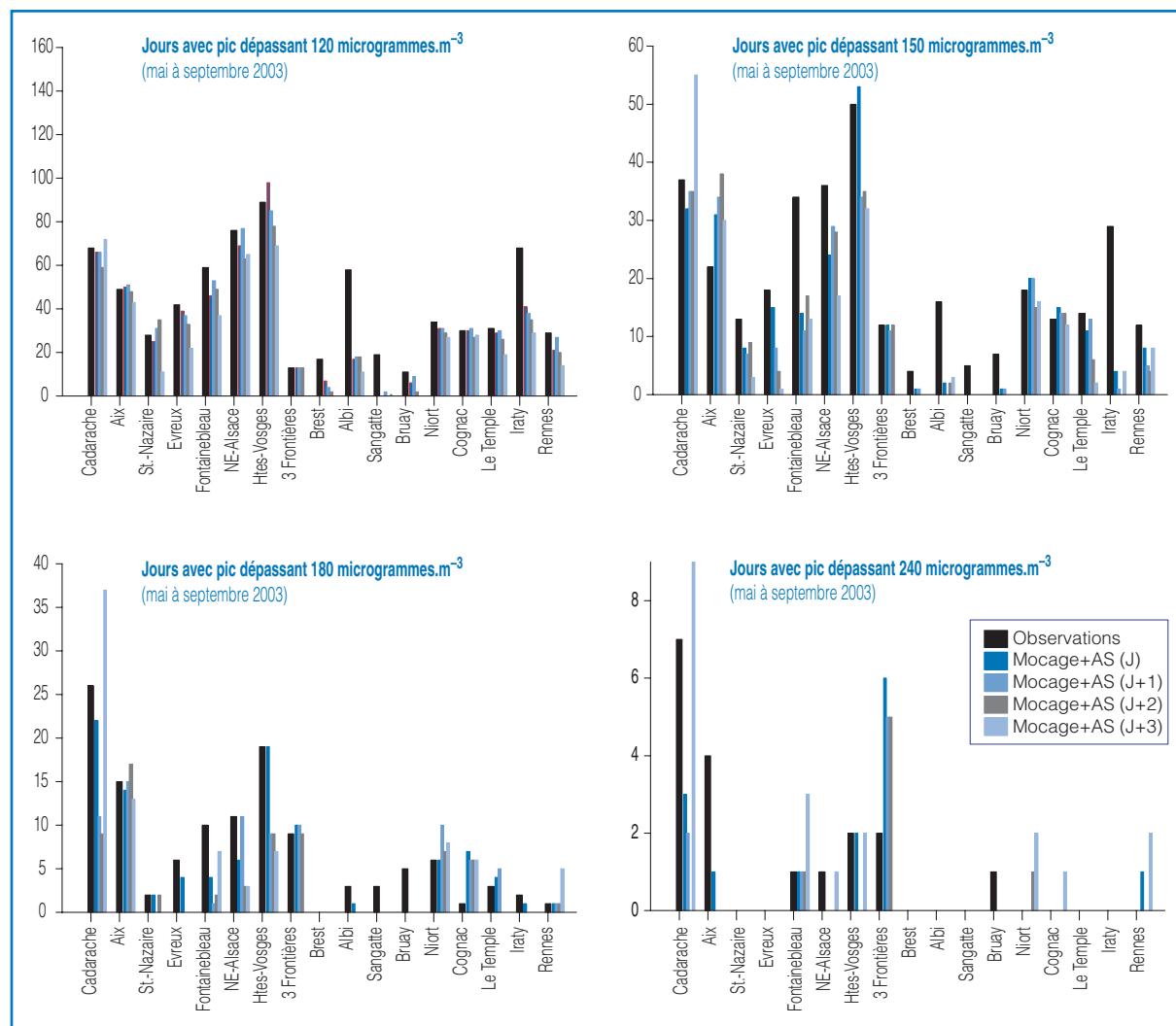


Figure 8.
Nombre de jours de dépassement des seuils 120 , 150 , 180 et $240 \mu\text{g.m}^{-3}$ dans 17 stations réparties en France métropolitaine pour les observations et pour les prévisions MOCAGE aux échéances J (pour le jour même), J + 1 (le lendemain), J + 2 (le surlendemain) et J + 3.
(Sources : BDQA, ADEME – Météo-France)

Annexe F

Etude de cas

Les deux études de cas suivantes sont issues des simulations opérationnelles à J0 du modèle MOCAGE. Les observations sont celles de la base de données BASTER, récupérées en temp réel. Ce sont les deux périodes de l'été 2005 les plus mal simulées i.e. où l'erreur des prévisions chimiques est la plus importante. Les deux périodes sont repérées par des ellipses sur la figure F.1 des séries d'EQM journalières (en rouge) : du 25 au 27 juillet 2005 (voir figure F.2) et le 27 août 2005 (voir figure F.3).

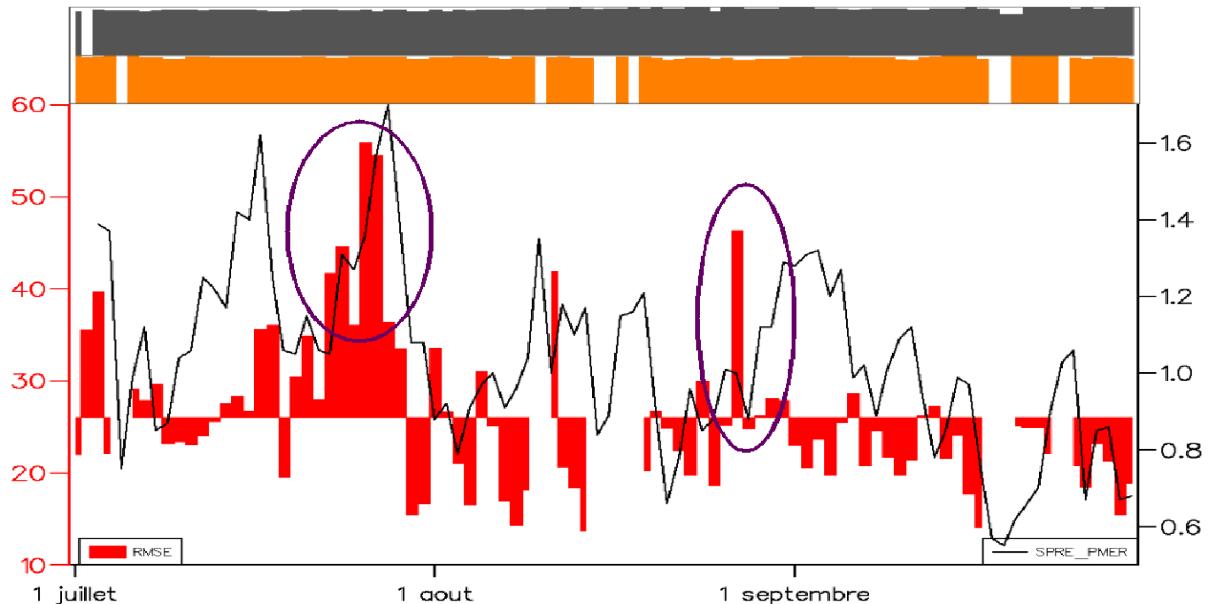


FIGURE F.1 – Séries journalières sur l'été 2005 des scores chimiques et météorologiques : en rouge, l'EQM des pics journaliers d'ozone pour la prévision J0 du domaine régional de MOCAGE et en noir, l'ECT de la pression de surface à 12HTU de la prévision d'ALADIN correspondantes.

F.1 Cas du 25 au 27 juillet 2005

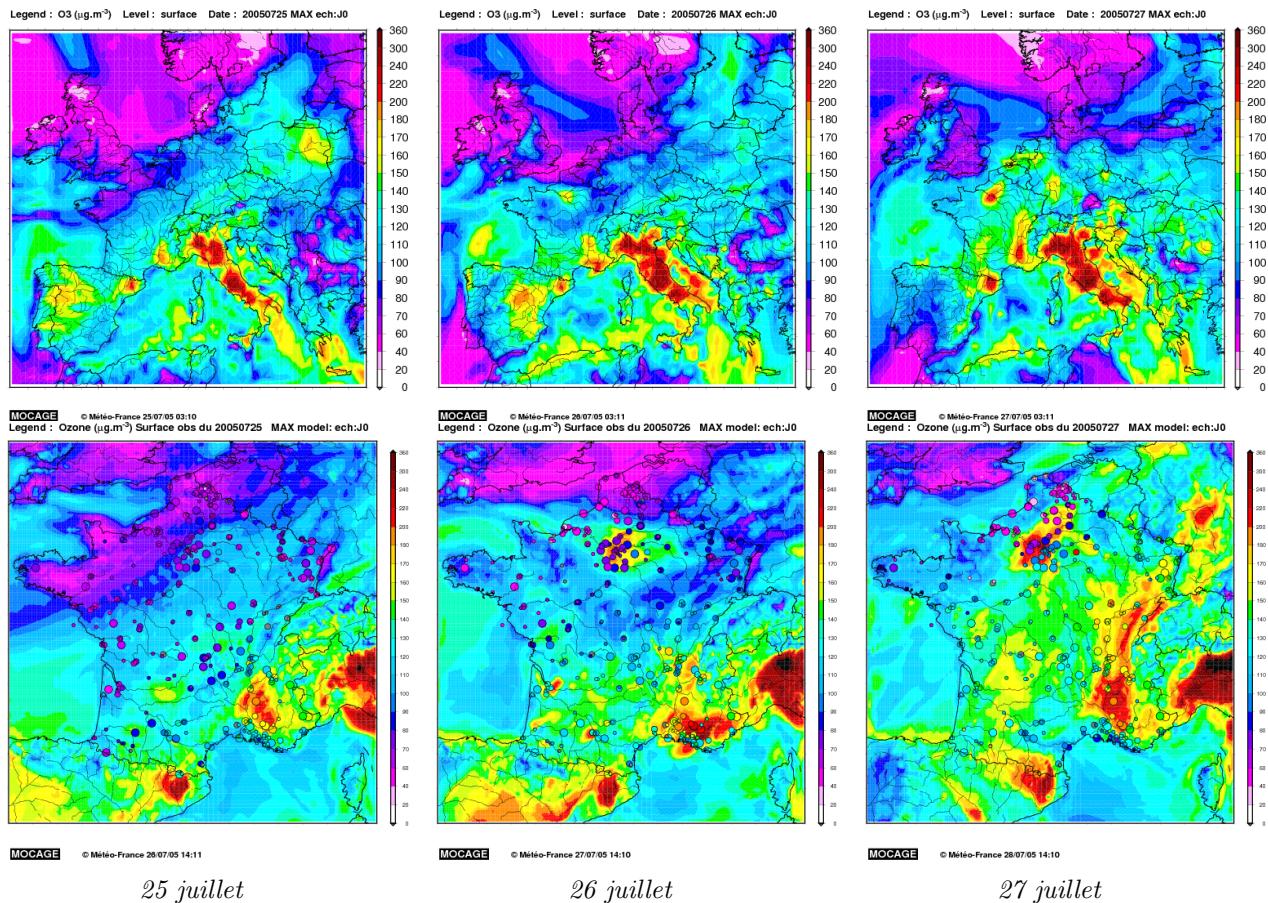
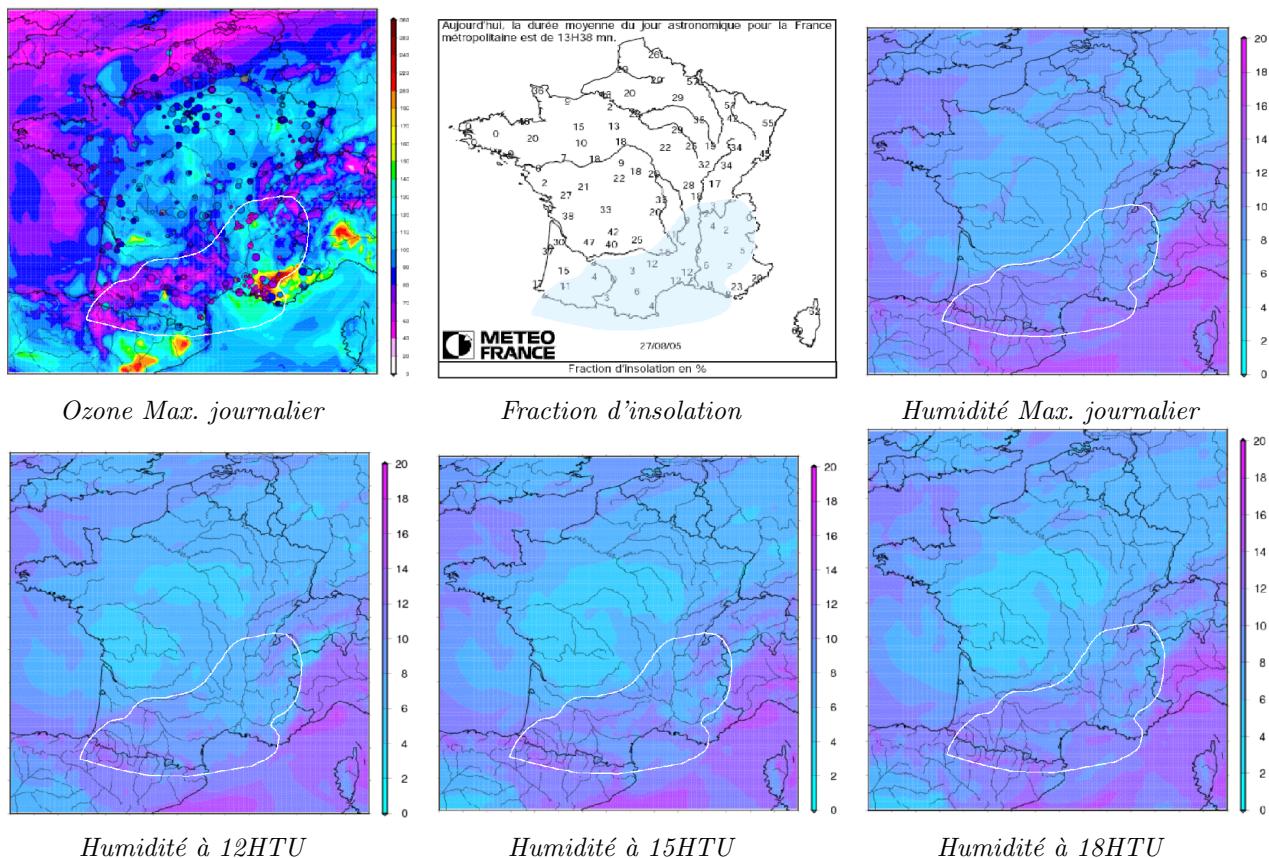


FIGURE F.2 – Cas du 25 au 27 juillet 2005 : décalage spatial de la trajectoire d'une perturbation. Maxima journalier des concentrations d'ozone simulées en surface par le domaine continental (en haut) et régional (en bas) de la simulation J0 de MOCAGE. Les pastilles de couleur sont les maxima journaliers observés (données BASTER).

Le 25 juillet 2005, une perturbation balaie le Nord de la France dans les simulations (concentration de l'ordre de $60 \mu\text{g.m}^{-3}$ de la Bretagne Sud aux Ardennes) sans englober l'agglomération Parisienne alors qu'elle est beaucoup plus étendue dans les observations (du Pays Basque au Sud de l'Alsace). Aussi, les concentrations sur Paris le 25 sont surestimées d'une trentaine de $\mu\text{g.m}^{-3}$. Le lendemain (le 26), la perturbation s'évacue, ne concernant plus que la région Nord-Pas-de-Calais dans les simulations, mais toujours la Bretagne et la région parisienne et les Ardennes dans les observations. Aussi, dans les simulations, la région Parisienne est en ciel clair, et partant des niveaux de la veille, les concentrations flirtent avec le seuil de $180 \mu\text{g.m}^{-3}$ dans le panache alors que les observations maximales sont de l'ordre de $100 \mu\text{g.m}^{-3}$. Le lendemain, les observations montent à $130 \mu\text{g.m}^{-3}$ sur le Sud-Ouest de la région parisienne, et à 220 dans les simulations par accumulation de la production du jour avec les jours précédents. Il est intéressant de noter que seul l'extrême Sud-Est du pays n'est pas affecté par le passage de la perturbation à la fois dans la réalité et dans le modèle, aussi, les simulations dans cette région se comparent de façon plus satisfaisante avec les observations.

Cet exemple illustre à la fois l'impact du forçage dynamique sur la qualité des simulations chimiques mais aussi la propagation des erreurs sur plusieurs jours dans ces simulations mises bout à bout sans rappel aux observations.

F.2 Cas du 27 août 2005



"A la mi-journée, un corps pluvio-instable s'étend des PO aux pré-Alpes et touche également le sud du Massif Central. L'après-midi [...] les nuages bas qui s'accumulent sur le piémont Pyrénéens laissent toujours s'échapper quelques ondées." BHER du 27/08/2005

FIGURE F.3 – Cas du 27 août 2005 : décalage temporel d'un corps pluvio-instable

Le 27 août 2005, un épisode photochimique intense est simulée sur la région PACA par MOCAGE à J0 (panache de plus de $180 \mu\text{g.m}^{-3}$) alors que les observations n'atteignent que $120 \mu\text{g.m}^{-3}$ au maximum.

Le contour dessiné sur les différents champs simulés représente la zone où les fractions d'insolation pour la journée ont été inférieures à 15 %, traduisant la présence active d'un corps pluvieux limitant fortement la production chimique. Il s'avère que cette structure est bien vue à l'échelle de la journée (voir le champ d'humidité maximale), mais avec une arrivée trop tardive en PACA (après 15HTU); aussi, le modèle est en condition de ciel clair durant toute l'après-midi (températures au sol de l'ordre de 26-27°) et simule donc des concentrations élevées d'ozone.

Annexe G

Liste des symboles utilisés dans le texte

AASQA	Association Agréée de Surveillance de la Qualité de l'Air
ADEME	Agence de l'Environnement et de la Maîtrise de l'Energie
AERONET	Aerosol RObotic NETwork
ALADIN	Aire Limitée, Adaptation dynamique, Développement InterNational (Météo-France et partenaires)
AMMA	African Monsoon Multidisciplinary Analysis
AROME	Applications de la Recherche à l'Opérationnel à Mésoéchelle
ARPEGE	Action de Recherche Petite Echelle et Grande Echelle (Météo-France)
AS	Adaptation Statistique
ASE	Agence Spatiale Européenne (voir ESA)
AVHRR	Advanced Very High Resolution Radiometer
BASTER	BASe de données sur la qualité de l'air en TEMps Réel
BHER	Bulletin Hebdomadaire d'Etudes et de Renseignements
BDQA	Base de Données sur la Qualité de l'Air
CEPMMT	Centre Européen de Prévisions Météorologiques à Moyen Terme Voir ECMWF
CHIMERE	Modèle de chimie-transport CNRS-IPSL
CLS	Couche Limite de Surface
CNRM	Centre National de Recherches Météorologiques (Météo-France)
CNRS	Centre National de la Recherche Scientifique
COV	Composés Organiques Volatils
CTM	Chemistry Transport Model (voir MCT)
ECMWF	European Centre for Medium-Range Weather Forecasts Voir CEPMNT
EDGAR	Emission Database for Global Atmospheric Research (RIVM, TNO, Pays-Bas)
EMEP	Co-operative Programme for Monitoring and Evaluation of the Long-range Transmission of Air pollutants in Europe
ESA	European Spatial Agency (voir ASE)
ESCOMPTE	Etude sur Site pour COntraindre les Modèles de Pollution atmosphérique et de Transport d'Emissions
ESQUIF	Etude et Simulation de la QUalité de l'air en Ile-de-France

GAW	Global Atmospheric Watch (voir VAG)
GEIA	Global Emission Inventory Activity (IGBP IGAC activity)
GEMS	Global Environmental Monitoring using Satellite and In-situ data
GMES	Global Monitoring for Environment and Security
GRG	Global Reactive Gaz (sous-projet GEMS)
ICARTT	International Consortium for Atmospheric Research on Transport and Transformation
IFS	Integrated Forecast System (ECMWF)
IGAC	International Global Atmospheric Chemistry
IGBP	International Geosphere Biosphere Program
INERIS	Institut National de l'Environnement Industriel et des RISques
IPCC	Intergovernmental Panel on Climate Change
IPSL	Institut Pierre Simon Laplace
ISBA	Interaction Soil Biosphere Atmosphere
ITOP	Intercontinental Transport of Ozone and Precursors
LA	Laboratoire d'Aérologie (Unité Mixte de Recherche 5560 CNRS UPS), Toulouse, France
LAURE	Loi sur l'Air et l'Utilisation Rationnelle de l'Energie
LCSQA	Laboratoire Central de Surveillance de la Qualité de l'Air
MCT	Modèle de Chimie Transport (voir CTM)
MEDD	Ministère de l'Ecologie et du Développement Durable
MERA	MEsure des Retombées Atmosphériques (voir VAG, GAW)
Méso-NH	Atmospheric Simulation System (Météo-France, Laboratoire d'Aérologie)
MOCAGE	Modèle de Chimie Atmosphérique à Grande Echelle (Météo-France)
MOZAIC	Measurements of OZone and water vapour by in-service AIrbus airCraft
NCAR	National Center for Atmospheric Research, USA
NDSC	Network for the Detection of Stratospheric Change
NMVOC	Non Methanic Volatil Organic Compound
NWP	Numerical Weather Prediction
OMM	Organisation Mondiale de la Météorologie (voir WMO)
ORVOC	Other Reactive Volatil Organic Compounds
OVOC	Other Volatil Organic Compounds
PACA	région Provence Alpes Côte d'Azur
PALM	Projet d'Assimilation par Logiciel Multi méthode
PREV'AIR	PREVisions et observations de la qualité de l'AIR en France et en Europe
PROMOTE	PROtocol MONitoring for the GMES Service Teledetection (ESA)
RACM	Regional Atmospheric Chemistry Mechanism
RAQ	Regional Air Quality (sous-projet GEMS)
UPS	Université Paul Sabatié, Toulouse, France
UTC	Universal Time Coordinated
UTLS	Upper Troposphere Lower Stratosphere
VAG	Veille Atmosphérique Globale (voir GAW, MERA)
WMO	World Meteorological Organisation (voir OMM)

TITLE : Air quality simulations and forecasts at continental and regional scales

ABSTRACT

The main focus of this manuscript is to build a methodology to evaluate and validate chemistry-transport models as applied to the operational forecasts of regional and continental air quality.

The work is based on the MOCAGE model (Large-scale Atmospheric Chemistry Model) dealing both with routine daily forecasts performed from 2001 to 2005 and with ESQUIF and ESCOMPTE campaigns. In addition to simulating the mean behaviour, the methodology presented here places emphasis on reproducing extreme events and also the spatial and temporal variability. Lastly, quantitative relationships between air quality forecasts and meteorological forecasts are studied. It appears that the quality of the chemical forecasts at the seasonal and national scale is mainly driven at first order by the synoptic scale of the meteorological forcing.

KEYWORDS : air quality - multi-scale deterministic forecast - validation -
spatial and temporal variability

AUTEUR : Anne DUFOUR

TITRE : Simulation et prévision de la qualité de l'air
aux échelles continentale et régionale

DIRECTEUR DE THÈSE : Vincent-Henri PEUCH

LIEU ET DATE DE SOUTENANCE :

Salle de conférence du CNRM (Météo-France, Toulouse)
le 11 décembre 2006

RÉSUMÉ

L'objectif principal de la thèse était de mettre en place une méthodologie d'évaluation et de validation de modèles de chimie-transport à des fins de prévision de la qualité de l'air à courte échéance aux échelles continentale et régionale.

Basés sur les simulations du modèle MOCAGE (MOdèle de Chimie Atmosphérique à Grande Echelle), les travaux portent à la fois sur les prévisions quotidiennes de la qualité de l'air effectuées de 2001 à 2005 et sur l'exploitation de deux campagnes de mesures ESQUIF et ESCOMPTE. La méthodologie développée, outre la caractérisation du comportement moyen, s'attache à l'évaluation de la reproduction des événements extrêmes et de la variabilité (spatiale et temporelle). Enfin, les relations quantitatives entre prévisions de qualité de l'air et prévisions météorologiques sont étudiées et démontrent la prépondérance des variables météorologiques d'ordre synoptique sur la qualité des scores chimiques à l'échelle de la France et d'une saison entière.

MOTS-CLÉS : qualité de l'air - prévision déterministe multi-échelles - validation - variabilité spatiale et temporelle

DISCIPLINE : Physique et Chimie de l'Atmosphère

LABORATOIRE : Centre National de Recherches Météorologique
42, av. G. Coriolis 31057 Toulouse Cedex, France