

N° D'ORDRE : D.U. 1454

UNIVERSITE BLAISE PASCAL
(U.F.R. de Recherche Scientifique et Technique)
ECOLE DOCTORALE DES SCIENCES FONDAMENTALES
N° 398

THESE

Présentée pour obtenir le grade de

DOCTEUR D'UNIVERSITE
(Spécialité : Physique de l'Atmosphère)

par

Seyed Mohammad TAGHAVI

Titulaire du Master de Physique

**ETUDE DE LA POLLUTION EN ZONE URBAINE ET PERI-URBAINE
A L'AIDE D'UNE MODELISATION MESO-ECHELLE DURANT LA
CAMPAGNE ESCOMPTE. IMPACT DE LA DYNAMIQUE ET DES
INVENTAIRES D'EMISSION.**

Soutenue publiquement le 27 Novembre 2003, devant le jury:

Président : **Bernard CROS**, Professeur à l'Université Paul Sabatier

Rapporteurs : **Pierre DURAND**, Directeur de Recherche CNRS à Météo France
Pascal PERROS, Professeur à l'université Paris 12

Examineurs : **Guy CAUTENET**, Professeur à l'Université Blaise Pascal
Bruno SPORTISSE, Directeur du CEREAS
Emmanuel BUISSON, Directeur de NUMTECH

Directeur de thèse : **Sylvie CAUTENET**, Professeur à l'Université Blaise Pascal

*A la mémoire de mon père
A ma famille
et à Maryam et Amir Abbas*

Remerciements

Mes remerciements s'adressent tout d'abord, au DR. Nadine Chaumerliac et au Professeur Harumi Isaka, pour m'avoir accueilli au sein de leur laboratoire, lors des trois années qui constituèrent ma thèse.

Au Professeur Sylvie Cautenet pour avoir dirigé ce travail, pour ses qualités scientifiques et humaines, sa disponibilité et la qualité de son encadrement, son aide et sa patience ainsi que pour le soutien permanent dont elle a fait preuve tout au long de ces trois années, pour m'avoir permis de participer à diverses conférences et Workshop, me facilitant ainsi la rencontre de la communauté de la modélisation atmosphérique. Qu'elle reçoive ici le témoignage de toute ma gratitude et de ma profonde estime.

Au Professeur Guy Cautenet, pour son aide constante et permanente et ses idées brillantes, pour avoir à plusieurs reprises, débloqué des situations désespérées, pour m'avoir fait l'honneur d'accepter d'être membre de jury de ma thèse, pour sa gentillesse remarquable, son intelligence culturelle, et son humour.

Au Professeur Bernard Cros, Coordinateur d'ESCOMPTE, pour m'avoir fait l'honneur, de présider le jury de ma thèse,

Au DR. Pierre Durand et Professeur Pascal Perros qui malgré des emplois du temps très chargés ont accepté être rapporteur de cette thèse. Je leur exprime toute ma gratitude pour m'avoir fait cet honneur, pour le soin qu'ils ont mis à cette lecture, et à leur correction.

Au Dr. Bruno Sportisse, Directeur du CEREAS, pour m'avoir fait l'honneur d'être examinateur de ma thèse et pour ses remarques utiles.

Au Dr. Emmanuel Buisson, Directeur de NUMTECH, pour m'avoir fait l'honneur d'accepter d'être membre de mon jury de thèse.

A l'ensemble des enseignants et chercheurs du LaMP, et en particulier à Nadine Chaumerliac pour son aide à la préparation de ma présentation à l'IGAC et Yves Pointin pour ses qualités informatiques et pour l'aide qu'il m'a apportée à plusieurs reprises.

A l'ensemble de l'équipe informatique du LaMP: F. Besserve, A. M. Lanquette et Ph. Cacault pour leur aide précieuse concernant tous mes besoins informatiques.

A l'ensemble de l'équipe administrative du LaMP: S. Bondoux C. Yvetot et J. L. Barthout, pour leur aide administrative, me recevant toujours avec un sourire accueillant, leur gentillesse, et pour leur patience infinie.

La complicité qu'on partageait entre les jeunes du laboratoire nous a rapproché d'autant qu'on est devenu membre de la grande famille des Lampistes. Je tiens à remercier ma famille LaMPiste pour les moments inoubliables qu'on a partagés au cours de notre séjour à Clermont-Ferrand. Merci à David Poulet pour son aide qui m'ont été très utile au démarrage de ma thèse. A Karine et Fred Szczap, homme des fêtes réussies, pour leurs soirées inoubliables. Merci à Angela, Fredy, Céline, Marie, Guillaume, Maud, Mathieu, Laurent, Claire, Joaquim, Pascal, Fanny, Damien, Karine S., Karine D., Delphine, Régis, Jean-marc, Christophe, Fred L., Fred P., Justine, Dimitri et Vincent.

Un grand merci très spécial à Gilles et à Nicolas, pour leur pure amitié et pour leur présence quand j'avais besoin d'aide, qu'ils reçoivent ici le témoignage de toutes mes reconnaissances.

A ma famille, mes frères et sœurs, à ma mère et mon beau père sans lesquels je ne serai pas là aujourd'hui, cette thèse leur doit aussi beaucoup. Ils m'ont donné le moral et la force de réussir. Malgré la distance, leur présence à mes côtés a été permanente. Mes chers parents, je vous suis très reconnaissant.

A Amir Abbas mon petit bout d'choux, dont la naissance en dernière année de cette thèse, m'a redonné toute la force perdue, l'envie et l'espoir pour travailler encore plus. Mon fiston tu nous as donné une nouvelle joie de la vie, je te remercie pour tout.

Enfin, Merci à Maryam, mon épouse, pour m'avoir supporté durant ces trois années de thèse, m'avoir permis de travailler samedi et dimanche, pour être à mes côtés dans les moments difficiles, et pour m'avoir offert le plus beau cadeau du monde. Je te suis infiniment reconnaissant.

RESUME :

Ce travail porte sur l'étude de la redistribution de polluants photochimiques en zone urbaine et périurbaine dans le cadre de la campagne ESCOMPTE qui s'est déroulée dans le sud-est de la France. Cette région comprend la zone urbanisée de Marseille au voisinage du site industriel de Fos-Berre qui est un des sites les plus pollués d'Europe. L'approche choisie est la modélisation à méso-échelle à l'aide du modèle RAMS-Chimie qui est le couplage on-line du modèle météorologique RAMS et du mécanisme chimique condensé MOCA 2.2, en mode parallèle. Après avoir vérifié l'efficacité de ce couplage en appliquant la loi d'Amdahl (1967), où nous avons montré que la fraction parallélisée est égal à 96% avant le couplage pour le modèle RAMS, et augmente à 98% après le couplage pour le modèle RAMS-Chimie. De nombreux tests ont été effectués afin d'obtenir les champs météorologiques les plus réalistes possibles. Pour cela, l'hétérogénéité de l'humidité du sol en fonction de la texture du sol a été prise en compte ainsi qu'une topographie réaliste où les sommets et vallées sont bien reproduits. Pour ne pas avoir de biais sur les résultats chimiques, la première partie concerne la validation des simulations météorologiques avec les données des stations de surface, Lidar, Sodar, radiosondages et mesures aéroportées pour trois POI (Période d'Observation Intensive) qui ont des situations météorologiques contrastées. Dans une deuxième partie, nous validons les résultats de la redistribution des espèces chimiques (CO, NO_x, SO₂, O₃) avec les données de surface, aéroportées et de Lidar sur cette région où se présentent des circulations de brise de mer et de relief associés à des flux de sud ou de nord (Mistral). Nous montrons que l'utilisation de grilles imbriquées résout le problème de limite latérales pour les champs chimiques (Taghavi et al, 2004) La position des cellules convectives et la canalisation du vent dans les vallées du Rhône dépendent de l'orientation du flux synoptique et jouent un rôle sur la redistribution des polluants et sur leur régime chimique. Deux cadastres d'émissions aux performances très distinctes (30% de différence en moyenne) ont été comparés (Taghavi et al, 2004), l'un à haute résolution (1km) et l'autre plus moyenné. Dans les deux cas, la localisation et la concentration du panache d'ozone sont assez proches et on peut conclure qu'un cadastre de faible résolution peut servir à étudier la formation du panache d'ozone car c'est un mécanisme non linéaire. Ce type de modélisation peut servir à étudier la stratégie de réduction des émissions.

Study of air pollution in urban and peri-urban area during the ESCOMPTE campaign using mesoscale modelling. Impact of dynamics and emission inventories.

ABSTRACT

This work involves the study of the redistribution of photochemical species over urban and peri-urban areas during the ESCOMPTE campaign over southern France. This region includes Marseilles, an urban area close to the industrial zone of Fos-berre, one of the most polluted sites in Europe. The comprehensive RAMS model, version 4.3, coupled on-line with a chemical module including 29 species (MOCA2.2) is used in parallel code. The efficiency of coupling is checked using Amdahl's law (1967). The percentage of parallelization is 96% for the RAMS model and increases to 98% for RAMS-Chimie. A number of sensitivity tests were performed to obtain realistic meteorological fields. In this work, the heterogeneity of the ground humidity depends on the surface texture, and the topography option accurately retrieves the location of mountaintops and valleys. To avoid bias in the chemical results, the meteorological simulation is first validated with surface data, Lidar, Sodar, soundings and airborne measurements for three IOPs (Intensive Observation Periods) which have contrasting meteorological conditions. Secondly, the redistribution of chemical modeled species (CO, NO_x, SO₂, O₃) is validated with surface, aircraft and Lidar data over this region where the circulation is complex (sea breeze associated with northern (Mistral) or southern flow). Use of two way nested grids resolves the problem of lateral boundaries for chemical fields (Taghavi et al, 2004). The location of convective cells and the channelling of Rhone and Durance depend on direction of synoptic flow and play a role in the redistribution of pollutants and their chemical regime. Two emission inventories of varying quality (30% difference in average) are compared (Taghavi et al, 2004), one with a high resolution (1 km) and the other with an average resolution. In both cases, ozone plume location and concentration are the same, and thus we conclude a low resolution inventory is satisfactory to investigate ozone plume formation because it is a nonlinear process. This type of modelling can be used to develop appropriate strategies for emissions reductions.

Mots clés : Pollution urbaine et péri-urbaine, Modélisation méso-échelle, Météorologie, Chimie de l'atmosphère, Cadastre d'émissions.

Table des matières

INTRODUCTION	6
<hr/>	
CHAITRE I - La campagne ESCOMPTE	10
<hr/>	
I.1 - Objectifs du programme ESCOMPTE	10
I.2 - Le Site de la campagne de terrain	11
I.3 - Etudes préliminaires	12
I.3.1 - Modélisation chimie-transport	12
I.3.2 - Trajectographie des masses d'air	13
I.3.3 - Les circulations atmosphériques locales présentes dans le domaine	13
I.3.4 - Qualité de l'air	14
I.4 - Les POIs pendant ESCOMPTE	14
I.5 - La campagne préliminaire (POI0)	15
I.5.1 - Les moyens mis en œuvre pendant la POI0	15
I.5.1.1 - Les mesures de surface	15
I.5.1.2 - Mesures en altitude	16
I.5.2 - Résultats de la pré-campagne	18
I.6 - La campagne ESCOMPTE	18
I.6.1 - Les moyens mis en œuvre	18
I.6.2 - Les mesures terrestres	19
I.6.2.1 - Les réseaux permanents	19
I.6.2.2 - Les réseaux spécifiques de la campagne	19

I.7 - Les mesures en altitude	23
I.7.1 - Les profileurs continus	23
I.7.2 – Télédétection	23
I.7.3 - Les profileurs de constituants : Lidars O ₃	24
I.7.3.1 - Les Lidars " Ozone "	24
I.7.3.2 - <i>Rôle et caractéristiques expérimentales des Lidars O₃ / Aérosols</i>	25
I.7.4 - Description et localisation des différents Lidars	25
I.7.5 - Les profileurs de vent : Radars et Sodars	26
I.7.5.1 - Rôle et caractéristiques expérimentales des Radars et Sodars	26
I.7.5.2 - Bilan du fonctionnement	27
I.7.6 - Mesure par Radiosondages	28
I.8 - Mesures par avion	29
I.8.1 – Généralités	29
I.8.2 - Récapitulatif des vols Merlin	32
I.8.3 - Récapitulatif des vols de l'IMK (Dornier 128)	32
I.8.4 - Récapitulatif des vols Aztec	33
I.8.5 - Récapitulatif des vols de l'ARAT Fokker 27	33
I.9 - Les cadastres d'émission	34
I.9.1 - Le Pré inventaire des émissions (PEI : Pre Emission Inventory)	34
I.9.2 - Inventaire d'émission mis à jour – MEI (Main Emission Inventory)	34
I.9.3 - Les émissions d'isoprène	35
I.10 – Conclusion du chapitre I	35
CHAPITRE II - Modèles RAMS et MOCA : configuration et initialisation	36

II.1 - Le modèle RAMS : Présentation, Description technique et détail des options utilisées	36
II.1.1 - Choix du modèle météorologique	36

II.1.2 - Présentation du modèle RAMS	37
II.1.3 - Les équations générales	38
II.1.4 - Structure de la grille	40
II.1.4.1 - Grille décalée	40
II.1.4.2 - Projection du domaine	40
II.1.4.3 - La coordonnée verticale σz (terrain – following)	40
II.1.4.4 - Les niveaux verticaux	40
II.1.5 - Schéma d'intégration temporelle (time differencing)	41
II.1.6 - Les grilles imbriquées	41
II.1.7 - Conditions aux limites	42
II.1.7.1 - Limites latérales	42
II.1.7.2 - Limites verticales	43
II.1.8 - La paramétrisation de la surface	44
II.1.9 - Les paramétrisations de sol et de végétation	44
II.1.10 - L'assimilation des données et le forçage aux conditions aux limites	46
II.2 - Domaine, initialisation et forçage du modèle météorologique	47
II.2.1 - Domaine géographique	47
II.2.2 - La topographie	48
II.2.3 - Problème d'utilisation de définition de haute résolution de topographie	50
II.2.4 - La végétation	50
II.2.5 - La température de l'eau de mer	51
II.2.6 - Le type de sol	51
II.2.7 - L'initialisation des champs météorologiques du modèle	52
II.2.8 - Initialisation de l'humidité du sol	52
II.3 - Mécanisme chimique, constantes de réactions, validation du modèle en 0D pour une zone urbaine polluée	57
II.3.1 - Modèle MOCA	57
II.3.2 - Modèle chimie MOCA 2.2	58

II.3.3 - Choix du Modèle	58
II.3.4 - Les constantes de réactions de photolyses et chimiques	59
II.3.4.1 - Les constants de réaction de photolyse et le Modèle TUV	59
II.3.4.1.1 - Albédo de surface	60
II.3.4.1.2 - Profil d'épaisseur optique des aérosols	62
II.3.4.2 - Les constantes de réaction ne dépendant que de la température	63
II.3.4.3 - Autres types de réactions	52
II.3.5 - Capacité du modèle MOCA2.2 à simuler des épisodes de pollution urbaine	64
II.3.6 - Le rapport de VOC/NO _x	64
II.3.7 - La relation entre l'ozone, NO _x et VOC dans les modèles Photochimiques	65
II.3.8 - Test de sensibilité du modèle MOCA pour la production d'ozone vis-à-vis des NO _x -VOC	65
II.3.9 - Initialisation des espèces chimiques	68
II.3.10 - Prise en compte de dépôt sec	69
II.3.11 - Les conditions aux limites	70
II.3.12 - Conclusion	72
II.4 - Couplage du modèle météorologique RAMS et du mécanisme chimique MOCA 2.2	74
II.4.1 - La structure parallèle de RAMS	74
II.4.2 - La décomposition du domaine	75
II.4.3 - Les types de communication	76
II.4.4 - Simultanéité entre calculs et communication	77
II.4.5 - Fichier de sortie	77
II.4.6 - Quelques précisions concernant l'imbrication de grilles	78
II.4.7 - Procédure de couplage	78
II.4.7.1 - MPI (Message Passing Interface) au CINES	78
II.4.7.2 - Les procédures de couplage	79
II.4.8 - Test d'optimisation du nombre de processeurs	81
II.4.9 - Test d'Efficacité du couplage	83

II.5 – conclusion	85
CHAPITRE III - Etude Météorologique	86
<hr/>	
III.1 - Situation météorologique des POIs étudiées	86
III.1.1 - La POI0	86
III.1.2 – La POI2a	88
III.1.3 – la POI2b	91
III.2 - Simulation Météorologique	95
III.2.1 - Les comparaisons modèle – mesures	95
III.2.1.1 - Stations de surface	95
III.2.1.2 - Comparaisons avec les mesures	105
III.2.3 - Conclusion	114
III.3 - Interprétation des situations météorologiques, basées sur les simulations validées	115
III.3.1 - Circulation les plus fréquentes	115
III.3.2 - Mistral	115
III.3.2.1 - Canalisation dans la vallée du Rhône et de la Durance	116
III.3.2.2 - Mistral et champ d’humidité faible	117
III.3.2.3 - Cellule convective	119
III.3.3 - Cas de brise de mer	120
III.3.3.1 - Canalisation dans le cas de la brise	121
III.3.3.2 - Les Cellules convectives	122
III.3.3.3 - Champs de vent en surface et à 1000m	124
III.3.3.4 - Front de la brise	125
III.3.3.5 - Hauteur de la cellule de la Brise (coup méridienne du vent)	125
III.3.4 - Brise de terre	128
III.4 - Conclusion	130

CHAPITRE IV - Chimie	131
-----------------------------	------------

IV.1 - La chimie de l'ozone, des NO_x et des COV	131
IV.1.1 - Production d'ozone dans l'atmosphère propre	131
IV.1.2 - Le concept de L'oxygène impair	133
IV.1.3 - La production d'ozone par les réactions impliquant COV, CO et NO _x	133
IV.2 - Amélioration de la modélisation chimique	140
IV.3 - Résultats de simulation des POI2a et POI2b : Impact de la dynamique	158
IV.3.1 - Validation des champs chimiques	158
IV.3.2 - Différents régimes chimiques : titration ou production d'ozone	160
IV.3.3 - Impact des mécanismes dynamiques sur la formation du panache d'ozone	162
IV.3.3.1 - Les cellules convectives	162
IV.3.3.2 - La canalisation dans les vallées	165
IV.3.3.3 - La brise de terre à Toulon	166
IV.3.4 - Conclusion	168
IV.4 - Etude du rôle d'émission	169
IV.5 – Conclusion	193
Conclusion	195

Bibliographie	199
----------------------	------------

INTRODUCTION



Au cours du siècle dernier, la composition des gaz atmosphériques a été considérablement modifiée par les activités humaines. L'un des résultats de ce changement est l'observation de la concentration élevée d'ozone dans les zones polluées. L'occurrence de périodes de pollution photochimique a considérablement augmenté depuis la dernière décennie (Perros et Marion, 1998). En France, ces dernières années, il y a eu des niveaux élevés d'ozone, notamment dans la région du sud, sud-est, où se trouvent de nombreuses zones industrielles avec un important réseau routier et de vastes zones de garrigues et de forêts. Ces émissions anthropiques et biogéniques sont associées à des concentrations élevées d'ozone et d'autres oxydants photochimiques qui ont un impact néfaste sur la santé des êtres humains (Bates, 1995a, 1995b) et sur la croissance des récoltes et des forêts (Taylor, 1969; Heck et al, 1984). Les plantes sont particulièrement affectées pendant la journée quand la conductibilité stomatale est élevée (Fuhrer et Achermann, 1994). Par conséquent, étudier aujourd'hui le transport et la distribution des polluants, ainsi que les régimes chimiques qui les gouvernent, est très important et en particulier la production de l'ozone. En effet, la directive actuelle 92/72/EEC pour les états membres de la communauté européenne (EU) a fixé les seuils de l'ozone et a exigé de ses états membres de surveiller et noter les dépassements de ces seuils (Gangoiti et al, 2001). Il y a différentes approches pour étudier la production d'ozone et son transport dans la troposphère : soit par des études expérimentales associées à des études climatologiques du transport de l'ozone (Weber et Prévôt, 2002), mais ces derniers ont besoin de données successives sur plusieurs années, soit par des études de cas à l'aide de modélisation numérique.

Pour avoir une information continue dans tout l'espace, par exemple étudier le panache de l'ozone ou d'autres polluants, sa forme et son transport, pour évaluer des stratégies de contrôle, les modèles numériques qui peuvent décrire la météorologie, la chimie, et le dépôt sont des outils appropriés pour ce type d'étude. Il est évident que l'exactitude de ces modèles doit se confirmer en comparant les résultats simulés aux valeurs d'observation, en acceptant toutefois un certain nombre d'incertitudes, parce que il y a toujours des limitations pour retrouver les champs réels.

En effet, dans l'atmosphère il y a plus de 3000 espèces chimiques différentes. Les mécanismes des réactions atmosphériques sont relativement complexes même si on ne considère que la chimie de produits organiques relativement simples. Le mécanisme chimique explicite pour l'oxydation d'un organique dans l'atmosphère peut inclure des centaines de réactions. Par conséquent, le nombre de réactions devient difficile à gérer dans les modèles quand on veut prendre en compte un mélange de COV-NO_x. Le mécanisme explicite de chimie en phase gazeuse, de référence est celui du NCAR version 2,0 (Madronich et Clavert, 1989) qui comprend plus de 4930 réactions chimiques. Pour modéliser la chimie de

l'atmosphère, il y a trois problèmes principaux : (i) une grande quantité de temps CPU est requise pour une solution explicite, (ii) un grand intervalle pour le pas de temps chimique conduit à des systèmes fortement raides dont l'intégration exige des solveurs spécifiques (Djouad R. et Sportisse B., 2003), (iii) les constantes cinétiques et les taux d'émission ne sont généralement pas disponibles pour toutes les espèces chimiques, mais sont plutôt connus pour un groupe chimique. Ainsi, les mécanismes chimiques explicites ne peuvent pas être utilisés dans les études de pollution urbaine. Des schéma condensés sont alors recommandés (Aumont et al, 1996). L'une des méthodes pour réduire le nombre d'espèces organiques et leurs réactions est le « lumping ». Les espèces organiques qui ont des propriétés chimiques similaires sont groupées, en tant que par exemple, COVs non aromatiques (Jenkin et al, 1997) ou alcanes (Wangs et al, 1998). Deux approches ont été employées pour développer les mécanismes condensés pour les organiques. La première groupe les organiques par leurs classifications traditionnelles, par exemple, alcanes, alcènes, et composés aromatiques. La deuxième groupe les organiques en terme de liaison (Finlayson et Pitts, 2000).

La modélisation de la chimie de l'atmosphère peut faire intervenir différents types de modèles :

- Les modèles 0D ou modèles des boîtes (Schere et Demerjian, 1987) et (Kuhn et al, 1998). La masse d'air au-dessus du domaine d'étude est considérée comme une boîte où des polluants sont émis et subissent des réactions chimiques. En général le modèle de boîte est employé pour étudier différents aspects de régime chimique.
- Les modèles lagrangiens (Wayne et al, 1973) qui examinent la masse d'air le long d'une trajectoire météorologique.
- Les modèles Eulériens qui évaluent de manière plus réaliste la redistribution des espèces chimiques en chacun des points grilles du domaine. Dans ce type de modèles, on distingue (i) les modèles à l'échelle urbaine : l'UAM (Urban Airshed Model : Reynolds et al, 1973 ; Tesche et McNally, 1991), le modèle de CIT (California Institute of Technology model, McRae et al, 1982b ; Russell et al, 1988), et le modèle de SMOG (Surface Meteorology and Ozone Generation model, Lu et al, 1997a, 1997b) où la taille horizontale de chaque grille est de l'ordre de quelques kilomètres (4 ou 5 kilomètres) et avec 5 à 20 niveaux verticaux d'épaisseur variable. (ii) les modèles à l'échelle régionale : RADM (Regional Acid Deposition Model, Chang et al, 1987), ADOM (Acid Deposition and Oxidant Model, Venkatram et al, 1988), STEM II (Sulfur Transport Eulerian Model, Carmichael et al, 1991), RTM-III (Regional Transport Model III, Liu et al, 1984), LIRAQ (Livermore Regional Air Quality Model, MacCracken et al, 1978), CALGRO (Yamartino et al, 1992), et ROM (Regional Oxidant Model, Lamb, 1983) où l'échelle horizontale est de l'ordre de 15-130 kilomètres, avec 6 à 30 niveaux verticaux d'épaisseur variable.

Les modèles de chimie-transport peuvent être couplés online ou offline avec les modèles météorologiques. Dans le cas d'un couplage offline, la fréquence d'appel des champs météorologiques est un point crucial. : par exemple le LOTOS a une fréquence de 3H (Van Loon et al, 2000), tandis que le modèle météorologique TVM et le mécanisme de réaction

chimique de RACM a un appel chaque heure (Thunis et Cuvelier, 1999). Dans ces cas, nous n'avons pas une bonne précision sur le transport des espèces chimiques puisque les données météorologiques (vent) sont moyennées entre deux appels.

Les taux d'émissions des espèces chimiques et leur transport jouent un rôle clé dans l'installation d'un régime chimique. Dans le cas de modélisation méso-échelle où l'on simule des circulations météorologiques complexes, le couplage online est plus approprié que le couplage offline qui est largement utilisé dans les modèles de chimie transport de grande échelle. En effet, si nous utilisons des données météorologiques toutes les trois heures, à 19 h la brise de mer est encore établie mais à 22h, la brise de terre est déjà en place. Pendant ce changement, le couplage on-line peut calculer le transport à chaque pas de temps de manière plus réaliste que cela n'est effectué dans le cas off-line. Les modèles grande échelle ne prennent pas en compte encore, tous les processus sous-maille (brise de mer, brise de montagne, convection..). Par contre, un des intérêts du couplage off-line est l'emploi de modèle chimique avec un grand nombre d'espèces chimiques.

Un autre problème des modèles chimie-transport à l'échelle régionale concerne les conditions aux limites latérales. Pour résoudre cette difficulté, nous avons fait appel aux grilles imbriquées. La grande grille correspond à une dimension qui doit correspondre aux transports des polluants proches de la région étudiée.

Le but de cette étude est d'obtenir un modèle de chimie-transport qui réponde à deux points antagonistes : un minimum de temps CPU et un maximum d'exactitude. Pour cela, nous avons utilisé un couplage online entre le modèle météorologique RAMS (Regional Atmospheric Modelling Systems, Cotton et al, 2003) et le modèle de chimie MOCA2.2 (Aumont et al, 1996). Ce modèle appelé RAMS_Chimie est validé en région urbaine à l'aide de la campagne ESCOMPTE.

Dans le premier chapitre de cette étude, nous présentons la campagne ESCOMPTE. Dans le deuxième, nous examinons les différents modèles utilisés et l'optimisation de leur parallélisation. Dans le troisième chapitre, les différents mécanismes dynamiques sont décrits et les champs météorologiques sont validés pour chaque période étudiée pour un domaine incluant deux grilles imbriquées. Enfin dans le quatrième chapitre, nous évaluons le modèle RAMS_Chimie par une série de comparaisons modèles – mesures, examinons l'impact du cadastre à haute résolution et expliquons le rôle de la dynamique sur ces champs chimiques au travers de différents régimes chimiques observés.

CHAPITRE I



La campagne ESCOMPTE

Cette étude étant effectuée dans le cadre de la campagne ESCOMPTE, nous allons donner un descriptif général de cette campagne en se concentrant sur les POIs étudiées.

I.1 - Objectifs du programme ESCOMPTE

Le projet ESCOMPTE a été inscrit dans un effort général de recherche visant à disposer d'outils permettant de mieux caractériser les phénomènes de pollution, en particulier la pollution photochimique. Cette pollution est liée aux émissions d'oxydes d'azote et de composés organiques libérées par les activités humaines; elle se traduit par des niveaux élevés d'ozone et d'autres espèces toxiques pour l'homme, les animaux et les végétaux. Parmi ces moyens figurent les modèles de chimie-transport de la pollution atmosphérique, dont le but est de décrire finement les relations entre les émissions de polluants, les conditions météorologiques, et les niveaux de pollution résultant en zone urbaine ou rurale. Ces modèles sont des outils indispensables pour évaluer l'efficacité des politiques de réduction des émissions polluantes, et pour procéder à des prévisions en vue de satisfaire les objectifs fixés par les organismes de surveillance de la qualité de l'air. De plus, l'évaluation et la validation de ces modèles nécessitent une base de données fiable et complète qui doit servir à la qualification de ces modèles. Donc en pratique, l'objectif principal du programme ESCOMPTE a été la constitution d'une base de données tridimensionnelle très détaillée incluant un cadastre des émissions de polluants primaires ainsi que l'étude de la composition chimique et de la dynamique de l'atmosphère lors d'épisodes de pollution atmosphérique en vue de contribuer au développement et à la validation de tels modèles. Elle a été donc destinée d'une part à fournir certaines données essentielles pour initialiser les modèles, comme par exemple un cadastre d'émission à haute résolution, et d'autre part à servir de référence pour la validation de ces modèles de pollution urbaine et péri-urbaine. Enfin, cette campagne doit permettre de participer à l'évolution de ces modèles en prenant en compte des mécanismes qui intègrent les photo-oxydants et les particules ainsi que leur interaction ce qui nécessite une documentation expérimentale ad hoc incluant non seulement les mesures des composés gazeux et des radicaux, mais aussi la mesure des caractéristiques physiques et la composition chimique des aérosols dans les phases organique et inorganique. Cette base de données a documenté, de façon aussi détaillée que possible, les trois modules nécessaires au bon fonctionnement d'un modèle de chimie-transport, à savoir : un cadastre d'émissions aussi proche que possible de la réalité, une description météorologique détaillée des épisodes étudiés, et une description chimique des espèces intervenant dans les processus

auxquels on s'intéresse sur la zone géographique retenue. Cette campagne doit nous aider à apporter des éléments de réponse aux questions suivantes :

- quel est le rôle respectif des différents mécanismes dynamiques et chimiques sur l'apparition des épisodes de pollution ?
- comment prendre en compte les émissions urbaines dans les modèles régionaux ou globaux ?
- peut-on développer une prévision opérationnelle des épisodes de pollution ?
- quelle stratégie faut-il développer pour réduire les concentrations de photo-oxydants et de particules ?

I.2 - Le Site de la campagne de terrain

Après la définition des objectifs, l'étape suivante est le choix du site de la campagne de terrain et aussi de la période temporelle dans laquelle les mesures doivent s'effectuer. L'occurrence d'épisodes de la pollution photochimique est maximale en période estivale et dans les régions ensoleillées. Ces raisons ont motivé le choix de la région de Marseille-Fos-Berre comme site de campagne de terrain. Cette région présente en effet une probabilité élevée d'observation d'épisodes de pollution photochimique. Les autres avantages concernant cette région sont : la qualité du réseau de surveillance et des bases de données existantes en notant que cette région a déjà fait l'objet d'une campagne d'étude de la pollution atmosphérique (Fos-Berre 3 - 16 juin 1983) axée principalement sur les polluants primaires, le forçage dynamique, la définition des conditions aux limites et la possibilité de validation de modèles. Il faut aussi noter que :

- c'est un site riche et diversifié, constitué de 2 bassins:
 - celui de Marseille qui va permettre de tester des modèles vis-à-vis des émissions d'une grande agglomération de plus d'un million d'habitants. Il est entouré de chaînons montagneux : la chaîne de l'Etoile (670 m) et la montagne Sainte Victoire (1000 m) au nord, le massif de la Sainte Baume (1000 m) à l'est et les monts Carpiagne (647 m) et Puget (564 m) au sud (voir Figure I.1).
 - celui de Fos-Berre qui va permettre de tester les modèles sur une région industrielle avec un environnement naturel et rural important. Il est situé autour de l'étang de Berre à 15 km au nord-ouest de Marseille dont il est séparé par les collines de l'Estaque (300m). Ce bassin s'ouvre sur la mer au sud-ouest et sur la plaine du Crau au nord-ouest (voir Figure I.1).
- c'est un des sites d'étude choisi par le programme PHAMA (commencé en 1995) pour étudier le couplage entre ozone et aérosols dans un système NO_x -COV- NH_3 .

I.3 - Etudes Préliminaires

Les études préliminaires sont des éléments essentiels pour aider à la conception d'une campagne de mesures. Des études d'épisodes antérieurs de pollution ont été sélectionnées en examinant les paramètres climatologiques incluant les phénomènes climatiques saisonniers, les circulations synoptiques et locales. Pour ces études préliminaires, plusieurs types de modélisation ont été effectués.



Figure I.1 - Zone industrialisée de Fos et de Marseille (pointillé rouge).

I.3.1 - Modélisation Chimie-Transport

Dans cette phase préparatoire, les travaux de modélisation se sont développés selon trois axes :

- des simulations tests de météorologie incluant le transport de traceurs pour aider à la définition du schéma expérimental;

- le développement d'outils qui seront testés et validés sur les données de la campagne ;
- des simulations à partir de différents modèles s'appuyant sur les données de la pré-campagne.

Quelques groupes français de modélisation se sont impliqués dans ce projet. Dans le cadre de l'ouverture à la coopération européenne, d'autres groupes de modélisation se sont associés au projet, offrant ainsi une plus large gamme de modèles à tester pour la base de données ESCOMPTE, ce qui est l'objectif majeur du programme. Les pré-modélisations ont permis d'analyser les champs dynamiques, le transport et la distribution de traceurs passifs.

I.3.2 - Trajectographie des masses d'air

Pour bien cerner l'environnement météorologique synoptique de la zone ESCOMPTE pendant les périodes sélectionnées par la pré-modélisation, des trajectographies ont été établies pour trois niveaux (1000hPa, 850hPa et 750hPa). Elles sont calculées à partir du modèle ECMWF (maillage de 60 km). Lors de la campagne, tous les jours, des rétro-trajectoires issues de plusieurs points du domaine sur plusieurs niveaux verticaux et basées sur les prévisions d'ARPEGE et aussi d'ALADIN (résolution 9 km), ont été calculées afin de déterminer l'intérêt de déclencher une période d'observations intensives. Cette procédure a été testée pendant la pré-campagne avant d'être employée comme aide à la décision, en complément de la prévision météorologique, pendant la phase opérationnelle de la campagne.

I.3.3 - Les circulations atmosphériques locales présentes dans le domaine

Une des circulations locales qui influence la pollution urbaine et péri-urbaine de Marseille est la brise de mer. Ces brises deviennent prépondérantes lorsque d'une part le contraste thermique entre la terre et la mer est le plus important (période d'avril à septembre) et en l'absence d'un régime synoptique établi (Mistral ou régime perturbé de sud-est ou sud-ouest). Le tableau I.1, fourni par Météo-France, donne en pourcentage les fréquences d'occurrence de ces brises (période 1962/1998) sur Marignane.

	janv.	fév.	mars	avril	mai	juin	juil.	août	sept.	oct.	nov.	déc.
Brises	0.3	1.0	1.9	5.7	8.9	8.3	9.1	6.9	4.1	1.3	0.7	0.3
Mistral	13.0	14.0	17.0	18.8	11.1	11.6	12.4	9.9	9.9	11.1	14.4	14.0

Tableau I.1 - Les fréquences d'occurrence (en pourcentage sur le mois) du phénomène de brise (période 1962/1998) sur Marignane (source : Météo-France).

A Marseille, la brise de mer démarre vers 08h TU avec des vitesses comprises entre 4 et 6 m/s puis remonte vers l'intérieur des terres, notamment dans les vallées du Rhône et de la Durance avec une extension verticale variant de 800 à 1500m.

I.3.4 - Qualité de l'air

L'étude climatologique de la qualité de l'air a été utile pour fixer la période de la campagne. Les résultats de ces études donnent une chance relativement plus élevée de l'occurrence d'épisodes de pollution urbaine. Le tableau I.2 fourni par le réseau de surveillance de la qualité de l'air Airmaraix, donne l'évolution du nombre de jours de dépassements du seuil d'information ($180 \mu\text{g}/\text{m}^3$ pendant au moins 1 heure) de l'ozone dans les Bouches du Rhône entre le 1er mai et le 30 septembre.

	1994	1995	1996	1997	1998	Moyenne
mai	1	3	3	6	9	6
juin	9	4	12	4	11	9.0
juillet	20	13	11	11	8	10.0
août	8	5	4	13	16	11.0
septembre	1	1	2	17	2	7.0
Total	39	26	32	51	46	43
% de jours sur 5 mois	25%	17%	21%	33%	30%	
Nombre de sites	4	8	16	23	24	

Tableau I.2 - Evolution du nombre de jours de dépassement du seuil d'information ($180 \mu\text{g}/\text{m}^3$ pendant au moins 1 heure) de l'ozone dans les Bouches du Rhône entre le 1er mai et le 30 septembre (source : Airmaraix).

I.4 - Les POIs pendant ESCOMPTE

La campagne ESCOMPTE comprend 6 POIs présentées dans le tableau I.3.

POI	Les POI étudiées	Dates
POI0	*	<i>Du jeudi 29 juin au dimanche 01 juillet 2000</i>
POI1		<i>Du jeudi 14 au vendredi 15 juin 2001</i>
POI2a	*	<i>Du jeudi 21 au samedi 23 juin 2001</i>
POI2b	*	<i>Du samedi 23 au mardi 26 juin 2001</i>
POI3		<i>Du lundi 2 juillet au mercredi 4 juillet 2001</i>
POI4		<i>Du mardi 10 juillet au Vendredi 13 juillet 2001</i>

Tableau I.3 - les POIs effectuées et les POIs étudiées (en bleu).

Les POIs étudiées sont POI0, POI2a et POI2b. La POI0 a été effectuée en 2000 pendant la phase préparatoire de la campagne, donc le nombre de mesures est relativement inférieur à celui des mesures de la campagne principale. Le cas des deux POIs 2a et 2b est assez intéressant car on est le témoin de deux événements météorologiques et par conséquent chimiques qui sont tout à fait différents bien qu'ils ne concernent qu'un seul épisode temporel. Les mesures effectuées pendant les POIs comprennent évidemment quelques mesures incluses dans les différents objectifs d'ESCOMPTE dont on ne s'est pas servi dans cette étude. Pour donner une image générale de la campagne nous allons lister très brièvement l'ensemble des mesures, mais nous allons seulement détailler les caractéristiques des données utilisées lors de cette étude.

I.5 - La campagne préliminaire (POI0)

Une campagne préliminaire d'une dizaine de jours a été prévue dans la deuxième quinzaine de Juin et début juillet 2000 (tableau I.3). Cette campagne préliminaire comprend une seule POI qui s'est déroulée entre le 29 juin et le 1^{er} juillet 2000 (POI0). Les objectifs de cette expérience préliminaire ont été essentiellement techniques. Ces mesures ont tout de même servi à la mise en marche des modèles et à examiner différents paramètres qui jouent sur leurs efficacités et la validation de leurs résultats. Par exemple, un test a été effectué pour montrer l'efficacité de grilles imbriquées (Taghavi et al, 2004).

I.5.1 - Les Moyens mis en œuvre pendant la POI0

I.5.1.1 - Les mesures de surface

- Les mesures permanentes :

Les mesures des principaux paramètres météorologiques (Pression, Température, Vent, Humidité, précipitations) sont effectuées par le réseau de stations opérationnelles de Météo-France. Une dizaine de sites jugés stratégiques pour la couverture de l'expérience ont été sélectionnés. Quelques-unes de ces stations ont été équipées de mesures supplémentaires comme celle de rayonnement. Les mesures des principaux paramètres chimiques (Ozone, CO, NO, NO₂) sont effectuées par deux réseaux locaux de surveillance de la qualité de l'air : AIRFOBEP et AIRMARAIX. AIRFOBEP est le plus ancien, initialement installé pour évaluer l'impact environnemental des émissions du complexe industriel de la région de l'Etang de Berre. Créé en 1972, son réseau est composé de 32 stations, équipées pour mesurer certains polluants. Le deuxième réseau, AIRMARAIX, créé en 1982, dispose de 39 stations sur trois départements : l'Est des Bouches du Rhône, le Var et le Vaucluse. Il s'oriente aujourd'hui vers la surveillance de la pollution urbaine. Les grandes agglomérations urbaines surveillées par AIRMARAIX sont Marseille, Aix en Provence, Aubagne, Toulon et Avignon. La Figure I.2 présente la répartition de ces stations sur le domaine ESCOMPTE. Les données des réseaux de mesure sol (Météo-France, Airfobep, Airmaraix) correspondant à la durée de la pré-campagne ont été rassemblées et archivées dans la base de données ESCOMPTE.

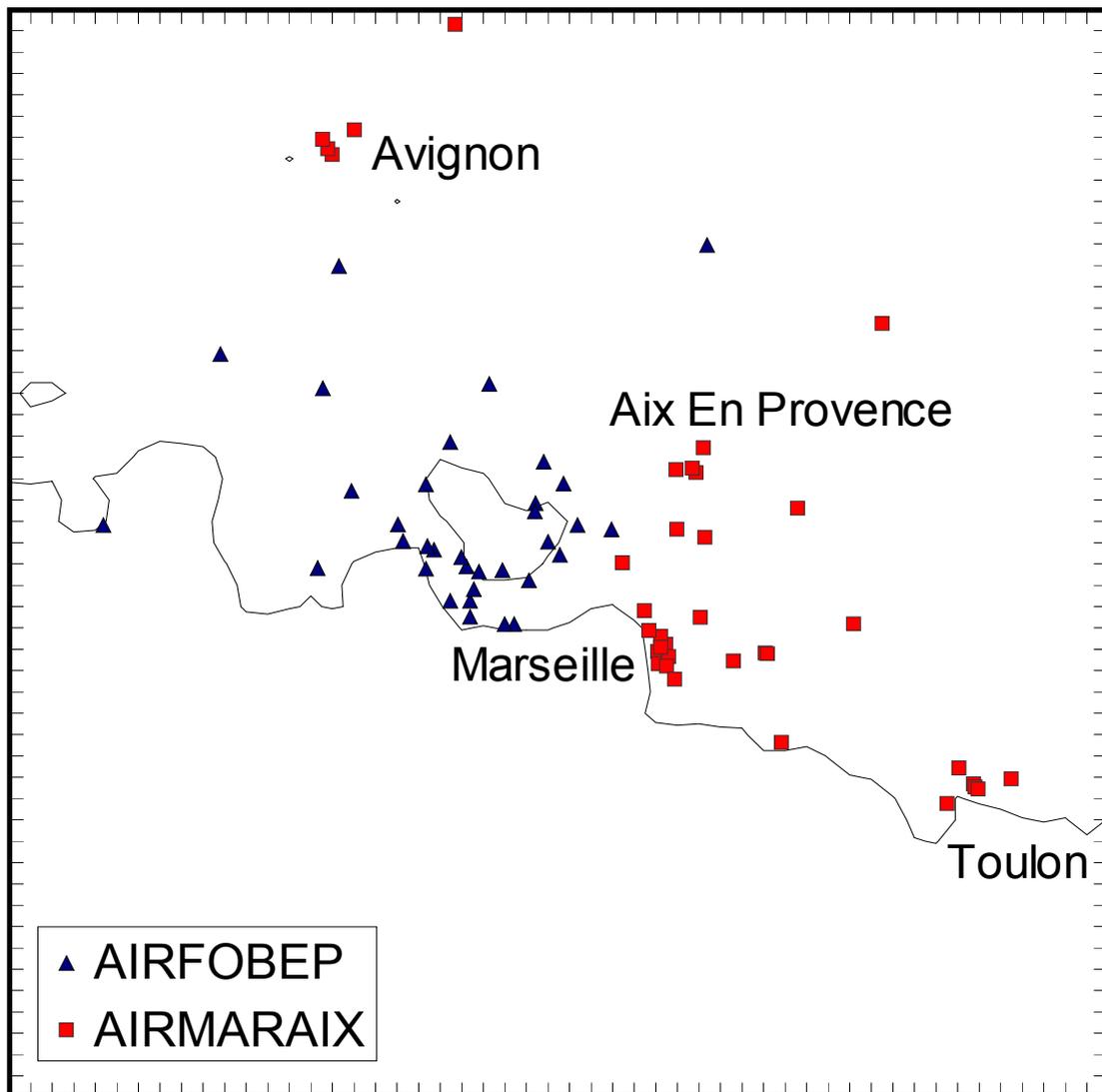


Figure I.2 – Répartition des stations d’Airfobep et Airmaraix sur le domaine ESCOMPTE.

- Les Mesures spécifiques pour la pré-campagne

Deux stations mobiles de mesures chimiques ont été employées, deux véhicules légers de Météo-France instrumentés pour la mesure d’ozone, particules (PM₁), et paramètres météorologiques et un réseau simplifié de mesures de dynamique.

1.5.1.2 - Mesures en Altitude

- **les ballons à volume constant** : ces mesures ont été effectuées au Vallon dol et à Martigues pendant 3 jours (29/06/2000 - 01/07/2000).

- **les données Radar Vent UHF / METEO-France (CNRM)** : ces mesures ont été effectuées de façon continue pendant les 3 jours de la POI0 (29/06/2000 - 01/07/2000).

- **les données issues des radiosondages de METEO-France** : plusieurs mesures de radiosondage ont été effectuées pendant 3 jours, à Martigues et à Nîmes situés dans le domaine d'ESCOMPTE et aussi à Ajaccio hors du domaine d'ESCOMPTE pendant cinq jours (28/06/2000 - 02/06/2000).

- **les mesures aéroportées** : deux avions ARAT et Piper AZTEC ont été instrumentés pour des mesures de dynamique et de physico-chimie. ARAT a effectué 4 vols entre le 30/06/2000 et le 02/07/2000. Piper AZTEC a effectué 6 vols entre le 29/06/2000 et le 03/07/2000. La Figure I.3 présente les trajectoires des vols Piper AZTEC du 30/06/00 et ARAT du 01/07/00.

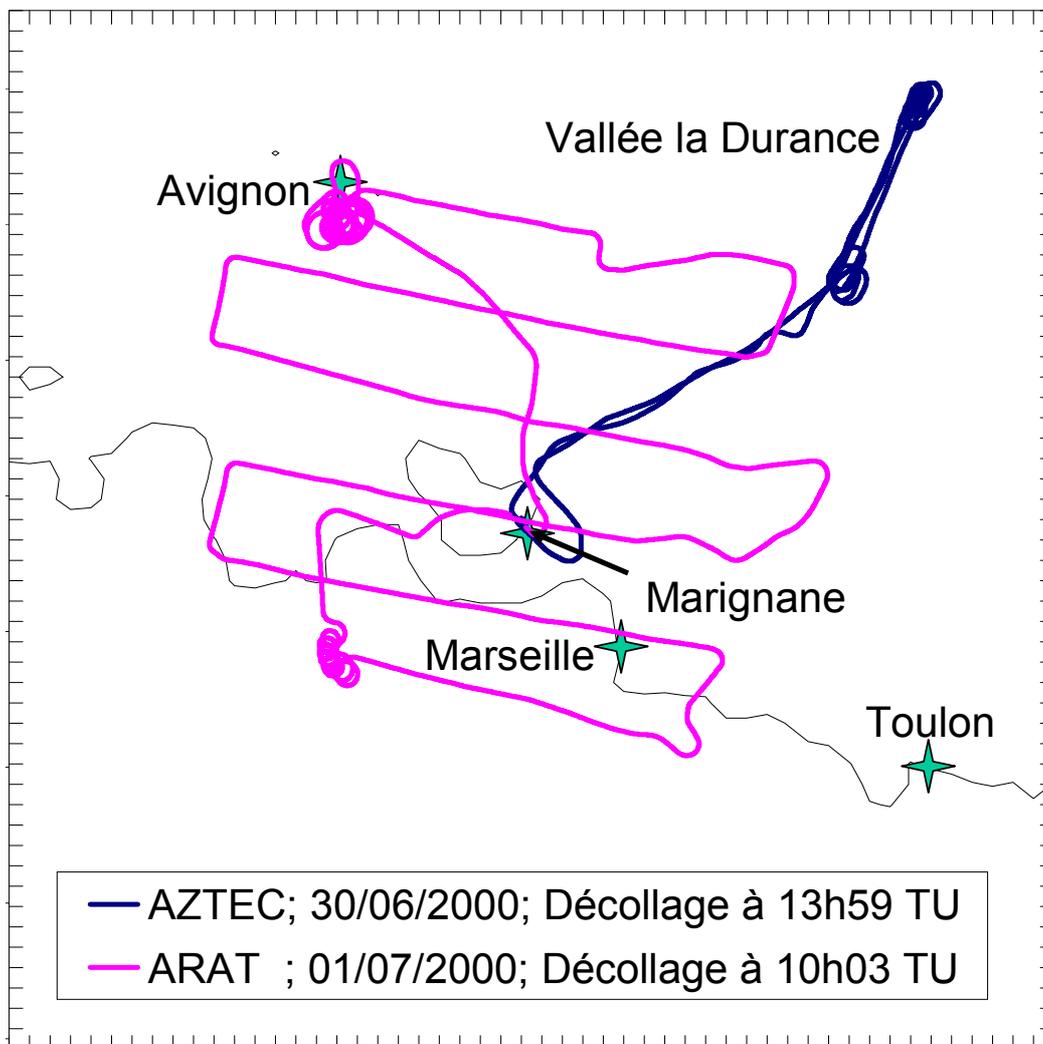


Figure I.3 - Trajectoires des vols AZTEC du 30/06/00 et ARAT du 01/07/00.

I.5.2 - Résultats de cette pré-campagne

Cette campagne a permis :

- d'explorer les champs de concentrations en 3D afin d'orienter le choix des plans de vols pour la campagne ESCOMPTE 2001. Il s'agissait, en particulier, d'étudier l'extension du panache sur la mer et sur le continent en régime de brise. Cette pré-étude a permis, en relation avec l'équipe de pré-modélisation, de définir l'extension du domaine d'étude et de préciser les zones du domaine à échantillonner avec un pas de mesure plus ou moins fin.
- de tester les plans de vols retenus et la compatibilité de ces plans avec les contraintes du trafic aérien civil et militaire de la région,
- de tester l'implantation des stations complémentaires dans les trois zones urbaine, péri-urbaine et rurale,
- de tester en collaboration avec les services régionaux la procédure de déclenchement des POIs,
- de tester des instruments nouveaux pour les mesures sol et aéroportées.

En outre cette pré-campagne a fourni un premier jeu de données tridimensionnel (certes incomplet), mais qui a permis de tester les différents modèles sur des cas réels.

I.6 - La campagne ESCOMPTE

Elle a été fixée entre le 4 juin et le 13 juillet 2001. Cette période comprend les 5 autres POIs après la POI0 de la pré-campagne 2000.

I.6.1 - Les moyens mis en oeuvre

Les moyens de mesure fonctionnant pendant la campagne ESCOMPTE comprennent d'une part, les systèmes opérationnels de surveillance de l'air (stations du réseau, stations de radiosondage et radar profileur de vent de Météo-France, et les stations des réseaux d'observation des associations locales de surveillance de la qualité de l'air, AIRMARAIX et AIRFOBEP), et d'autre part, les moyens et systèmes de mesure spécifiquement mis en oeuvre pour la campagne (avions de recherche, instruments de télédétection à la surface, radiosondage, ballons plafonnants, stations de surface, navires). Les outils de prévision, servant aux déclenchements des périodes d'alerte et des périodes d'observation, sont basés sur les modèles, opérationnels ou rendus tels pour la période de la campagne.

I.6.2 - Les Mesures terrestres

Les mesures de surface comprennent deux types de mesures, les paramètres météorologiques et les paramètres chimiques. On peut aussi diviser cette rubrique en deux parties : les mesures permanentes de la zone d'intérêt, et les mesures spécifiquement déployées pour la campagne. Dans cette deuxième catégorie, un certain nombre d'instruments ont fonctionné pendant toute la période d'alerte (ou tout au moins pendant une période fixée à l'avance), d'autres ont été mis en œuvre spécifiquement lors des périodes d'observation intensive.

I.6.2.1 - Les réseaux permanents

Les mêmes mesures et mêmes réseaux que pour la pré-campagne ont été utilisés (voir I.5.1.1).

I.6.2.2 - Les réseaux spécifiques de la campagne (Mesures Chimiques au sol)

Compte tenu de l'objectif du programme ESCOMPTE et afin de couvrir l'ensemble de la zone d'étude (carré d'environ 120 km de côté), de nombreuses espèces chimiques présentes en phase gazeuse en dehors des polluants "classiques" tels que NO, NO₂, O₃ et SO₂ ont été mesurées au sol sur neuf sites. Ces mesures ont été réparties dans les quatre domaines qui constituent schématiquement la zone d'étude ESCOMPTE :

- **Domaine d'entrée de zone d'étude** : Un site placé en bord de mer a permis de documenter les masses d'air entrant et sortant du domaine d'étude. Cette station était installée à la Gratasse.
- **Domaine des pôles d'émissions** : trois sites ont été instrumentés : 1 site urbain (le centre de Marseille), 1 site péri-urbain (le Vallon Dol) et un site péri-industriel (le Realtor).
- **Domaine intermédiaire** : ce domaine, représentatif de l'évolution chimique intermédiaire des espèces chimiques dans l'atmosphère, était équipé de trois stations (Dupail, St Chamas et Plan d'Aups).
- **Domaine éloigné** : Ce domaine est situé aux frontières de la zone d'étude. Il est donc représentatif de l'évolution finale du panache pollué. Deux sites ont été retenus, Vinon sur Verdon et les Alpilles.

La localisation des sites dans les différents domaines d'ESCOMPTE a été choisie de façon à aligner les stations selon les axes les plus fréquemment suivis par les masses d'air dans les conditions météorologiques susceptibles d'engendrer des pics de pollution. Schématiquement ces axes sont :

- **La vallée du Rhône** avec les sites de Marseille, Réaltor et les Alpilles (voir Figure I.4).
- **La vallée de la Durance** avec les sites de Marseille, Réaltor, Dupail et Vinon sur Verdon (voir Figure I.4).
- **Le littoral** avec les sites de Marseille et de Plan d'Aups (voir Figure I.4).

Ces alignements de station doivent permettre un suivi lagrangien de l'évolution des masses d'air au cours du temps depuis les zones d'émissions jusqu'aux limites de la zone ESCOMPTE.

Toutes stations confondues, les espèces analysées étaient les suivantes : les Composés Organiques Volatils (COV) [comprenant les hydrocarbures, les aldehydes (RCHO) et les peroxydes (ROOH)], le radical peroxy (RO_2), le peroxyde d'hydrogène (H_2O_2) les oxydes d'azotes (NO_y), l'acide nitreux (HNO_2) et l'acide nitrique (HNO_3). De plus, les taux de photolyse de NO_2 (JNO_2) étaient parfois mesurés. Les stations ne disposaient pas toutes du même équipement. La répartition du matériel a été effectuée en fonction de la spécificité des stations (et donc de la probabilité d'y détecter les composés recherchés), mais aussi en fonction des équipements disponibles. Le tableau I.4 présente une synthèse des analyseurs disponibles sur chaque station.

	HC	RCHO	ROOH, H ₂ O ₂	RO ₂	NO _y	HNO ₂ , HNO ₃	JNO ₂
Domaine d'entrée de zone d'étude							
La Gatasse	X	-	-	-	-	-	-
Domaine des pôles d'émissions							
Marseille	X	X	-	-	-	-	-
Réaltor	X	X	X	-	X	X	X
Vallon Dol	-	-	-	-	-	X	-
Domaine intermédiaire							
Dupail	X	X	X	X	-	-	-
St Chamas	-	X	-	-	-	X	-
Plan d'Aups	X	-	-	-	-	X	-
Domaine éloigné							
Vinon/Verdon	X	X	X	-	-	X	-
Alpilles	X	-	-	-	X	-	X

Tableau I.4 - (X) Présence d'un analyseur ; (-) Absence d'analyseur. Composés gazeux mesurés au sol dans les différentes stations.

Toutes ces stations sont également équipées pour la mesure des composés basiques O_3 , NO et NO_2 (sauf les oxydes d'azote au Plan d'Aups). En plus des stations des réseaux de surveillance de la qualité de l'air, ces polluants basiques, ainsi que le CO, ont été mesurés pendant ESCOMPTE sur les stations spécifiques suivantes (Tableau I.5 et I.6).



Figure I.4 – Répartition des stations des réseaux spécifiques de la campagne ESCOMPTE.

Nom de station	O ₃	NO/NO ₂
<i>Domaine intermédiaire</i>		
Meyrargues	X	X
Bimont	X	X
La Barben	X	X
<i>Domaine éloigné</i>		
Montmeyan	X	X
Petit Lubéron	X	-
Lubéron	X	-
Montmirail	X	-
Bollène	X	-
Mérindol	X	-
<i>Véhicules mobiles</i>		
V1	X	-
V2	X	-

Tableau I.5 - Stations où NO_x et O₃ ont été mesurés.

Nom de station	CO
<i>Domaine des pôles d'émission</i>	
Réaltor	X
St Chamas	X
Vallon Dol	X
<i>Domaine intermédiaire</i>	
Plan d'Aups	X
Dupail	X
<i>Domaine éloigné</i>	
Vinon/Verdon	X
Monmeyan	X
Alpilles	X

Tableau I.6 - Stations où CO a été mesuré.

La campagne ESCOMPTE peut se décomposer en six périodes distinctes : une période d'inter calibration des équipements et de cinq POIs. L'inter calibration a été réalisée du 4 au 9 juin sur le tarmac de l'aéroport d'Avignon. Tous les équipements présentés plus haut n'ont pas participé à l'étalonnage. Pour que ce travail ait une utilité, il fallait soit que les analyseurs utilisés sur les différents sites soient de conception différente, soit que des analyseurs identiques soient utilisés par des laboratoires différents. Lorsque les analyseurs étaient identiques sur tous les sites et qu'ils étaient mis en œuvre par un laboratoire unique (exemple : ROOH, RO₂) l'étalonnage et l'inter calibration des appareils ont été réalisés avant la campagne ESCOMPTE dans les laboratoires concernés.

Pour les POIs 2a (du 21 au 23 juin) et 2b (du 23 au 26 juin), le dispositif était opérationnel et la totalité des instruments étaient sur les sites. Seules quelques pannes sporadiques sont à déplorer et ont engendré des coupures dans les données. La disponibilité des données a été effective et les résultats sont présentés dans les tableaux I.7 et I.8.

	Marseille UCI-Airmaraix	Plan d'Aups LISA	Realtor BTU	Dupail UCI	Alpilles LISA	La Gatasse EMD	Vinon UCI
POI 2a							
21/06	XX	X (C2-C6)	X	XX	XX	XX	XX
22/06	XX	X (C2-C6)	X	XX	XX	XX	XX
23/06	XX	X (C2-C6)	XX	XX	XX	XX	XX
POI 2b							
24/06	XX	X (C2-C6)	X	XX	XX	XX	XX
25/06	XX	X (C2-C6)	X	XX	XX	XX	XX
26/06	XX	X (C2-C6)	XX	XX	XX	XX	XX

Tableau I.7 - Disponibilité des mesures de composés organiques volatils : Hydrocarbures
X = Moins de 75% des données disponibles ; XX = Plus de 75% des données disponibles.

	Marseille LCE	Réaltor LCE	Dupail LCE	St Chamas EPFL	Vinon LCE
POI 2a					
21/06	XX	XX	XX	XX	X
22/06	X	XX	XX	XX	XX
23/06	XX	XX	XX	XX	XX
POI 2b					
24/06	XX	XX	XX	XX	XX
25/06	XX	XX	X	XX	XX
26/06	XX	XX	-	XX	XX

Tableau I.8 - Disponibilité des mesures de COV : aldéhydes

X = Moins de 75% des données disponibles ; XX = Plus de 75% des données disponibles.

Pour la chimie au sol, plusieurs étapes sont nécessaires avant d'obtenir des résultats. La première étape a constitué par la mesure de terrain qui concerne le plus souvent une prise d'échantillon. Ces mesures ont été ensuite traitées et analysées en laboratoire.

I.7 - Les mesures en altitude

I.7.1 - Les profileurs continus (vent)

Ces instruments permettant la mesure du profil de vent comprennent des Sodars (d'une portée verticale pouvant varier de quelques centaines de mètres à 2 km environ) et des Radars (surtout UHF, d'une portée de 2 à 3 km). Ces instruments sont mobiles pour la plupart. Ils appartiennent au CNRM, au CNRS/Université, à EDF, à Degréane, à Remtech,... Certains de ces Radars possèdent de plus l'option de sondage acoustique (système RASS) qui permet de mesurer le profil de la température quasi-virtuelle. A plus grande échelle (500km), un réseau de Radars VHF, difficilement transportables, permet la mesure continue du profil de vent dans toute la troposphère avec une résolution de quelques centaines de mètres.

I.7.2 - Télédétection

Une évaluation expérimentale de la distribution de la concentration d'O₃ et des conditions dynamiques sur l'ensemble de la zone ESCOMPTE est rendue possible par le déploiement d'un réseau de profileurs judicieusement situés. Pour répondre à ces objectifs, des profileurs de vent (sodars, radars UHF et VHF) et de concentration d'O₃ (lidars O₃) ont été installés. Les caractéristiques expérimentales de ces instruments, le bilan de leur fonctionnement pendant la campagne et quelques exemples typiques d'observations effectuées font l'objet de ce chapitre. Le choix des sites d'installation a été guidé par une stratégie expérimentale qui visait, d'une part, à avoir des mesures au-dessus de zones critiques pour la création/dissipation d'O₃ et son transport et, d'autre part, pour pouvoir localiser plusieurs instruments complémentaires tant

en paramètres mesurés (vent et O₃) qu'en gamme d'altitude sondée. Trois catégories de sites ont été choisies :

- (1) des sites appartenant à l'agglomération marseillaise et entourant l'étang de Berre, au dessus desquels on s'attend à avoir un fort taux de production d'O₃ lors de conditions de forte chaleur et d'absence de vent synoptique (Mistral, vents d'Est ...)
- (2) des sites intermédiaires au-dessus desquels on s'attend à voir se propager et éventuellement s'accumuler l'O₃ produit (région Aixoise et entrée de la vallée de la Durance)
- (3) des sites dans ou hors limite de la zone ESCOMPTE proprement dite, pour documenter les conditions dynamiques d'entrée/sortie.

En plus des profileurs, le Lidar Vent Transportable (LVT) de l'IPSL a été installé au nord et au-dessus de Marseille (Vallon Dol). La spécificité de cet instrument est qu'il peut fonctionner en mode de balayage dans différents plans horizontaux, obliques ou verticaux, ou sur des surfaces coniques ou demi-sphériques. Quelque soit le type de surface choisie, le LVT obtient sur celle-ci le champ de vitesse radiale. Sa façon de fonctionner et sa localisation en font un moyen expérimental approprié à l'étude des régimes de brises. Cet instrument est également présenté dans ce chapitre, avec la liste des périodes couvertes et des exemples d'observations. Tous les instruments de télédétection au sol ont des espacements entre eux et des résolutions temporelles et verticales adaptés à des études de processus à des échelles allant de l'échelle locale (quelques centaines de mètres à quelques kilomètres) à la méso-échelle (quelques dizaines de kilomètres à quelques centaines de kilomètres), ce qui constitue le domaine d'échelle visé par les objectifs de la campagne.

I.7.3 - Les profileurs de constituants : Lidars O₃

1.7.3.1 - Les Lidars " Ozone "

Ces instruments, conçus pour mesurer de façon continue des profils angulaires ou bien verticaux d'ozone, permettent d'évaluer les inhomogénéités ainsi que la dynamique atmosphérique en ozone. Ils sont également intéressants dans la mesure où ils permettent d'obtenir simultanément la hauteur de la couche limite.

- 3 profileurs d'ozone ont été présentés : celui du laboratoire d'aérodologie (LA) associé à celui de l'INSU, de l'EPFL.
- 2 laboratoires mobiles LIDAR permettant d'effectuer des cartes 3D d'ozone ainsi qu'une évaluation qualitative des aérosols atmosphériques, ont été également présents: BTU-Cottbus, INERIS La portée des mesures évolue de 2 à 5km suivant le système, pour une limite de détection d'environ 5 $\mu\text{g.m}^{-3}$.

1.7.3.2 - Rôle et caractéristiques expérimentales des Lidars O₃/Aérosols

Lors de la campagne ESCOMPTE : cinq Lidars O₃/Aérosols ont suivi quasiment en continu la dynamique des profils de concentration en ozone ainsi que l'évolution temporelle de la hauteur de la couche limite. Le dispositif a pour but d'apporter une documentation expérimentale, une aide à l'interprétation et une contribution à la validation de modèles tridimensionnels photochimiques. Ainsi ce dispositif sert d'une part de support de paramétrage de ces modèles et d'autre part d'instrument de validation au travers de la période d'observation cachée (POI3). Ce dispositif permettra également d'étudier la structure verticale de l'atmosphère ainsi que sa dynamique (stratification de la concentration en ozone, couche limite, mouvements verticaux) et de son interaction avec les conditions orographiques.

1.7.4 - Description et localisation des différents Lidar

Chacun des Lidar possédait des caractéristiques et des spécifications propres, qui sont détaillées dans le tableau I.9.

	Type	Altitude 1 ^{ère} mesure	Altitude dernière mesure	Résolution verticale minimale	Résolution verticale maximale	Limite détection O ₃	Précision
SA	Vertical	500 m	7 000 m	200 m	1 000 m	2 µg/m ³	10 %
EPFL	Vertical	500 m	7 000 m	200 m	1 000 m	2 µg/m ³	10 %
INERIS	Vertical	100 m	3 000 m	100 m	200 m	3 µg/m ³	10 %
BTU	Angulaire	5 m	3 000 m	50 m	200 m	2 µg/m ³	5 %
INERIS/UCLO	Angulaire	5 m	3 000 m	50 m	200 m	2 µg/m ³	5 %

Tableau I.9 - Caractéristiques des différents LIDARS.

Les différents Lidars impliqués dans la campagne ESCOMPTE nécessitaient des contraintes de fonctionnement particulières. Ainsi bon nombre d'entre eux ont fonctionné principalement durant les phases d'observation intensives (POI). Seul le profileur vertical O₃ de l'INERIS a fonctionné de manière autonome durant l'ensemble de la campagne de mesure (14 Juin-14 Juillet) en fournissant des données ¼ horaires. Le tableau I.10 récapitule le fonctionnement de chaque Lidar durant les deux POIs que nous avons exploitées. Les heures (TU) figurant dans le tableau I.10 correspondent aux périodes nominales d'exploitation, fournissant des résultats exploitables et pouvant être retirés de la base de données. Les interruptions inférieures à 2 heures ne sont pas mentionnées. En se référant au tableau de fonctionnement ci-dessus on peut constater que toutes les deux POIs 2a et 2b ont été couvertes de manière nominale ou quasi-nominale par 4 des 5 Lidars. Le bilan de fonctionnement de l'ensemble du réseau pour les POIs 2a et 2b est donc très satisfaisant. Les traitements, effectués sur les POI 2, montrent une très bonne qualité des données, avec un taux de données utilisables (validées) supérieur à 90%.

	Date	CNRS/SA BA114	EPFL St Chamas	BTU Réaltor	UCLO Vallon Dol	INERIS Cadarache
POI 2A	21 juin	04H-19H	24H/24	05H-21H	04H-21H	24H/24
	22 juin	04H-20H	24H/24	05H-21H	04H-21H	24H/24
	23 juin	04H-21H	24H/24	05H-21H	04H-21H	24H/24
POI 2B	24 juin	04H-23H	24H/24		04H-21H	24H/24
	25 juin	05H-23H	24H/24		04H-21H	24H/24
	26 juin	07H-21H	00H-21H	05H-21H	04H-21H	24H/24

Tableau I.10 - Fonctionnement des différents LIDARS pendant les POI2a et POI2b.

I.7.5 - Les profileurs de vent : Radars et Sodars

I.7.5.1 - Rôle et caractéristiques expérimentales des Radars et Sodars

Dix-sept profileurs (dont deux en dehors de la zone ESCOMPTE et 3 sodars dans le cadre du projet CLU) ont suivi quasiment en continu l'évolution temporelle du profil vertical des trois composantes du vent au-dessus de leurs sites respectifs. Leurs différents sites d'installation sont portés sur la carte de la zone expérimentale ESCOMPTE (Figure I.5).



Figure I.5 – Localisations des différents instruments de télédétection dans le domaine ESCOMPTE.

Le dispositif a pour but d'apporter une documentation expérimentale, une aide à l'interprétation et une contribution à la validation de modèles dynamiques dans le cadre d'études de transport des constituants en situations favorables à des épisodes de fortes productions de polluants (essentiellement en régime de brises ou de faibles vents synoptiques) ou en situations mixtes dans lesquelles il y a des interactions entre vents synoptiques et brises. Dans cette thématique, les profileurs de vent pourront également contribuer à l'étude des variations de la structure verticale des écoulements (stratification, couche limite, mouvements verticaux) et de son interaction avec les conditions orographiques.

Les caractéristiques expérimentales des profileurs engagés dans ESCOMPTE sont données dans le tableau I.11, type d'instrument par type d'instrument. Outre le profil vertical du vecteur vent horizontal qui est un 'produit direct' des profileurs, certains 'produits dérivés' peuvent être obtenus par traitement spécifique :

- Le champ de vent horizontal tridimensionnel et la vitesse verticale à mésoéchelle peuvent être obtenus à partir de l'ensemble des données du réseau de profileurs par interpolation et en utilisant la divergence du vent horizontal, respectivement.
- La couche limite peut être détectée, ainsi que ses variations en altitude et intensité, à partir d'un traitement appliqué au diagramme altitude-temps de la réflectivité des radars UHF.
- La trace de passages frontaux au dessus des profileurs peut également être déterminée en utilisant le champ altitude-temps du cisaillement vertical du vent horizontal ou de la réflectivité en VHF.
- Enfin, certains sites étaient équipés d'un système RASS (Radio Acoustic Sounding System) permettant l'obtention du profil vertical de la température virtuelle.

Instruments (nombre)	Alt. (m - AGL) minimale sondée	Alt. (m - AGL) maximale sondée	Résolution verticale (m)	Résolution temporelle (min)
Mini-Sodar (1)	10	100	5	15
Sodars (6)	50	400/800	20/50	15/30
Radars UHF (4)	75/150	2000/4000	75 ou 375	5/6
Radar mini-VHF (1)	600/900	3000/5000	300	5
Radar VHF CNRM (1)	900	4000/8000	375	13
Autres Radars VHF (4)	1500	8000/15000	375	15

Tableau I.11 - Caractéristiques expérimentales des profileurs de vents pendant ESCOMPTE.

1.7.5.2 - Bilan du fonctionnement

Tous les deux POIs 2a et 2b ont été couvertes de manière nominale par tout l'ensemble du réseau de profileurs. Le bilan de fonctionnement de l'ensemble du réseau pour les deux POIs 2a et 2b est donc très satisfaisant.

I.7.6 - Mesure par Radiosondages

Les radiosondages ont mesuré les variables classiques : pression, température, humidité, vent et ozone.

- **Radiosondages à Aix-les-Milles**

Cette station de radiosondages a fourni des mesures des paramètres météorologiques et chimiques : pression, température, humidité, vent et ozone

DATE	POI	HEURE			OZONE
21/06/01	2a	00 31	12 05	23 59	
22/06/01	2a	07 05	12 21	18 05	12 21
23/06/01	2a	00 37	06 56	12 00	
24/06/01	2b	00 07	06 59	15 21	15 21
25/06/01	2b	00 52	07 35	12 11	
26/06/01	2b	00 00	12 30	16 03	12 30

Tableau I.12 - Radiosondages effectués à l'aérodrome d'Aix les Milles

- **Radiosondages à Vinon-sur-Verdon**

Cette station de radiosondages a fourni des mesures des paramètres météorologiques : pression, température, humidité et vent.

Date	POI	Time (UTC)				
21.06.2001	2a	6:00	9:00	12:00	15:00	18:00
22.06.2001	2a	6:00	9:00	12:00	15:00	18:00
23.06.2001	2a	6:00	9:00	12:00	15:00	18:00
24.06.2001	2b	6:00	9:00	12:00	15:00	18:00
25.06.2001	2b	6:00	9:00	12:00	15:00	18:00
26.02.2001	2b	6:00	9:00	12:00	15:00	18:00

Tableau I.13 - Radiosondages effectués à l'aérodrome de Vinon sur Verdon.

- **Radiosondages à Saint-Rémy**

Cette station de radiosondages a fourni des mesures des paramètres météorologiques : pression, température, humidité et vent.

Date	POI	Time (UTC)							
		6:00		9:00	12:00		15:00		18:00
21.06.2001	2a	6:00		9:00	12:00		15:00		18:00
22.06.2001	2a	6:00	6:40	9:00	12:00		15:00		18:00
23.06.2001	2a	6:00		9:00	12:00				18:00
24.06.2001	2b	6:00		9:00	12:00		15:00		18:00
25.06.2001	2b	6:00		9:00	12:00		15:00		18:00
26.06.2001	2b	6:00		9:00	12:00	12:50	15:00	15:20	18:00

Tableau I.14 - Radiosondages effectués à l'aérodrome de St. Remy : Mazet de Romanin.

- **Radiosondages à la Station de l'OHP**

Pendant la campagne ESCOMPTE, 5 sondages T, Q, O₃ ont été effectués à 09HTU dont un en POI2b en 25/06/2001. Ce sondage est décalé de ceux de Aix-les-Milles pour assurer un suivi quasi journalier du profil vertical pendant les POIs avec la production photochimique majeure. Les sondages montrent clairement la présence fréquente de couches présentant de fortes valeurs d'ozone en altitude (> 80 ppb). Une valeur moyenne d'ozone atteignant 70 ppb dans une couche de 1 km au dessus de l'OHP (668-1668 m) n'a été observée que le 25/06/2001, c'est à dire pour les POI 2b où la production photochimique a été importante sur la région FOS/AIX/MARSEILLE.

- **Radiosondages à l'observatoire de Marseille**

Récapitulatif :

26 juin	12h TU
	14h TU
	16 h TU
29 juin	10 h TU
	14 h TU
13 juillet	08 h TU
	09 h TU
	11h30 TU
	14h TU

Tableau I.15 - Récapitulatif des radiosondages à l'observatoire de Marseille

I.8 - Mesures par avion

I.8.1 – Généralités

Une flotte de 7 avions a participé à la campagne ESCOMPTE, dont 4 (ARAT, Dornier, Merlin, Piper AZTEC) pour déterminer la thermodynamique et les champs de concentration de différents scalaires chimiques, le Falcon pour déterminer les champs de vent et l'altitude du sommet de la couche limite avec l'instrument WIND, l'ULM pour mesurer l'impact des

aérosols sur le rayonnement et le Piper AZTEC 28 embarquant une caméra IR. Ils ont effectué un total de 300 heures en 125 vols. La répartition des heures et nombre de vols est la suivante (Tableau I.16) :

Avion	Organisme	Heures de vol	Nombre de vols
ARAT	INSU	67	27
Dornier 128	IMK : Institut für Meteorologie und Klimaforschung	49	15
Falcon 20 équipé de WIND	DLR	27	11
Merlin IV	MétéoFrance	49	21
Piper Aztec 23	MétéoFrance	46	21
Piper Aztec 28	Société privée	17	8
ULM	IFU : Institut für atmosphärische Umweltforschung	54	22

Tableau I.16 - Répartition des heures et nombre de vols pour chaque avion.

21 plans de vol différents ont été réalisés. On peut les classer de la manière suivante :

- **Exploration type A (avions : ARAT, Dornier, Merlin) (« explo A »)** : il s'agit de l'exploration du «petit domaine » (Figure I.6) dans le domaine Escompte, en réalisant des paliers à niveau constant, globalement parallèles à la côte, de 55km de long. Ce plan de vol comporte 5 variantes suivant que les paliers sont plus ou moins rapprochés et suivant que des sondages sur terre ou sur mer sont effectués. Pour la variante couche limite, le niveau est de 1300m (QNH) au-dessus des montagnes au nord, 800m au-dessus de la 'plaine' et 100m au-dessus de la mer. La figure pouvait être décrite aussi au-dessus de la couche limite à 1300m ou 3000m.
- **Panache (avion Piper Aztec 23)** : constitué de paliers dans la vallée de la Durance (entre Vinon et St Auban) à 1000, 1500 et 4000 m sol + 1 exploration verticale sol-4000 m.
- **Brise de mer (avions Piper Aztec 23 et Merlin)** : constitué de paliers sur un axe nord/sud passant par Orange, à 700,1000, 1300m et 3000m sol. 2 explorations verticales 0-3000m en terre et en mer.
- **Emissions (avion ARAT)** : cercle de 30 km de rayon centré sur Fos à 3 niveaux différents.
- **Convection (avion Dornier)** : 2 vols différents (matin ou soir) avec description d'un champ horizontal (ou plusieurs champs superposés) sur une zone carrée encadrant la Ste Victoire + explorations verticales et axes terre-mer, perpendiculaires à la côte.

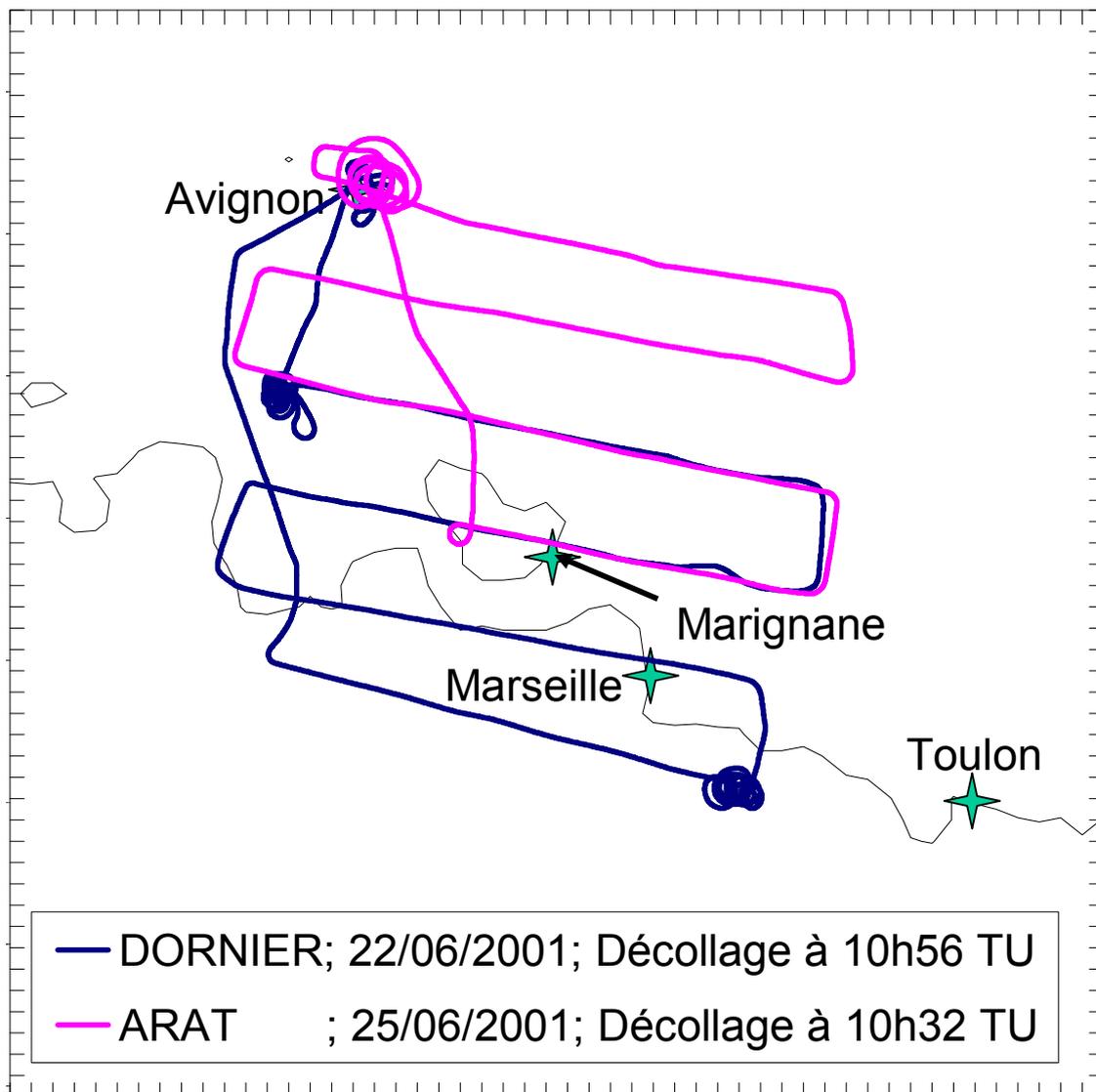


Figure 1.6 : Exploration type A (avions : ARAT, Dornier, Merlin) dans le domaine ESCOMPTE.

- **Comparaison (par groupe de 2 avions : ARAT, Dornier, Merlin, Piper Aztec 23) :** sondage vertical, transects vent à cap contraire, 2 axes de turbulence.

- **QCQA lidar (avions ARAT, Piper Aztec 23) :** exploration verticale au-dessus des lidars à Aix les Milles. Le plan de vol brise de terre n'a pas été réalisé. Les dropsondes n'ont pu être lâchées, faute d'autorisation. La répartition des vols pendant les journées de la campagne est décrite ci-après, afin de mettre en valeur la richesse de la couverture spatiale (puisque les avions coordonnés volaient soit sur des zones, soit à des niveaux différents) et temporelle. Les vols IRT du Piper Aztec 28 ne sont pas indiqués car non coordonnés avec les autres, et relevant du projet associé « Couche Limite Urbaine ». Le récapitulatif est donné ci-après

En conclusion, l'expérience a été très lourde et éprouvante pour les pilotes, en particulier du CAM, mais le bilan est très positif.

Dans les tableaux I-17, I-18, I-19 et I-20, nous ne citons que les vols effectués pendant les POI2a et POI2b.

I.8.2 - Récapitulatif des vols Merlin

Date	vol	Durée	Type vol	O ₃	NOxTOy	COV (nbr)	CO	J _{NO2}	Remarques
22/06/01	15	2,4	Exploration A2 modifié	OK	OK	OK	OK	OK	Coupures sur CO entre 22895 et 24376s
23/06/01	16	2,5	CLU	OK	OK	-	OK	OK	CO bruité pendant 1 ^{ère} moitié du vol
24/06/01	17	2,4	Exploration A3 modifié	OK	OK	-	OK	OK	CO bruité jusqu'à 43586s Remplacement Td bas
25/06/01	18	2,7	Brise de mer	OK	-	-	OK	OK	Câbles donnés NOxTOy débranché
26/06/01	19	2,6	CLU	OK	OK	-	OK	OK	Pics parasites sur NOxTOy

Tableau I.17 - Récapitulatif des vols Merlin pendant les POI2a et POI2b.

I.8.3 - Récapitulatif des vols de l'IMK (Dornier 128)

Date	Time (approx.)	Types de vol
22.06.01	07:55 – 10:25 (UT)	A2 modifié
23.06.01	13:45 – 17:25 (UT)	A2 modifié
24.06.01	13:50 – 17:45 (UT)	A5
25.06.01	13:55 – 17:40 (UT)	A5
26.06.01	13:50 – 17:30 (UT)	A5

Tableau I.18 - Récapitulatif des vols DORNIER pendant les POI2a et POI2b.

I.8.4 - Récapitulatif des vols Aztec

Date	N° vol	Durée	Type vol	O ₃	NOxT Oy	COV (nbr)	Remarques
22/06/01	10	1,4	Conditions aux limites	OK	OK	OK (5)	Ecart entre Vydop et Vygps
22/06/01	11	1,9	Conditions aux limites	OK	OK	OK (4)	Cap et Ps HS à partir de 43105s
23/06/01	12	1,8	Conditions aux limites	OK	OK	OK (3)	Ecart entre Vydop et Vygps
23/06/01	13	1,9	Conditions aux limites	OK	OK	OK (3)	Ecart entre Vydop et Vygps
24/06/01	14	2,0	Conditions aux limites	OK	OK	OK (3)	Ecart entre Vydop et Vygps
24/06/01	15	2,3	Conditions aux limites	OK	OK	OK (3)	Ecart entre Vydop et Vygps
25/06/01	16	2,0	Conditions aux limites	OK	OK	OK (3)	Ecart entre Vydop et Vygps
25/06/01	17	2,6	Panache Durance	OK	OK	OK (2)	-
26/06/01	18	2,3	Conditions aux limites	OK	OK	OK (3)	Décrochages Vxdop et Vydop
26/06/01	19	2,4	Conditions aux limites	OK	OK	OK (3)	Pas de P sol

Tableau I.19 - Récapitulatif des vols AZTEC pendant les POI2a et POI2b.**I.8.5 - Récapitulatif des vols de l'ARAT Fokker 27**

Plan de vol	nombre	date	heure décollage (UT)	numéro	POI	ESCOMPTE ou CAATER	observations
Pv 08 EA2p	5	23/06/2001	05:10:59	36	2a	Escompte	2 sondages en LFMV et en EA18 un palier en mer EA16-EA18
		23/06/2001	10:27:39	38	2a	Escompte	
		24/06/2001	05:16:22	39	2b	Escompte	
		25/06/2001	05:15:22	41	2b	Escompte	
		26/06/2001	05:09:32	43	2b	Escompte	
Pv 11 EA5p	3	24/06/2001	10:48:14	40	2b	Escompte	sondage en LFMV
		25/06/2001	10:32:07	42	2b	Escompte	
		26/06/2001	10:35:49	44	2b	Escompte	
Transit (local)	1	23/06/2001	08:52:39 (Marseille)	37	2a		entre Marseille et Avignon après un avitaillement en carburant

Tableau I.20 - Récapitulatif des vols ARAT pendant les POI2a et POI2b.

I.9 - Les cadastres d'émission

Les émissions ont un rôle clé dans la chimie de l'atmosphère. Dans la simulation chimie de l'atmosphère, c'est un élément indispensable à prendre en compte. Dans la campagne ESCOMPTE deux inventaires d'émission ont été disponibles :

I.9.1 - Le Pré inventaire des émissions (PEI : Pre Emission Inventory)

En raison des délais très courts impartis pour l'obtention de ce pré inventaire, il a été décidé d'utiliser la base européenne de données horaires d'émissions GENEMIS déjà existante et élaborée par Rainer Friedrich (IER, Stuttgart). La stratégie suivante a été suivie:

- les émissions biogéniques de COV (sous forme d'isoprène et de monoterpènes exclusivement), ont été générées par le modèle développé par l'équipe de Rainer Steinbrecher (IFU, Garmisch Parten Kirchen). Ce dernier utilise les algorithmes d'émission de COV déterminés par Guenther *et al.* 1995, les données de température, de PAR sur le site, et des facteurs d'émissions pour différentes espèces végétales, en partie déterminés *in-situ*, notamment lors des campagnes BEMA (Biogenic Emission of the Mediterranean Area) de 1995-1996 près de Montpellier.
- pour les émissions anthropiques, les données horaires d'émission disponibles pour 1994 ont été utilisées, en première approximation, pour initialiser les pré-modélisations sur les épisodes de 1997 sélectionnés par les modélisateurs. Les prises en compte de la température ambiante et du type de jour (jour de semaine/week-end) ont permis de générer les émissions sur le site d'ESCOMPTE pour l'année 1997.

Cet inventaire a été calculé pour une résolution temporaire d'une heure et une résolution spatiale fine de 3 km pour les émissions anthropiques et biogéniques et une plus grossière de 9 km pour les émissions anthropiques uniquement.

I.9.2 - Inventaire d'émission mis à jour – MEI (Main Emission Inventory)

Ce deuxième cadastre (disponible depuis février 2003), est beaucoup plus détaillé, il contient un ensemble d'environ 170 espèces anthropiques, biogéniques et des aérosols. Il a été calculé pour une résolution temporaire d'une heure, spécifié pour chaque jour des POIs avec une résolution spatiale de 1 km. La technique de calcul du cadastre a été expliquée par J. L. Ponche (2003).

Les caractéristiques de ces deux cadastres sont développées dans le chapitre IV, (publication Atmos. Rech) où on a effectué une recherche sur le rôle des émissions pour la restitution des champs chimiques. Pour la grande grille (voir la configuration du modèle dans le chapitre II), l'inventaire (voir paragraphe I.91.) qui a le moins de résolution, a été interpolé et adapté. Les point manquants ont été complétés avec les données de la base EDGAR.

I.9.3 – Les émissions d’isoprène

L’une des données manquantes pour la grille 1 est les émissions biogéniques qui a été prise à partir de la base EDGAR. L’émission d’isoprène à partir de cette base pour la grille 1 est une valeur moyennée (ISOP_{tot}). Pour une répartition sur 14 heures de la journée (6h -19h), une simple fonction sinusoïdale a été appliquée :

$$ISOP(t) = ISOP_{Max} \sin(\omega t)$$

Dans cette expression ISOP(t), est l’émission instantanée, ω est la pulsation et ISOP_{Max} est l’amplitude qui se calcule par l’expression :

$$ISOP_{tot} = \int ISOP_{Max} \sin(\omega t)$$

Dans laquelle ISOP_{tot} est la valeur journalière. Ce qui donne :

$$ISOP_{Max} = ISOP_{tot} \omega/2$$

I.10 - Conclusion

La campagne ESCOMPTE s’est déroulée pendant deux années consécutives, une première année (2000) dans le cadre de pré-campagne et une deuxième en tant que la campagne principale (2001). Cela a permis de documenter un grand nombre de mesures dynamiques et chimiques sur le domaine ESCOMPTE. Trois POIs ont été choisies pour être développées dans cette étude : les POI0, POI2a et POI2b. De très nombreuses mesures (stations de surface, avions, radiosondages, ballons, bateaux, lidars, sodars) ont été utilisées. Dans ce chapitre, nous n’avons exposé que les mesures dont nous nous sommes servis pour ce travail et les cadastres utilisés. Cette importante compilation de données va nous permettre de bien vérifier la validation d’un modèle méso-échelle, RAMS_chimie à partir de la restitution des champs dynamiques et chimiques simulés.

Une information détaillée sur l’ensemble des POIs pendant la campagne ESCOMPTE se trouve sur le site internet d’ESCOMPTE et dans le rapport de l’expérience sur la campagne 2001 assemblé et rédigé par Pierre Durand.

CHAPITRE II



Modèles RAMS et MOCA : configuration et initialisation

II.1 - Le modèle RAMS : Présentation, Description technique et détail des options utilisées

Pour réaliser cette étude, nous avons utilisé le modèle météorologique RAMS et le modèle chimique MOCA2.2 couplés on-line; le modèle TUV a aussi été utilisé en off line pour calculer les taux de photolyse; enfin, le modèle a été couplé avec un schéma de dépôt sec. Nous allons examiner très brièvement les caractéristiques scientifiques et techniques de ces modèles, et les raisons de leur choix.

II.1.1 - Choix du Modèle météorologique

Comme on l'a indiqué dans l'introduction, l'un des points centraux de ce travail est l'utilisation d'un modèle météorologique et un modèle chimique couplés « on-line » pour l'analyse des processus de chimie-transport. La simulation devra s'effectuer à méso-échelle. Le choix d'un modèle méso-échelle est donc indispensable; dans ce cadre, le modèle RAMS semble bien adapté. Les principales raisons pour lesquelles on a choisi le modèle RAMS sont citées ci-dessous :

- C'est un modèle très utilisé pour simuler les champs météorologiques à la résolution proche de ce qu'on avait prévu pour cette étude, avec des résultats assez satisfaisants (Avisar, et al, 1993; Silva Dias, et al, 1997; Chen, et al, 1994 ; Cai and Steyn, 1995, 1996, 2000 ; Freitas, et al, 2000), et également dans la couche limite régionale et urbaine (Fast, et al, 2000 ; Whiteman, et al, 1999 ; Cai, 1999).
- Le RAMS a été employé pour une grande variété d'études de pollution atmosphérique. Dans la plupart de ces applications, les vents simulés par le RAMS et la turbulence sont insérés dans un modèle lagrangien de dispersion, comme décrit par Uliasz et al (1996). Les exemples d'applications de RAMS pour des études de pollution sont: Lyons et al. (1992; 1995), Pielke et al. (1992b), Moran et Pielke (1996a, 1996b), Kallos et al. (1993), Eastman et al. (1995), Poulos et Pielke (1994), Pielke et Uliasz (1998), Poulet et al. (2004), Taghavi et al. (2004a, 2004b).
- La structure de ce modèle permet de rajouter un nombre sans limite de traceurs passifs qui sont automatiquement transportés par un processus incluant un schéma

d'advection tridimensionnel et de diffusion turbulente. Ce calcul est appliqué à chaque pas de temps météorologique (dans cette étude : 10s). Ce couplage donne une définition très fiable au niveau de la dispersion des espèces chimiques.

- C'est un modèle parallélisé à mémoire distribuée. Cet avantage va nous permettre d'économiser beaucoup de temps de calcul réel, ce qui est un paramètre important dans des études de simulation.
- Le réglage de chaque run du modèle s'effectue par un « Namelist », où sont rassemblées toutes les options du modèle. C'est un élément qui facilite beaucoup l'utilisation du modèle.

II.1.2 - Présentation du Modèle RAMS

Le modèle RAMS a été développé à l'université de l'Etat du Colorado (Pielke et al, 1992a) et le MRC/ASTeR. C'est l'entreprise ATMET (<http://atmet.com>) qui gère le développement, la distribution et la maintenance du modèle RAMS.

RAMS est un modèle météorologique méso échelle qui permet de simuler des circulations atmosphériques allant de l'échelle locale jusqu'au demi-hémisphère entier. Le plus souvent il est employé pour simuler des phénomènes atmosphériques à méso échelle (échelle horizontale de 2 kilomètres à 2000 kilomètres). Ses applications sont aussi variées que la prévision météorologique opérationnelle ou l'application à l'étude de la qualité de l'air. Le modèle RAMS a aussi été utilisé avec succès avec des résolutions horizontales beaucoup plus élevées (quelques dizaines de mètres) pour simuler le mélange turbulent de manière explicite au sein de la couche limite. Le modèle RAMS est maintenant très utilisé (plus de 300 chercheurs dans le monde). En 2001 il y a eu plus de 120 installations dans environ 30 pays différents. Le concept du modèle RAMS a été créé au début de l'année 1980 à l'université de l'Etat du Colorado en fusionnant trois modèles couplés : le code de nuage/méso-échelle de CSU (Tripoli et Cotton, 1982), une version de paramétrisation des nuages (Tremback, 1990), et le modèle de couche limite (Mahrer et Pielke ; 1977). Ce modèle discrétise classiquement les équations primitives sur une grille tridimensionnelle (ou bidimensionnelle) représentant la zone à modéliser. Les principales variables météorologiques sont ainsi calculées à chaque pas de temps.

La première version du RAMS a été distribuée en 1988 (version 0a). Une évolution clé dans le développement des codes du RAMS fut de profiter pleinement des machines parallèles. La première version parallèle de RAMS a été développée à CSU en 1991. Le « Message Passing Interface » (MPI) n'existait pas encore, c'est alors le logiciel « Parallel Virtual Machine » (PVM) qui a été utilisé pour le « message-passing package ». Une version complète a été terminée en 1994 et le support MPI a été mis en application en 1995. Le code RAMS est bien adapté à la parallélisation.

II.1.3 - Les équations générales

Les équations générales du modèle RAMS sont décrites ci-dessous. Les symboles sont définis dans le Tableau II.1

Symbole	Définition
u	Composante est-ouest du vent
v	Composante nord-sud du vent
w	Composante verticale du vent
f	Paramètre de Coriolis
K_m	Coefficient de viscosité pour la quantité de mouvement
K_h	Coefficient de viscosité pour la quantité de chaleur et d'humidité
θ	Température potentielle
θ_{il}	Température potentielle de l'eau liquide-glace
r_n	Rapport de mélange de l'eau (liquide et glace)
ρ_a	Densité de l'air
con	Indice signifiant une paramétrisation convective
rad	Indice signifiant une paramétrisation de rayonnement
res	Indice signifiant une paramétrisation de microphysique
r_t	Rapport de mélange de l'eau totale (vapeur, liquide, glace)
r_v	Rapport de mélange de vapeur de l'eau
$-$	Fonction d'Exner (terme total)
$-'$	Fonction d'Exner (terme de perturbation)
θ_v	Température potentielle virtuelle
p	pression

Tableau II.1 : Symboles utilisés dans les équations.

Équations du mouvement:

$$\frac{\partial u}{\partial t} = -u \frac{\partial u}{\partial x} - v \frac{\partial u}{\partial y} - w \frac{\partial u}{\partial z} - \theta \frac{\partial \pi'}{\partial x} + fv + \frac{\partial}{\partial x} \left(K_m \frac{\partial u}{\partial x} \right) + \frac{\partial}{\partial y} \left(K_m \frac{\partial u}{\partial y} \right) + \frac{\partial}{\partial z} \left(K_m \frac{\partial u}{\partial z} \right)$$

$$\frac{\partial v}{\partial t} = -u \frac{\partial v}{\partial x} - v \frac{\partial v}{\partial y} - w \frac{\partial v}{\partial z} - \theta \frac{\partial \pi'}{\partial y} + fu + \frac{\partial}{\partial x} \left(K_m \frac{\partial v}{\partial x} \right) + \frac{\partial}{\partial y} \left(K_m \frac{\partial v}{\partial y} \right) + \frac{\partial}{\partial z} \left(K_m \frac{\partial v}{\partial z} \right)$$

$$\frac{\partial w}{\partial t} = -u \frac{\partial w}{\partial x} - v \frac{\partial w}{\partial y} - w \frac{\partial w}{\partial z} - \theta \frac{\partial \pi'}{\partial z} + \frac{g\theta_v'}{\theta_0} + \frac{\partial}{\partial x} \left(K_m \frac{\partial w}{\partial x} \right) + \frac{\partial}{\partial y} \left(K_m \frac{\partial w}{\partial y} \right) + \frac{\partial}{\partial z} \left(K_m \frac{\partial w}{\partial z} \right)$$

Équation de la température potentielle:

$$\frac{\partial \theta_{il}}{\partial t} = -u \frac{\partial \theta_{il}}{\partial x} - v \frac{\partial \theta_{il}}{\partial y} - w \frac{\partial \theta_{il}}{\partial z} - \theta \frac{\partial \pi'}{\partial z} + \frac{\partial}{\partial x} \left(K_h \frac{\partial \theta_{il}}{\partial x} \right) + \frac{\partial}{\partial y} \left(K_h \frac{\partial \theta_{il}}{\partial y} \right) + \frac{\partial}{\partial z} \left(K_h \frac{\partial \theta_{il}}{\partial z} \right) + \left(\frac{\partial \theta_{il}}{\partial t} \right)_{rad}$$

Équation du rapport de mélange:

$$\frac{\partial r_n}{\partial t} = -u \frac{\partial r_n}{\partial x} - v \frac{\partial r_n}{\partial y} - w \frac{\partial r_n}{\partial z} + \frac{\partial}{\partial x} \left(K_h \frac{\partial r_n}{\partial x} \right) + \frac{\partial}{\partial y} \left(K_h \frac{\partial r_n}{\partial y} \right) + \frac{\partial}{\partial z} \left(K_h \frac{\partial r_n}{\partial z} \right)$$

Équation de continuité

$$\frac{\partial \pi'}{\partial t} = - \frac{R \pi_0}{c_v \rho_0 \theta_0} \left(\frac{\partial \rho_0 \theta_0 u}{\partial x} - \frac{\partial \rho_0 \theta_0 v}{\partial y} + \frac{\partial \rho_0 \theta_0 w}{\partial z} \right)$$

L'option non hydrostatique est traduite par l'équation verticale du mouvement et l'équation de conservation de la masse

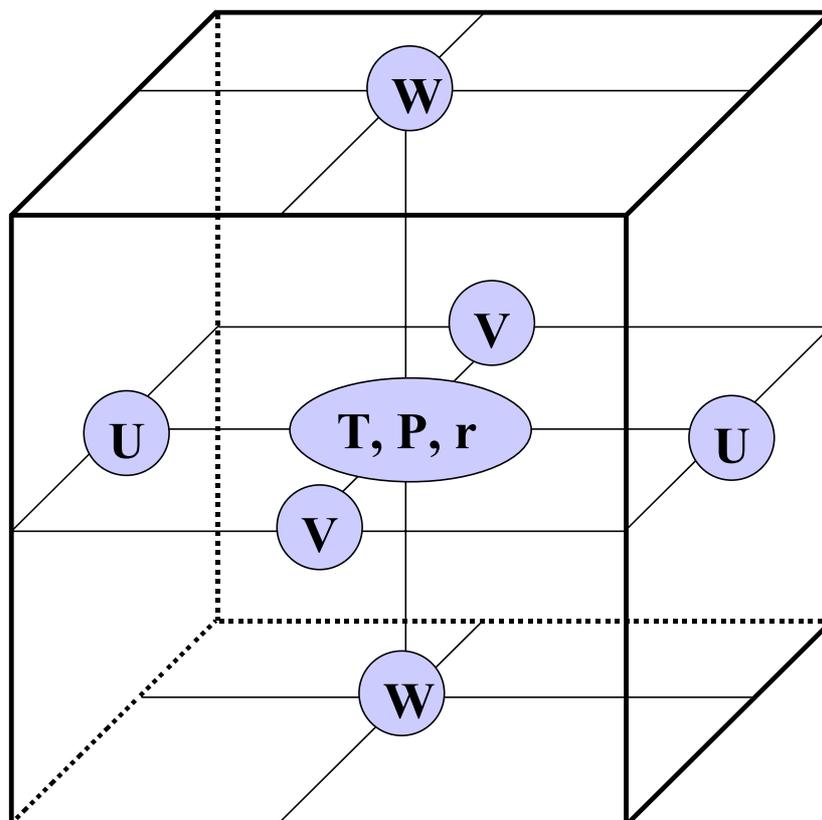


Figure II.1 : Structure de la grille du RAMS. Disposition des différents champs pour une maille de grille.

II.1.4 - Structure de la grille

II.1.4.1 - Grille décalée

La structure de grille utilisée dans le RAMS est la grille standard C (Mesinger et Arakawa, 1976).

Dans cette structure, les variables thermodynamiques (température, humidité, pression) sont définies au même point au centre de chaque cellule (maille) de la grille principale. Alors que les composantes du vent : u , v , et w sont déterminées avec un décalage de $1/2 \Delta x$, $1/2 \Delta y$, et $1/2 \Delta z$, respectivement, où Δx , Δy et Δz sont les dimensions d'une cellule. (Figure II.1)

II.1.4.2 - Projection du domaine

Pour la grille horizontale est utilisée une projection stéréographique polaire, où le pôle de la projection se trouve dans un secteur près du centre du domaine, réduisant ainsi au minimum la déformation due à la projection au centre du domaine.

II.1.4.3 - La coordonnée verticale σ_z (Terrain – following)

La structure verticale de la grille emploie une coordonnée σ_z (terrain – following) qui suit la topographie (Gal-Chen et Somerville, 1975; Clark, 1977; Tripoli et Coton, 1982). Dans ce système, la coordonnée verticale correspondant au plus haut niveau du domaine modélisé est totalement rectiligne, alors que le premier niveau suit parfaitement le relief. Le choix de ce système de coordonnées a l'avantage d'être adapté à la topographie du domaine. Les coordonnées dans ce système sont ainsi définies:

$$x^* = x$$

$$y^* = y$$

$$z^* = H \left(\frac{z - z_g}{H - z_g} \right)$$

où H est l'altitude du sommet de la grille et z_g est l'altitude au sol (topographie locale) qui est fonction de x et de y .

II.1.4.4 - Les niveaux verticaux

Pour définir les niveaux verticaux, nous avons deux options : la première, on définit directement les niveaux souhaités ; la deuxième, les niveaux sont définis par l'expression :

$$R_j \equiv \frac{(\Delta Z)_j}{(\Delta Z)_{j-1}}$$

$$(\Delta Z)_j \equiv Z_{j+1} - Z_j$$

Dans cette expression, Z_j est le niveau numéro j et ΔZ_j est la distance entre les deux niveaux Z_j et Z_{j+1} , et R_j est le rapport d'accroissement entre les niveaux consécutifs. Grâce à cet espacement vertical variable de grille, on peut augmenter la résolution près du sol et avoir moins de niveaux verticaux dans la troposphère libre. Il est préférable d'éviter des valeurs élevées pour le rapport d'accroissement. Nous utilisons habituellement une valeur fixe assez petite de R pour obtenir de petites valeurs de Z_j près du sol (dans la couche limite) et des valeurs élevées en altitude. Par exemple, avec $R_j=1.15$, Z_j augmente dix fois pour environ 16 niveaux. Ensuite, nous imposons une limite supérieure à Z_j qui donne à R_j la valeur 1 quand cette limite d'altitude est atteinte.

II.1.5 - Schéma d'intégration temporelle (Time differencing)

Dans la version parallèle du modèle RAMS (version actuelle), le schéma d'intégration temporelle est un schéma hybride (Tripoli, 1992) qui comporte une intégration de type forward pour les variables thermodynamiques et de type leapfrog pour les composantes de la vitesse et de la pression. Sachant que dans les versions précédentes, trois options étaient possibles : forward-backward, leapfrog (Tripoli et Cotton, 1982) et hybride.

Toutes les options ci-dessus sont formulées avec des schémas d'intégration temporelle de "time-split" (Tripoli et Cotton, 1982 ; Tremback et al, 1985) qui est semblable au schéma de « time-split » de Klemp et de Wilhelmson (1978a, 1978b) et au schéma explicite « split » de Gadd (1978). L'objectif de ces schémas est de résoudre avec des plus petits pas de temps les termes dans les équations qui sont responsables de la propagation des modes d'ondes rapides. Dans le cas non-hydrostatique, les modes rapides sont représentés par les ondes acoustiques et de gravité tandis que dans le cas hydrostatique, les modes rapides sont représentés par les ondes de gravité externes et les ondes dites de « Lamb ».

II.1.6 - Les grilles imbriquées

Les grilles imbriquées sont employées dans le RAMS pour fournir une résolution spatiale élevée dans des endroits choisis du grand domaine à résolution inférieure. Une grille fille occupe une région au sein de la grille mère, et coïncide avec des mailles de la grille mère dans cette région. Il n'y a pas de limite pour le nombre de grilles filles, si ce n'est la limitation due à la mémoire disponible pour la machine utilisée. Les grilles peuvent être configurées en ordre télescopique où les grilles mères sont considérées comme des grilles filles dans des grilles plus larges, ou bien on peut avoir plusieurs grilles filles pour le même parent, ou

encore une combinaison de ces 2 cas. Une grille fille peut avoir des dimensions de grilles différentes pour les directions horizontales et verticales. On doit toujours avoir un nombre entier de cellules de grille fille contenues dans une cellule de grille mère. De plus, le RAMS employant un système de coordonnées verticale de σ_z , la définition de terrain doit être compatible entre les grilles de telle façon que les niveaux verticaux sur les deux grilles coïncident correctement. L'imbrication verticale dans le RAMS peut être employée sur des grilles étirées pour fournir une meilleure résolution verticale dans une grille fille par rapport à sa grille mère. En plus, le ratio vertical de la grille fille peut varier avec l'altitude.

Le RAMS utilise la technique d'imbrication des grilles décrite dans Clark et Farley (1984) et Clark et Hall (1991), avec une généralisation pour des grilles étirées avec un ratio d'imbrication spatiale variable décrit dans Walko et al (1995). La communication entre les grilles mère et fille est effectuée dans les deux sens pour toutes les variables pronostiques. La communication de la grille mère vers la grille fille est effectuée après chaque pas de temps sur la grille parente lors de la mise à jour des champs pronostiques. Ces valeurs sont ensuite interpolées séquentiellement pour chaque coordonnée, aux endroits où elles sont définies sur les frontières de la grille fille. Les valeurs de la grille fille sont remplacées par les valeurs interpolées. La grille fille fonctionne habituellement avec un pas de temps plus petit que celui de la grille mère. Ainsi, l'interpolation linéaire en temps des valeurs de la grille mère est également effectuée pour les pas de temps intermédiaires de la grille fille. La grille fille est alors mise à jour, jusqu'au rattrapage du temps de la grille mère. A ce moment là, la communication est renversée entre les cellules de la grille fille qui occupent une cellule simple de grille de parent, et en remplaçant la valeur de la cellule de la grille mère par la moyenne des cellules de la grille fille. Les variables pronostiques : la vitesse, la température potentielle, et l'humidité sont multipliées par la densité avant la communication d'une grille vers l'autre. L'interpolation et les opérateurs qui calculent la moyenne, sont conçus pour conserver les intégrales de volume de ces quantités densité-poids entre les grilles. Ceci implique que l'algorithme d'emboîtement conserve la masse, les moments, et l'énergie thermodynamique interne.

II.1.7 - Conditions aux limites

La section suivante détaillera les conditions limite latérales, au sommet, et à la base du domaine, utilisées dans le RAMS.

II.1.7.1 - Limites latérales

Le RAMS contient plusieurs options pour les conditions aux limites latérales. Pour la grille mère, utilisée dans le RAMS la condition à la limite utilisée est une condition radiative de base (Sommerfeld, 1964) dont la forme est :

$$\frac{\partial u}{\partial t} = -(u + c) \frac{\partial u}{\partial x}$$

où u est la composante normale du vent latéral. Le problème est alors d'indiquer la forme de c , la vitesse de phase. Les options qui existent pour calculer cette vitesse c , dans le RAMS sont : le schéma d'Orlanski (1976), le schéma modifié de Klemp et de Lilly (1978) (Durrant, 1981), et le schéma de Klemp et de Wilhelmson (1978). Orlanski (1976) calcule c à partir de:

$$c = \left(\frac{\partial u}{\partial t} \right) / \left(\frac{\partial u}{\partial x} \right)$$

Le schéma de Klemp et Lilly (1978) fait une moyenne des vitesses de phase d'Orlanski sur la verticale, puis applique les vitesses moyennées à la colonne verticale entière. Le schéma de Klemp et de Wilhelmson (1978) indique simplement une valeur constante comme une vitesse typique de phase d'onde de gravité (10-30 m/s).

La condition limite radiative est seulement appliquée aux composantes normales de la vitesse. Pour les autres composantes, différentes conditions peuvent être appliquées : zéro gradient, flux entrant et/ou sortant constants, conditions de flux radiatifs sortant.

Quand une simulation est initialisée à partir de données d'observation, on utilise le schéma de nudging de Davies (1978). Ce schéma va être un peu plus détaillé dans le paragraphe qui explique l'assimilation de données.

II.1.7.2 - Limites verticales

Pour les conditions limites à la surface, les flux de couche de surface fournissent l'échange principal entre l'atmosphère et la surface. Cependant, il est commode, pour des raisons numériques, de définir des valeurs à un $1/2 \Delta z$ sous la surface. Pour les conditions aux limites du sommet, il y a deux choix pour définir la composante normale de vitesse au sommet du domaine; une condition simple, dite de mur ($w=0$), ou alors on applique la condition radiative de Klemp et Durrant (1983). De concert avec la condition de « mur » ou la condition de Klemp et Durrant, une couche absorbante est utilisée au-dessus du domaine d'intérêt jusqu'au sommet du modèle. Dans le cas de champ homogène horizontalement, on utilise une simple couche de frottement de Rayleigh. Cela se traduit par l'ajout d'un terme supplémentaire aux équations pronostiques défini comme suit :

$$\frac{\partial \phi}{\partial t} = - \frac{(\phi - \phi_0)}{\tau}$$

où ϕ représente les variables pronostiques de u , v , w et θ ; ϕ_0 est la valeur initiale de ces variables, et τ est un facteur d'atténuation qui est défini comme une fonction linéaire de l'altitude, elle est infinie en bas de la couche d'absorption et est comprise entre 60 et 300 s au sommet. Pour des initialisations non homogènes (cas de cette étude), une condition de nudging similaire peut être employée comme couche absorbante au sommet du modèle.

Similairement aux conditions limites latérales, les autres variables sont définies $1/2\Delta z$ au-dessus des composantes normales de la vitesse à cause du décalage de la grille. Ces variables sont calculées par simple extrapolation.

II.1.8 - La paramétrisation de la surface

Les flux de chaleur de la couche de surface, de moment et de vapeur d'eau dans l'atmosphère sont calculés avec le schéma de Louis (1979). Ce schéma rapproche les fonctions du profil de Businger et al (1971) (qui doivent être résolues itérativement) avec des expressions analytiques. Ce schéma permet de déterminer les flux provenant de la surface de la terre dans l'atmosphère et est employé pour des surfaces d'eau, de sol nu, et des surfaces végétales. Les flux calculés servent de limite au niveau le plus bas pour le schéma de diffusion.

II.1.9 - Les paramétrisations de sol et de végétation

Chaque secteur de grille dans le RAMS est logiquement divisé en trois classes différentes : l'eau, le sol nu et la surface végétale. La paramétrisation de la couche de surface exige des valeurs de température de surface et d'humidité pour chacune des trois classes. Pour les surfaces d'eau, dans la majorité des simulations d'une durée de quelques jours ou moins, la température a une valeur constante, alors que la valeur d'humidité utilisée dans la paramétrisation pour la couche de surface est le rapport de mélange saturant défini par la pression de surface et la température de l'eau. Pour les surfaces continentales terrestres, les valeurs de surface sont obtenues à partir des valeurs pronostiques de la température et de l'humidité pour le sol et la végétation. Pour le cas d'un sol nu, le RAMS utilise le modèle de sol multicouche décrit par Tremback et Kessler (1985). Ce schéma est une modification des schémas décrits par Mahrer et Pielke (1977) et McCumber et Pielke (1981) dans lesquels les nombreux processus itératifs ont été enlevés. Ceci a impliqué de formuler des équations pronostiques pour la température de surface du sol et le contenu en eau en supposant une couche finie d'interface de la profondeur sol/atmosphère. Le modèle de sol a normalement entre sept et douze couches à une profondeur environ de 0.5 mètres pour une simulation typique.

La diffusivité de l'humidité, la conductivité hydraulique, et l'humidité potentielle sont données par (Clapp et Hornberger, 1978) :

$$D_{\eta} = \frac{-bK_f\psi_f}{\eta} \left[\frac{\eta}{\eta_f} \right]^{b+3}$$

$$K_{\eta} = K_f \left[\frac{\eta}{\eta_f} \right]^{2b+3}$$

$$\psi_{\eta} = \psi_f \left[\frac{\eta}{\eta_f} \right]^b$$

où D_{η} est la diffusivité d'humidité, η est le contenu en humidité du sol exprimé en volume de d'eau par volume de sol, K_{η} est la conductivité hydraulique, et ψ est l'humidité potentielle. K_f , ψ_f , et η_f , sont des valeurs pour un sol à la saturation. La constante b dépend de la classe de texture de sol. Les types de sol et les valeurs pour les constantes que RAMS utilise sont donnés dans le Tableau II.2.

Classe du sol	η_f (m ³ m ⁻³)	ψ_f (m)	K_f (ms ⁻¹)	b	C_d (Jm ⁻³ K ⁻¹)
sable	0.395	-0.121	1.760×10 ⁻⁴	4.05	1.465×10 ⁶
Sable riche en glaise	0.410	-0.090	1.563×10 ⁻⁴	4.38	1.407×10 ⁶
Glaise sablonneuse	0.435	-0.218	0.347×10 ⁻⁴	4.90	1.344×10 ⁶
Glaise limoneuse	0.485	-0.786	0.072×10 ⁻⁴	5.30	1.273×10 ⁶
glaise	0.451	-0.478	0.070×10 ⁻⁴	5.39	1.214×10 ⁶
Glaise, argile et sable	0.420	-0.299	0.063×10 ⁻⁴	7.12	1.177×10 ⁶
Glaise, argile et limon	0.477	-0.356	0.017×10 ⁻⁴	7.75	1.319×10 ⁶
Limon argileux	0.476	-0.630	0.025×10 ⁻⁴	8.52	1.227×10 ⁶
Argile sablonneuse	0.426	-0.153	0.022×10 ⁻⁴	10.40	1.177×10 ⁶
Argile limoneuse	0.492	-0.490	0.010×10 ⁻⁴	10.40	1.151×10 ⁶
Argile	0.482	-0.405	0.013×10 ⁻⁴	11.40	1.088×10 ⁶
Tourbe	0.863	-0.356	0.080×10 ⁻⁴	7.75	0.874×10 ⁶

Tableau II.2. Les paramètres de sol pour les classes texture USDA utilisé dans le RAMS.

Les propriétés thermiques du sol dépendent de l'humidité. La chaleur spécifique volumétrique et la diffusivité thermique du sol sont:

$$C_s = (1-\eta)C_d + \eta C_w$$

$$\lambda = \frac{e^{[\log_{10}|\psi|+2.7]}}{C_s} \times 4.186 \times 10^7, \log_{10}|\psi| \leq 5.1$$

$$\lambda = \frac{0.00041}{C_s} \times 4.186 \times 10^7, \log_{10}|\psi| > 5.1$$

où C_s est la chaleur spécifique volumétrique du sol humide, λ est la diffusivité thermique (m^2s^{-1}), C_d est la chaleur spécifique du sol sec et C_w est la chaleur spécifique de l'eau.

II.1.10 - L'assimilation des données et le forçage aux conditions aux limites

Pour l'assimilation des données à quatre dimensions (4DDA), un système de forçage « nudging » a été appliqué dans le RAMS. Les valeurs des champs du modèle sont forcées vers des données d'observations. Le schéma 4DDA est un schéma simple de type « nudging » où une valeur limite est ajoutée aux équations pronostiques du modèle. Cette limite est ainsi écrite:

$$\frac{\partial \phi}{\partial t} = \frac{(\phi_{obs} - \phi_m)}{\tau}$$

où ϕ représente les variables pronostiques de u , v , θ_{il} , π et r_T . On note que le mouvement vertical n'est pas forcé puisqu'on l'observe insuffisamment et cela mènerait à des champs divergents. τ est une échelle de temps qui contrôle le forçage et varie pour les trois dimensions.

II.2 - Domaine, initialisation et forçage du modèle météorologique

II.2.1 - Domaine géographique

La simulation est effectuée au moyen de deux grilles imbriquées (Figure II.2). La plus grande (grille mère ou G1), est un domaine carré de 36 mailles de 15 Km de côté, soit une extension horizontale de 540 x 540 km. Les principales zones urbaines qui peuvent contribuer aux émissions du domaine d'ESCOMPTE sont insérées dans ce domaine : Lyon, au nord, Turin au nord-est et Barcelone au sud-ouest. Dans la grille 1, nous avons des massifs montagneux : les Alpes, les Pyrénées et le massif central. Une deuxième grille plus fine (G2), est située exactement sur le domaine d'Escompte, et contient 54 mailles de 3km, soit une extension horizontale 162 x 162 km. G2 comprend les villes principales de Marseille et Toulon au bord de la mer, Aix-en-Provence et Marignane au centre, et Avignon au nord du domaine. Les reliefs les plus importants sont les Alpilles, le massif du Lubéron, le massif du Sainte Victoire, le massif du Sainte Baume et le massif du sud ouest des Alpes. G2 comprend également les deux vallées du Rhône et de la Durance. Il y a 35 niveaux verticaux dont 15 sont situés en dessous de 1500m pour avoir une bonne définition dans la couche limite.

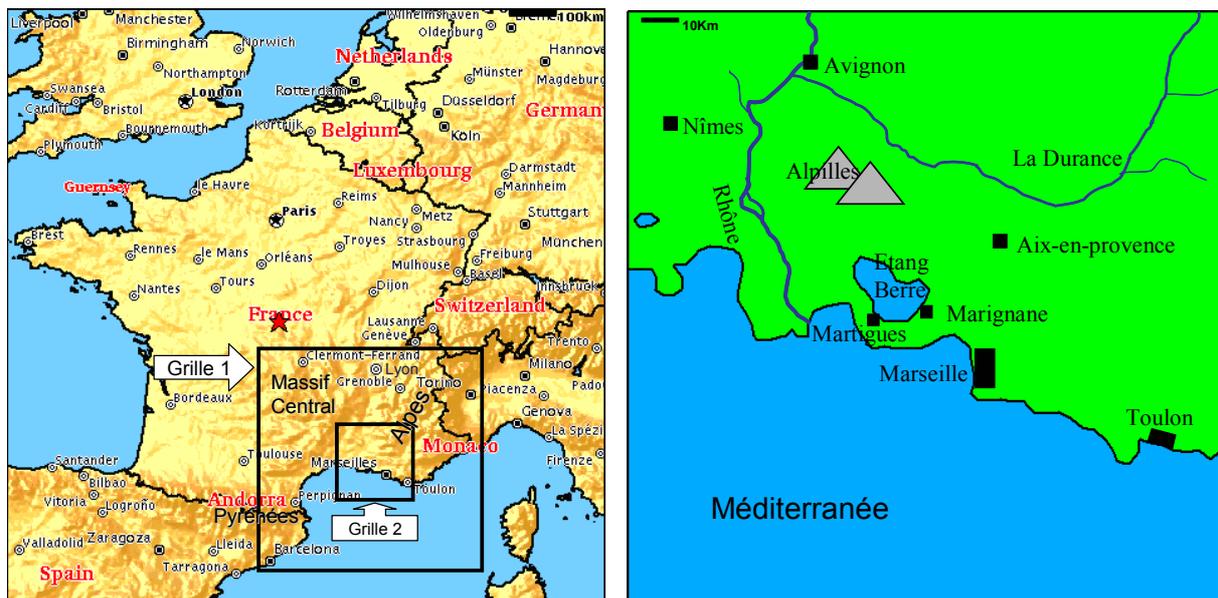


Figure II.2 - Domaine d'ESCOMPTE, Grille 1 et 2, et principales villes.

Pour effectuer ce type de simulation, le modèle a besoin de certaines données de surface : la topographie, les classes de végétation et de texture du sol, la température de l'eau de mer. Ces données sont très importantes et nous devons connaître :

- 1- La qualité de ces données et leur résolution.
- 2- La capacité du modèle à prendre en compte des données à haute résolution.

II.2.2 - La topographie

Les données de topographie sont issues de la base de données USGS. Elles ont une résolution de 30'' soit 1Km environ. Pour intégrer la topographie dans le modèle RAMS, on a trois possibilités pour l'intégrer : une définition silhouette moyennée jusqu'à une définition très exacte (enveloppe réfléchi).

Le calcul de la topographie est un processus à 3 étapes qui implique la définition de la topographie sur 4 grilles différentes, que nous appelons : grilles « O », « P », « Q » et « R ». La première étape consiste en une interpolation horizontale des données d'entrée qui sont dans la grille (O) en coordonnées latitude –longitude, vers une grille temporaire (P) en coordonnées stéréographique polaire de résolution comparable. Cette grille (P) a la même projection que la grille utilisée pour la simulation (grille R), mais a en général une résolution beaucoup plus élevée. Lors de la seconde étape, les données sont moyennées de cette grille (P) vers une grille de résolution inférieure « Q », qui est également en coordonnées stéréographique polaire et a un espacement horizontal de maille qui est un multiple de nombre entier de la grille (P). Dans cette étape, on filtre automatiquement les variations à petite échelle qui ne sont pas incluses dans la grille du modèle. Dans cette deuxième étape pour faire la moyenne, nous avons trois choix possibles d'algorithmes:

- 1- une moyenne classique consiste à moyennner les valeurs de topographie pour toutes les cellules de la grille P dans une cellule simple de la grille Q. La moyenne classique et la moyenne silhouette sont calculées pour chaque maille. La valeur assignée à la cellule de la grille de Q est une moyenne pondérée de ces deux dernières. Les valeurs du poids attribué à ces moyennes sont assignées par l'utilisateur. La moyenne silhouette est effectuée aussi en deux étapes : une moyennes est calculée à partir d'une vision d'est en ouest, puis du nord au sud et on fait la moyenne de ces deux valeurs pour l'ensemble des mailles de la grille P contenues dans une cellule simple de la grille Q. On remarque que, tandis que la moyenne conventionnelle ou classique préserve le volume total de terrain au-dessus du niveau de la mer, la moyenne silhouette ajoute de la masse en complétant les vallées. Elle est employée pour maintenir la taille effective de la hauteur du sommet que l'air doit parcourir pour s'élever en passant une barrière topographique telle qu'une arête. La moyenne conventionnelle abaisse cette hauteur de sommet, en particulier quand la hauteur de la barrière est mal résolue.
- 2- un arrangement de topographie de type « enveloppe » est employé pour obtenir les valeurs de la grille Q à partir des valeurs de la grille P. Cet arrangement est une méthode alternative pour préserver la hauteur des sommets.
- 3- un arrangement de topographie de type « enveloppe réfléchi » vise à préserver la hauteur des barrières et les profondeurs des vallées. Naturellement, cette méthode mène à la topographie la plus raide dans le modèle RAMS, tout en filtrant toujours les longueurs d'onde les plus courtes.

Dans la troisième et finale étape, la topographie est interpolée de la grille de Q vers la grille R. La grille R a une résolution modérément plus élevée que la grille Q.

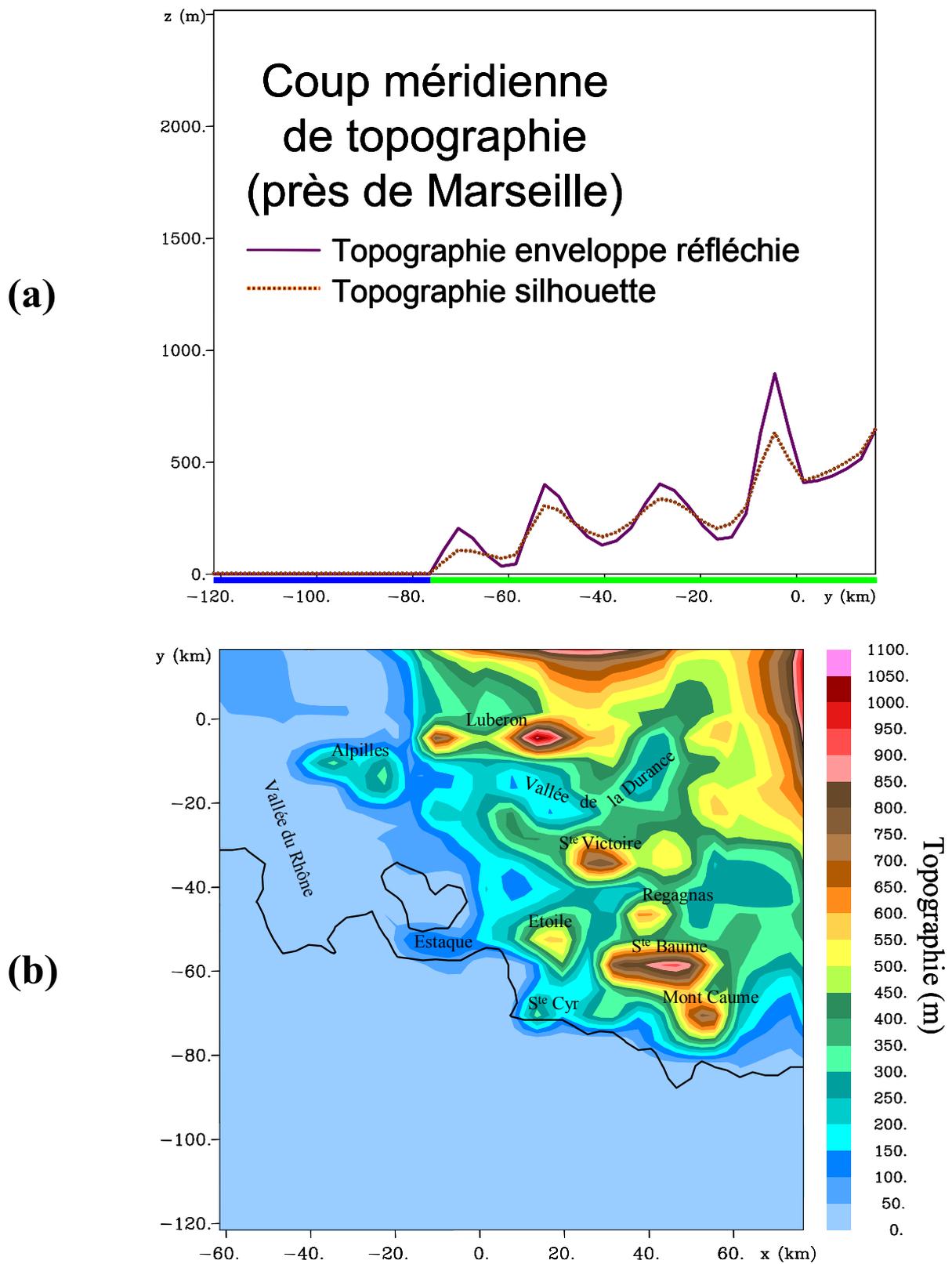


Figure II.3 – (a) Coupe méridienne de la topographie en utilisant deux options : silhouette et enveloppe réfléchie. (b) Carte de topographie du domaine ESCOMPTE sortie par le modèle RAMS (enveloppe réfléchie).

La figure II.3 présente la topographie de domaine ESCOMPTE. Les reliefs principaux et les deux vallées (Rhône et Durance) sont bien apparents.

II.2.3 - Problème d'utilisation de définition de haute résolution de topographie

Dans le cas d'ESCOMPTE, une définition exacte de la topographie à la place d'une topographie par exemple silhouette provoque des problèmes numériques dans la simulation. La présence du relief de haute altitude comme les Alpes, provoque des vitesses fortes qui pourront arrêter le modèle. Même l'option du temps variable du modèle ne peut pas résoudre ce problème. Une correction effectuée pour résoudre ce problème est que dans ce cas, on passe temporairement vers un pas de temps plus court de l'ordre de 1 ou 2 secondes. Une fois le problème passé on revient au premier pas de temps.

II.2.4 - La végétation

Les données de végétation sont aussi issues de la base USGS avec une résolution de 1km. Elles ont été obtenues à partir des images satellite d'AVHRR mesuré d'avril 1992 à mars 1993.

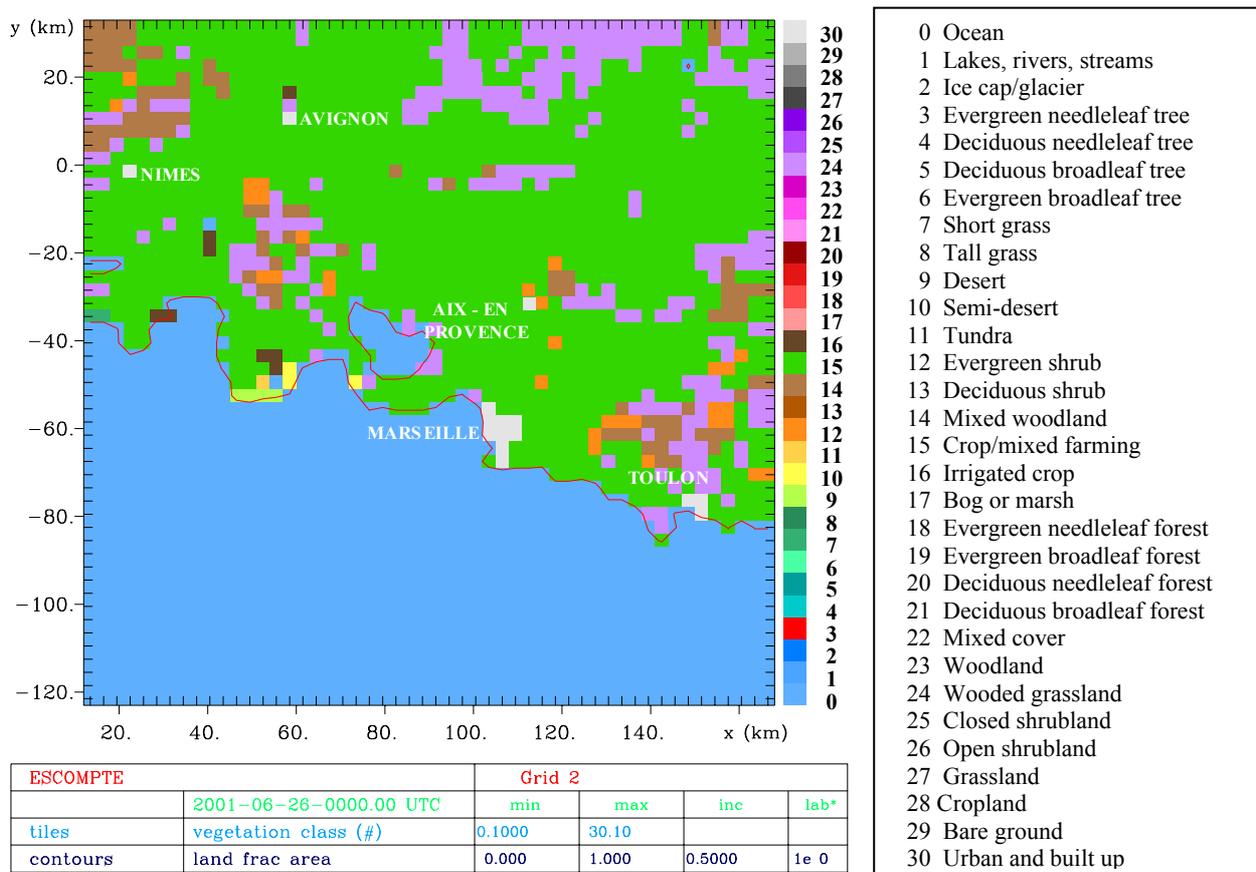


Figure II.4 - Carte de végétation du domaine ESCOMPTE pour les simulations RAMS.

La configuration de *patch* dans le modèle RAMS, permet de garder cette information d'un kilomètre même si la taille de la maille est supérieure. Si la taille de la maille est relativement grande, plusieurs types de végétation seront représentés. Dans une première étape, le modèle RAMS détermine la partie de la maille recouverte par l'eau (océans, lacs, fleuves), et ensuite examine le pourcentage des différents types de végétation. L'utilisateur indique le nombre de *patches* désirés, c'est à dire le nombre de classes de végétation dans chaque maille. Le modèle attribue les classes qui ont le pourcentage le plus élevé pour chaque maille. Le modèle de végétation de RAMS comprend 30 classes différentes, incluant la classe urbaine. La figure II.4 présente la carte de végétation du domaine ESCOMPTE calculée par le modèle RAMS. Les principales villes y sont incluses.

II.2.5 - La température de l'eau de mer

Pour la température de l'eau de mer, RAMS propose des données qui sont basées sur les données climatologiques. Ce genre d'information n'est pas assez précis. Pour chaque épisode, la température de l'eau de mer a été calculée à partir de données satellite (MODIS) et pour la côte par les données de l'observation d'océanographie de Marseille.

II.2.6 - Le type de sol

Nous avons vu (paragraphe II.1.9) que RAMS utilise 12 classes de texture de sol par USDA. Les données de type de sol sont issues d'une carte géologique. (Figure II.5)

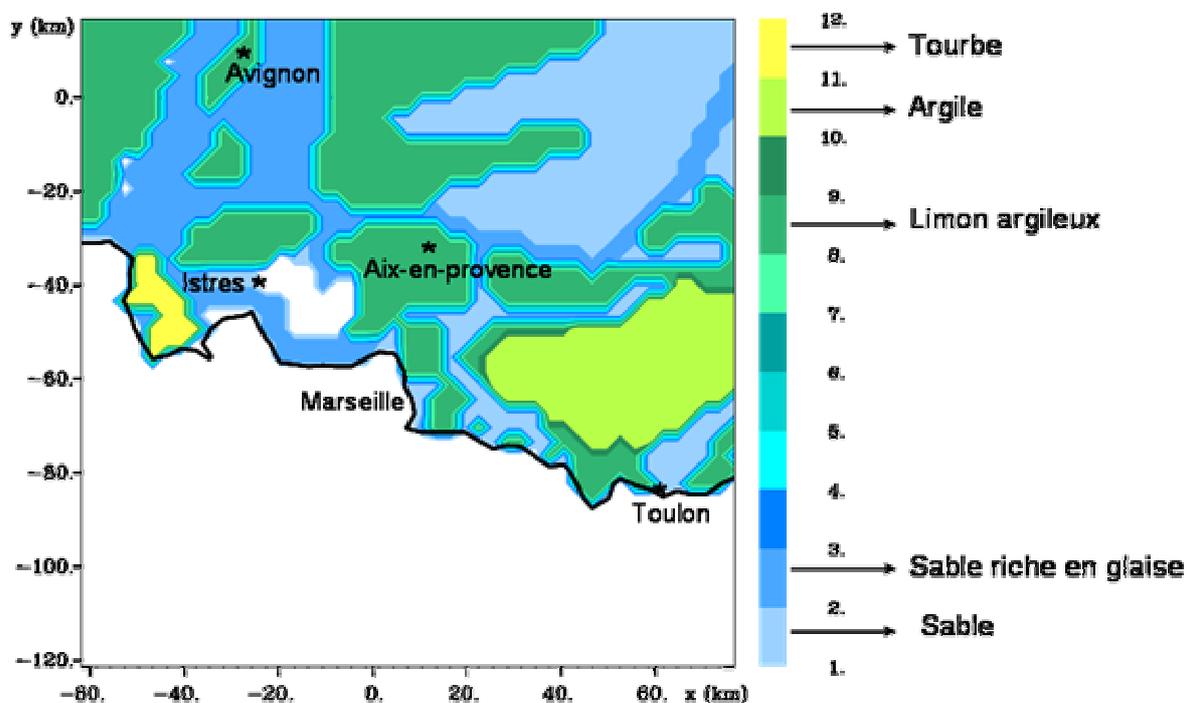


Figure II.5 - Carte de texture du sol du domaine ESCOMPTE pour les simulations RAMS.

II.2.7 - L'initialisation des champs météorologiques du modèle

Les conditions initiales et les tendances aux limites latérales sont effectuées à partir des champs météorologiques non homogènes à grande échelle, calculés par des modèles globaux. L'interpolation de ces données grande échelle (0.5° de latitude-longitude) vers des domaines méso-échelle est obtenue à partir d'une analyse isentropique (Tremback, 1990) nommé RAMS/ISAN (ISentropic ANalysis package). Les coordonnées isentropiques ont beaucoup d'avantages par rapport à d'autres systèmes d'analyse, puisque l'écoulement synoptique est à une première approximation adiabatique.

Les champs simulés de ECMWF sur l'Europe et notamment en France sont relativement bien précis à grande échelle. Les champs que nous utilisons sont des réanalyses qui incluent des assimilations de données. Donc ces champs à grande échelle d'ECMWF sont fiables. Une fois que le modèle est initialisé, un forçage de ces champs est effectué chaque 6 heures pour avoir la variation synoptique. Ce forçage ne s'applique qu'au niveau des limites latérales.

II.2.8 - Initialisation de l'humidité du sol

Les flux turbulents dans la couche limite, la hauteur de la couche de mélange diurne ainsi que la hauteur de la couche de refroidissement nocturne sont déterminés en grande partie par la température de surface, qui joue un rôle clé pour tous ces processus. A son tour, la température de surface est dépendante de paramètres concernant le sol tel que le contenu en eau de la couche superficielle du sol et plus encore du réservoir profond du sol dans le cas de longues simulations. Nous avons défini 8 couches dans le sol pour une profondeur de 1.2 mètre. Un test préliminaire nous a prouvé que l'importance des couches plus profondes est négligeable pour une simulation de courte durée; en effet ce sont les premières couches qui ont un impact dès le premier jour de la simulation. Vu ce résultat, nous avons considéré que la profondeur de 1.2 m est satisfaisante pour cette étude. Mais le paramètre le plus important est l'initialisation du profil d'humidité.

Dans le modèle RAMS, on utilise en général une initialisation homogène de ce profil d'humidité pour toute la partie continentale du domaine. Or, cette application n'est pas convenable dans le cas d'une hétérogénéité importante de la surface du sol (sol sec, marécage). Les résultats obtenus à partir d'une initialisation homogène de l'humidité du sol ont montré des anomalies dans les champs thermodynamiques et dynamiques simulés. Le champ le plus affecté est la température de l'air à la surface.

Pour mieux comprendre la sensibilité du modèle et connaître l'importance de l'erreur induite par une initialisation homogène, on a effectué des tests de sensibilité avec différents profils d'humidité homogènes sur tout le domaine. Les deux premières couches ont été alors initialisées avec les valeurs suivantes : 5, 10, 15, 20, 25 et 30 % d'humidité. Pour chaque simulation, la cohérence entre les valeurs simulées et observées a été vérifiée pour la température de surface (2m), à différents endroits (Toulon, Aix en Provence, Istres, Avignon). A chaque endroit, la meilleure cohérence ne correspond pas au même profil d'humidité. La figure II.6 montre qu'à Toulon et à Istres, le profil le plus sec (5%) donne de meilleurs

résultats, alors que pour Aix-en-provence et Avignon la meilleure cohérence correspond à 15%. Donc une correction est devenue indispensable.

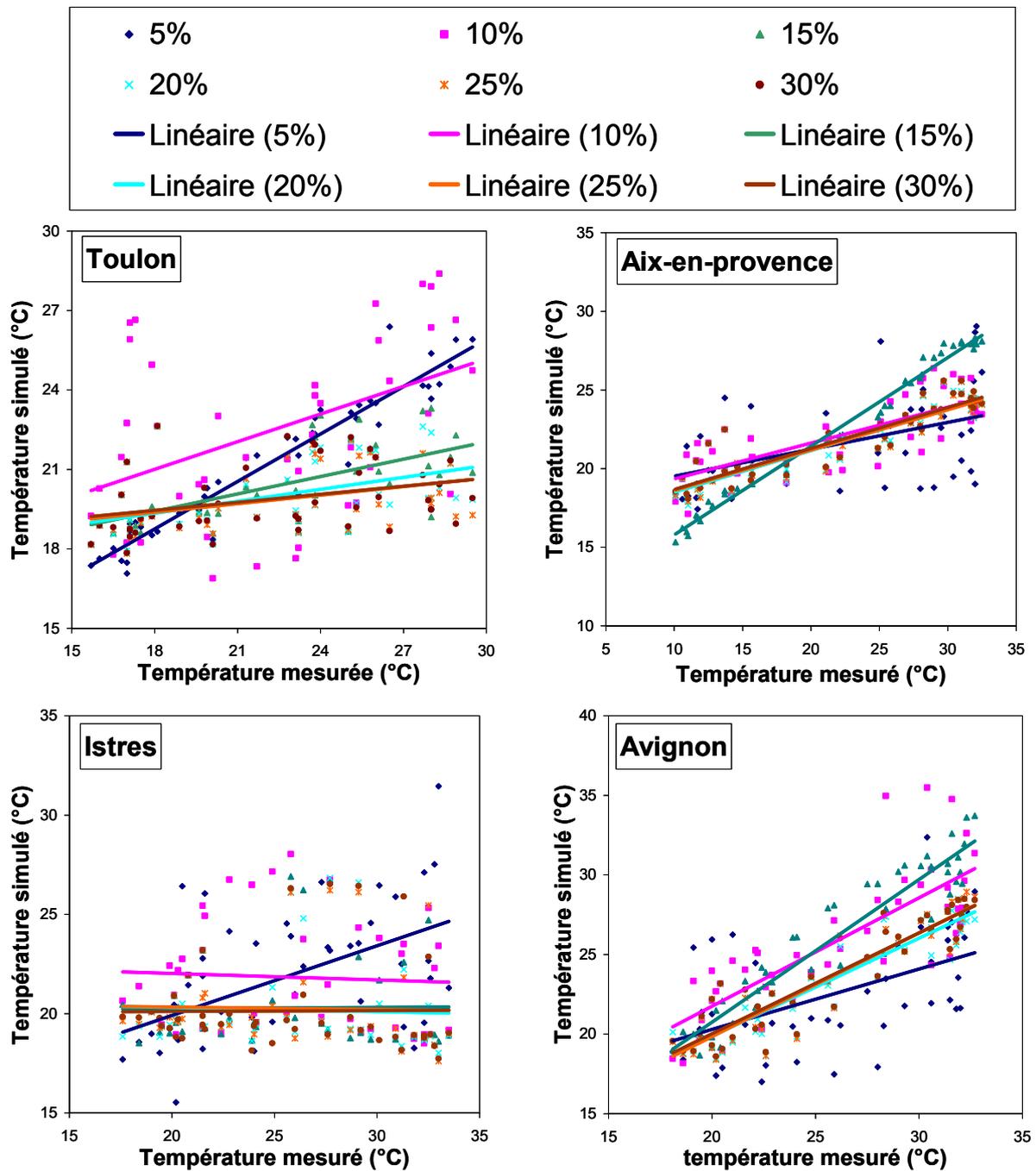


Figure II.6 – Corrélation entre la température de l’air simulée et mesurée au niveau de la surface (2m) pour plusieurs valeurs du profil d’humidité du sol (initialisation homogène).

Il est évident qu'une simulation d'assez longue durée à la suite d'une initialisation homogène raisonnablement proche de valeurs réelles (une moyenne sur tout le domaine) pourrait obtenir de bons résultats. Mais comme on l'a déjà expliqué, une simulation assez longue pourra poser d'autres problèmes et ce n'est pas dans les objectifs de cette thèse.

La répartition de ce profil d'humidité dépend de différents paramètres comme le taux de précipitation à chaque endroit, la classe de végétation et le type du sol. La figure II.7 présente la moyenne de plusieurs années de précipitation en juillet. On voit que le nord du domaine est plus humide que le sud. Pour indiquer cette information, on peut imaginer un sol deux fois plus humide au nord du domaine d'ESCOMPTE qu'au sud du domaine. Dans ce cas, on peut appliquer une correction dans le modèle qui pourra définir des régions de différents profils pour des zones de différente humidité.

Dans notre cas, les simulations de la période d'ESCOMPTE, il n'y a pas eu de précipitation dans le domaine durant les mois de juin et juillet.

Le seul paramètre pertinent dont dépend la température du sol est donc la texture du sol. En examinant la carte du type du sol, nous voyons que les meilleures cohérences obtenues dans les tests (figure II.6) sont en bon accord avec les types du sol (figure II.5). Par exemple à Toulon un profil d'humidité relativement sec donne le meilleur résultat, et sur la carte, Toulon est situé dans un endroit plus sableux. De plus, pour savoir quelle valeur d'humidité nous devons donner, nous avons interpolé les données du centre Européen sur le domaine d'ESCOMPTE. Ainsi nous avons trouvé les valeurs maximales et minimales et la valeur moyenne la plus fréquente.

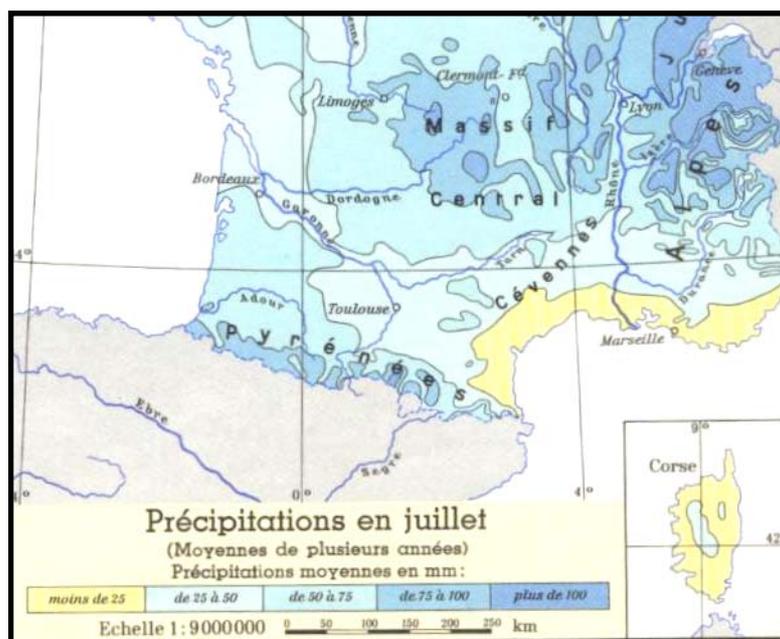


Figure II.7 - Précipitation moyenne en juillet dans le sud de la FRANCE

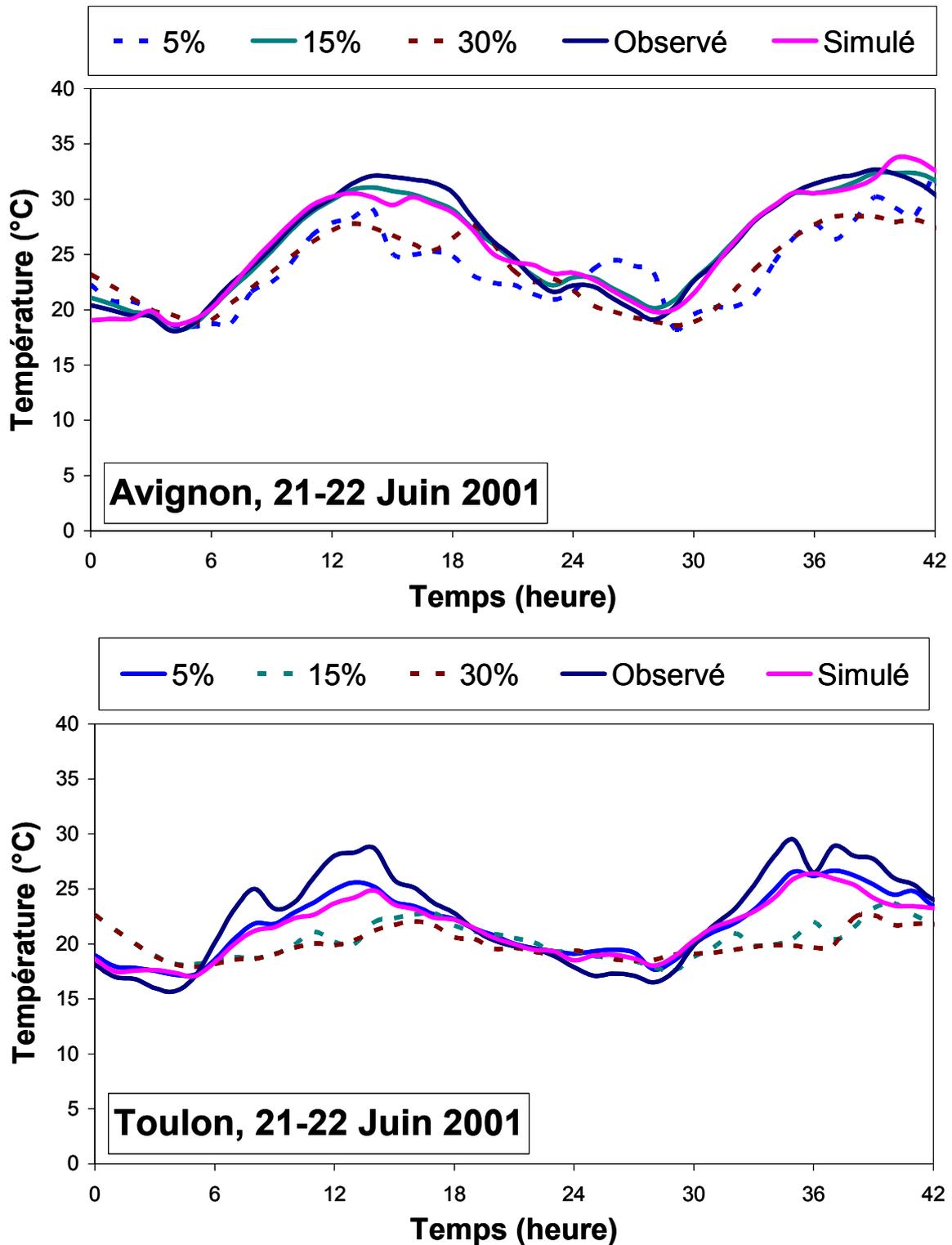


Figure II.8 – Comparaison de la température de l’air en surface, à Toulon et Avignon pour quatre simulations. Trois courbes ont une initialisation homogène pour l’humidité du sol (5, 15 et 30 %), la courbe rose a une initialisation non homogène et la courbe bleu foncé correspond à la température observée.

Le contenu en eau dans le sol dépend du type de sol. Un sol sableux perd sa quantité d'eau plus rapidement qu'un sol argileux. Parmi les 12 classes de texture de sol définies dans le RAMS, cinq sont considérées dans le domaine d'ESCOMPTE. La répartition d'humidité a été effectuée de telle sorte que la valeur minimale a été donnée à la classe la plus sableuse et la valeur maximale, c'est à dire la plus humide, à la classe marécageuse; ensuite la valeur la plus fréquente à la classe majoritaire située dans le domaine d'ESCOMPTE. La figure II.8 présente les comparaisons de la température à Toulon et à Avignon pour les 21 et 22 Juin 2001. Dans cette figure la courbe de couleur rose correspond à la prise en compte d'humidité du sol non homogène.

II.3 - Mécanisme chimique, constantes de réactions, validation du modèle en 0D pour une zone urbaine polluée

Dans ce paragraphe, nous allons tout d'abord présenter le mécanisme chimique utilisé pour cette étude, ainsi que les raisons de ce choix. Puis nous examinons la dépendance des constantes de photolyse, de réaction chimiques aux différents paramètres météorologiques en vu des simulations pour le domaine ESCOMPTE. Enfin, on présente les résultats de tests de sensibilité du modèle MOCA2.2 en 0D vis-à-vis des faibles ou fortes concentrations de NO_x et COV, pour documenter les interprétations de nos résultats numériques pour les POIs étudiées dans le chapitre 4. Le dépôt sec, l'initialisation et les conditions aux limites sont ensuite présentés.

II.3.1 - Modèle MOCA

C'est un modèle photochimique en phase gazeuse décrivant la chimie de l'ozone, des NO_x, et des composés hydrocarbonés. Ce modèle, avec 83 espèces et 191 réactions, correspond à un mécanisme réduit bien adapté à des conditions variées de qualité de l'air (allant des conditions de sites urbains à celles de sites ruraux).

Le LISA a développé ces dernières années, en collaboration avec l'IFP et EDF, l'ensemble des codes chimiques MOCA. La démarche a consisté à élaborer d'abord un modèle totalement explicite traitant la dégradation d'un ensemble représentatif de COV, puis à appliquer à celui-ci des procédures de réduction dont l'impact pouvait être évalué par référence au modèle explicite. Les tests effectués ont montré que le modèle simplifié reste représentatif pour le traitement de la plupart des situations rencontrées dans la basse troposphère continentale. Les erreurs enregistrées pour les principales espèces sont inférieures à 10 % pour des concentrations de NO de l'ordre 50 ppt (concentration de NO_x typiquement rencontrée en zone océanique) (Aumont et al, 1996). Ce mécanisme chimique permet de traiter aussi bien la chimie des milieux fortement pollués que celle des zones peu perturbées. Ce modèle comporte près de 200 réactions.

- Il a été ensuite développé à partir de cette base un ensemble de modules chimiques plus ou moins condensés et avec des degrés de sophistication suivant les milieux spécifiquement étudiés. Par exemple, dans le cadre de l'étude de la pollution urbaine et péri-urbaine, il est possible de développer des modules plus simples, spécifiquement adaptés à l'étude de certains polluants aux échelles de temps et d'espace considérées (Jaeger - Voirol et al, 1998). Comme précédemment, la méthode a consisté à dégrader un module chimique en lui appliquant différentes simplifications.
- Deux approches ont été exploitées : (i) simplification sur des critères cinétiques. La méthode repose simplement sur l'élimination des mécanismes réactionnels ne

contribuant que faiblement à l'évolution chimique du milieu considéré. C'est par exemple le cas des réactions de recombinaison entre radicaux RO_2 , dont le traitement est très coûteux en terme de nombre de réactions dans le modèle, et dont l'impact est très limité en situation urbaine (chimie des RO_2 dominée par les réactions avec NO). (ii) simplification par regroupement des HC primaires sous des espèces généralisées. A chaque groupe est associée une espèce type ou "modèle", dont le comportement est censé représenter la chimie induite par l'ensemble de ses constituants. Par référence au schéma détaillé, les tests effectués montrent que les biais introduits sont mineurs pour la simulation des environnements urbains.

II.3.2 - MODELE CHIMIE MOCA 2 .2

C'est un modèle qui est la version réduite du modèle MOCA, avec 29 espèces et 66 réactions chimiques, incluant les NO_x ($NO + NO_2$) et COV (isoprène : composé biogénique et propène : composé anthropique). Les espèces et les réactions sont présentées dans l'annexe de la publication présentée dans le paragraphe IV.2. Ce modèle a été déjà utilisé par David Poulet, pour l'étude d'impact de combustion de biomasse en Afrique, dans le cadre de la campagne EXPRESSO (Poulet (2000); Poulet et al, 2004). Dans ce travail, ce modèle condensé est examiné pour une validation dans les zones urbanisées et pré-urbanisées.

Dans l'introduction, l'un des problèmes qui a été mentionné est l'utilisation des modèles chimiques explicites ou même condensés, mais avec un grand nombre d'espèces, ce qui entraîne un coût de calcul informatique et aussi des difficultés numériques. D'autre part comme il est mentionné ci-dessus, il y a des espèces qui ne se trouvent pas dans certain milieu ou qui existent avec une quantité quasiment faible et négligeable ou bien, d'autres espèces qui malgré leur présence, ont peu d'influence et peuvent être considérées comme négligeables. Comme on a vu ci-dessus, lors de l'élaboration d'un modèle chimique, la démarche est de commencer par un modèle détaillé et ensuite, de le réduire. On est à la recherche d'un meilleur rapport qualité/prix. Ici la démarche est l'inverse, c'est-à-dire que le modèle doit contenir les espèces les plus importantes et les réactions principales qui gouvernent la chimie de l'ozone- NO_x -COV dans la troposphère (voir chapitre IV). Donc, si les résultats sont satisfaisants avec une marge d'erreur raisonnable, on peut espérer, avec l'aide d'une petite amélioration, obtenir un modèle convenable, rapide, simple et pratique. Il faut noter que dans la structure du modèle, on peut rajouter ou enlever une ou plusieurs espèces tout en gardant l'équilibre du système. Cette considération a été appliquée lors de la programmation du code numérique en mode parallèle.

II.3.3 - Choix du Modèle

L'un des objectifs de ce travail est de vérifier si ce modèle simple et condensé (seulement 29 espèces) contenant les espèces principales est capable de retrouver ou produire les champs chimiques principaux (O_3 et NO_x). Comme on a mentionné dans l'introduction, l'utilisation

du modèle explicite avec un grand nombre d'espèces devient difficile et même parfois impossible. Par la suite, on verra que même avec ce nombre d'espèces, le problème de mémoire va apparaître.

II.3.4 - Les constantes de réactions de photolyses et chimiques

Nous allons examiner la dépendance de ces taux de réactions aux différents paramètres météorologiques.

II.3.4.1 - Les constantes de réactions de photolyse et le Modèle TUV

Ces types de constante dépendent de plusieurs paramètres comme la température, la latitude, la couverture nuageuse, la quantité d'aérosols, l'albédo, l'angle zénithal du soleil... Pour 11 réactions de photolyse, ces constantes sont calculées par le modèle TUV améliorés par D. Poulet. (<http://www.acd.ucar.edu/TUV>).

Le rayonnement ultraviolet (UV) troposphérique est le mécanisme qui permet de produire les réactions photochimiques. Les photons dans la longueur d'onde UV ont le potentiel de casser les molécules habituellement assez stables en fragments très réactifs (photodissociation). Quels facteurs influencent la quantité de rayonnement UV disponible ? Quelle est la structure verticale du champ radiatif (valeur de l'épaisseur optique en rapport avec la couverture nuageuse ou la quantité d'aérosols)?

Pour ce calcul, il y a plusieurs paramètres environnementaux à définir dans le modèle, qui sont la base de ces calculs. Le modèle TUV propose par défaut, des profils standard pour toutes ces données. Pour avoir des taux de photolyse plus réalistes, nous avons essayé de l'initialiser avec les données correspondantes à la région d'ESCOMPTE. Pour cela, il est apparu nécessaire de connaître l'impact de chacun de ces paramètres sur les taux de photolyse et de quantifier leur effet. Une étude effectuée par Emmanuel Buisson dans le cadre de sa thèse de doctorat a testé l'ordre de l'importance de chaque paramètre. Le résultat de ces tests est expliqué très brièvement ici (Buisson, 1999).

Dans ces tests, la pression, la température, l'albédo de surface, les gaz traces susceptibles de perturber le rayonnement solaire incident sont pris en compte successivement, ainsi que les aérosols et les nuages. Le tableau II.3 résume les résultats pour chaque paramètre, avec leur effet sur les taux de photolyse.

La dernière colonne permet de classer les différents paramètres environnementaux suivant leur importance dans le calcul des taux de photodissociation. Alors trois classes ont été définies à partir des résultats des tests de sensibilité. La première classe correspond aux paramètres qui ont peu ou pas d'impact sur les taux de photolyse et est indiquée par NON. La catégorie suivante inclut les paramètres qui doivent être pris en compte dans le calcul des J (taux de photolyse) suivant des conditions de simulation particulières, tels que la température ou certains gaz traces ; dans ce cas, OUI a été utilisé. Enfin, il a été constaté que certains paramètres environnementaux perturbent fortement le flux actinique et donc les taux de photolyse. Leur prise en compte dans le compte radiatif est primordiale pour déterminer avec

un maximum de précision le bilan radiatif atmosphérique. Les tests de sensibilité chimique ont montré qu'une imprécision sur la détermination des taux de photodissociation engendre une modification du bilan chimique troposphérique. Pour ces paramètres, NECESSAIRE a été employé. Le tableau II.3 présente cet ordre d'importance.

Paramètres	Domaine d'étude	Effets sur J	Prise en compte dans le calcul des J
Température	263 – 293 k	$\theta = 0^\circ$, 7%/10k $\theta = 75^\circ$, 15%/10 k	Si $\Delta T > 10k$ OUI
Albédo de surface	0.1 – 0.9	30% entre 0.1 et 0.3	NECESSAIRE
O ₃	40 – 200	J(O ₃), 25% J(NO ₂), 2%	Si $\Delta[\text{O}_3] > 50\text{ppbv}$ OUI
NO ₂	1 – 100	J(O ₃), 14% J(NO ₂), 30%	Si $[\text{NO}_2] > 20\text{ppbv}$ OUI
SO ₂	1 – 50	J(O ₃), 10% J(NO ₂), <1%	Si $[\text{SO}_2] < 50\text{ppbv}$ NON
Aérosols	τ_a : 0,1 – 0.7 ω_0 : 1 – 0.5 profil vertical variable	10% 20% jusqu'à 70%	NECESSAIRE
Nuages	τ : 1 - 100	Dessous : -2% à - 90% Dessus : 5% à 105%	NECESSAIRE

Tableau II.3 – Paramètres météorologiques ayant un impact sur le calcul des taux de photolyse (Buisson, 1999)

Donc, parmi les trois paramètres où est mentionné NECESSAIRE, on peut éliminer celui qui peut être considéré comme le plus important, les nuages, car comme on l'a déjà répété à plusieurs reprises, durant les POI étudiées, on n'a pas de nuage.

II.3.4.1.1 - Albédo de surface

D'après le tableau ci-dessus, on doit prendre en compte l'albédo de surface dans le calcul des taux de photolyse. Nous avons examiné les variations d'albédo que nous avons calculées avec le modèle RAMS pour le domaine de la grille 2 (figure II.8 pour 6H, 8H, 9H, 12H, 15H et 18H). Nous constatons que sur la mer, l'albédo dépend fortement de l'angle zénithal du soleil, tandis que pour la partie continentale du domaine, l'albédo reste quasiment constant pendant toute la journée et est égal à 0.18. Les figures II.9 a et b présentent la variation de l'albédo pour un point choisi sur mer et sur terre durant toute la journée.

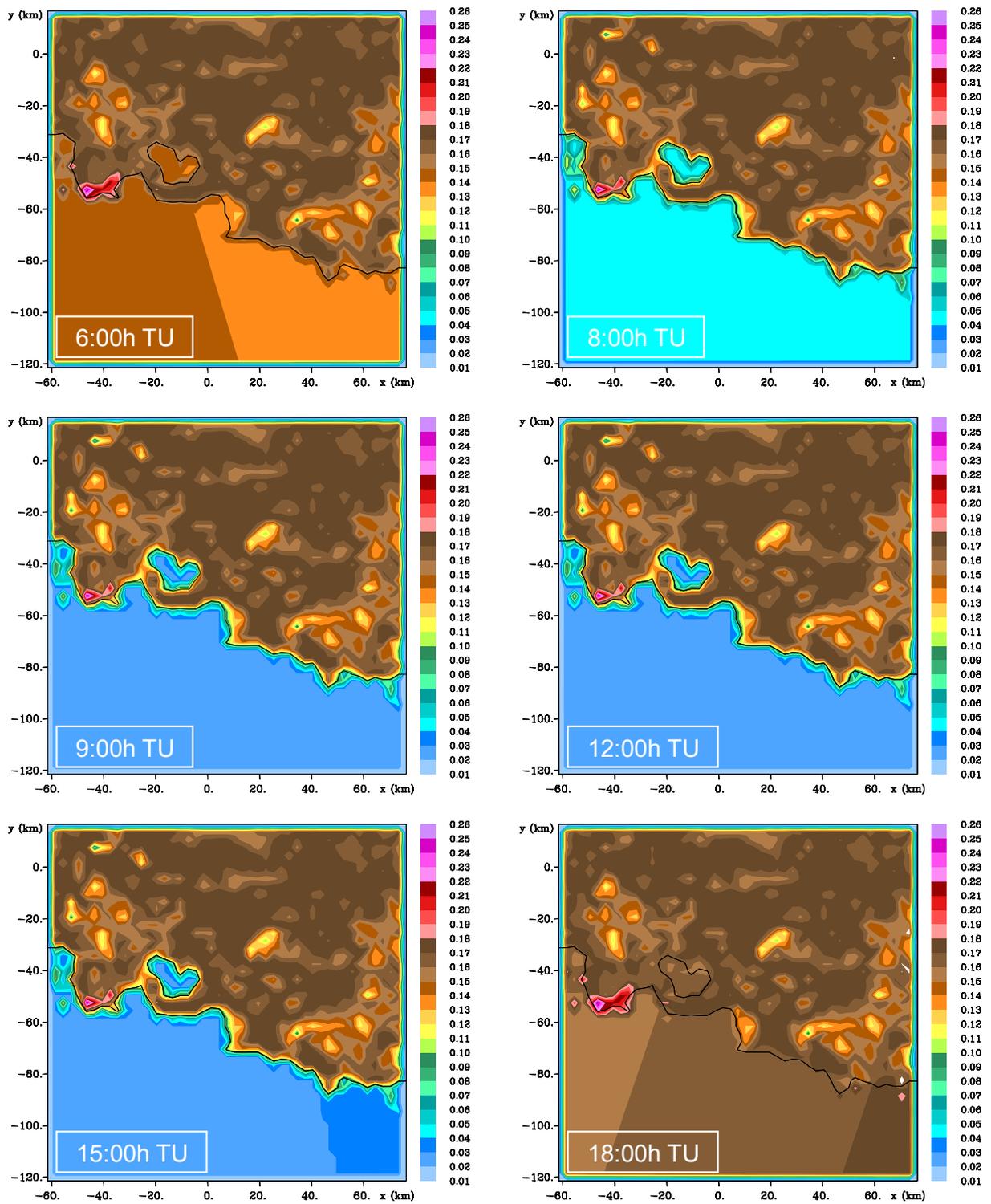


Figure II.8 – Albédo de surface de 6H à 18H

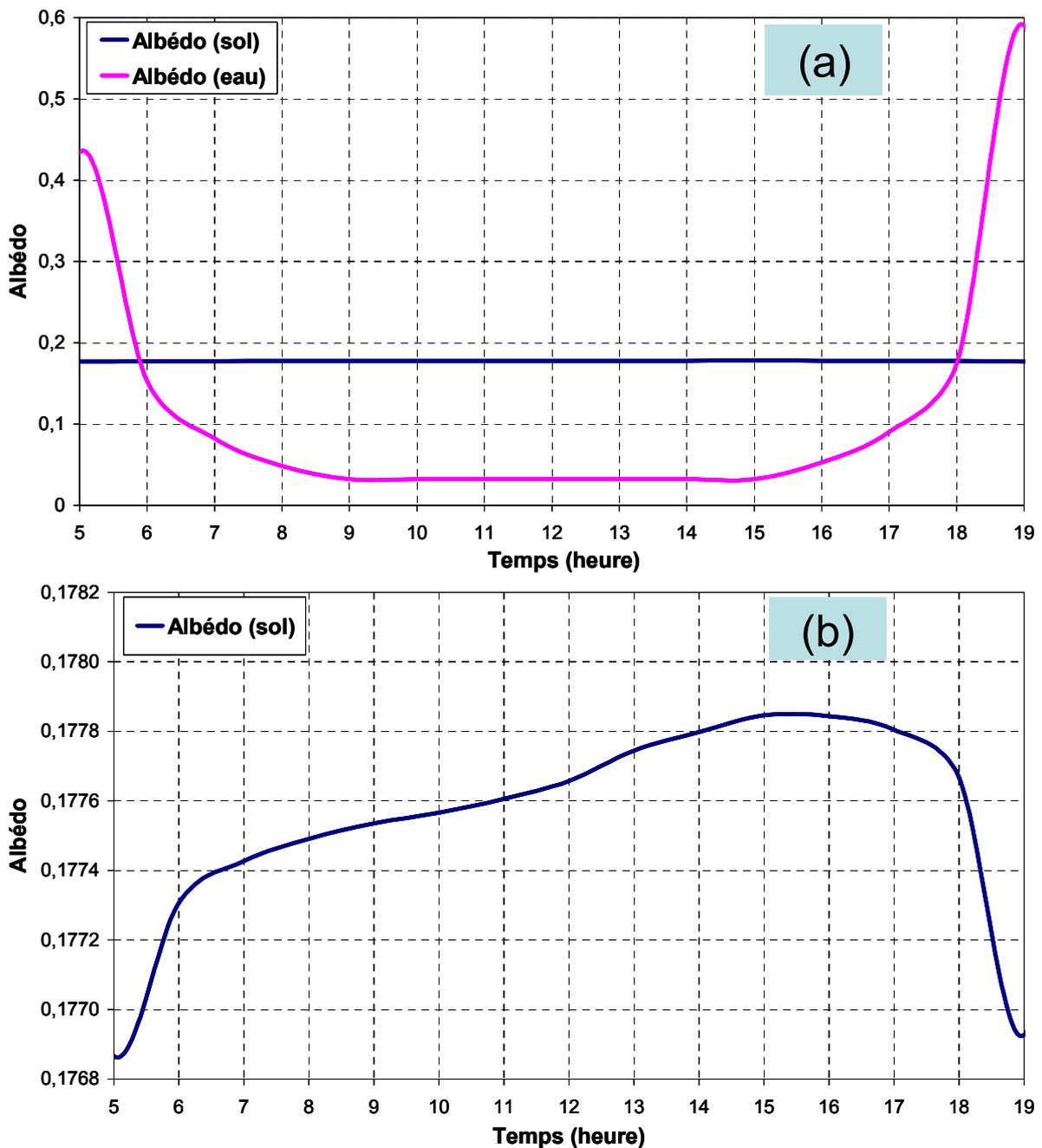


Figure II.9 - Variation de l'albédo pour un point choisi sur mer (a) et sur terre (b) durant toute la journée.

II.3.4.1.2 - Profil d'épaisseur optique des aérosols

Le lidar d'Aix les Milles a mesuré des profils d'aérosols que nous avons utilisés pour modifier la répartition verticale des épaisseurs optiques introduites dans le modèle TUV.

II.3.4.1.3 - Les autres paramètres :

Pour les définitions des profils des concentrations des espèces chimiques comme O₃, nous avons modifié le profil standard en considérant les mesures du Lidar (12HTU à Aix les Milles), ainsi que pour le profil de température avec les mesures du radiosondage.

II.3.4.2 - Les constantes de réaction ne dépendant que de la température

Cette partie a été bien développée dans la thèse de D. Poulet, donc on fait juste une simple présentation. La relation qui définit ce type de constante est donnée par l'expression :

$$r(T) = A.T^n . \exp\left(-\frac{E}{T}\right)$$

r(T) : constante de réaction

T : la température absolue en Kelvin

A et n : deux constantes positives (n pouvant être nul)

E : l'énergie d'activation (E_a/R), constante strictement positive ou négative.

- Les constantes de réaction dépendant de la température et de la pression :

$$r(T, M) = \frac{k_0 M}{1 + \frac{k_0}{k_\infty} M} F_c \left[1 + \log^2 \left(\frac{k_0 M}{k_\infty} \right) \right]^{-1}$$

r(T,M) : constante de réaction

M : la densité en molécules par cm³ de l'air

k₀ est donné par la relation :

$$k_0 = a_1 \left(\frac{T}{300} \right)^{a_2} \exp\left(-\frac{a_3}{T}\right)$$

avec a₁, a₂ et a₃ trois constantes.

k_∞ a pour expression :

$$k_{\infty} = A \left(\frac{T}{300} \right)^n \exp \left(- \frac{E}{T} \right)$$

avec A, n et E trois constantes.

F_c est aussi une fonction de T, comportant plusieurs constantes dépendant de la réaction considérée.

II.3.4.3 - Autres types de réactions

Pour un certain nombre de réactions du mécanisme utilisé, aucun des cas déjà présentés (réaction à la loi d'Arrhénius ou « fall off ») ne s'applique directement. Il s'agit notamment des réactions trimoléculaires qui dépendent de la densité moléculaire puisqu'il y a la participation d'une molécule quelconque du milieu. Ainsi pour les réactions du type :



avec M, une molécule quelconque. On a :

$$\frac{d[C]}{dT} = k[M][A][B]$$

Il est alors possible de définir une constante de réaction $k' = k[M]$, et ainsi de considérer cette réaction comme dépendante de la température et de la densité moléculaire.

II.3.5 – Capacité du modèle MOCA2.2 à simuler des épisodes de pollution urbaine

Le modèle a déjà été validé en utilisant le protocole d'inter comparaison de Khun (Khun et al. 1998) pour 4 scénarios LAND, FREE, BIO et PLUM avec une très bonne cohérence (Poulet, 2000). Nous allons examiner son aptitude à simuler des régimes de NOx limité/saturé ou COV limité/saturé.

II.3.6 - Le rapport de COV/NOx

L'impact des rapports de COV/NOx sur la chimie d'ozone-NOx-COV a été identifié la première fois par Haagen-Smit (1954) sur le processus de formation d'ozone. Depuis lors, ce rapport a été exploité dans les modèles et dans des expériences de chambre de simulation de

brouillard photochimique (voir le sommaire en NRC, 1991). Le graphe de la figure II.10 montre le comportement classique des modèles chimiques vis-à-vis des différentes concentrations de NO_x et COV (Dodge, 1977). De nombreux modèles ont montré qu'ils avaient le même comportement vis-à-vis des composés NO_x et COV : (EMEP MSC-W : European Monitoring and Evaluation Programme) avec 70 espèces et 140 réactions, le modèle IVL avec 714 espèces et plus de 1800 réaction (Andersson-Sköld, 1998), le modèle UAM : Urban Airshed Model ,(Wakamatsu,1997), le modèle ROM : Regional Oxidant Model, (Possiel et al, 1991), le modèle UMICH : University of Michigan model , (Sillman et al ; 1993) et le modèle CIT : California Institute of Technology , (Harley et al, 1993) .

Basée sur ces analyses, une règle simple a été développée pour laquelle des rapports de COV/NO_x inférieurs à 8-10 à l'initialisation, sont associés à un pic d'ozone dû à un régime COV-limité et des rapports de COV/NO_x plus grands que 20 à l'initialisation correspondent à un pic d'ozone dû à un régime NO_x-limité (Sillman, 1999). Cette règle est un peu générale et ne détaille pas l'impact de la réactivité des COV c'est-à-dire la contribution des hydrocarbures anthropiques et biogéniques.

Toutefois, cette valeur du rapport COV/NO_x mesuré en début de journée est encore employée pour justifier de prévisions de pic d'ozone afin de réduire les émissions de la journée par exemple (Hanna et al, 1996).

II.3.7 - La relation entre l'ozone, NO_x et COV dans les modèles photochimiques

Le développement des modèles 3D eulériens pour la photochimie et notamment pour le transport de l'ozone a pour but d'utiliser ces modèles pour la prévision des pics de pollution, mais aussi pour connaître la réponse de l'ozone aux réductions de NO_x et de COV. Ces études sont très utiles pour évaluer les politiques de lutte contre la pollution.

II.3.8 - Test de sensibilité du modèle MOCA pour la production d'ozone vis-à-vis des NO_x-COV

Nous venons de montrer que le rapport de NO_x/COV est un critère très important pour les épisodes de pollution, il nous a semblé indispensable de vérifier le comportement de la production d'ozone calculée par le modèle MOCA2.2 vis-à-vis de différente concentration de NO_x et COV. Ces test sont effectués avec le modèle 0D pour une journée d'été (premier juillet) dans le domaine ESCOMPTE et pour une grande variation des concentrations de NO_x et COV (entre 1ppb et 1ppm). La figure II.11 présentent les résultats de ces simulations. Elle montre que le modèle est parfaitement réaliste, si on la compare avec la figure II.10 représentant le cas classique.

Ces graphes montrent la concentration de l'ozone (en ppb) moyennée entre 10h et 19h en fonction des concentrations initiales de NO_x et de COV. Il n'y a pas d'émission dans ce test, seulement des valeurs initiales sont utilisées.

Les graphes (figures II.10 ou II.11) d'isocontours d'ozone montrent que la formation de l'ozone est un processus fortement non linéaire par rapport à la concentration des NO_x et des

COV. Quand la concentration de NO_x est basse la formation d'ozone augmente avec l'augmentation de NO_x dans un mode presque linéaire, puis à mesure que le taux de NO_x augmente, le taux de formation d'ozone ralentit pour atteindre un maximum, enfin, pour des concentrations plus élevées de NO_x, le taux de formation de l'ozone diminue avec l'augmentation de NO_x. Les trois lignes X, Y, Z sur la figure II.11, représentent les maxima d'ozone pour trois rapports différents de COV/NO_x. La ligne X montre la séparation entre un régime chimique NO_x-limité et un autre régime, c'est-à-dire qu'on peut considérer avoir un régime NO_x-limité uniquement en-dessous de la ligne X. C'est un régime où l'ozone augmente avec l'augmentation de NO_x et montre relativement peu de réponse aux COV, surtout quand la concentration de COV est plus élevée. A l'inverse, la ligne Z représente la limite d'un régime COV-limité (ou NO_x-saturé); à gauche de cette ligne, l'ozone augmente avec l'augmentation de COV et diminue avec l'augmentation de NO_x. La ligne Y est une frontière entre les deux régimes chimiques différents. Cette ligne sépare les régimes de NO_x-limité et de COV- limité. Ces lignes correspondent à des rapports constants de COV/NO_x : rapports élevés pour X et bas pour Y avec Z qui correspond au maximum de concentration d'ozone. Il convient de noter que la séparation réelle entre le régime NO_x-limité et COV-limité inclut une large région transitoire plutôt qu'une ligne de division nette.

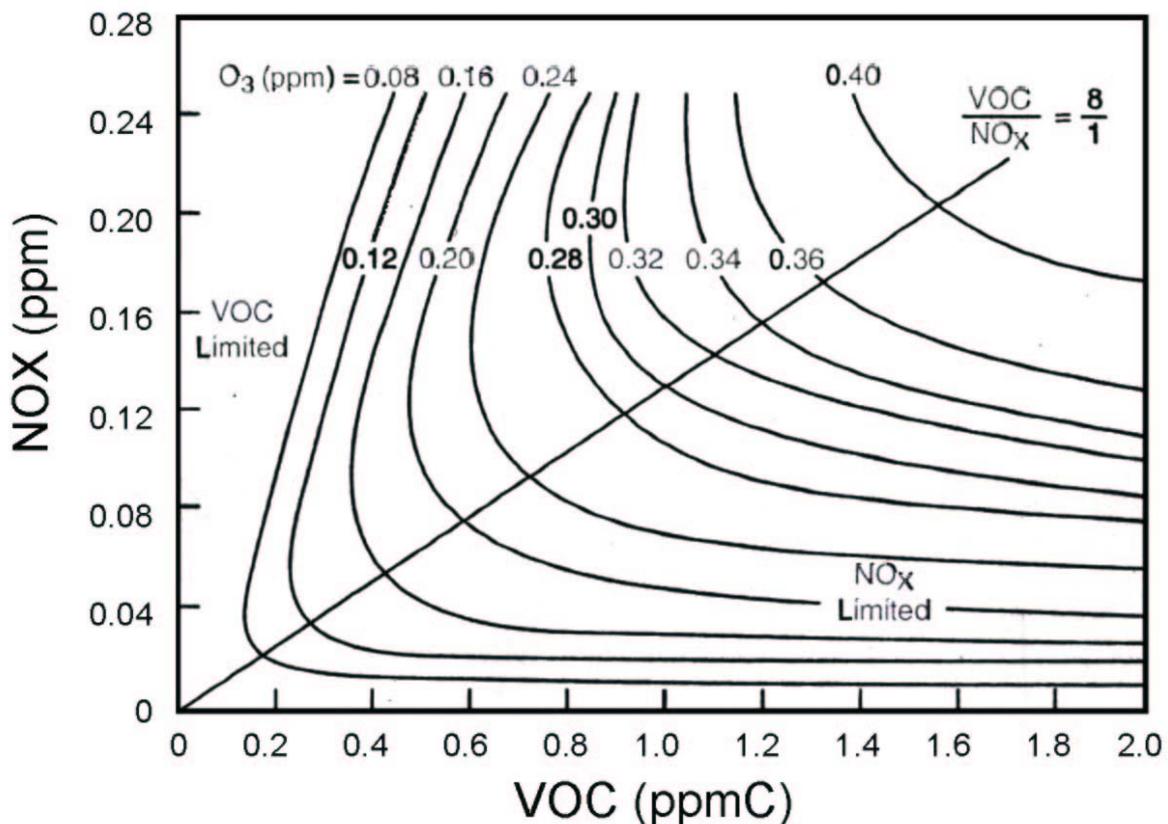


Figure II.10 – Isocontours typiques d'ozone en fonction de différentes concentrations initiales de COV et NO_x. (Basé sur les résultats de simulation 0D du modèle EKMA (Dodge, 1977))

Il y a également des ambiguïtés liées à la définition des termes tels que « NO_x-limité », « COV-limité » et « NO_x-saturé ». La séparation entre les deux régimes est parfois définie relativement aux maximums de formation d'ozone en fonction des NO_x et COV, de sorte que le régime NO_x-saturé se réfère spécifiquement aux conditions pour lesquelles les augmentations de NO_x auraient comme conséquence moins d'ozone. C'est le plus fréquent parce qu'il s'applique également aux régions de troposphère libre et aussi aux endroits de forte émission comme les zones industrielles. Par contre, la chimie urbaine (en centre ville) est liée à des « COV-limité ». Dans cette thèse, les termes de « NO_x-limité » et « COV-limité » seront généralement employés, bien que le terme de « NO_x-saturé » (plutôt que COV-limité) soit plus largement applicable à la troposphère dans son ensemble. La notion de « NO_x-saturé » sera utilisée dans le cas de panaches issus des zones industrielles. Le contraste entre les régimes « NO_x-limité » et « COV-limité » dans la figure II.11 illustre les difficultés qui existent dans les études de réduction d'ozone dans les régions polluées. Pour le réduire, il faut diminuer les émissions de ses précurseurs, NO_x et COV. Les réductions de COV seront seulement effectives dans la réduction de l'ozone si la chimie en « COV-limité » prédomine. Les réductions de NO_x seront effectives seulement si la chimie en « NO_x-limité » prédomine et peut réellement augmenter l'ozone dans des régions « COV-limité ».

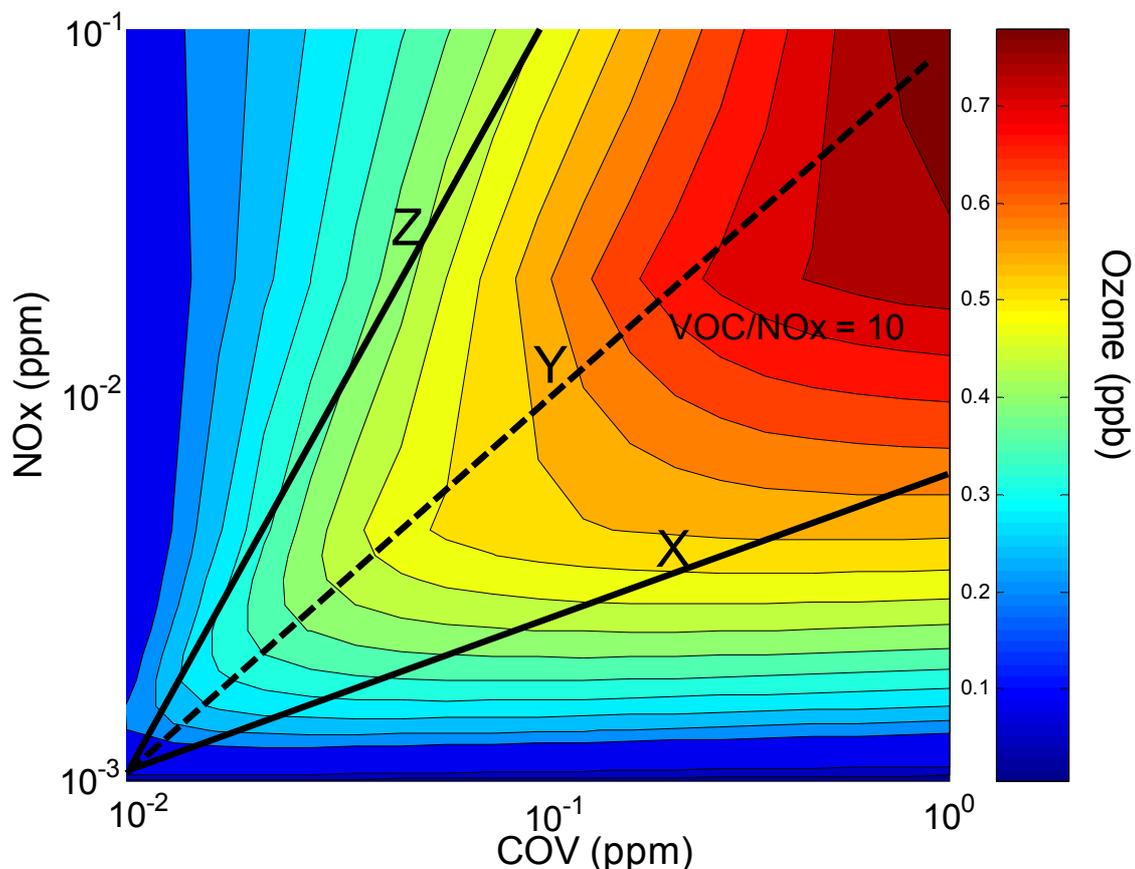


Figure II.11 – Isocontours d'ozone en fonction de différentes concentrations initiales de COV et NO_x. (Basé sur les résultats de simulation 0D du modèle MOCA2.2).

II.3.9 - Initialisation des espèces chimiques

Au départ de la simulation, il est indispensable d'initialiser les espèces chimiques pour représenter un épisode composé de plusieurs jours. L'effet de la concentration initiale est réduit pour les jours suivants où on retrouve un état réel et stabilisé.

L'initialisation doit être la plus proche possible de la situation réelle. Pour deux raisons : 1- elle a un rôle très important sur la convergence du modèle vers l'état réel; les initialisations fausses et trop loin de la situation réelle peuvent conduire le modèle vers une divergence. (Par exemple, on peut voir le test de sensibilité NO_x-COV présenté ci-dessus qui donne des résultats différents, si on a une concentration initiale différente de NO_x et COV) .2- pour que le modèle s'approche le plus vite possible de la situation réelle.

Pour l'initialisation on peut utiliser les données moyennes climatologiques, les mesures dans des expériences passées ou les mesures présentes. L'initialisation pourra être définie horizontalement ou verticalement homogène ou non homogène, dépendant de la taille et de la résolution du domaine. L'effet de l'initialisation est moins important en surface qu'en altitude, essentiellement sur les zones de forte émission. La figure II.12 montre la carte de CO à la surface et à 700 mètres juste une heure après le début de la simulation pour une initialisation horizontalement homogène de 150ppb. L'emplacement des zones de forte émission comme Fos-sur-Mer est bien évident sur la carte au sol, alors qu'en altitude il n'y a quasiment pas de changement sur la concentration de CO.

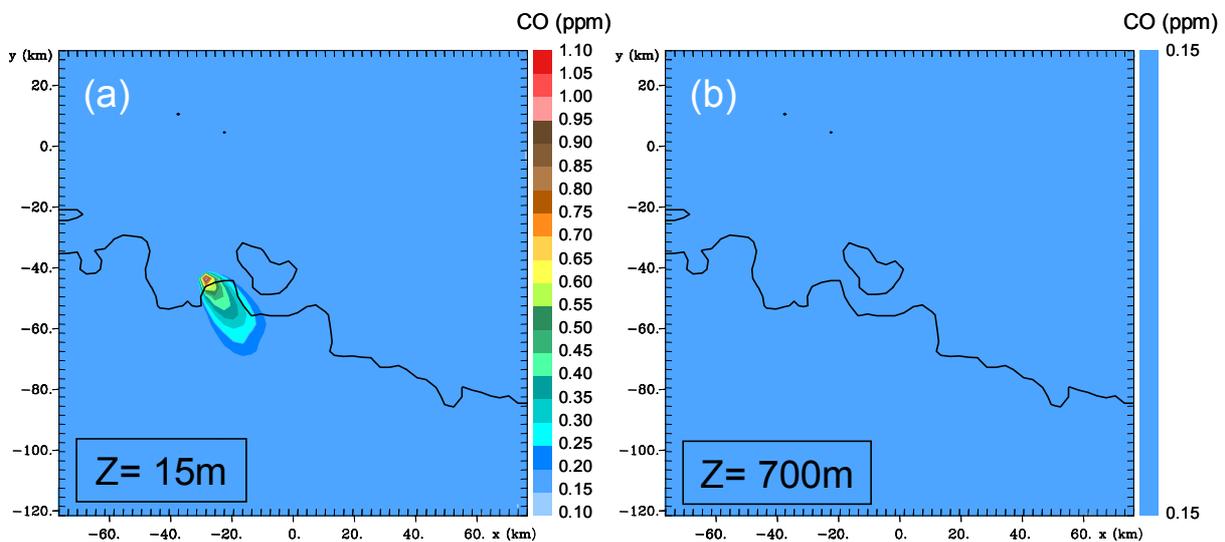


Figure II.12 : Isocontours de CO à la surface (a) et à 700 mètres d'altitude (b) juste une heure après de début de la simulation

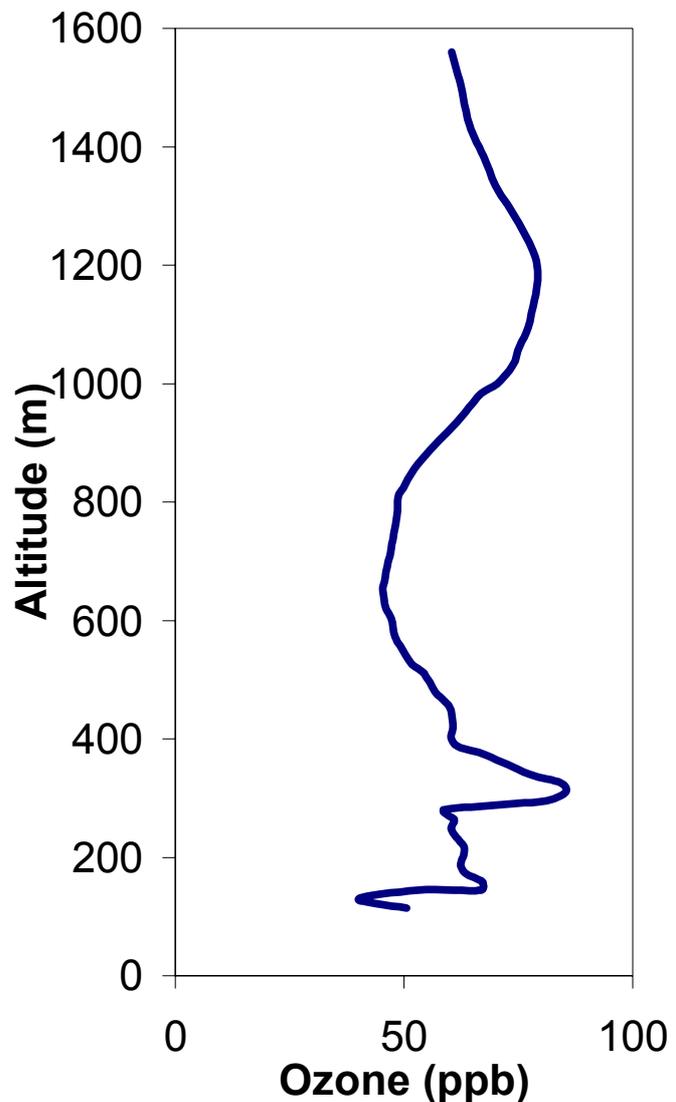
Théoriquement, une initialisation faible ou bien inférieure aux valeurs réelles posera moins de problème que si on initialise avec des valeur supérieures. Il vaut mieux initialiser avec des

valeurs faibles, mais dans ce cas il faudra plusieurs jours de simulation pour rétablir les champs réels si on a un bon cadastre d'émission. Toutefois, il y a d'autres problèmes qui limitent la durée des simulations (comme les conditions aux limites) et qui exigent d'arriver rapidement à la situation réaliste.

L'heure de départ de la simulation est aussi importante pour l'initialisation. Un départ à midi où les réactions photochimiques sont très actives et où une couche limite s'est fortement développée ne peut pas être très convenable pour une initialisation.

Normalement le modèle doit être lancé un ou quelques jours avant chaque POI pour obtenir un état chimique stable. Pour cela, on a eu besoin des données des jours avant la POI. Dans le premier chapitre, on a présenté uniquement la répartition des mesures sur les POIs étudiées. Dans la base de données ESCOMPTE, il existe un ensemble des données hors POI, de surface et en altitude comme par exemple, les profils du lidar qui ont été très utiles pour trouver ces valeurs initiales (Figure II.13). La répartition initiale des espèces à la surface est déterminée par les données de surface (station permanente).

Figure II.13 - Profil vertical d'ozone à Aix-les-Milles, le 22/06/2001 à environ 20 heures TU.



II.3.10 - Prise en compte du dépôt sec

Le dépôt sec est le processus par lequel les espèces chimiques en trace sont transférées aux végétaux et à la surface du sol par adsorption. Pendant les POIs étudiées, même quasiment sur l'ensemble des POIs, le ciel était clair, avec peu de nuages et aucune précipitation. En présence de pluie, le dépôt humide se caractérise par une vitesse de dépôt élevée mais

épisode. Dans la figure II.14 extraite de Slinn (1977), on peut voir l'importance relative des deux types de dépôt sec et humide. Le processus de dépôt sec bien que faible, est un phénomène continu et il représente une part importante des transferts atmosphère – surface. Le puits de SO_2 dû au dépôt sec, par exemple, représente environ 20 à 30% (Garland et al, 1974 ; Caramichael et Peters, 1984). Il doit donc être pris en compte pour le bilan des espèces dans la basse troposphère pour des simulations de plusieurs jours.

La paramétrisation et le couplage du schéma de dépôt sec avec le modèle RAMS a été déjà réalisé par Edy (1997). Dans ce schéma, le dépôt sec d'espèces gazeuses, y compris l'ozone, le dioxyde de soufre, les composés azotés comme HNO_3 , les composés organiques à longue et à courte durée de vie, a été paramétrisé selon Wesely (1989). Le modèle calcule la vitesse de dépôt à partir de valeurs de trois résistances en série, les résistances aérodynamiques, laminaires et de la surface. Ces résistances sont calculées en utilisant les champs de surface de RAMS. Les champs liés à la végétation, tels que l'indice foliaire, sont prescrits avec une résolution d'un kilomètre sur l'ensemble des grilles. (On rappelle l'utilisation de configuration de patch). Un certain nombre de modifications a été apportées à la paramétrisation du dépôt sec [Wesely, 1989]. Par exemple pour la formulation de la résistance stomatale et celle de la résistance de surface sur les surfaces mouillées, il y a eu certaine modification car le nombre de classes de végétation définies dans la version utilisée a augmenté de 18 à 30.

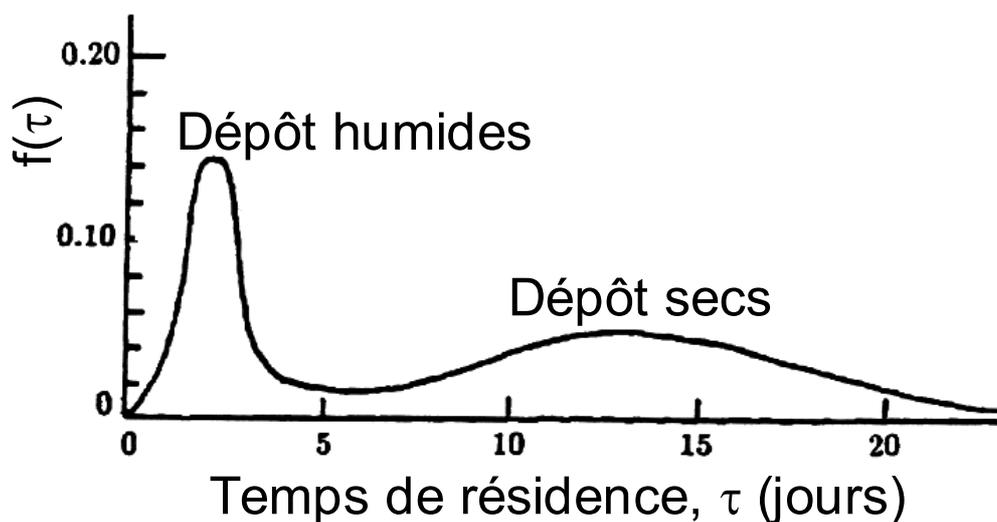


Figure II.14 - Distribution statistique des dépôts secs et humides en fonction du temps de résidence d'un traceur exprimé en jours.

II.3.11 - Les conditions aux limites

Dans la simulation, un autre point important est la définition des conditions aux limites. Winner et al. (1995) montrent que deux simulations avec deux conditions aux limites

différentes pourront avoir des résultats différents sur les simulations. Cet effet peut complètement changer la prévision chimique par le modèle.

Quand on simule avec deux grilles imbriquées, les conditions aux limites pour la grille fine (fille) sont définies par sa grille mère. Donc le problème est aux limites latérales de la grille mère. La raison principale d'une simulation à deux grilles imbriquées est d'avoir une bonne définition de condition limite aux bornes du domaine d'étude qui est la grille fine. Mais il faut savoir qu'une bonne définition de la condition limite pour la grille fine par la grille mère, nécessite une bonne définition de condition limite pour elle-même.

Pour cela il y a différentes possibilités, comme l'utilisation de données d'une simulation à grande échelle. Dans cette simulation, il n'y a pas de forçage chimique d'un modèle à grande échelle, ni au centre ni à la limite. Donc, les conditions aux limites sont très importantes, car elles peuvent influencer tous les résultats à la limite (frontière) qui vont se propager vers le centre de la grille mère et par conséquent modifier les simulations de la grille fine (le domaine d'étude). Ces conditions sont reliées au transport des espèces chimiques (ici le modèle RAMS). Parmi les conditions limites proposées par le RAMS, nous avons utilisé l'option qui prend en compte les flux entrant dans le domaine pour la grille mère (figure II.15). Le modèle définit une ligne supplémentaire et lui affecte les valeurs de concentration de la dernière ligne du domaine et calcule les flux d'entrées en considérant le vent entrant. Pour les flux sortant, il résout l'équation différentielle à la frontière.

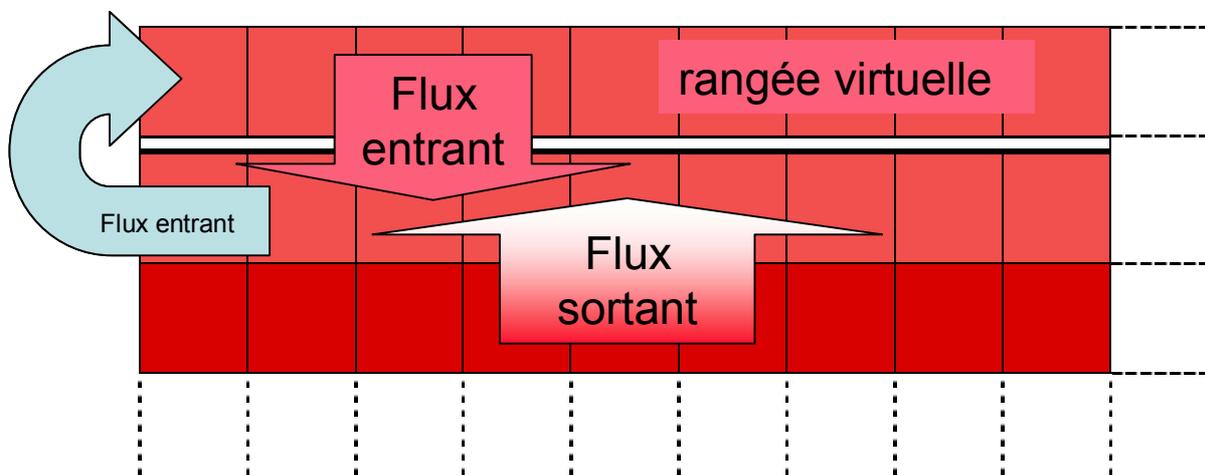
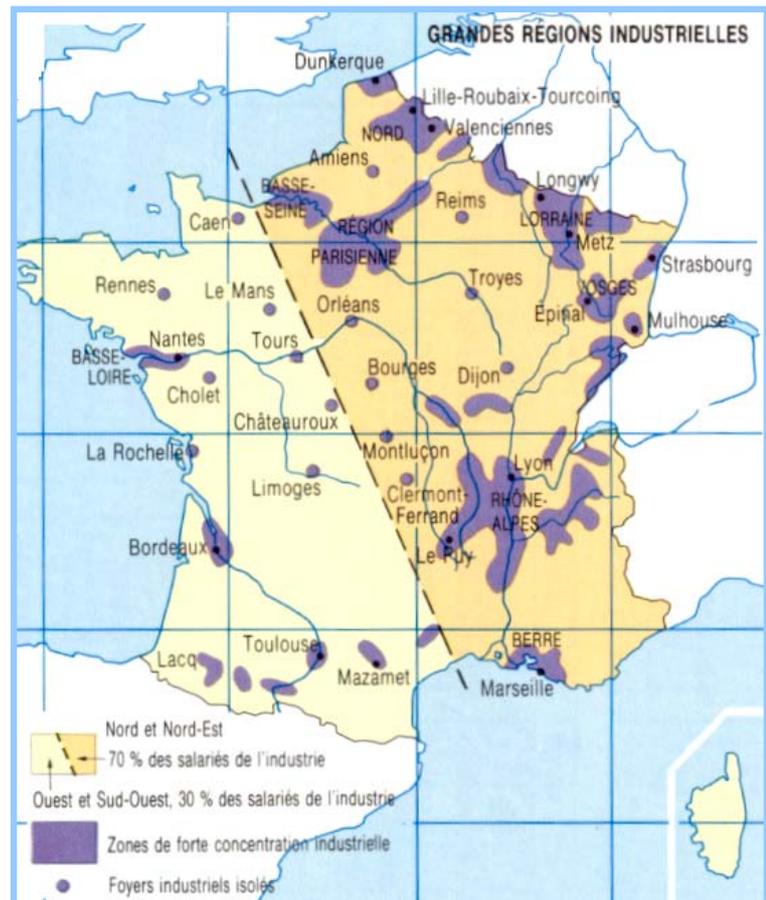


Figure II.15 - Condition aux limites latérales utilisée.

Cette option est meilleure que l'option la plus simple de zéro-gradient. Pour utiliser cette condition, il faut définir la grille mère de telle sorte qu'elle se termine dans une zone chimiquement homogène et peu active. Donc, dans une première étape, pour définir la grille mère, on a essayé d'éviter que les limites latérales soient trop proches d'une grande source

d'émission : une zone industrielle ou une grande ville. Pour les quatre côtés de cette grille, le côté nord apparaît le plus important pour deux raisons : 1- la présence de la zone industrielle lyonnaise et la distance relativement courte de cette région par rapport à la petite grille. 2- d'un point de vue dynamique, la présence quasiment permanente du mistral dans cette région qui peut provoquer un flux entrant assez important. La figure II.16 présente la répartition des zones industrielles et des zones de grand habitat autour du domaine ESCOMPTE. Bien que prenant en compte toutes ces précautions au niveau des conditions aux limites chimiques, la durée de simulation est limitée à un maximum de 3-4 jours, car au-delà, l'influence des zones plus lointaines ne pourra pas être négligée. Si on désire effectuer des simulations continues, par exemple pour une dizaine de jours, une proposition pratique est de définir une troisième grille plus large, comprenant la France entière ou même l'Europe de l'ouest qui pourra pousser ce problème encore plus loin. Les bases de données de GEIA ou EDGAR pourront être bien pratiques pour cette troisième grille.

Figure II.16 – Les grandes zones industrielles autour du domaine ESCOMPTE.



II.3.12 – Conclusion

Les tests de sensibilité que nous avons effectués, ont montré que le modèle MOCA2.2 peut simuler des régimes chimiques de NO_x_limité ou COV_limité. Ce modèle condensé que nous avons choisi pour le coupler en online avec le modèle méso-échelle RAMS, est capable de restituer les champs chimiques pour un domaine de pollution urbaine (campagne ESCOMPTE). Les régimes de « NO_x-limité » et « COV-limité » seront examinés lors de la présentation des résultats numériques des champs chimiques (chapitre IV).

Dans ce paragraphe, nous avons abordé les différentes questions que nous devons nous poser avant d'effectuer une simulation méso-échelle de ce type : initialisation chimique, condition

aux limites pour les espèces chimiques, prise en compte des paramètres météorologiques dans les taux de photolyse, et le dépôt sec. Dans ce travail, ils ont été étudiés très soigneusement autant qu'il était possible, pour minimiser les biais que peuvent induire les paramètres météorologiques.

II.4 - Couplage du modèle météorologique RAMS et du mécanisme chimique MOCA 2.2

Dans cette section, le couplage on-line du modèle RAMS et du mécanisme chimique MOCA 2.2 va être développé. Tout d'abord, il ne s'agit pas strictement d'un couplage « on-line » mais d'un couplage « serré » car le calcul du transport, du mélange turbulent et de la chimie est effectué en même temps. C'est-à-dire que les champs météorologiques sont indépendants des champs chimiques (i.e. pas de rétroaction chimique sur les champs météorologiques).

Le couplage du mécanisme chimique du code MOCA2.2 avait déjà été effectué par Poulet (2000) avec la version 3a du modèle RAMS qui est une version non parallèle. Foret (2003) a parallélisé le code chimique pour le coupler au modèle RAMS version 4.3. C'est cette configuration du modèle qui a été utilisée pour ce travail. Certains modules ont été modifiés (émissions, initialisation) et le modèle couplé a été optimisé. Evaluer le couplage en version parallèle nécessite de revoir tous ces codes (initialisation, émission, chimie) et de les réécrire, car pour rendre performant ce couplage, il faut optimiser tous les temps de calcul. Un point important dans ce couplage a été de garder la même structure de parallélisme que celle du modèle RAMS. Ce travail a été effectué en collaboration avec Gilles Forêt.

Pour mieux comprendre les optimisations que nous avons effectuées, nous allons examiner la structure parallèle de RAMS

II.4.1-La structure parallèle de RAMS

La première version parallèle du modèle RAMS a été développée au CSU en 1991 et elle utilisait le logiciel Parallèle Virtuel Machine (PVM), mis en place par le laboratoire national d'Oak Ridge, pour la communication entre les processeurs de la plateforme parallèle (Bequelin et al, 1991). Cependant, depuis lors, un nouveau logiciel standard appelé MPI (Message Passing Interface) a été développé par un consortium d'industrie, de gouvernement, et d'informaticiens universitaires. RAMS a été modifié pour pouvoir utiliser aussi bien MPI que PVM. RAMS est structuré dans une configuration standard de maître-noeud, où le processeur principal est le processeur qui gère les processus d'initialisation et de rendement tandis que les autres processeurs dits « noeuds » sont les ouvriers, exécutant pratiquement tous les calculs requis lors des simulations. La structure de base de RAMS dans cette configuration de maître-noeud est la méthode standard de décomposition de domaine où à chaque processeur est associé à une partie du domaine modélisé. A chaque noeud est associé un ensemble rectangulaire de points de grille et une région environnante de frontière, qui est désignée sous le nom de sous domaine. Tous les calculs sont effectués par les « noeuds ». Pour chaque pas de temps du modèle, les « noeuds » doivent échanger l'information aux frontières du sous domaine.

II.4.2 - La décomposition du domaine

La décomposition du domaine consiste à subdiviser spatialement le domaine de simulation en deux sous domaines ou plus, chaque sous domaine étant associé à un processeur. Il y a beaucoup de manières possibles pour décomposer un domaine 3-D, les considérations suivantes sont prises en compte :

- certains algorithmes du modèle résolvent les systèmes linéaires tri-diagonaux verticalement, exigeant la connaissance simultanée de toutes les valeurs des cellules de grille dans la colonne verticale. Ainsi, il y a un avantage à garder une colonne entière sur le même processeur et à ne décomposer le domaine que selon les deux directions horizontales.
- bien que la décomposition horizontale 1-D, c.-à-d., groupant non seulement une colonne entière mais également toutes les colonnes correspondant à une valeur constante de x ou de y dans le même sous-domaine, soit conceptuellement et algorithmiquement plus simple que la décomposition à 2-D, cela augmente le nombre de mémoire et, donc, la quantité d'information qui doit être communiquée entre les processeurs. Ainsi, il a été adopté l'approche plus générale de la décomposition selon les deux directions horizontales.
- nous désirons avoir la flexibilité d'utiliser n'importe quel nombre de processeurs qui peuvent être disponibles.
- L'efficacité du parallélisme implique que tous les processeurs accomplissent leurs calculs simultanément de telle sorte qu'aucun processeur ne puisse perdre du temps en attendant les résultats des autres. Cette condition associée au fait que (1) la nature de chaque processeur peut être différente (par exemple, dans un cluster parallèle utilisant des postes de travail différents) et (2) certaines régions du modèle exigent des étapes avec plus de calculs que d'autres (par exemple, les endroits où les nuages sont simulés). Ceci implique que l'on puisse utiliser des tailles inégales pour les sous-domaines, afin d'équilibrer correctement le volume de calculs sur chaque processeur.

L'algorithme de décomposition du domaine dans le modèle RAMS répond à toutes les exigences ci-dessus. L'algorithme exige en entrée : le nombre de points de grille (colonnes verticales) dans chaque direction horizontale, le nombre de processeurs à employer, la vitesse relative de chaque processeur, et un ensemble de « facteurs de travail de colonne » ou charge de travail relative pour le calcul (temps - CPU) de chaque colonne verticale. Les deux paramètres, vitesse relative du processeur et facteur de travail d'une colonne peuvent être évalués à partir de l'exécution des pas de temps précédents ou, au début d'un run du modèle.

Une grille entière du modèle se compose des colonnes verticales intérieures de la grille où les variables de champ sont pronostiqués, plus une rangée simple des colonnes de la grille dans

lesquelles les valeurs des frontières latérales diagnostiques sont appliqués formant un périmètre latéral. Dans la décomposition du domaine, chaque colonne pronostique intérieure est placée dans seulement un sous-domaine et pronostiqué seulement dans ce sous-domaine, ce qui évite complètement des calculs pronostiques réitérés entre différents processeurs. Une rangée simple des colonnes de la grille (la région de chevauchement) est ajoutée pour former un périmètre autour de chaque région pronostique du sous-domaine ce qui va donner un nombre de colonnes modeste pour la grille entière. Ces colonnes sont employées pour stocker des valeurs des champs et pour communiquer vers les zones adjacentes du sous-domaine où elles sont pronostiquées. Dans les applications où plusieurs grilles sont utilisées dans le modèle RAMS, la décomposition du domaine est complètement indépendante pour chaque grille. Ainsi, la décomposition est basée sur les facteurs de taille et de travail de grille, et sur le nombre et la vitesse de processeurs, mais ne dépend pas de l'endroit où la grille fille est placée dans la grille parent, ou si des grilles plus fines sont placées en son sein, ou comment les grilles plus fines et de parent sont décomposées.

II.4.3 - Les types de communication

Il y a sept types distincts de « message passing » dans la structure du modèle RAMS. Ceux-ci sont :

- Initialisation: Pendant l'initialisation, le processus principal calculera la décomposition de la grille et enverra toutes les informations et les données nécessaires aux noeuds de calcul; une information complète correspondant à chaque sous domaine sera envoyée pour presque toutes les variables. Ceci se produira également pendant l'équilibrage de charge dynamique (i.e. le calcul de la répartition des charges de travail par noeuds).
- La région de chevauchement du pas de temps long : Au début d'un pas de temps, les noeuds échangeront les régions de chevauchement pour les variables pronostiques. La région de chevauchement est réduite jusqu'à une rangée.
- La région de chevauchement du pas de temps long (turbulence) : Afin de ramener la région de chevauchement à une rangée, il est nécessaire d'ajouter une étape supplémentaire de communication où les coefficients d'échange turbulents dans la région de chevauchement sont échangés entre les noeuds. Cette technique a ajouté 5-10% d'efficacité, selon la plateforme utilisée.
- La région de chevauchement du petit pas de temps : Pendant le calcul du petit pas de temps acoustique, les noeuds de calcul échangeront les régions de chevauchement des composantes de la vitesse u et v ainsi que la pression.
- La zone limite des grilles imbriquées : Les noeuds contenant une grande grille (mère) enverront les données nécessaires à un noeud de grille fine (fille) pour l'interpolation de la zone limite d'une grille imbriquée.

- La remontée des informations venant des grilles imbriquées : Les noeuds de calcul moyennent l'information de la grille fine (fille) pour la grande grille (mère) puis transfèrent ces données aux noeuds appropriés pour la grande grille (mère).
- Le fichier de sortie: Les noeuds de calcul envoient les valeurs des variables pronostiques du sous-domaine vers le processeurs maître (processeur principal).

Toutes les communications de nœud à nœud correspondant à un ensemble de variables sont transférées par paquet dans un message simple avant d'être envoyées aux noeuds de réception.

II.4.4 – Simultanéité entre calculs et communication

Il faut que le temps de communication entre chaque processeur du système parallèle soit minimal surtout dans le cas où le temps de communication entre les processeurs dans un système est significativement comparable aux temps de calculs. Une méthode pour réduire au minimum le coût de communication est de planifier les communications de telle sorte qu'elles s'effectuent en même temps que le calcul. La structure modulaire du code RAMS favorise bien ce type de technique. La structure informatique a été réarrangée si bien que plusieurs routines qui n'exigent pas d'information des régions frontière du sous-domaine (calculs en un seul point de grille ou dans une colonne verticale) sont exécutées prioritairement. Pendant ce temps, les processeurs dédiés au calcul échangent l'information sur la frontière du sous-domaine. Enfin, les noeuds terminent le reste des calculs.

II.4.5 - Fichier de sortie

L'écriture des fichiers sortie du code RAMS sera accomplie par le processeur principal. On détermine au début d'une simulation la fréquence d'écriture des fichiers de sortie. A chaque écriture, les processeurs de calcul envoient toute l'information nécessaire au « maître », qui peut alors écrire les fichiers sur le disque local. D'autres techniques peuvent être employées où chaque noeud écrit la partie des données concernant son domaine, et où un processus séparé recombine les sorties correspondant à chaque nœud. Le concept de gestion des processus entrée/sortie (i.e gestion des processus de lectures et d'écritures des fichiers externes) par le processeur maître a plusieurs avantages:

- Après que les noeuds aient transféré leurs données, ils peuvent continuer leur traitement sans attendre le retour du processeur principal (maître) signifiant la fin de l'écriture des fichiers.
- Les fichiers de sorties sont immédiatement disponibles pour le processeur principal (maître) pour d'autres activités.

II.4.6 – Quelques précisions concernant l'imbrication de grilles

Comme mentionné précédemment, le modèle RAMS possède un schéma d'imbrication de grilles interactif et bidirectionnel ; ainsi au cours d'un pas de temps, une grille parente fournit l'information aux frontières à une grille fille et en retour, cette grille fille fait la moyenne des variables recalculées sur son domaine et « rend » ces nouvelles valeurs moyennées à la grille parente sur ce même domaine. Les grilles imbriquées peuvent être télescopiques (i.e la grille 2 imbriquée dans la grille 1, la grille 3 imbriquée dans la grille 2 etc..) ou bien plusieurs grilles filles peuvent être simultanément imbriquées dans une grille parente sur des domaines distincts. Il n'y a pas, théoriquement, de limite aux nombres de grilles imbriquées pas plus que pour la valeur des ratios d'imbrication (pour les ratio des valeurs de 3 à 5 sont recommandées). Cette capacité d'imbrication a singulièrement compliqué la mise en place d'une version parallélisée du code RAMS eu égard aux procédures de décomposition des domaines, à l'allocation dynamique des charges de travail (« Dynamic Load Balancing ») et à la réduction des temps de communication entre nœuds.

Afin d'optimiser l'efficacité du code parallélisé, le schéma d'imbrication a été modifié : ce nouveau schéma permet de décomposer chacune des grilles imbriquées indépendamment les unes des autres; les communications appropriées ont été mises en place pour l'algorithme d'imbrication bidirectionnel; concernant les processus rétroactifs, les données des grilles filles sont moyennées sur les nœuds traitant ces grilles filles puis transférées aux nœuds traitant la grille parente; les interpolations faites pour les frontières des grilles imbriquées sont faites au niveau des grilles imbriquées, elle mêmes à partir des données de frontières fournies par la grille parente. Dans tous les cas, seules les données des grilles parentes sont transférées, ce qui permet de réduire les temps de communication entre nœuds.

II.4.7 – Procédure de couplage

Vu les questions posées par certains utilisateurs du modèle RAMS, à propos de la qualité des résultats issus du modèle parallélisé, nous avons effectué différents tests pratiques pour vérifier, si les résultats d'une simulation parallèle sont différents pour une même simulation en mono processeur. Nos résultats ne montrent aucune différence significative, et nous avons aussi vérifié que les résultats de la même simulation avec un nombre différent de processeurs sont identiques.

II.4.7.1 - MPI (Message Passing Interface) au CINES

C'est un logiciel qui permet à un réseau de machines de faire du calcul en parallèle en utilisant le transfert des messages, seul moyen de communiquer en mémoire distribuée. Ce logiciel de 'message passing' est disponible sur **la machine SP du CINES**. MPI ne fonctionne que selon le principe SPMD (Single Program Multiple Data), le même code exécutable est chargé sur tous les processeurs.

II.4.7.2 - Les procédures de couplage

La procédure de couplage comprend trois parties principales. On a déjà expliqué que le modèle RAMS peut prendre en compte des traceurs inertes et faire tous les calculs concernant leur dispersion et leur transport. Dans le modèle RAMS, il y a une boucle sur tous les points de grille. Dans le programme principal, à chaque pas de temps, il fait appel à toutes les routines. Donc le couplage RAMS_chimie est effectué en rajoutant trois codes principaux.

a) initialisation :

- 1- les émissions sont stockées dans des tableaux prédéfinis.
- 2- Les constantes des réactions chimiques déjà calculées (table de look up) ainsi que les constantes de photolyse sont stockées dans des tableaux prédéfinis.
- 3- Les valeurs des espèces chimie sont initialisées.

b) injection des émissions :

A chaque pas de temps, ce module est appelé. A partir des tableaux des émissions déjà stockés et dépendant du temps, l'émission pour chaque espèce est injectée à chaque point de grille et pour chaque domaine.

c) programme de chimie :

Dans ce code, tous les tableaux concernant les concentrations des espèces chimiques sont appelés. Pour chaque point de grille, les champs météorologiques sont utilisés afin de déterminer les constantes de réaction et de photolyses stockées dans les tables de look-up ou pré-calculées. Ensuite, on calcule la production et la destruction pour chaque espèce. Enfin, l'équation différentielle est résolue par le solveur chimique QSSA (Hesstvedt et al, 1978) où un pas de temps chimique est pris en compte.

d) dépôt sec

Enfin, on calcule le dépôt sec et on met à jour les concentrations des espèces concernées au travers des modules d'advection et de diffusion.

Cette procédure est présentée schématiquement dans la figure II.17.

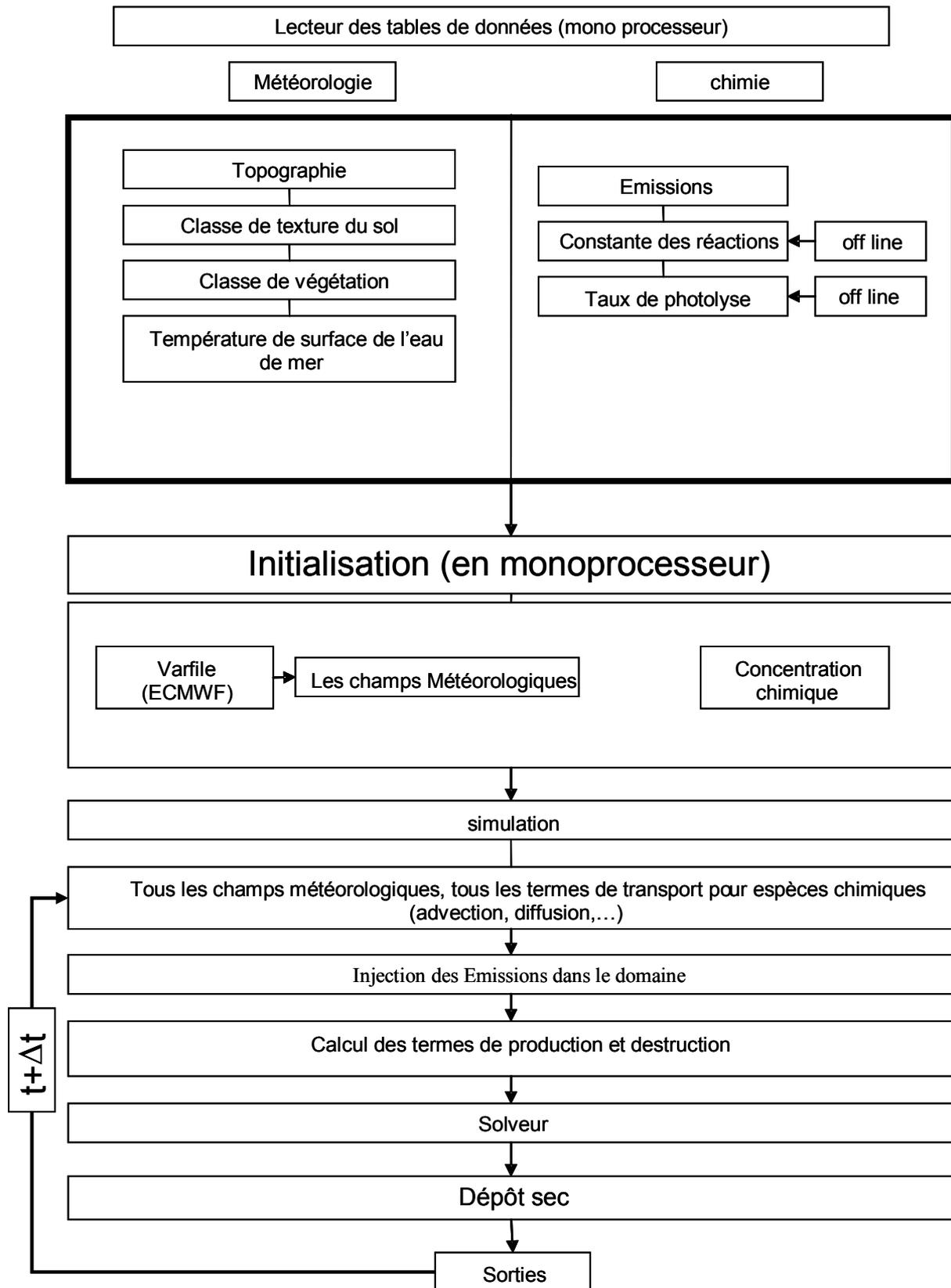


Figure II.17 - Organigramme du modèle RAMS-Chimie.

II.4.8 - Test d'optimisation du nombre de processeurs

Tout d'abord on va définir quelques expressions qu'on va utiliser pour ce test :

- Temps réel : il s'agit du temps réel de simulation, c'est à dire du début à la fin de la simulation.
- Temps CPU : le temps de travail d'un processeur ou un ensemble de processeurs pendant la simulation. Ce temps représente le coût de la simulation.
- Temps de l'interface ou communication : il ne se définit que pour les simulations multiprocesseurs et il s'agit du temps de communication entre les différents processeurs pour échanger les informations des limites latérales du sous domaine de calcul.

Parallélisation PVM et MPI :

La différence la plus importante est liée au fait que lorsque l'on utilise le logiciel PVM, l'échange de toutes les informations concernant les données latérales de chaque sous-domaine entre les nœuds ne se fait que par le processeur maître. Le problème dans ce type de parallélisation tient au fait qu'à partir d'un certain nombre de processeurs les temps de communication vont augmenter de façon importante allant jusqu'à compenser le gain de temps dû à la division du temps de calcul. Il y a une saturation de la capacité de communication du processeur « maître » avec les nœuds. Dans le cas du logiciel MPI, ce genre de communication se fait directement entre les nœuds et pas par l'intermédiaire du processeur maître. Par conséquent, le temps réel diminue en utilisant plus de processeurs jusqu'à ce que le nombre de processeurs soit comparable au nombre de points de grille horizontaux de la simulation, c'est-à-dire lorsqu'un processeur est associé à un seul point de grille (Ceci reste théorique, la plupart du temps le nombre de points de grille horizontaux est supérieur aux nombres de processeurs utilisables). Le temps CPU entre une simulation monoprocesseur et multiprocesseur va d'abord augmenter de façon importante, puis il va se stabiliser, présentant souvent un minimum avant d'augmenter de nouveau. Ce minimum de temps CPU correspond à un rapport gain de temps réel/temps CPU optimisé. C'est dans ce cas que nous avons la meilleure distribution entre le temps de calcul physique et le temps d'interface. C'est vrai que le temps d'interface par processeur devient de plus en plus petit parce qu'il y a moins d'échange d'information, mais, en revanche, le temps d'interface de l'ensemble des processeurs va augmenter car la quantité de l'ensemble d'information à échanger sera augmentée. Dans ce travail, les tests d'optimisation sont effectués avant et après le couplage entre le modèle météorologique et le mécanisme chimique. La figure II.18 présente un des résultats de ces tests. Sur cette figure, on voit le temps réel et le temps CPU en fonction du nombre de processeurs pour le modèle non couplé (a) et couplé (b). Le comportement avant et après couplage semble très proche : dans les deux cas, le temps réel diminue en augmentant le nombre de processeurs. Le temps CPU présente un pic relatif au

passage de simulation mono processeur à des simulations multi processeurs. Puis il y a un minimum pour 8 processeurs, dans le cas de la simulation non couplée et entre 16 et 20 processeurs, dans le cas de la simulation couplée, puis on a une augmentation constante. On a donc, pratiquement le même comportement vis-à-vis de la parallélisation avant et après le couplage. Pour évaluer cette optimisation, nous nous référons au tableau II.4 qui présente, d'une part, le temps réel de calcul et le temps CPU obtenus en fonction du nombre de processeurs utilisés et, d'autre part, le gain de temps réel (en pourcentage) obtenu en comparant les temps réels de simulation entre la simulation mono processeur et les différentes simulations multi processeurs, puis l'augmentation de coût en temps CPU (toujours en pourcentage) dans les mêmes cas.

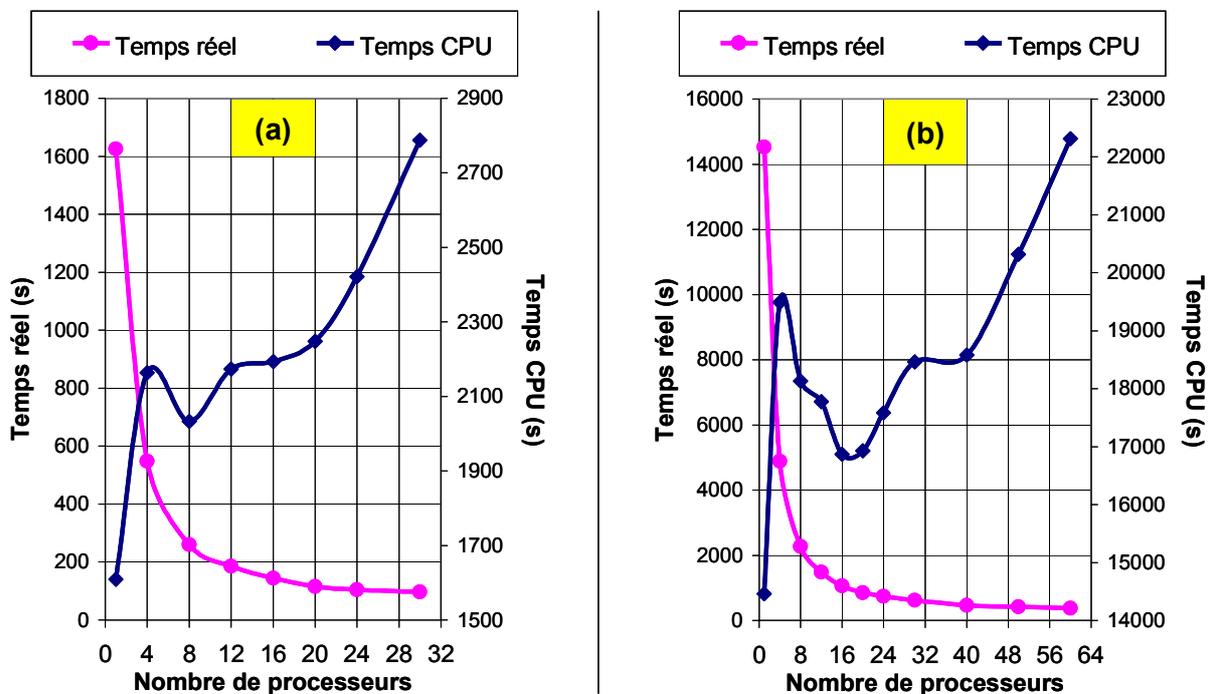


Figure II.18 – Optimisation du nombre de processeurs

Avec 20 processeurs on gagne environ 95 % et cela coûte environ 17% de plus par rapport à une simulation en monoprocesseur. 24 heures de simulation correspondent à environ 15 heures et 2 heures de temps réel et CPU respectivement. Alors que si on passe à 60 processeurs le gain est d'environ 97%, c'est à dire 2 % de plus qu'une simulation à 16 ou 20 processeurs, mais cela coûtera 55 % plus cher par rapport à une simulation en monoprocesseur et 38 % plus cher par rapport à une simulation à 16 ou 20 processeurs, qui correspond à moins d'une demi heure et environ 6 heures en temps réel et CPU respectivement.

Nombre de processeurs	Temps réel de calcul		Temps CPU		Gain sur le temps réel	R
	Secondes	heures	Secondes	heures		
1	58100	16,139	57840	16,067	0,00	0,00
4	19540	5,428	77963,36	21,656	66,37	34,79
8	9100	2,528	72528,84	20,147	84,34	25,40
16	4248	1,180	67469,08	18,741	92,69	16,65
20	3416	0,949	67728,48	18,813	94,12	17,10
40	1880	0,522	74334,28	20,648	96,76	28,52
60	1516	0,421	89269,6	24,797	97,39	54,34

Tableau II.4 – Temps réel de calcul et temps CPU en fonction du nombre de processeurs
R représente l'augmentation du coût (temps CPU) en pourcentage par rapport au cas monoprocesseur

II.4.9 - Test d'Efficacité du couplage

Pour vérifier si le couplage a été bien fait du point de vue de la parallélisation, on applique la loi de Amdahl (Amdahl, 1967) qui est définie par l'expression :

$$S = \frac{1}{(1-P) + \frac{P}{N}}$$

où :

S : accélération le calcul

N : nombre de processeurs

P : la fraction parallélisée

On peut donner P par l'expression :

$$P = \frac{N(S-1)}{S(N-1)}$$

La valeur de P (fraction parallélisée) avant couplage est 0.96273, ce qui veut dire que 96,273 % d'opérations s'effectuent en parallèle. La fraction parallélisée après le couplage augmente à 0.98022, ce qui veut dire que 98,022% d'opérations s'effectuent en parallèle. Cette augmentation de la valeur P, veut dire que la fraction parallélisée de la partie chimie est encore plus élevée que 0.98022 puisque c'est la composition de deux modèles (météo et chimie) qui nous donne une fraction parallélisée de 0.98022. Ce résultat montre la qualité du couplage parallèle. Pour voir ce que signifie une petite différence dans la valeur de la fraction

de parallèle, on trace l'accélération de la vitesse de calcul en fonction du nombre de processeurs pour les deux fractions parallélisée trouvées ci-dessus.

La figure II.19 montre qu'après le couplage, le modèle est plus performant quand on augmente le nombre de processeurs. On peut atteindre une vitesse jusqu'à presque 50 fois plus élevée en utilisant mille processeurs, tandis qu'avant le couplage pour un même nombre de processeurs, on n'atteint que 25 fois plus vite, la moitié de la valeur précédente.

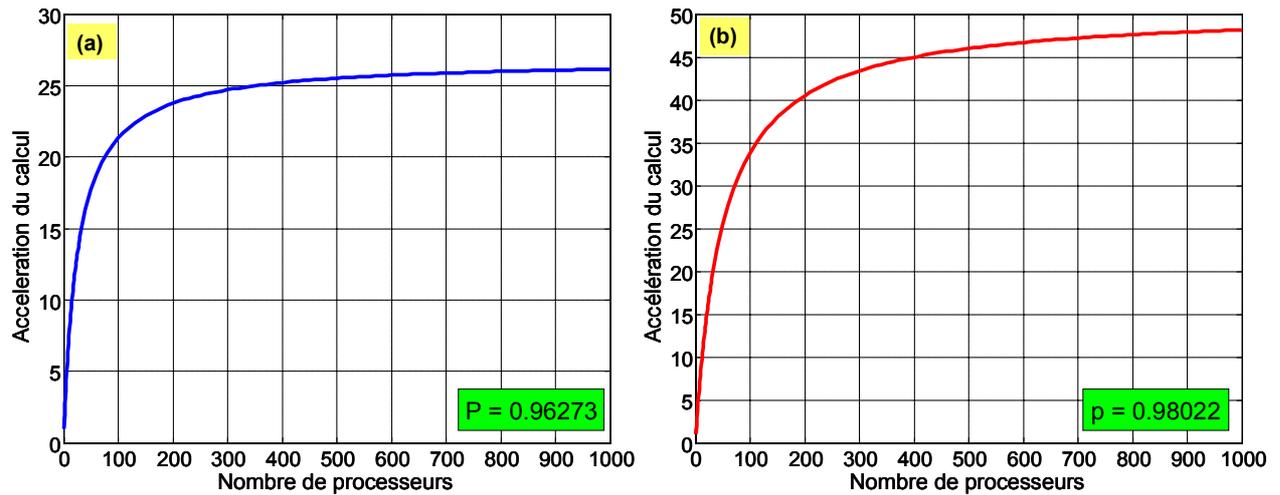


Figure II.19 - Vitesse de calcul en fonction du nombre de processeurs : (a) avant le couplage, (b) après le couplage

II.5 - Conclusion

Dans ce chapitre, les principales caractéristiques du modèle RAMS ont été développées. L'utilisation de l'option de topographie « envelop reflected » a permis de restituer une topographie réaliste avec l'ensemble des reliefs et des vallées.

Lors des différentes simulations des champs météorologiques de surface pour la région concernée, un certain nombre de problèmes est apparu. Notamment dans le cas des tests effectués avec un profil d'humidité variable montrent une hétérogénéité importante au niveau de l'humidité du sol. Nous avons vu qu'une humidité du sol fonction du type de texture de sol peut améliorer les résultats des simulations pour des sols secs comme à Toulon et à Istres et pour des sols plus humides comme à Avignon.

Les tests de sensibilité que nous avons effectués, ont montré que le modèle MOCA2.2 peut simuler des régimes chimiques de NO_x_limité ou COV_limité. Ce modèle condensé que nous avons choisi, pour le coupler on-line avec le modèle méso-échelle RAMS, est capable de restituer les champs chimiques pour un domaine de pollution urbaine (campagne ESCOMPTE). Les régimes de « NO_x-limité » et « VOC-limité » seront examinés lors de la présentation des résultats numériques des champs chimiques (chapitre 4).

Dans ce chapitre, nous avons aussi abordé les différentes questions que nous devons nous poser avant d'effectuer une simulation méso-échelle de ce type : initialisation chimique, conditions aux limites pour les espèces chimiques, prise en compte des paramètres météorologiques dans le calcul des taux de photolyse, et calcul du dépôt sec. Dans ce travail, ils ont été étudiés très soigneusement, pour minimiser les biais que peuvent induire les paramètres météorologiques de surface (humidité du sol, topographie, température de l'eau de mer, végétation, texture du sol,...).

En terme de performance de calcul, la fraction parallélisée du modèle RAMS seul et du modèle couplé fournit les valeurs de 0.96273 et 0.98022 respectivement de la loi d'Amdahl. L'augmentation de cette fraction de parallélisation est la garantie d'un bon couplage en version parallèle. Sur la SGI 3800 du CINES, le temps réel de calcul du modèle RAMS_Chimie optimisé (en utilisant 16 processeurs) est égal à 1h30 pour une journée de simulation.

CHAPITRE III



Etude Météorologique

Dans ce chapitre nous allons exploiter les situations météorologiques pendant les trois POIs étudiées. Ensuite nous allons présenter les comparaisons des champs météorologiques simulés avec les observations pour la validation. Dans un troisième paragraphe de ce chapitre, nous allons étudier les circulations atmosphériques locales les plus fréquentes sur cette région que l'on a rencontrées pendant les trois POI examinées. Cette étude est basée sur les champs météorologiques validés.

III.1 - Situation météorologique des POIs étudiées

Dans le chapitre II, nous avons expliqué que dans le domaine d'ESCOMPTE se situent des circulations locales complexes dues à la présence de topographie et de brise de mer, appelé « complex coastal environment » (Cai et al, 2002). L'un des objectifs de cette thèse est une étude détaillée de cette dynamique pendant la campagne ESCOMPTE au travers des simulations méso-échelle, afin de pouvoir examiner l'impact de la dynamique sur la chimie.

Dans cette étude, trois situations météorologiques différentes sont présentées dans le cadre des trois POI étudiées. Pour chaque POI nous allons présenter les situations météorologiques locales et synoptiques afin de bien comprendre les différences dynamiques caractéristiques de chacune des POIs étudiées. Les informations concernant la durée, le début et la fin de chaque POI ont déjà été présentées dans le chapitre I. Voici les situations observées pour ces trois POI :

III.1.1 - La POI0

La POI0 commence par un mistral modéré le 29 juin. Les conditions météorologiques générales pour la POI0 sont résumées dans le tableau III.1. La Figure III.1 présente la situation synoptique en surface à 12HTU du 30 Juin 2000 de la POI0. Cette carte météorologique montre un anticyclone au-dessus de la méditerranée et au sud de l'Europe centrale, un front sur les Alpes au nord de l'Italie et une forte dépression au-dessus de l'Atlantique associée à un système frontal. Le domaine d'ESCOMPTE est dominé par ce flux de Nord Ouest - Ouest.

Date	Situation en altitude	Situation en Surface	Couverture nuageuse	Températures	Vent
29/06/2000	Flux rapide d'Ouest à Nord Ouest.	Régime de Nord-Ouest généralisé.	Peu nuageux.	Les températures minimales sont comprises entre 18° et 20°. Les températures maximales sont comprises entre 29° et 31°.	Mistral modéré à fort dépassant localement les 12 m/s.
30/06/2000	Persistance du flux d'Ouest Nord-Ouest.	Marais barométrique.	Clair à peu nuageux.	Les températures minimales sont comprises entre 14°C et 19°C. Les températures maximales sont autour de 30°C.	Au petit matin , le vent est orienté au secteur Nord-Ouest faible à modéré (6 m/s sur Arles, 4 m/s sur Marignane, 5 m/s sur Istres), puis il s'oriente vers le secteur Ouest en se renforçant autour de 5 à 7 m/s. A partir de 18 h UTC il s'affaiblit, son orientation oscille entre le Sud-Ouest et le Sud-Est.
01/07/2000	Décalage progressif de la dorsale d'altitude vers l'Est, formation d'un minimum sur le proche atlantique générant un flux de Sud-Ouest.	Front peu actif sur l'Ouest du pays. Instabilité sur le relief des Pyrénées et du Massif Central. Entrées maritimes sur le littoral méditerranéen se dissipant en cours de journée.	Très nuageux le matin se dégageant en début d'après-midi.	Les températures minimales sont comprises entre 16°C et 20°C. Les températures maximales sont comprises entre 25°C et 30°C.	Régime de brises thermiques Le matin le vent est faible (< 4 m/s) de secteur Est. Sur Marignane, la brise débute vers 08h UTC dans la direction Sud Sud-Ouest et se prolonge jusque vers 19h UTC avec des vitesses de 5 à 8 m/s. Ailleurs (Arles, Saintes-Maries, Marseille) elle s'oriente plutôt Sud Sud-Est.

Tableau III.1 - Résumé de la situation météorologique de la POIO

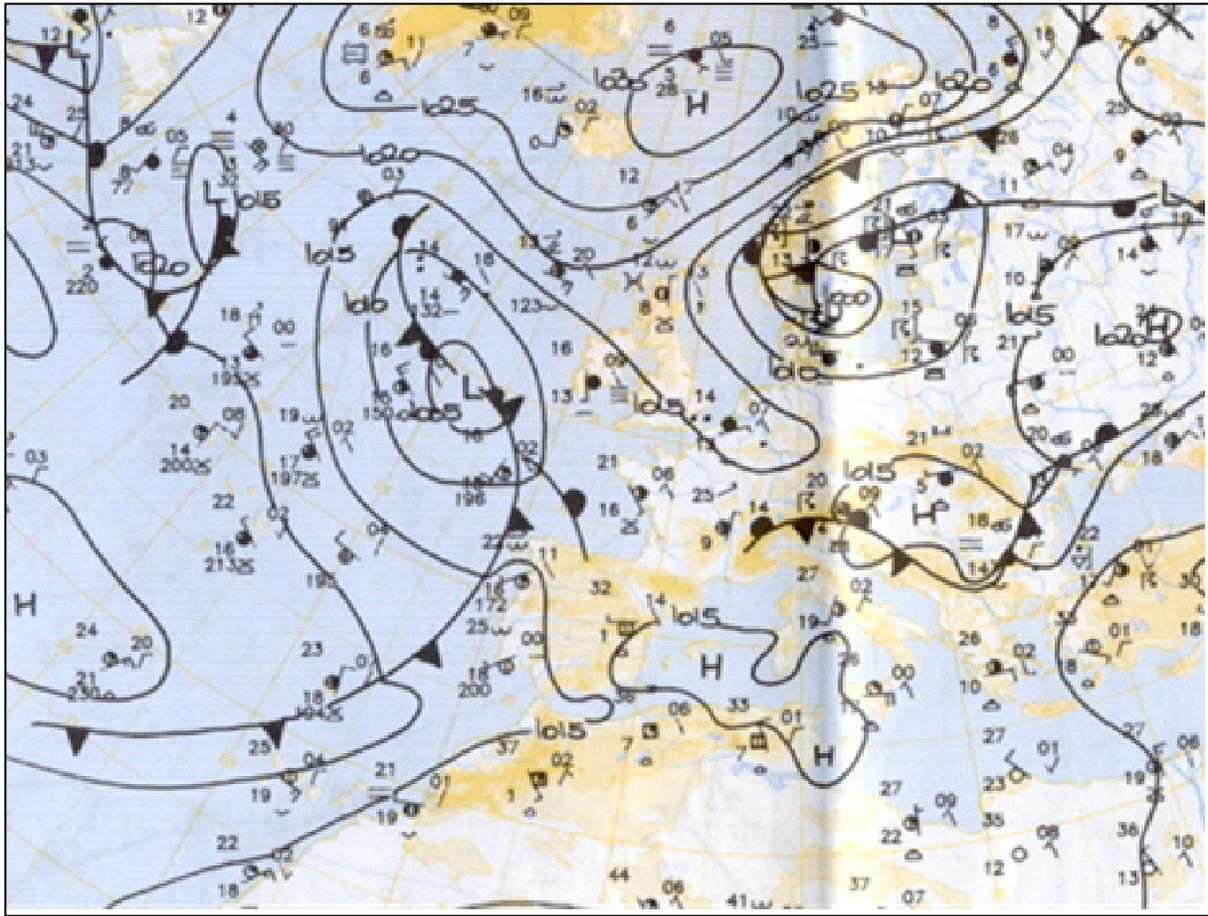


Figure III.1- Situation synoptique en surface, le 30 Juin 2000 à 12H00 - POI0

III.1.2 – La POI2a

La situation générale pour la POI2a consiste en un mistral rencontrant une faible brise de mer qui l'empêche de se prolonger sur la mer et s'arrête le long de la côte. Ce mistral est dominé par cette faible brise. Les figures III.2 et III.3 présentent les conditions observées à grande échelle et aussi à l'échelle de domaine d'ESCOMPTE pour le 22/06/2001, jour situé au milieu de cette POI. Les conditions météorologiques observées sont résumées dans le tableau III.2 pour cette POI.

Date	Situation en altitude	Situation en Surface	Couverture nuageuse	Températures	Vent
21/06/2001	En altitude régime de Nord-Ouest assez fort entre des basses valeurs centrées sur les Balkans et une dorsale axée le long de la Péninsule Ibérique et la Bretagne.	Dépression relative centrée sur le Nord de l'Italie, générant un mistral rhodanien en début de matinée.	Ciel dégagé, quelques bancs de cirrus.	La hausse des températures (max. de 32°C à 34°C degrés dans l'arrière pays) favorise la naissance de dépressions thermiques (sur Le Luc et la Plaine de la Crau) entraînant l'apparition de brises	Au lever du jour, le vent est orienté Nord-Ouest faible, il prend rapidement une orientation Sud (vers 8 h) sur la région de Marseille et Cassis. A 12h les brises se font sentir sur le littoral (avec toutefois une composante Ouest). Sur l'intérieur, le flux persiste au secteur Nord-Ouest. Vers 19h le flux ralentit considérablement en toute zone et prend une orientation Sud qui persistera pendant 2 à 3 heures pour à nouveau s'orienter au secteur Nord.
22/06/2001	Rapide flux de Nord-Ouest des îles britanniques au Sud de l'Italie à l'avant d'une dorsale axée à 0h Gibraltar - Irlande.	Marais barométrique avec un champ de pression de l'ordre de 1012 hpa sur notre région.	Ciel dégagé	20 à 23°C en début de matinée évoluant vers 31°C à 33°C en milieu de journée	Vent variable et faible de secteur Nord-Est dominant au petit matin. Des brises thermiques apparaissent sur le littoral vers 13h alors que dans l'intérieur l'orientation est au secteur Nord-Ouest. Puis orientation au secteur Ouest, par effet de brise composée. En cours de nuit l'orientation repasse au secteur Nord. Sur mer, aux abords du massif des Calanques, vers 14h se lève un flux de 240° à 5 m/s.
23/06/2001	En altitude flux d'Ouest-Nord-Ouest avec passage d'un petit Talweg.	Ouest. Entre 500m et 1500m, flux de Nord-ouest modéré à assez fort	Grand soleil	Les températures minimales sont de l'ordre de 20° sur la majeure partie de la région, à l'exception de la région aixoise où elles se situent autour de 15°. En journée elles atteignent 30 à 32°.	Le matin, vent faible de secteur Nord-Ouest, plus modéré, 5 à 7.5 m/s sur l'Ouest. Tout au long de la journée, il se maintiendra au secteur Nord-Ouest à l'exception de la région de Cassis où la brise débute très tôt. Vers 16h, la brise (dans les très basses couches uniquement) gagne la majeure partie du littoral de Fos à La Ciotat et pénètre dans l'intérieur sur la région d'Aubagne. vers 20h, la vitesse faiblit considérablement, et on observe un vent variable.

Tableau III.2 - Résumé de situation météorologique de la POI2a

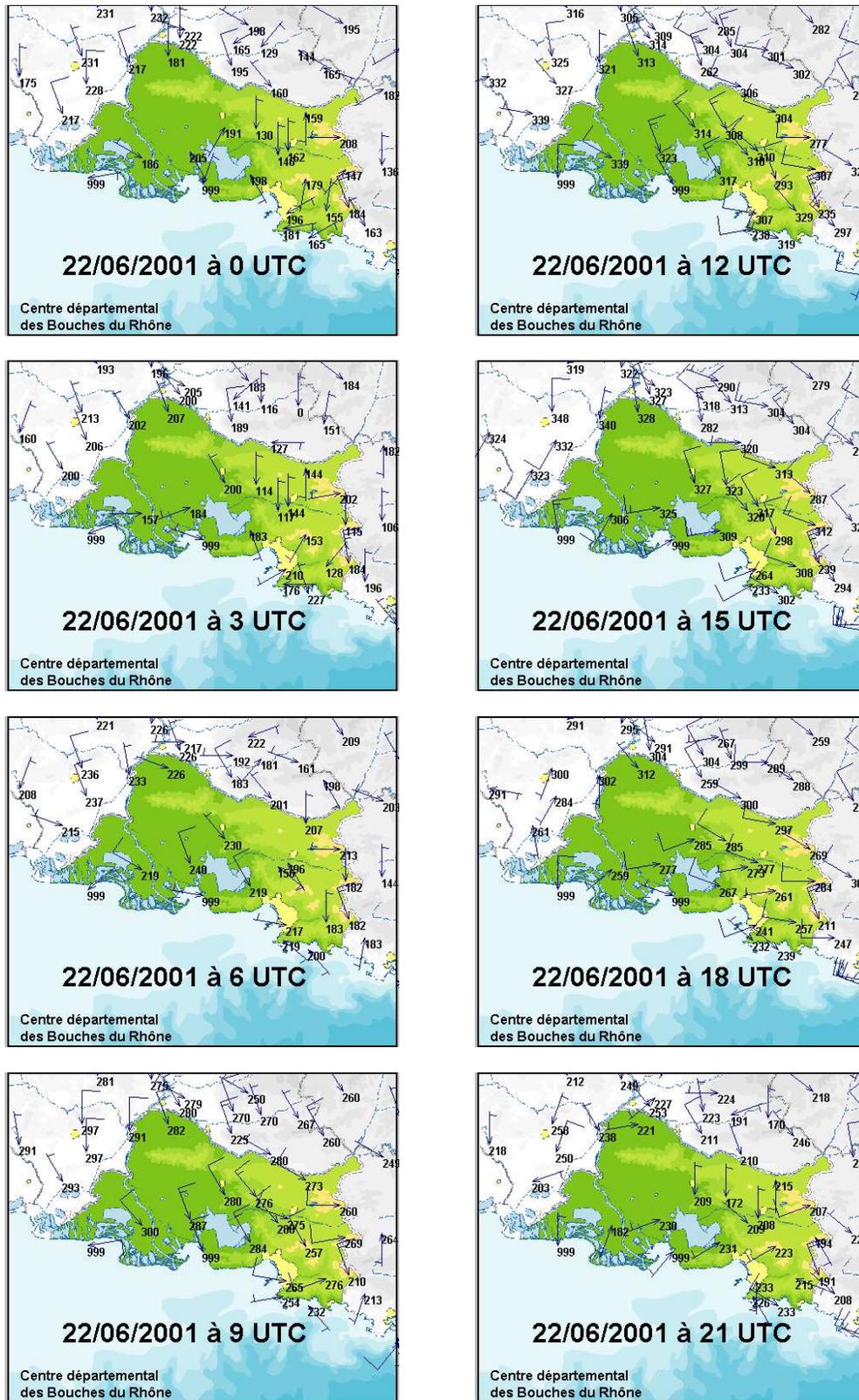


Figure III.2 - Situation météorologique locale du 22/06/01 (POI2a)

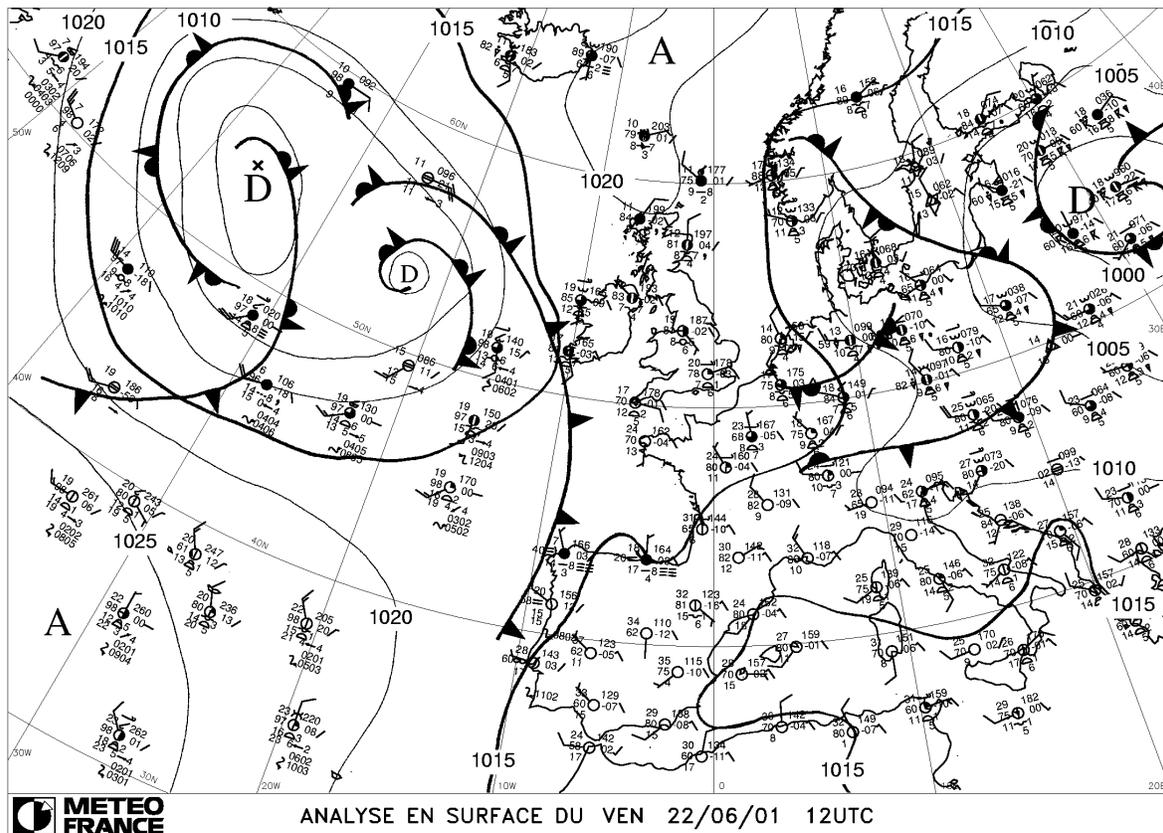


Figure III.3 - Situation synoptique du 22/06/01 (POI2a)

III.1.3 – la POI2b

La situation synoptique est présentée par la carte météorologique de surface dans la figure III.4. La carte montre un anticyclone sur le nord de l'Europe et une dépression au niveau des Pyrénées et sur l'Espagne. Bien que la POI2b soit la suite de la POI2a, elle est assez opposée à la POI2a d'un point de vue météorologique. La situation générale dans cette POI est une forte brise de mer qui est associée à un flux de sud (Figure III.5). Les caractéristiques de la POI2b sont résumées dans le tableau III.3.

Date	Situation en altitude	Situation en Surface	Couverture nuageuse	Températures	Vent
24/06/2001	En altitude belle dorsale axée suivant la ligne Maroc-Belgique, avec un flux modéré de secteur Nord-Ouest sur les régions méditerranéennes.	Au sol, conditions anticycloniques avec un champ de pression à 1020 hpa.	Ciel bien dégagé dès le matin	Le matin, les températures sont de l'ordre de 18°C sur l'Ouest du département et sur le littoral, et de 15°C à 16°C sur l'Est. Elles s'élèvent rapidement pour atteindre 28°C à 29°C en dépassant sur certains endroits à l'intérieur les 30°C.	Entre 500m et 1500m un petit flux de Nord-Ouest (5/7.5 m/s) persiste, puis il faiblit et passe à l'Ouest-Nord-Ouest. La brise de terre est établie au petit matin dans les basses couches. Vers 9h00 la brise de mer débute sur le littoral, puis s'étend rapidement dans l'intérieur, direction dominante sud-ouest, 5 m/s. A noter, la persistance d'un courant d'Est sur la région aixoise. Vers 18h, la brise s'estompe et vers 23h la brise de terre, faible s'installe.
25/06/2001	Belle dorsale axée du Maghreb à la mer du Nord avec malgré tout un peu d'humidité qui la contourne des Pyrénées au bassin méditerranéen occidental (présence d'altocumulus associés)	Cellule anticyclonique sur la mer du Nord se prolongeant faiblement vers le bassin méditerranéen. Cet état de fait induit un régime de vent faible ou temporairement modéré, régi par les brises. Les brumes formées dans les terres en fin de nuit migrent vers la mer (delta du Rhône) au profit des brises terrestres en matinée, puis persistent l'après-midi, entretenues par le contre courant de brise de mer. (quelques stratus également vers La Ciotat notamment).	Ciel peu nuageux par altocumulus	Les températures varient de 16 à 19° le matin. Elles s'élèvent rapidement pour atteindre 31°C à 34°C dans l'arrière pays et 26°C à 28°C sur le littoral.	Vent variable et faible de secteur Nord dominant le matin, s'orientant au secteur Sud par effet de brise dès 7h sur le littoral. A 12h, les brises de mer ont gagné l'intérieur à l'exception de la région située entre Marseille et Aix. A 15h, le flux de Sud s'est étendue en toute zone. Vers 19h, le flux s'affaiblit et devient variable. A 23h, on repasse en secteur Nord.

<p>26/06/2001</p>	<p>Dorsale mobile axée Maghreb Danemark se décalant vers l'Est. Cela induit une orientation progressive du flux d'altitude vers le Sud-Ouest sur notre région.</p>	<p>Faible gradient de pression générant un régime de brises</p>	<p>Quelques bancs d'altocumulus, plus rares en milieu de journée (axe dorsale), puis de nouveau en fin d'après-midi (face ouest de la dorsale)</p>	<p>De 16°C à 18°C le matin, les températures atteignent 28 à 30° sur le littoral et 31 à 34° dans l'intérieur</p>	<p>Le vent d'Est à Sud-Est, inférieur à 5m/s le matin laisse progressivement place aux brises de secteur Sud l'après-midi, surtout marquées sur la frange littorale et l'étang de Berre. La brise est de sud dans l'ouest de la zone (vallée du Rhône), sud-ouest plus à l'est</p>
-------------------	--	---	--	---	--

Tableau III.3 - Résumé de situation météorologique de la POI2b

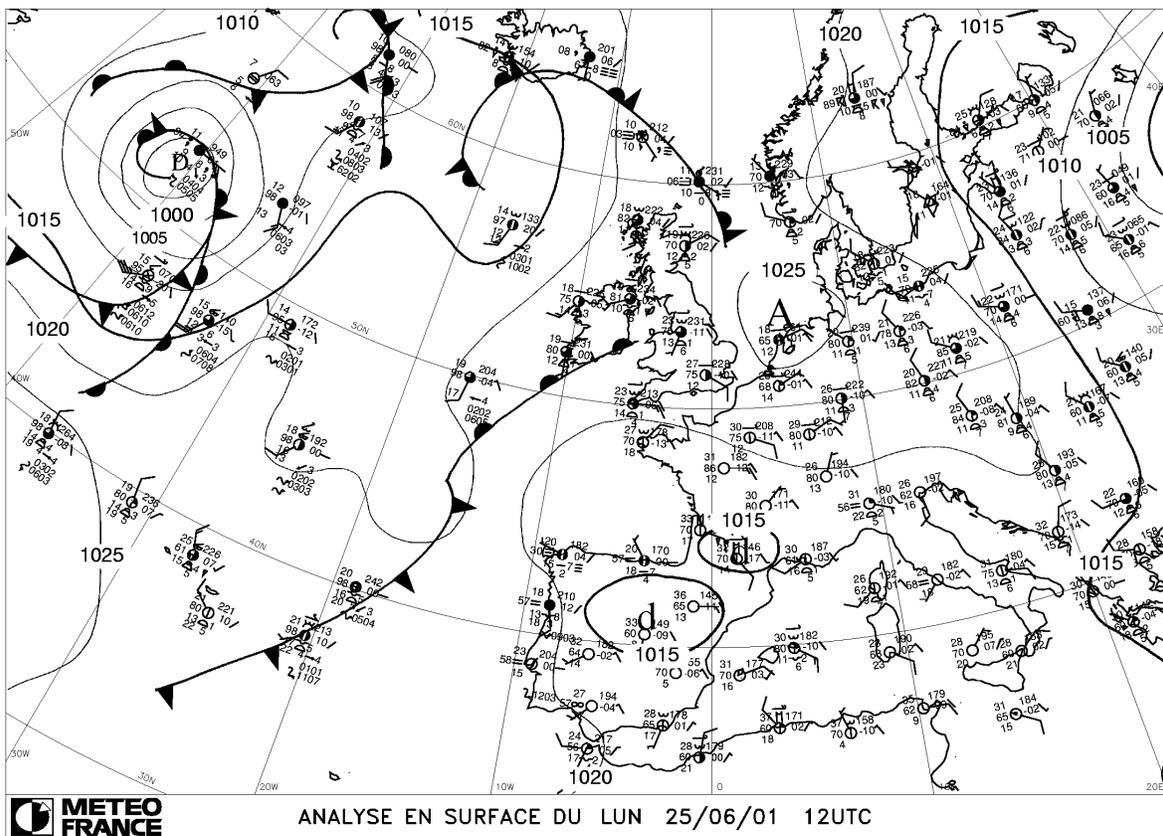


Figure III.4 - Situation synoptique du 25/06/01 (POI2b)

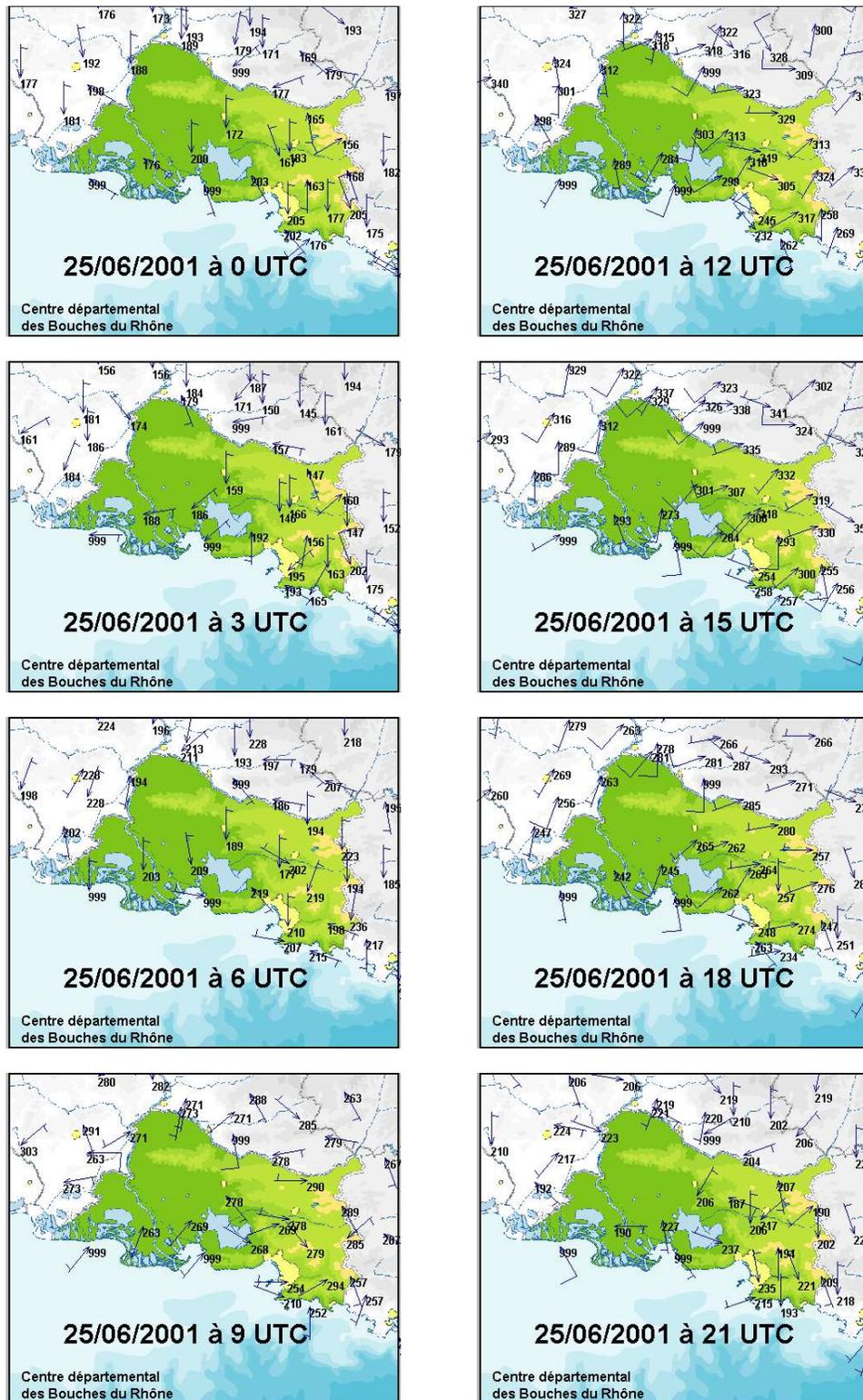


Figure III.5 - Situation météorologique locale du 25/06/01 (POI2b)

III.2 - Simulation Météorologique

Les champs 3D météorologiques sont simulés avec beaucoup d'attention afin d'avoir une représentation très réaliste pour pouvoir examiner dans un deuxième temps les champs chimiques. Plusieurs tests ont été évalués pour vérifier que tous les paramètres de surface soient bien adaptés au domaine ESCOMPTE et aussi pour mesurer l'importance de chacun de ces paramètres (voir chapitre II.3). Le profil d'humidité du sol doit être initialisé de manière non homogène. Il faut inclure une bonne définition dans les données de topographie représentant les sommets et les vallées avec précision, mais aussi pour la végétation, le type du sol et la température de l'eau de mer. Toutes les simulations ont démarré un jour avant chaque POI pour que le modèle se stabilise.

III.2.1 - Les comparaisons modèle – mesures

Ces simulations ont été effectuées avec un profil d'humidité non homogène, une topographie réaliste (option 3 – « enveloppe reflected »), une végétation qui prend en compte 4 classes par maille, les types de sol détaillés et les températures de l'eau de mer issues des données satellitales (MODIS). Pour valider les champs météorologiques simulés, ils ont été comparés avec différentes observations (stations de surface et mesures aéroportées). Le choix de chaque mesure soit à la surface ou en altitude a un objectif précis. L'étude principale étant la pollution des zones urbanisées et péri urbanisées, on s'intéresse plutôt à la surface, à la couche limite et à la basse troposphère libre. L'altitude maximale que nous avons examinée est 3500m. Les comparaisons sont effectuées en on-line ou off line suivant le cas.

III.2.1.1 - Stations de surface

Les comparaisons de surface ont été effectuées en off line en utilisant le logiciel Grab dans le module REVU (programme graphique de RAMS). Pour chaque station, les coordonnées géographiques (latitude, longitude et altitude) ont été prises en compte. En fonction de ces coordonnées, la valeur du paramètre désirée est interpolée pour chaque heure qui correspond à un fichier de sortie. Pour les champs thermodynamiques : température et humidité relative, l'altitude a été fixée à 2 m au-dessus du sol, comme ont été effectuées les mesures. Par contre, pour les champs dynamiques : vitesse du vent et direction du vent, l'altitude a été fixée à 10 m du sol. Parmi les nombreuses stations de mesures de la base de données ESCOMPTE, nous avons sélectionné certaines villes représentatives du domaine : les grandes villes et les zones industrielles. Toulon et Marseille au sud du domaine, sur le littoral ; Marignane, Aix-en-Provence, près de l'étang de Berre et des zones industrielles de Fos-sur-mer, et Avignon au nord de domaine. Dans ce type d'exercice, nous devons remarquer qu'une cohérence parfaite entre les mesures et les simulations ne peut pas exister surtout pour les champs dynamiques de vitesse et

direction du vent. Ces champs peuvent être toujours affectés par certains effets très locaux qui sont très difficiles à prendre en compte dans une modélisation. C'est peut être pour cette raison qu'on constate parfois que deux stations de mesure dans une même ville ont des écarts assez importants. Pour comparer les champs de surface, on utilise souvent les méthodes statistiques qui moyennent les paramètres de plusieurs stations (Cai et Steyn, 2000). Ici nous estimons que les résultats sont assez satisfaisants pour les présenter station par station. Pour chaque observation, nous calculons l'erreur c'est à dire la différence entre les mesures et la simulation. Pour chaque graphe, les observations sont présentées en couleur bleu foncé et les valeurs simulées en couleur rose.

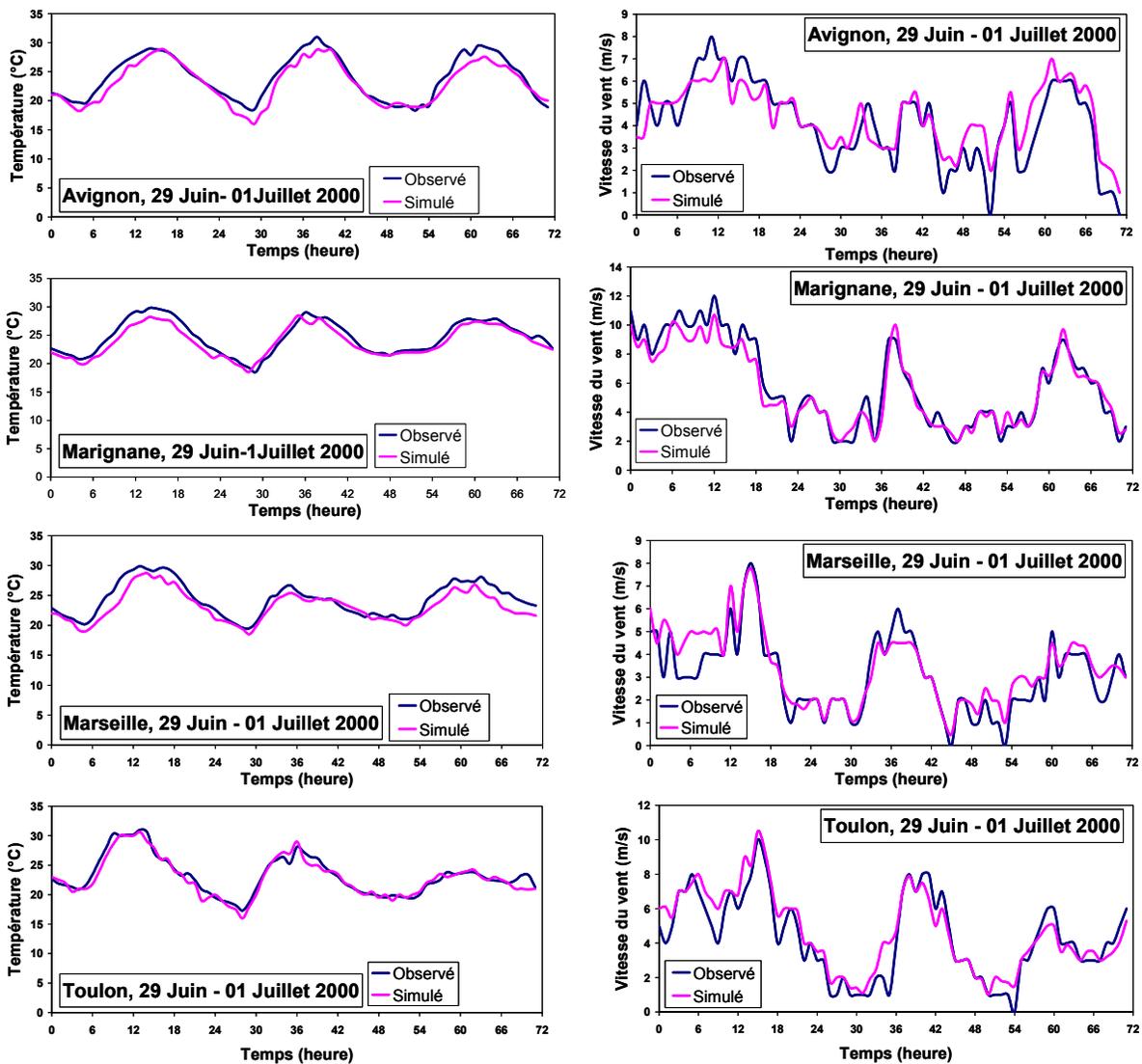


Figure III.6 - Les champs thermodynamiques et dynamiques à la surface pour la PO10

- **POI0**

La figure III.6 présente les comparaisons pour la POI0 (3jours) pour la température et la vitesse du vent en surface pour 4 stations. Nous avons une bonne cohérence entre les mesures et les simulations sur l'ensemble, plutôt mieux pour la température. Les faibles valeurs de vent (< 1m/s) ainsi que certaines valeurs maximales ne sont pas atteintes dans les valeurs calculées, mais les variations sont bien reproduites. Le Tableau III.4 montre un ensemble de données statistiques. Toutes les grandeurs présentées dans les deux premières lignes du tableau III-4 sont les valeurs moyennées pendant la POI0 (72 heures), pour chaque station.

Valeurs moyennées pendant la POI0		AVIGNON	MARIGNANE	MARSEILLE	TOULON
Vitesse du vent (m/s)	observée	4,14	5,89 **	3,10 *	4,32
	simulée	4,41	5,61 **	3,43 *	4,65
Différence instantanée entre valeur mesurée et simulée		0,72 **	0,58	0,56 *	0,66
Pourcentage d'erreur (valeur simulée par rapport à valeur mesurée)		24,20 **	10,77 *	21,46	23,95
Pourcentage d'erreur (moyenne simulée par rapport à moyenne mesurée)		6,51	4,76 *	10,63 **	7,68
Température (°C)	observée	24,01	24,66 **	24,32	23,20 *
	simulée	23,01	23,92 **	23,17	22,92 *
Différence instantanée entre valeur mesurée et simulée		1,16	0,92	1,24 **	0,67 *
Pourcentage d'erreur (valeur simulée par rapport à valeur mesurée)		4,81	3,67	4,97 **	2,88 *
Pourcentage d'erreur (moyenne simulée par rapport à moyenne mesurée)		4,19	2,99	4,75 **	1,22 *

Tableau III.4 - Statistiques des données météorologiques de surface pour la POI0

Dans la troisième ligne du tableau III-4, nous avons calculé la moyenne de la différence absolue instantanée entre les valeurs simulées et mesurées (une valeur zéro pour cette grandeur veut dire une tendance exacte de 100%). Dans la quatrième ligne, nous avons calculé la moyenne du pourcentage d'erreur (valeur simulée par rapport à valeur mesurée). Cette grandeur relativise la valeur précédente; elle illustre la marge d'erreur par rapport aux mesures. Et enfin nous avons calculé le pourcentage d'erreur sur les valeurs moyennées simulées et observées. Les valeurs

présentées avec une et deux étoiles sont les valeurs minimales et maximales pour chaque ligne respectivement. Bien que les taux d'erreur soient relativement faibles, on constate que les différences entre ces maxima et minima sont aussi petites. Cela montre que la qualité de la simulation est pratiquement homogène sur tout le domaine.

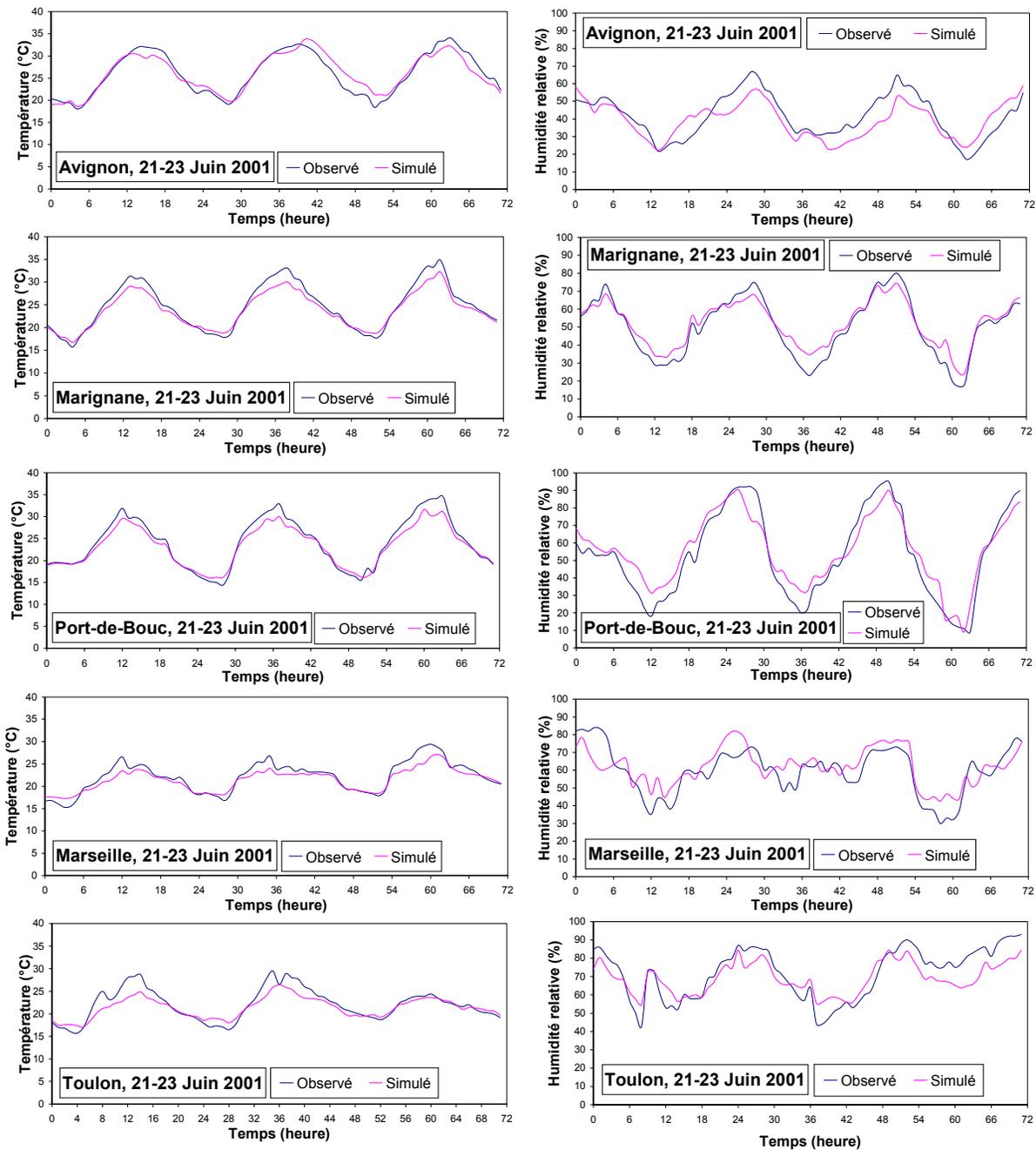


Figure III.7 - Les champs thermodynamiques à la surface pour la POI2a.

- **POI2a**

La figure III.2 présente la température et l'humidité relative et la figure III.3, la vitesse et la direction du vent, pour la POI2a et pour 5 stations de surface. Dans l'ensemble, les champs simulés ont la même tendance que les mesures. Les valeurs simulées de la température sont meilleures que celle de l'humidité.

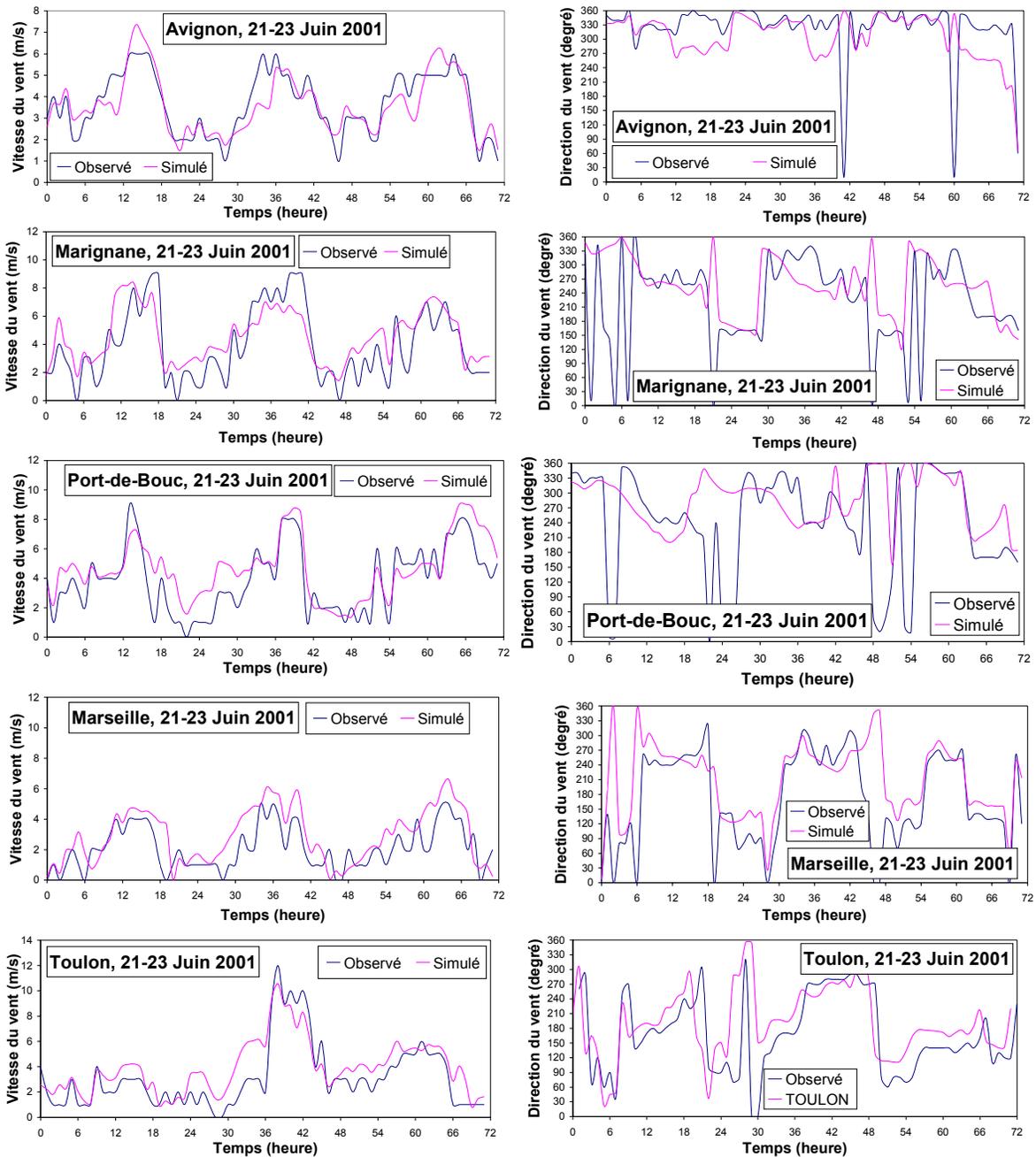


Figure III.8 - Les champs dynamiques à la surface pour la POI2a

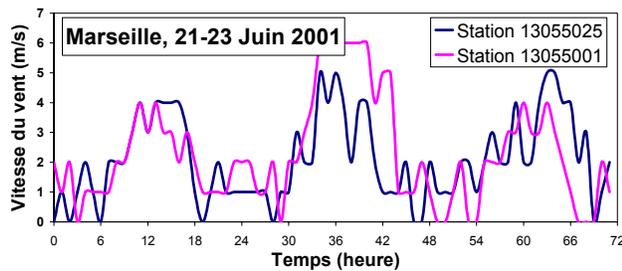


Figure III.9 - Comparaison de la vitesse du vent mesurée en deux stations différentes à Marseille.

Toutefois les maxima de température ne sont pas toujours retrouvés, alors que les minima le sont. Pour la température, l'écart maximum entre les mesures et la simulation est $4,33^{\circ}\text{C}$ qui correspond à Toulon à 12 h, le premier jour. Le tableau III.5 des données statistiques nous montre que les meilleurs résultats pour cette POI2a sont trouvés à Marignane pour la température et à Toulon pour l'humidité relative, alors que l'observation uniquement des graphes ne nous permet pas de le dire. Pour la direction du vent, les simulations et les observations ont aussi la même variation avec toutefois quelques écarts. Les grandes différences que nous observons dans la direction du vent ne sont pas toujours significatives, car par exemple à Avignon à 41h, la mesure est 10° et la simulation calcule 359° , donc cela fait une différence réelle de 11° .

Valeurs moyennées pour la POI2a		AVIGNON	MARIGNANE	PORT-DE-BOUC	MARSEILLE	TOULON
Direction du vent (degré)	observée	323,33 **	222,08	237,78	170,69	167,08 *
	simulée	305,79 **	257,16	284,43	210,79	192,14 *
Différence instantanée entre valeur mesurée et simulée		31,36 *	64,23	77,43 **	53,00	45,54
Pourcentage d'erreur (valeur simulée par rapport à valeur mesurée)		8,71 *	17,84	21,51 **	14,72	12,65
Pourcentage d'erreur (moyenne simulée par rapport à moyenne mesurée)		5,43 *	15,79	19,62	23,49 **	15,00
Vitesse du vent (m/s)	observée	3,67	3,92 **	3,89	2,10 *	3,14
	simulée	3,61	4,51	4,64 **	2,91 *	3,91
Différence instantanée entre valeur mesurée et simulée		0,60 *	1,37 **	1,15	1,34	1,16
Pourcentage d'erreur (valeur simulée par rapport à valeur mesurée)		18,87 *	51,06	55,09	55,60 **	59,02
Pourcentage d'erreur (moyenne simulée par rapport à moyenne mesurée)		1,67 *	15,11	19,19	38,57 **	24,62

Température (°C)	observée	26,02 **	24,63	24,02	22,11	22,02 *
	simulée	26,07 **	23,80	23,21	21,42	21,35 *
Différence instantanée entre valeur mesurée et simulée		1,25 **	1,14	1,15	1,09 *	1,25
Pourcentage d'erreur (valeur simulée par rapport à valeur mesurée)		4,91	4,29 *	4,46	4,76	5,40 **
Pourcentage d'erreur (moyenne simulée par rapport à moyenne mesurée)		0,20 *	3,34	3,38 **	3,14	3,04
Humidité relative (%)	observée	41,65 *	50,00	53,03	59,68	71,82 **
	simulée	39,28 *	52,11	55,71	62,03	69,26 **
Différence instantanée entre valeur mesurée et simulée		6,76	4,30 *	7,08	7,31 **	6,80
Pourcentage d'erreur (valeur simulée par rapport à valeur mesurée)		17,22	11,70	20,16 **	13,39	9,75 *
Pourcentage d'erreur (moyenne simulée par rapport à moyenne mesurée)		5,70 **	4,23	5,06	3,94	3,56 *

Tableau III.5 - Statistique des données météorologiques de surface pour la POI2a

Le tableau III.5 montre que c'est à Marseille que nous avons le maximum de pourcentage d'erreur et à Avignon le minimum. Les valeurs élevées dans les tableaux III.4 et III.5 ne sont pas forcément un signe important d'erreur (par exemple un erreur de 0,5 m/s où la mesure est 0,25m/s et la valeur simulée est 0,75 m/s donne un pourcentage d'erreur de 200%). Pour mieux expliquer cela, on présente sur la figure III.9, les deux mesures effectuées à Marseille station 13055001 Marseille-OBS et 13055025 Marseille où l'on observe une différence instantanée de 55,16 %. Nous notons, que les résultats de simulation sont relativement meilleurs pour les champs thermodynamiques.

• POI2b

Les champs simulés et observés à la surface pour la POI2b sont présentés dans les figures III.10 et III.11. Le tableau III.6 présente les données statistiques pour cette POI2b. Les valeurs de la température sont aussi bien simulées que pour la POI2a, par contre l'humidité relative et la vitesse du vent sont mieux restituées pour la POI2b que pour la POI2a.

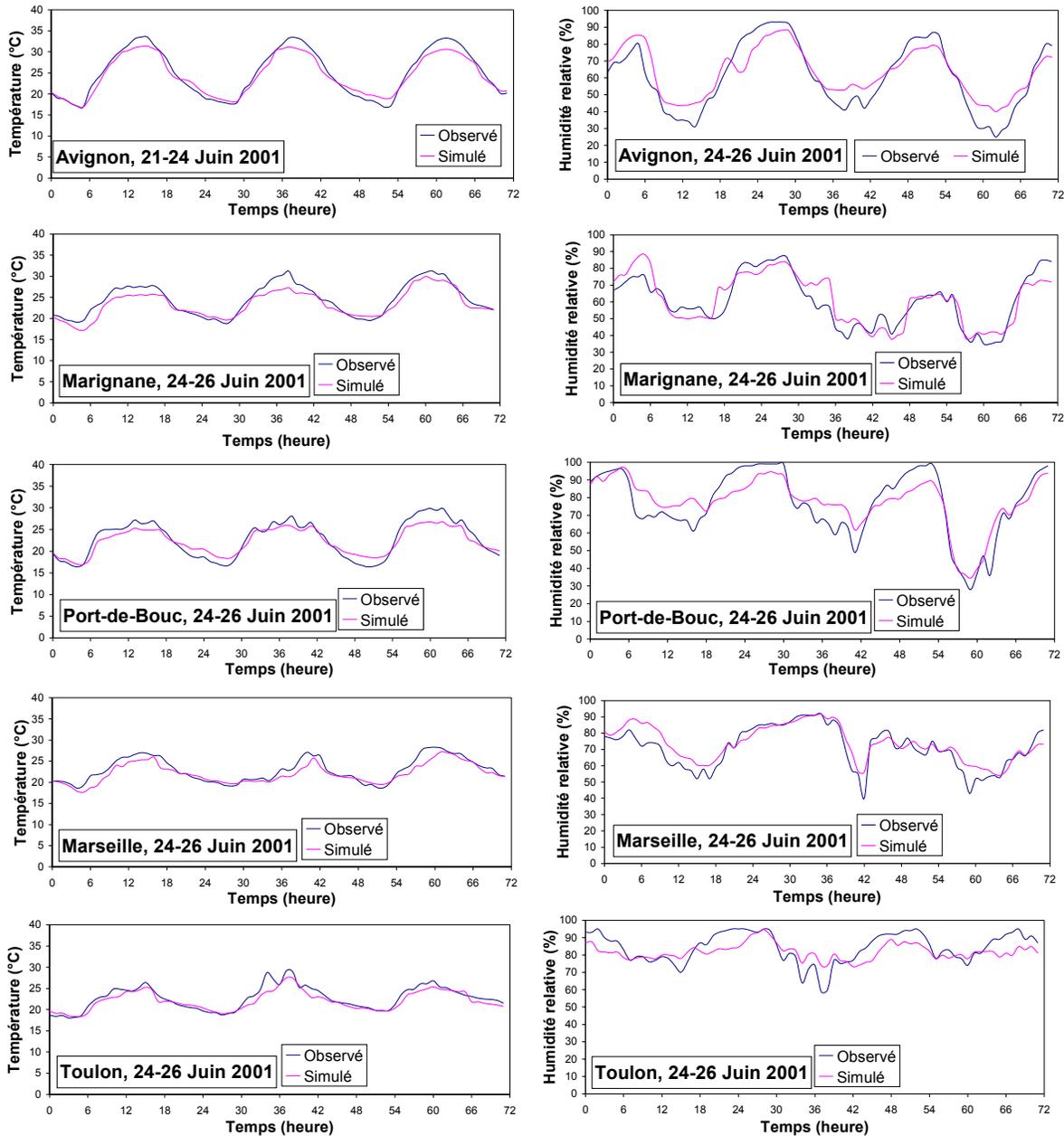


Figure III.10 - Les champs thermodynamique à la surface en POI2b

On note que le flux synoptique n'est pas du tout le même, puisque pour la POI2b nous avons un flux de sud dominant alors que c'est l'inverse pour la POI2a. Nous constatons que pour tous les champs de température et d'humidité les maxima et les minima sont aux mêmes endroits (Avignon et Toulon), par contre il n'y a pas de similitude pour la vitesse et la direction du vent.

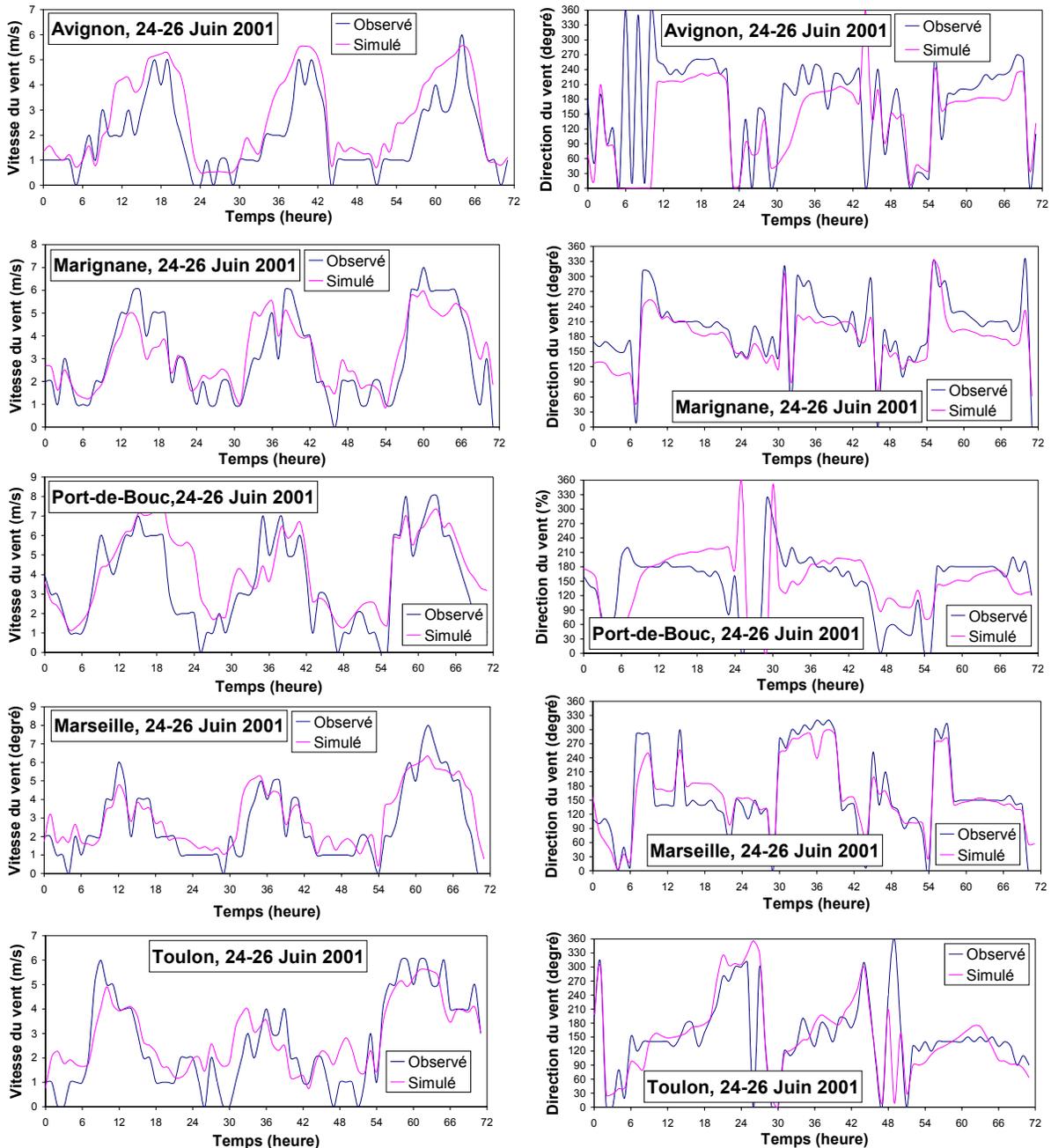


Figure III.11 - Les champs dynamiques à la surface pour la POI2b

Valeurs moyennées pour la POI2b		AVIGNON	MARIGNANE	PORT-DE-BOUC	MARSEILLE	TOULON
Direction du vent (degré)	observée	171,39	197,64 **	146,53 *	158,33	151,39
	simulée	141,27 *	175,49 **	152,46	160,13	153,27
Différence instantanée entre valeur mesurée et simulée		51,97 **	30,35	47,48	26,01 *	31,15
Pourcentage d'erreur (valeur simulée par rapport à valeur mesurée)		14,43 **	8,43	13,19	7,23 *	8,65
Pourcentage d'erreur (moyenne simulée par rapport à moyenne mesurée)		17,57 **	11,21	4,05	1,13 *	1,25
Vitesse du vent (m/s)	observée	1,94 *	3,04	3,61 **	2,65	2,61
	simulée	2,70	3,21	4,23 **	3,04	2,85 *
Différence instantanée entre valeur mesurée et simulée		0,86 **	0,77 *	1,03	0,79	0,80
Pourcentage d'erreur (valeur simulée par rapport à valeur mesurée)		39,84 **	31,21 *	37,98	37,80	35,00
Pourcentage d'erreur (moyenne simulée par rapport à moyenne mesurée)		39,17 **	5,64 *	17,18	14,56	9,06
Température (°C)	observée	24,97 **	24,44	22,68 *	22,87	22,71
	simulée	24,39 **	23,41	22,30	22,07	22,08
Différence instantanée entre valeur mesurée et simulée		1,16	1,28	1,34 **	1,02	0,86 *
Pourcentage d'erreur (valeur simulée par rapport à valeur mesurée)		4,55	5,07	5,99 **	4,30	3,64 *
Pourcentage d'erreur (moyenne simulée par rapport à moyenne mesurée)		2,32	4,21 **	1,69 *	3,52	2,77
Humidité relative (%)	observée	60,72	60,71 *	77,08	71,07	84,37 **
	simulée	63,43	61,60 *	77,80	73,69	81,83 **
Différence instantanée entre valeur mesurée et simulée		7,36 **	5,70	7,01	4,63 *	5,55
Pourcentage d'erreur (valeur simulée par rapport à valeur mesurée)		14,89 **	9,88	10,08	7,33	6,65 *
Pourcentage d'erreur (moyenne simulée par rapport à moyenne mesurée)		4,47 **	1,46	0,93 *	3,69	3,01

Tableau III.6 - Statistique des données météorologiques de surface pour la POI2b

III.2.1.2 Comparaisons avec les mesures

- **Radiosondages**

Martigues, situé au bord de l'étang de Berre, est un site industriel. A cet endroit, source d'émissions, la vérification des champs dynamiques est cruciale.

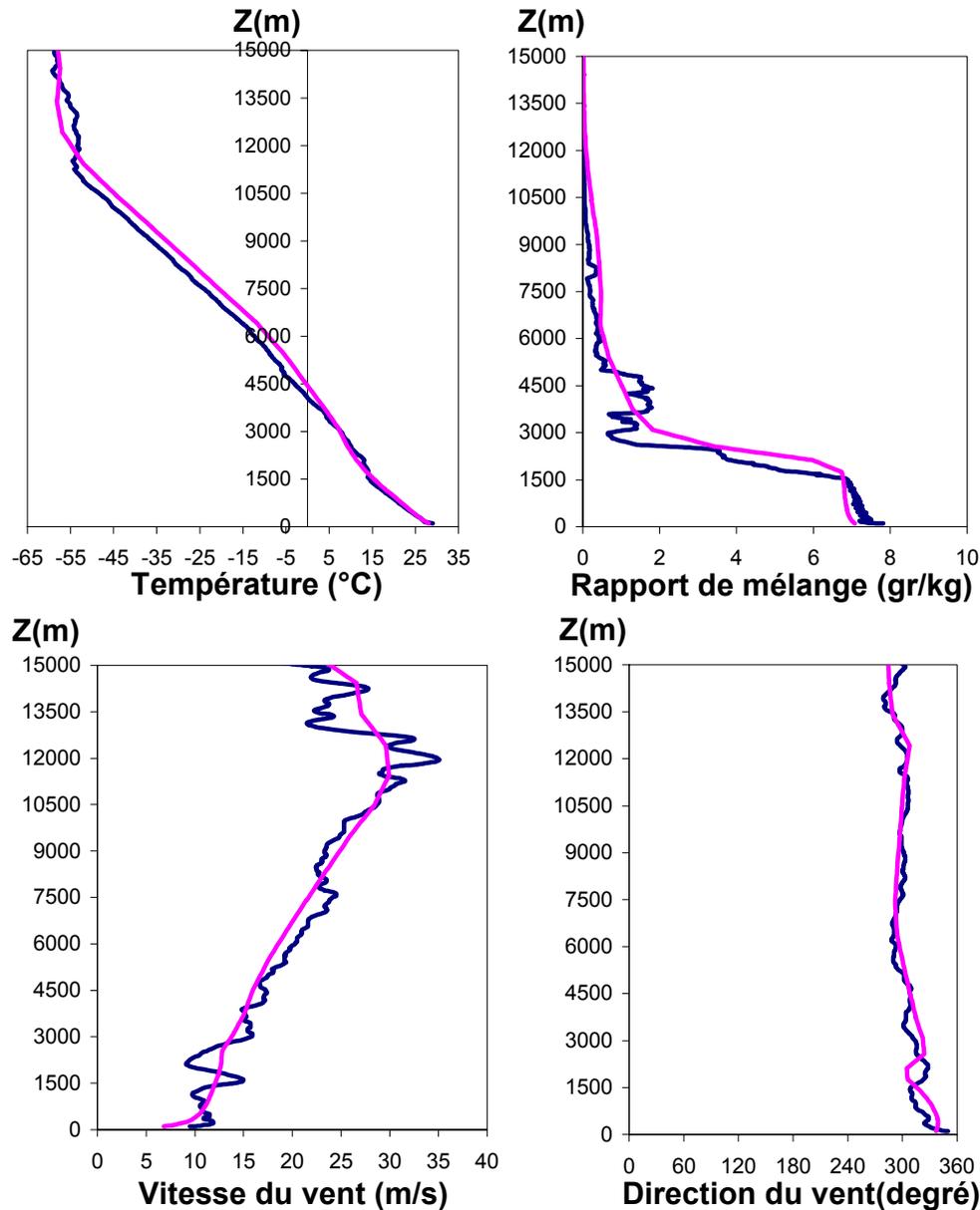


Figure III.12 - Profil de température, du rapport de mélange, de la vitesse et de la direction du vent pour la POI0, Martigues, le 29 juin 2000 à 16h07TU.

La figure III.12 présente les comparaisons entre les mesures de radiosondage effectuées à Martigues le 29 juin 2000 (POI0) à 16h07. La température dans la couche limite est bien restituée, en altitude à partir de 3500m, le modèle a une surestimation de 1 à 2°C par rapport aux mesures. A cette altitude, cette surestimation est essentiellement due à l'initialisation et aux forçages des champs ECMWF. Pour le rapport de mélange sur cette figure III.12, on note que la valeur au sol est un peu faible, dans la couche limite, nous avons une différence entre les valeurs simulées et mesurées de moins 1 g/kg; ce qui correspond à un intervalle d'erreur d'environ 10% par rapport aux champs mesurés. Les masses d'air humides au-dessous de 1500m et les très sèches au-dessus de 3000m sont bien restituées. Pour la vitesse et la direction du vent, un bon accord existe entre les mesures et la simulation, bien que le modèle ne retrouve pas le cisaillement de vent entre 1500m et 3000m, malgré les nombreux niveaux verticaux inclus dans la modélisation, soit 15 niveaux en dessous de 1500m.

- **Sodar**

Les profils verticaux et instantanés obtenus à partir des mesures Sodar sont jugés intéressants pour vérifier l'évolution de la restitution instantanée du modèle dans les très basses couches (<800m). La figure III.13.a présente les profils verticaux de la vitesse horizontale du vent mesuré à Istres le 21 juin 2001 (POI2a) et la figure III.13.b présente le même profil avec les valeurs simulées. Les endroits non colorés dans la figure III.13.a, correspondent à des moments où il n'y a pas eu de mesures. Les mesures présentent 2 pics de vitesse, le premier aux alentours de 2-3 heures du matin entre 200 et 300 m d'altitude, avec des valeurs qui atteignent 20m/s, et un deuxième aux alentours de 16h entre 200 et 400 m qui atteignent toujours 20m/s. Le modèle retrouve ces deux pics aux mêmes endroits et aux mêmes moments, avec cependant une sous-estimation (16 m/s). Les faibles valeurs mesurées par le Sodar près du sol (< 2m/s) ne sont pas toujours retrouvées par le modèle, par exemple vers 5H du matin.

- **Lidar**

Les mesures obtenues à partir du Lidar permettent de vérifier les valeurs de l'humidité du sol à la troposphère libre. La figure III.14 présente la comparaison entre les mesures du rapport du mélange et les simulations à Aix-les-Mille le 26 juin à 01HTU (POI2b). A cette heure de la nuit, nous avons de nombreuses stratifications entre le sol et 1200m.

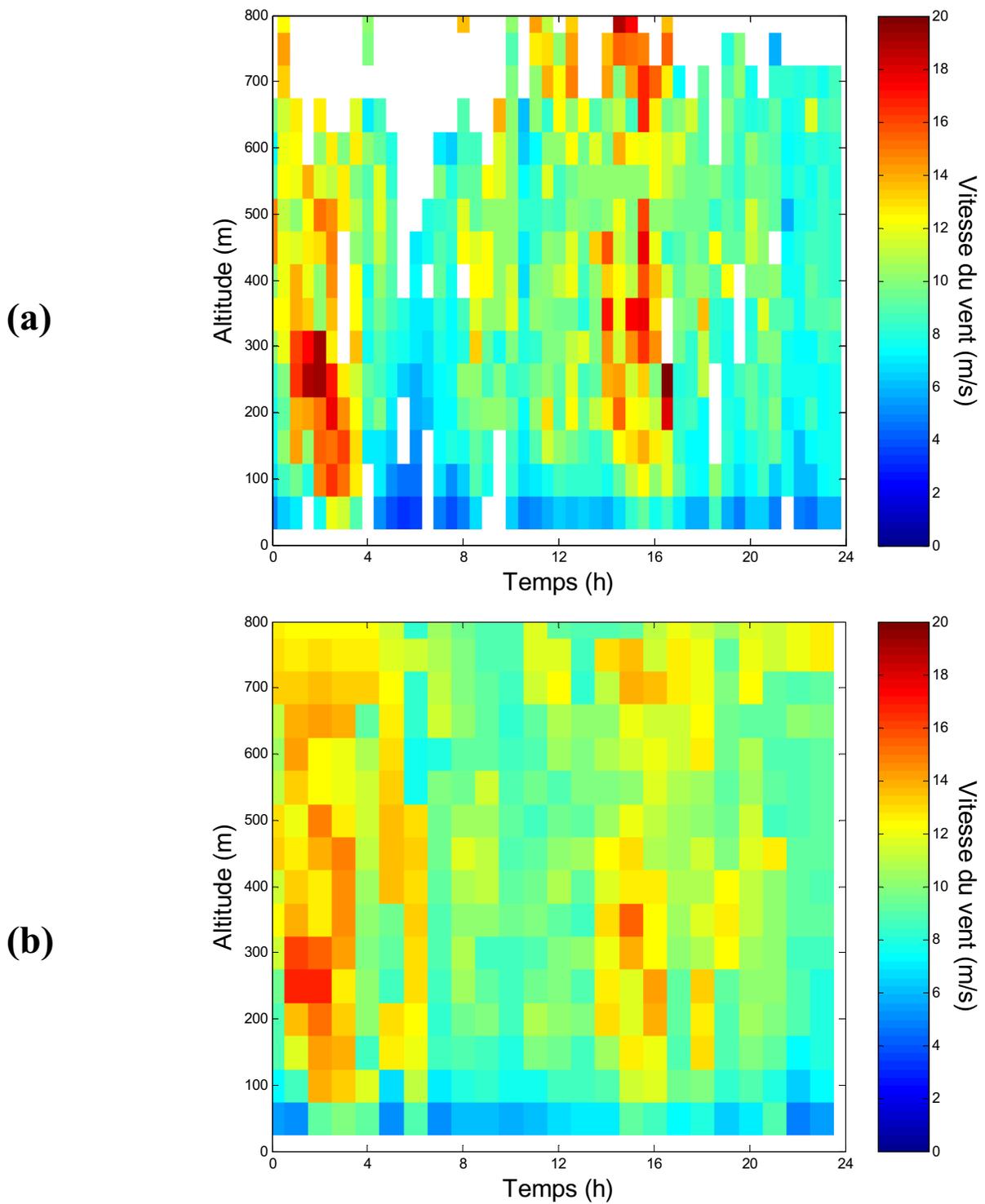
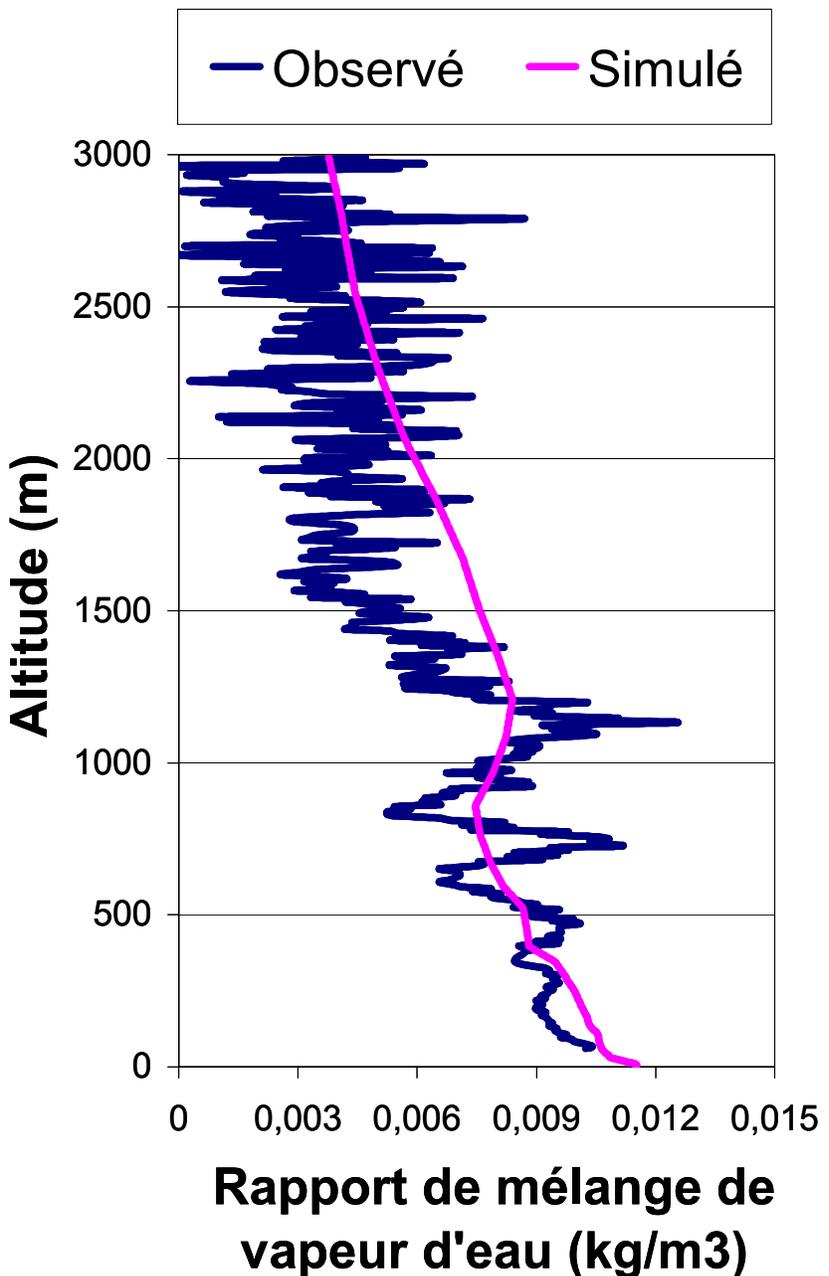
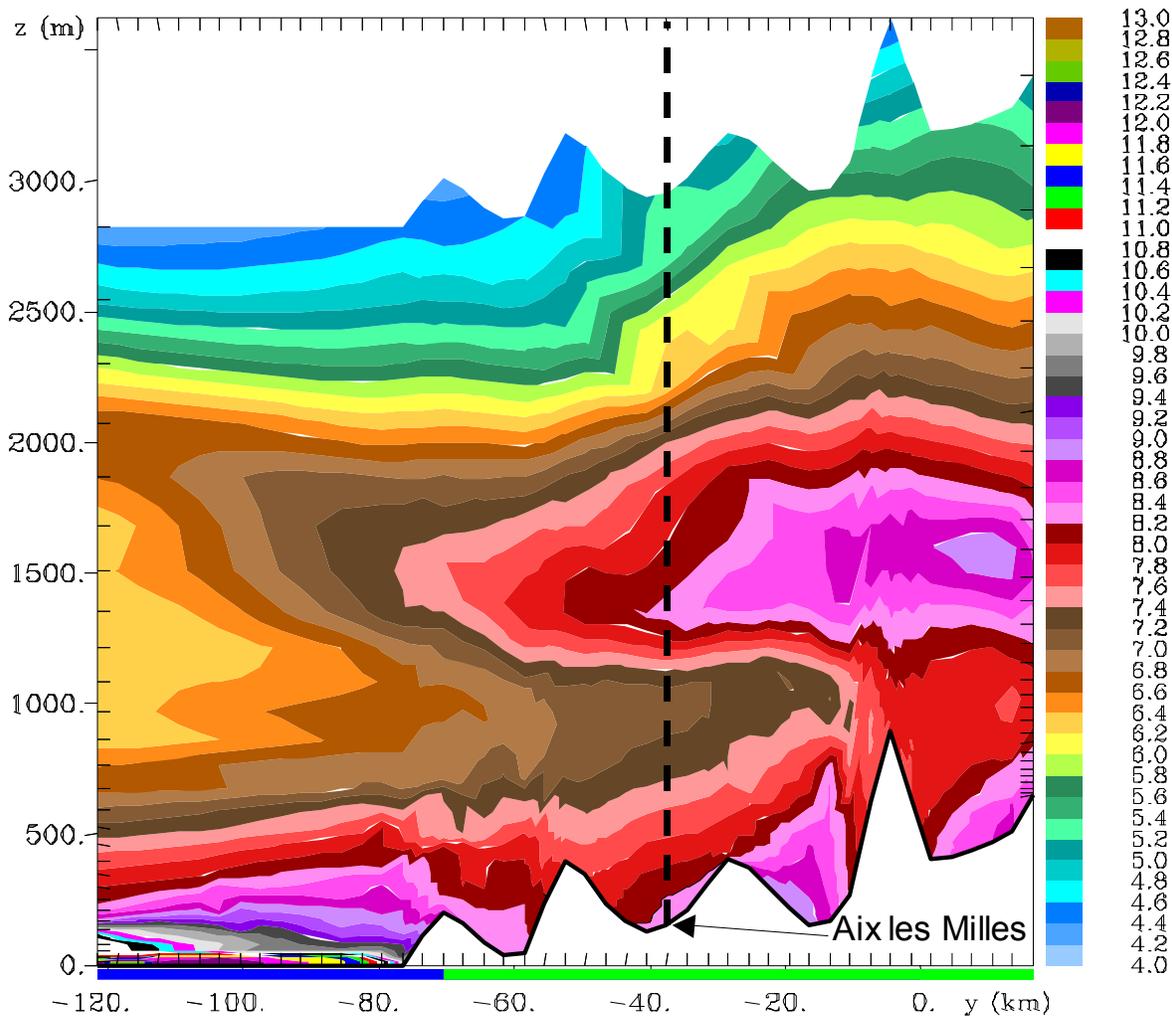


Figure III.13 - Profil vertical de vitesse horizontale du vent dans les basses couches à Istres le 21 juin 2001 (POI2a) : (a) Mesuré par le Sodar, (b) Simulé.

Le modèle linéarise le profil en dessous de 800m. On restitue très faiblement un minimum à 800m et un maximum à 1200m dont les valeurs sont plus fortes/ faibles (respectivement) que les mesures. La Figure III.15 montre une coupe méridienne passant par Aix-les-Milles à 01HTU. Le trait en pointillé représente le profil montré dans la figure III.14 Cette figure montre que le modèle restitue des zones stratifiées situées en amont du domaine.

Figure III.14 - Comparaison des valeurs observées et mesurées par le LIDAR du rapport de mélange à Aix-les-Milles, le 26 juin à 01HTU (POI2b)





ESCOMPTE		Grid 2					
x =	11. km	2001-06-26-0100.00 UTC		min	max	inc	lab*
contours	vapor mix ratio (g/kg)	4.231	12.61	0.2000	1e 0		

Figure III.15 - Coupe méridienne du rapport de mélange (g/kg) passant par Aix les Milles, le 26 juin à 01HTU (POI2b)

- **Mesures aéroportées**

Les mesures aéroportées permettent une bonne validation car elles représentent une importante couverture spatiale (horizontale et verticale) sur une grande partie du domaine. Ces comparaisons sont effectuées en on-line, c'est-à-dire qu'à chaque instant observé, on a la valeur modélisé au même endroit.

POI0

La figure III.16 présente les comparaisons entre les mesures de l'avion AZTEC, lors du vol du 30 Juin 2000 à partir de 13.30HTU, et les valeurs simulées, pour la température et la vitesse du vent. La température près de la surface (décollage et atterrissage) est en parfait accord et dans la couche limite une petite sous estimation apparaît.

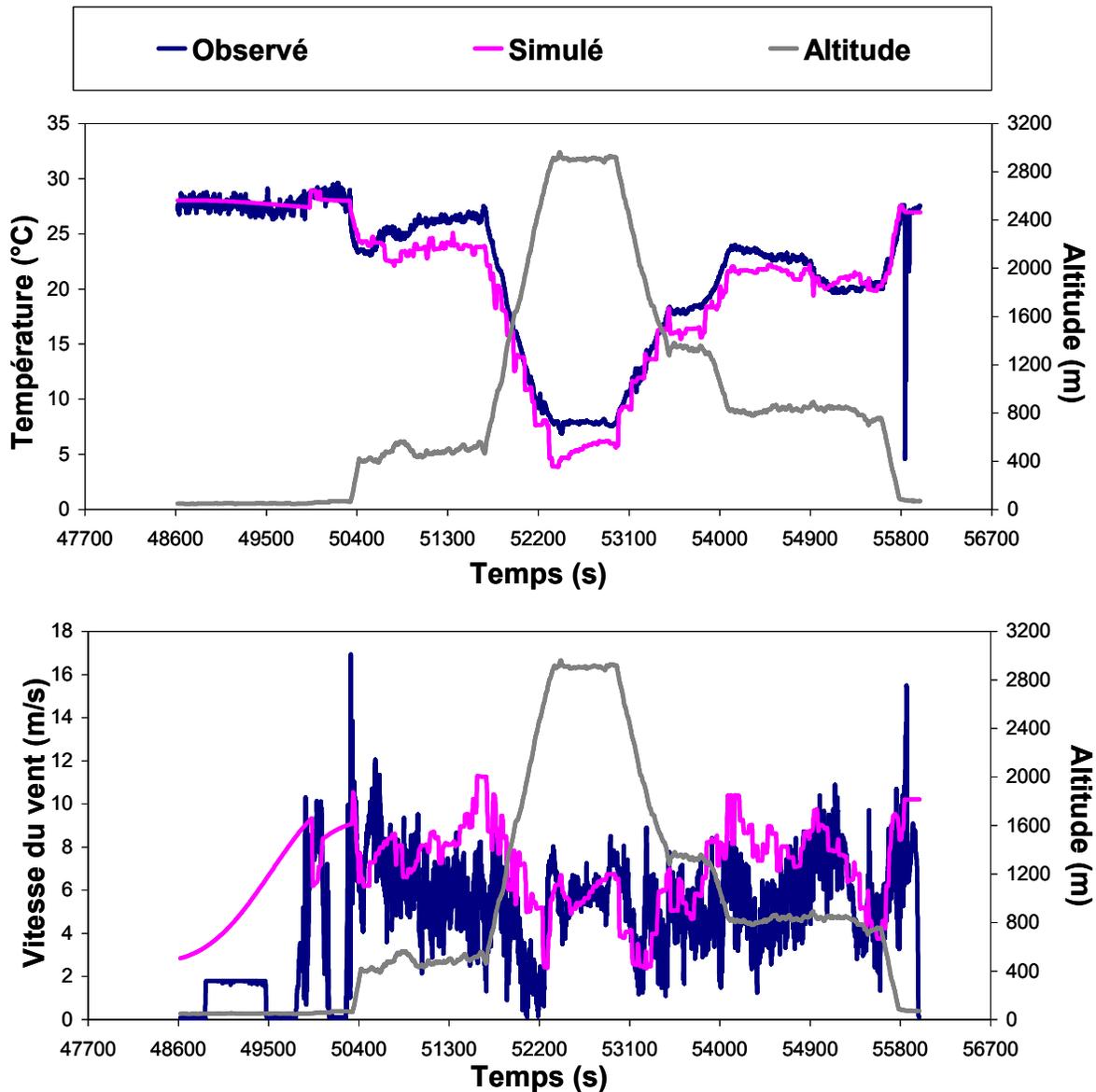


Figure III.16 - Comparaison entre les mesures de l'avion AZTEC lors du vol du 30 Juin 2000 et les valeurs simulées, pour la température et la vitesse du vent (POI0).

Pour la vitesse du vent, il y a quelques différences dans la couche limite (une sur estimation), alors qu'en troposphère libre, les valeurs sont bien simulées. Toutefois, les variations sont reproduites. La figure III.17 présente les comparaisons entre les mesures de l'avion ARAT, pour le vol du 01 Juillet 2000 à partir de 10HTU, et les valeurs simulées pour le rapport de mélange et la direction du vent. Pour le rapport de mélange, la différence entre les valeurs mesurées et simulées est inférieure à 2 g/kg sur deux tiers du vol où la moyenne de l'ensemble présente une valeur d'environ 12 g/kg.

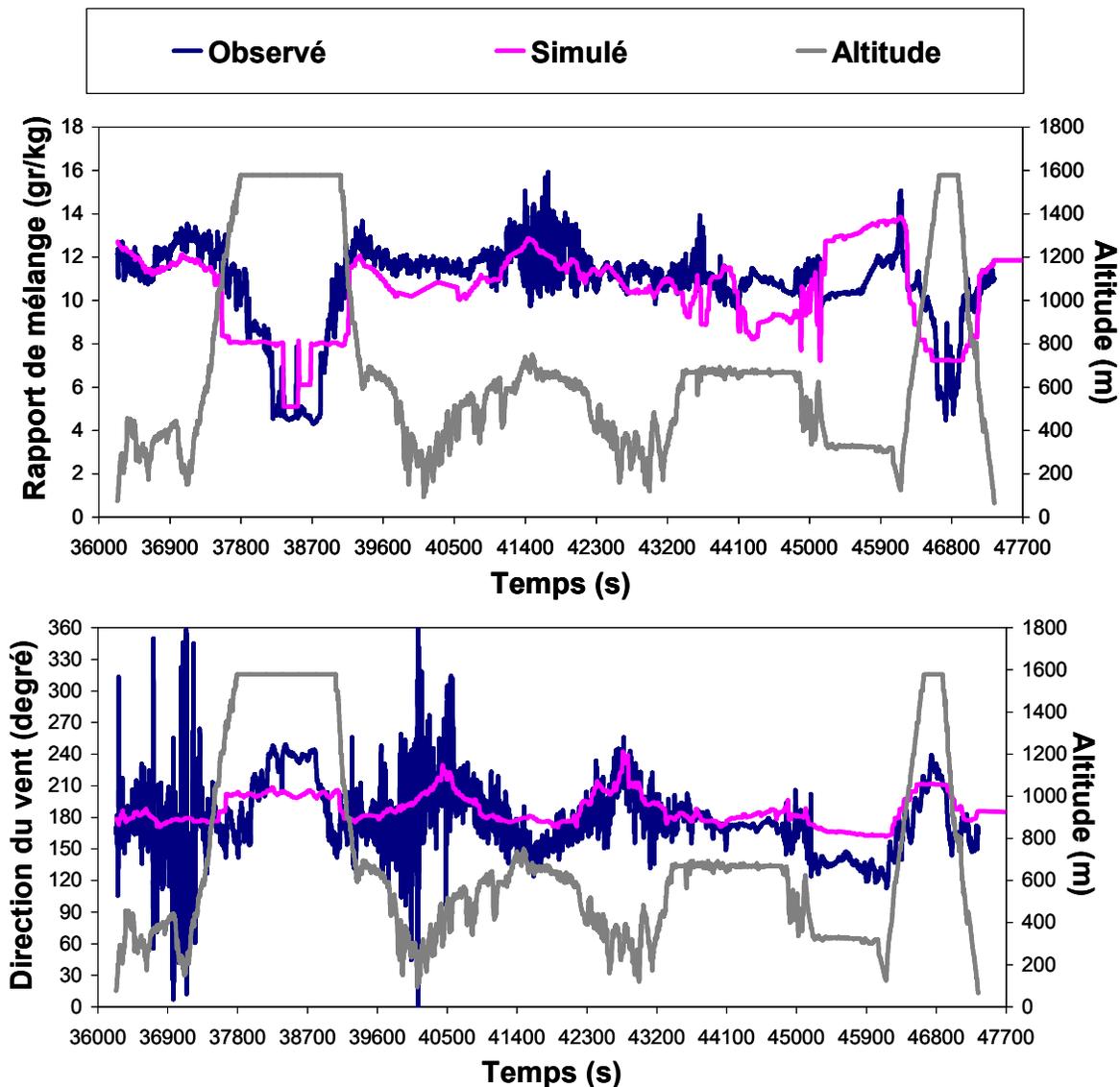


Figure III.17 - Comparaison entre les mesures de l'avion ARAT pour le vol du 01 Juillet 2000 et les valeurs simulées, pour le rapport de mélange et la direction du vent (POI0).

A 44100s une sous estimation et puis une sur estimation qui peut être le passage d'une petite cellule sèche et ensuite de l'air plus humide qui n'est pas restituée par le modèle. Pour la direction du vent, la tendance est bien représentée entre mesure et modèle. Sur l'ensemble du vol, sauf en troposphère libre entre 45000-45900s, la différence entre les valeurs mesurées et simulées pour la direction du vent ne dépasse pas à 30°.

POI2a

La figure III.18 présente les comparaisons entre les mesures de l'avion DORNIER, lors du vol du 22 Juin 2001 à partir de 11HTU, et les valeurs simulées.

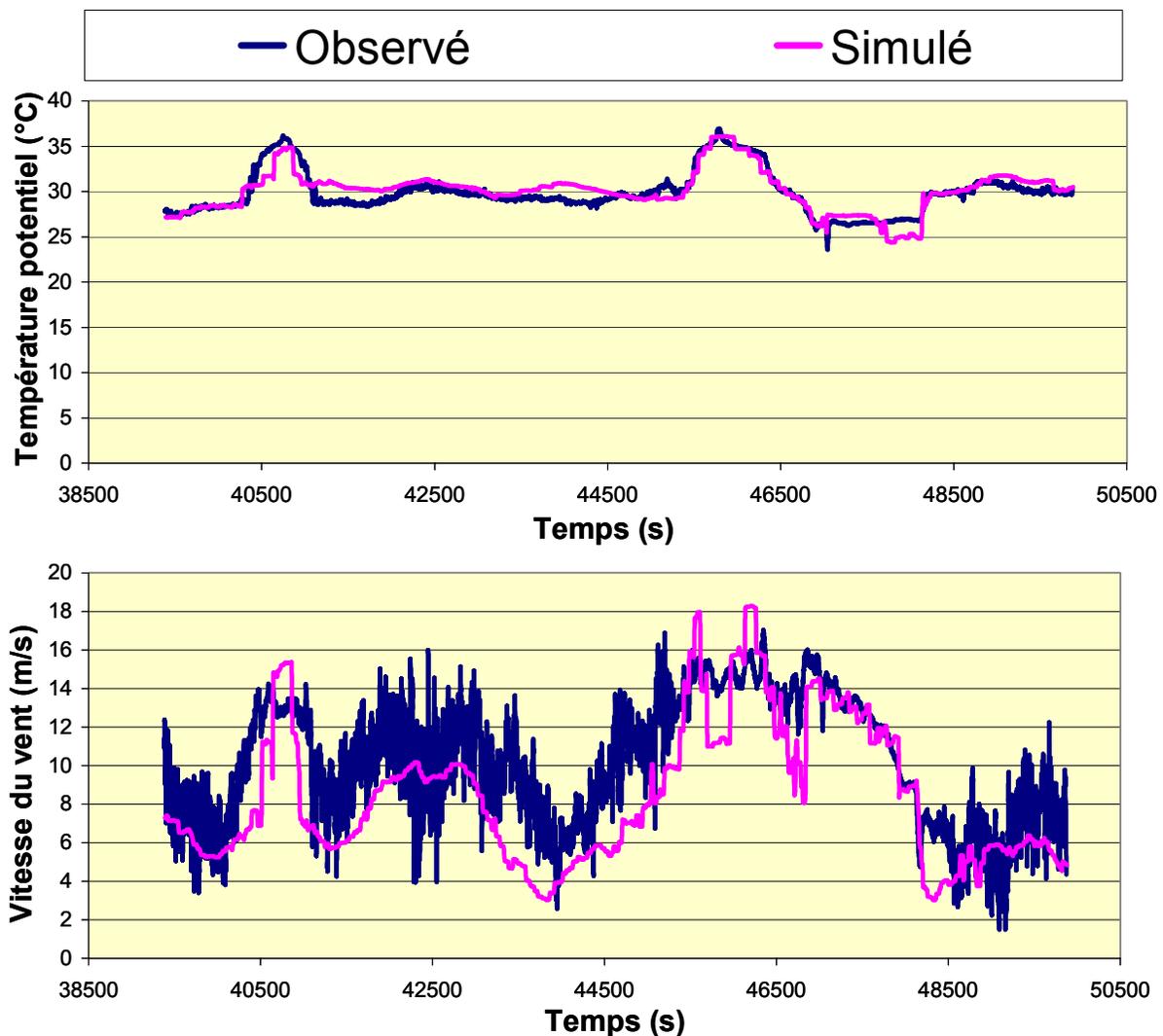


Figure III.18 - Comparaison entre les mesures de l'avion DORNIER, pour le vol du 22 Juin 2001, et les valeurs simulées pour la température potentielle et la vitesse du vent (POI2a).

Un champ thermodynamique comme la température potentielle et un champ dynamique (vitesse du vent) ont été choisis pour examiner les comparaisons pour la POI2a. Les comparaisons pour les deux champs sont assez bonnes sur l'ensemble du vol. L'intervalle d'erreur ne dépasse pas 2% pour la température et environ 10% pour la vitesse du vent. Les champs de température sont mieux retrouvés que ceux de la vitesse du vent.

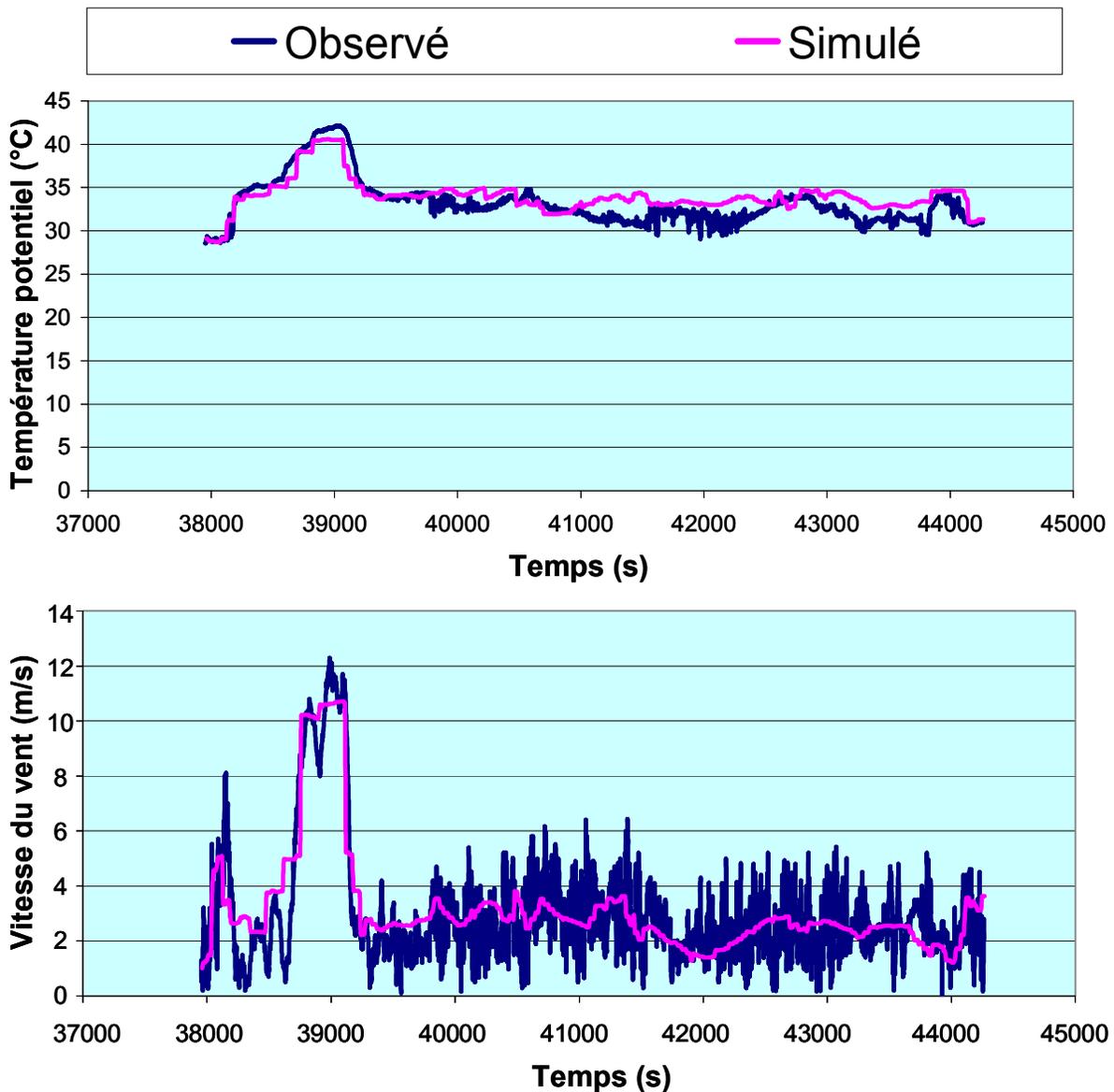


Figure III.19 - Comparaison entre les mesures de l'avion ARAT, pour le vol du 25 Juin 2001, et les valeurs simulées pour la température potentielle et la vitesse du vent (POI2b).

POI2b

La figure III.19 présente les comparaisons entre les mesures de l'avion ARAT, pour le vol du 25 Juin 2001 à partir de 10.30HTU. Les champs thermodynamiques (la température potentielle) et dynamiques (la vitesse du vent) montrent que la restitution est dans ce cas très bonne. L'intervalle d'erreur ne dépasse pas 2% pour la température et environ 6% pour la vitesse du vent. Nous retrouvons comme pour les stations de surface une meilleure restitution des champs sur la POI2b que sur la POI2a.

III.2.3 Conclusion

Notre centre d'intérêt, dans cette étude de pollution urbaine et péri urbaine, se trouve plutôt dans la couche limite et en dessous de 3000m. Nous avons constaté à plusieurs reprises que dans la troposphère libre (2000-3000m), les champs simulés présentent une sous estimation de quelques degrés pour la température, quelques différences pour la vitesse du vent ou l'humidité, comme on peut le voir dans les comparaisons pour le radiosondage et les mesures aéroportées. Par contre, nous avons de bons accords, mais aussi parfois quelques différences dans les champs météorologiques pour la couche limite. Les mesures très fines du sodar, par exemple, nous montrent que les très fortes et très faibles valeurs du vent ne sont pas bien restituées. En général, les champs météorologiques de la POI2b semblent mieux simulés que ceux de la POI2a. Enfin, le point faible du modèle est la restitution des couches stratifiées dans la couche limite. Cette difficulté justifie de prendre un grand nombre de niveaux verticaux.

III.3 -Interprétation des situations météorologiques, basées sur les simulations validées

Dans cette section nous étudions plus précisément les conditions météorologiques des trois POIs étudiées en examinant les circulations dynamiques et leurs conséquences sur la redistribution des polluants, après avoir présenté la validation de nos simulations dans le paragraphe précédent.

III.3.1 – Les circulations les plus fréquentes

Comme on l'a vu dans le chapitre I, le domaine d'ESCOMPTE est dominé par 2 circulations principales : la circulation de la brise de mer et le Mistral.

III.3.2 – Mistral

Il s'agit d'un vent dans la basse atmosphère, de direction Nord-ouest (NW) à Nord (N), frais ou froid, souvent violent, qui concerne le Nord du bassin de la Méditerranée occidentale. On l'appelle tramontane dans le Sud-ouest de la France, mistral en Provence et sur la Côte d'Azur, mais c'est le même vent qui peut souffler jusqu'au sud des Baléares et atteindre le nord de la Tunisie. Toutefois, on se méfiera des appellations locales : à Nice, par exemple, tout vent froid est qualifié de mistral, même s'il vient du sud-ouest (SW). En Corse, où il souffle plutôt de l'Ouest (W), seule sa température permet de le distinguer du Libeccio, qui est un vent fort ou violent d'W à SW. A Marseille, on entend parfois appeler mistral une simple brise thermique de beau temps (de secteur ouest) qui a pris quelque ampleur. L'apparition du mistral (et de la Tramontane) est liée à l'arrivée d'un flux maritime frais d'origine atlantique, ou d'un flux froid continental, qui parvient en Méditerranée par le col du Lauragais et le couloir Rhône-Saône. Le mistral en Provence souffle de la terre vers la mer. Il chasse les eaux de surface, toujours plus chaudes, qui sont alors remplacées par de l'eau plus froide par effet « d'upwelling ». L'été, au bord des plages, le mistral peut diminuer la température de l'eau de plusieurs degrés en quelques heures. En général, c'est en Camargue (débouché de la vallée du Rhône) que le mistral est le plus puissant.

Le Mistral est moins fort la nuit près des côtes. En fait, le vent moyen n'est pas moins fort, mais le Mistral est moins turbulent. Les rafales sont moins fréquentes et moins violentes. Dans une période de Mistral donnée, les maximums de la nuit sont très inférieurs à ceux de la journée. Mais c'est beaucoup moins vrai en mer. Au delà de la bande côtière, le Mistral continue à souffler aussi fort. Les explications données pour ces calmes (relatifs) nocturnes ne sont pas très convaincantes. On admet en général que c'est à cause de l'absence de brise thermique (la nuit) que le vent est moins fort. Même si l'explication semble plausible, il reste à l'affiner.

En général, les causes de déclenchement du mistral sont :

- Etablissement d'une dorsale anticyclonique sur le SW de la France
- Dépression relative sur la Méditerranée occidentale
- Présence d'air chaud dans la zone de la dépression
- Alimentation en air froid

Il n'est bien entendu pas indispensable que ces 4 conditions soient réunies.

III.3.2.1 - Canalisation dans la vallée du Rhône et de la Durance

Dans le cas de Mistral, le vent est de secteur Nord (soit nord-est ou nord-ouest), illustré par les POI0 et POI2a. Nous avons une canalisation du vent dans les vallées du Rhône et de la Durance. La figure III.20 montre cette canalisation pour les POI0 et POI2a dans la grande grille (G1).

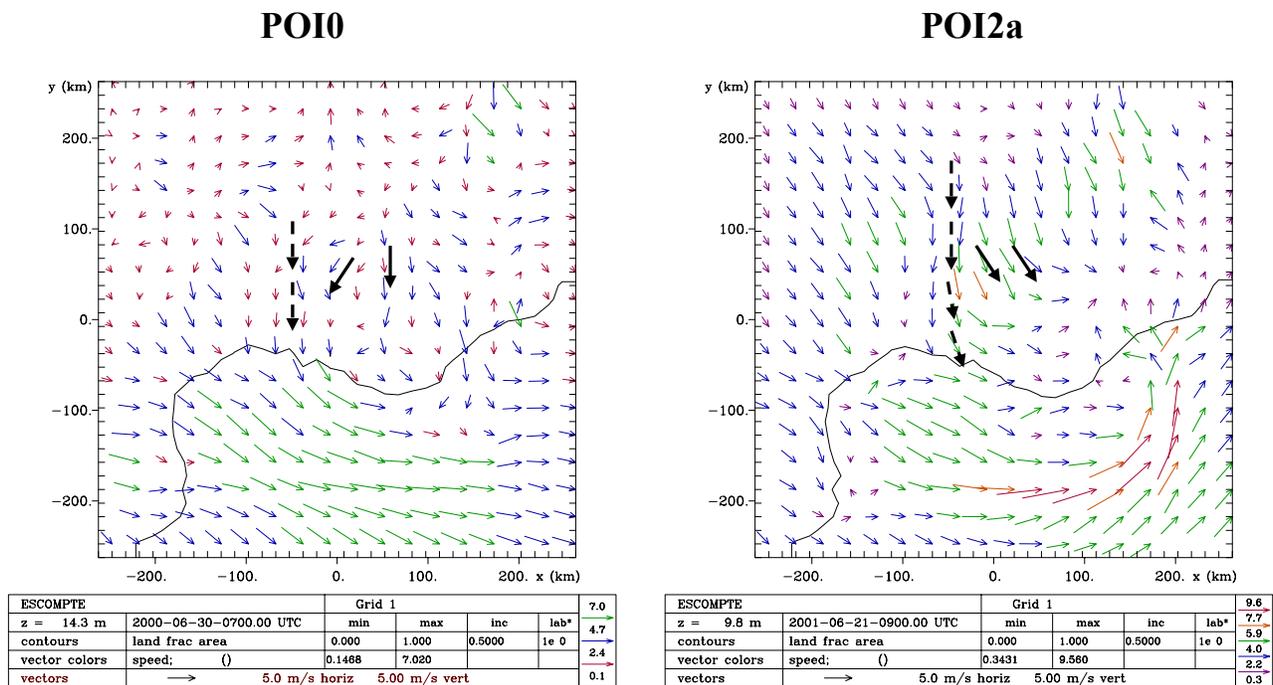


Figure III.20 - Vitesse du vent en surface pour la grille 1 : POI0 et POI2a.

Dans les deux cas, le champ de vent suit la vallée du Rhône (canalisation) avec une direction Nord-Sud. Nous notons que pour la POI0, le vent synoptique (Mistral) est relativement faible (inférieur à 5m/s) et les circulations locales vont dominer. En effet, le matin, nous observons au niveau du relief du Lubéron (partie nord de la grille 2), les vents catabatiques qui descendent la

vallée de la Durance (Figure III.21) pour la POI0. Au contraire, pour la POI2a, le vent synoptique est plus fort (de l'ordre de 6-8m/s), c'est lui qui domine; le vent remonte la vallée de la Durance (Figure III.21). Ainsi à cause des paramètres topographiques de la vallée du Rhône (direction : Nord –Sud, large vallée), le vent est canalisé, quelque soit la vitesse du Mistral et va transporter avec lui les masses d'air polluées venant de la région lyonnaise. Par contre, dans le cas de la vallée de La Durance, tout va dépendre de l'intensité du Mistral. Si les vents catabatiques dominant l'air venant de la région montagneuse, cet endroit sera moins pollué que si c'est le Mistral qui domine, transportant avec lui de l'air très pollué, comme nous le verrons dans le chapitre suivant.

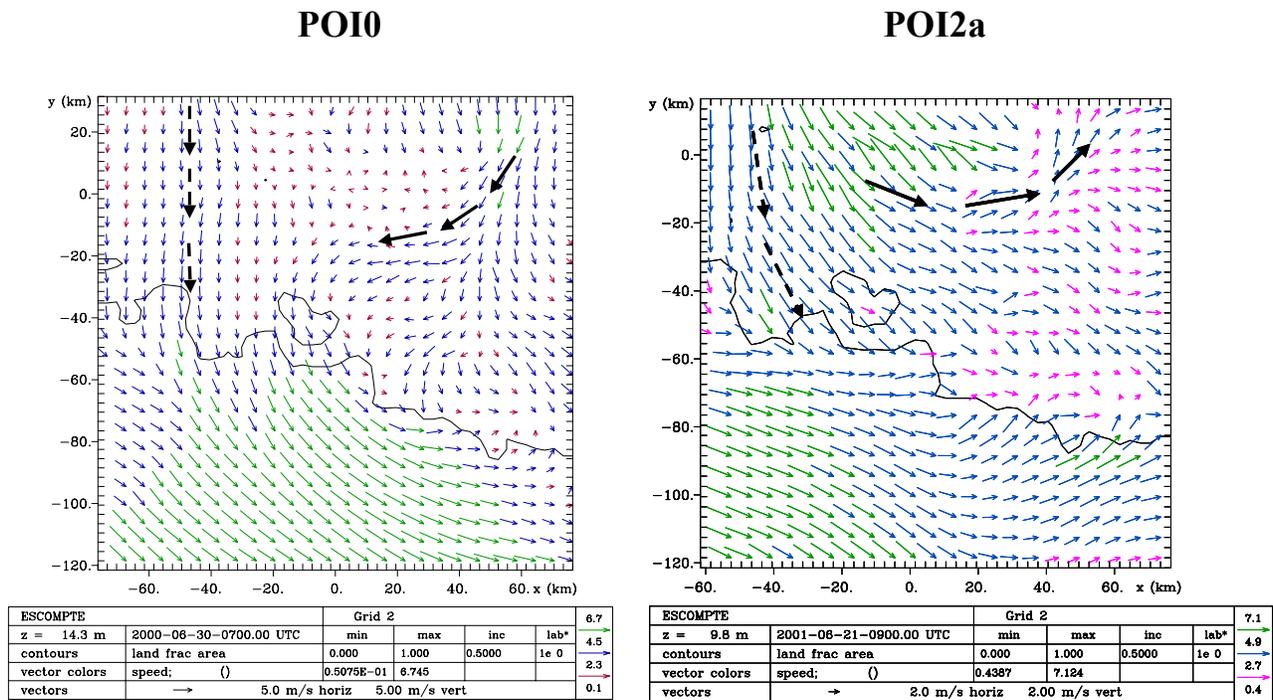


Figure III.21 – Canalisation dans les vallées du Rhône et la Durance en POI0 et POI2a

III.3.2.2 - Mistral et champ d'humidité faible

Le Mistral est un vent caractérisé par une masse d'air sèche. Cet air relativement sec est transporté au-dessus de l'air marin. Une coupe méridienne du champ d'humidité à 12HTU

(Figure III.22) est présentée pour le cas de la POI2a, cas où le mistral est installé depuis la nuit de 21 Juin 2001. Ce flux apporte une grande quantité d'air sec. La rencontre de ce Mistral avec une faible brise de mer est la cause d'une convergence près du littoral, au niveau du massif d'Estaque dans la figure III.22. La brise de mer empêche ce flux de se propager vers la mer dans les basses couches, par contre il est présent en altitude au-dessus de 500m environ. Ce mécanisme est présent le long du littoral, le 22 Juin 2001.

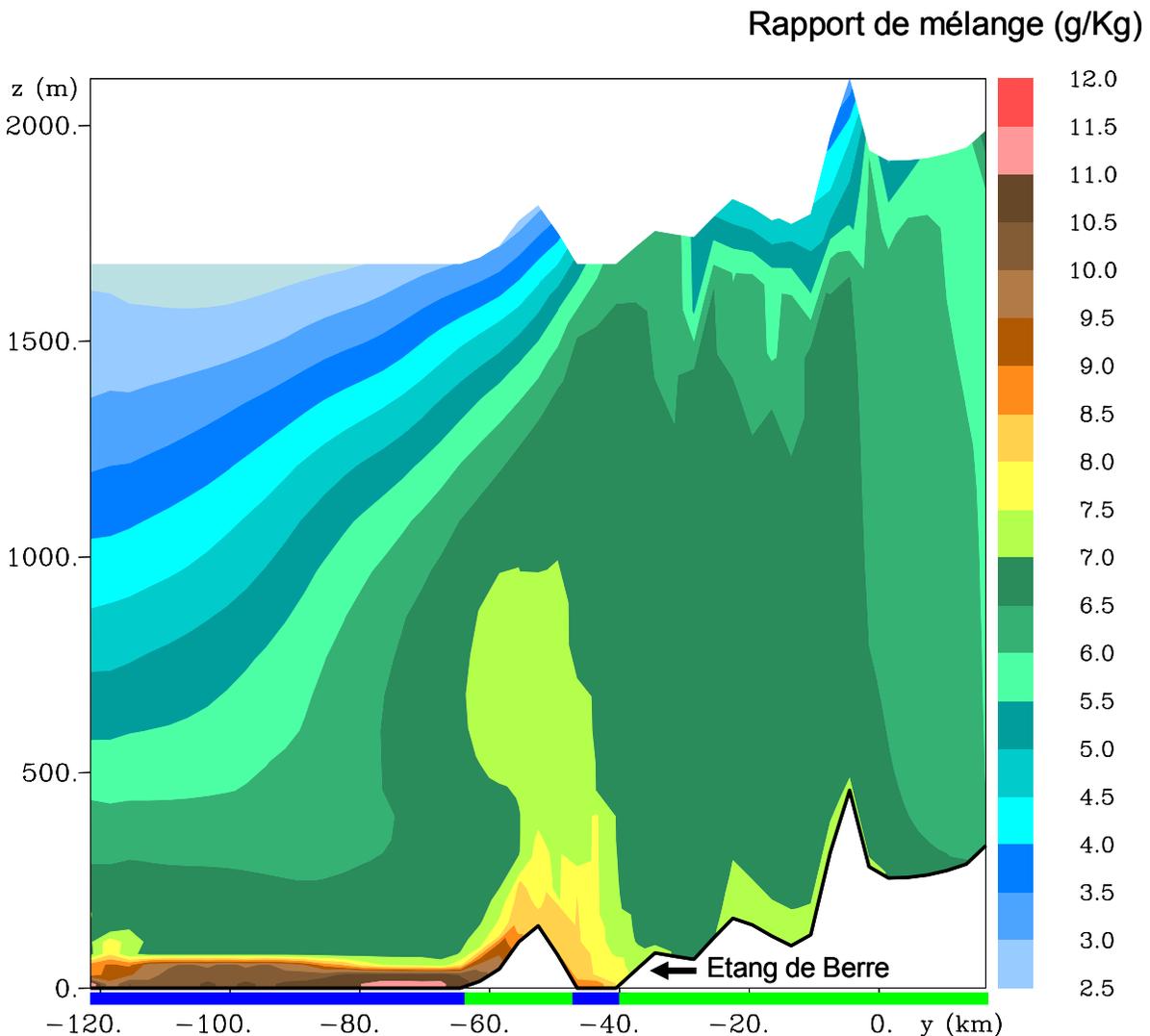


Figure III.22 – Coupe méridienne au niveau de l'étang de Berre et du massif de l'Estaque du champ d'humidité, le 22 Juin à 12HTU, pour la POI2a

III.3.2.3 - Cellule convective

Dans le cas du Mistral (POI2a), on peut constater que nous sommes en présence de fortes cellules convectives au niveau du massif du Lubéron (nord de la grille 2) de la figure III.23. Le Mistral rencontre le massif montagneux et une cellule ascendante se développe du côté nord dans ce cas. Lorsque nous sommes en présence de circulation de brise de mer seule, les cellules associées au relief se développent du côté sud du massif (par exemple, au niveau du massif de l'Estaque où nous avons une petite cellule de brise, voir Figure III.23).

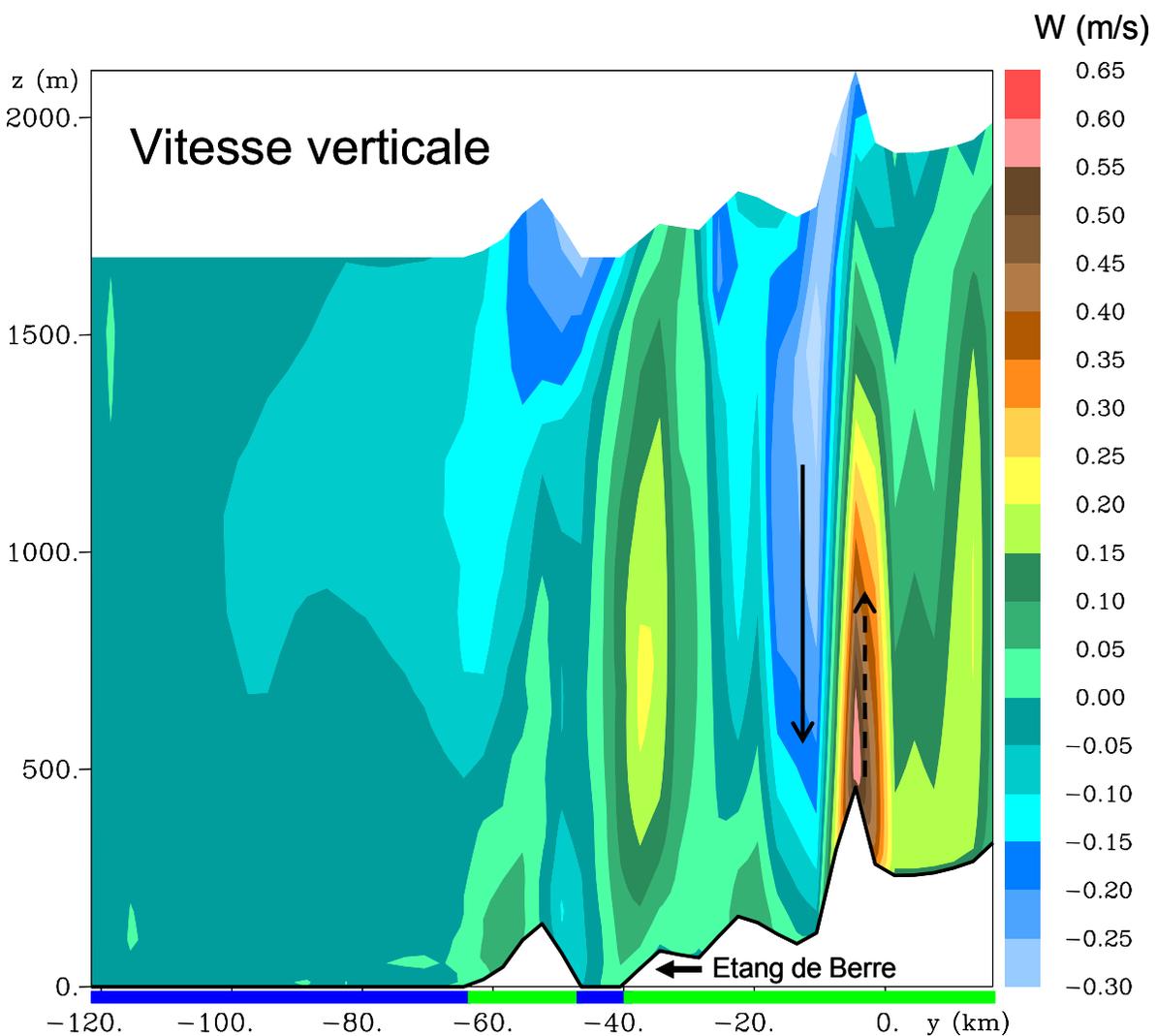


Figure III.23 – Coupe méridienne au niveau de l'étang de Berre et du massif de l'Estaque du champ de vitesse verticale, le 22 Juin à 12HTU, pour la POI2a.

A cause de cette ascendance située au nord du massif, une quantité d'air transportée par le Mistral sera éjectée en altitude lors du soulèvement. Ce mécanisme est plus important à l'ouest de domaine où d'importante masse d'air canalisée dans la vallée du Rhône pourra être soulevée au niveau des Alpilles. L'altitude moyenne de ce soulèvement est plus petite qu'à l'est du domaine où la présence de relief est assez haute (le Luberon).

Un autre effet de ces cellules intervient dans le régime descendant qui existe côté sud de ces reliefs et ne permet pas un développement vertical des masses d'air situées au pied de ces reliefs. Ce cas peut être considéré important, car certaines grandes villes du domaine sont situées au sud de relief par exemple : Marseille au pied de l'Etoile ou Toulon au pied du Mont Caume.

III.3.3 - Cas de brise de mer

La brise de mer est un phénomène météorologique dont l'extension horizontale dépend de la latitude, des hétérogénéités de surface (relief, végétation), de la température de l'eau de mer. Elle est généralement comprise entre 40 et 60 km en zone tempérée et a une extension verticale comprise entre 1 et 2 km. Des circulations de brise de mer se produisent sur environ deux tiers des côtes terrestres (Simpson et al, 1996) et sont habituellement des systèmes assez stables se reproduisant quotidiennement ce qui les rend remarquables et accessibles pour l'étude. Elles résultent de la différence de propriétés thermiques de la terre et de la mer. En raison d'une plus faible capacité thermique, la terre chauffe et se refroidit plus rapidement que la mer, ayant pour résultat des différences de température entre l'eau et la terre. Ceci mène aux différences de pression terre-mer avec pour résultat des systèmes de brises à travers la côte. La nuit, à l'inverse de la journée, la mer est plus chaude que la terre, qui s'est rapidement refroidie, et les vents de basses couches sont orientés de la terre vers la mer, c'est la brise de terre. Cependant, fréquemment, le système de brise de mer est plus complexe et peut résulter en des vents le long du rivage, comme dans le cas de la brise de mer de 'Freemantle Doctor' observée en Australie du sud-ouest (Pattiaratchi et al, 1997).

Les brises de mer ont été intensivement étudiées. En effet les conditions locales sont des paramètres très importants, donc les caractéristiques des circulations de brise de mer seront différentes pour chaque côte. Pattiaratchi et al, (1997) montrent les mécanismes de pénétration de la brise en relation avec la topographie du littoral. En revanche, ils ne discutent pas du lien dynamique entre la brise de mer et les flux synoptiques.

- Déclenchement de la brise

En général, pour que le phénomène de brise se déclenche, 2 conditions sont nécessaires :

1. la couverture nuageuse doit être faible pour faciliter le rayonnement. La présence de cumulus dans la journée n'est pas un inconvénient, au contraire, elle est signe d'instabilité de l'air, ce qui facilite l'ascendance au-dessus de la terre.
2. la différence entre la température de la mer et celle de l'air doit dépasser 3°C (Cautenet, 1988).

III.3.3.1 - Canalisation dans le cas de la brise

Lorsque la forte brise pénètre à l'intérieur du continent, seule ou associée à un flux de sud, on retrouve la canalisation à la fois dans les vallées du Rhône et de la Durance.

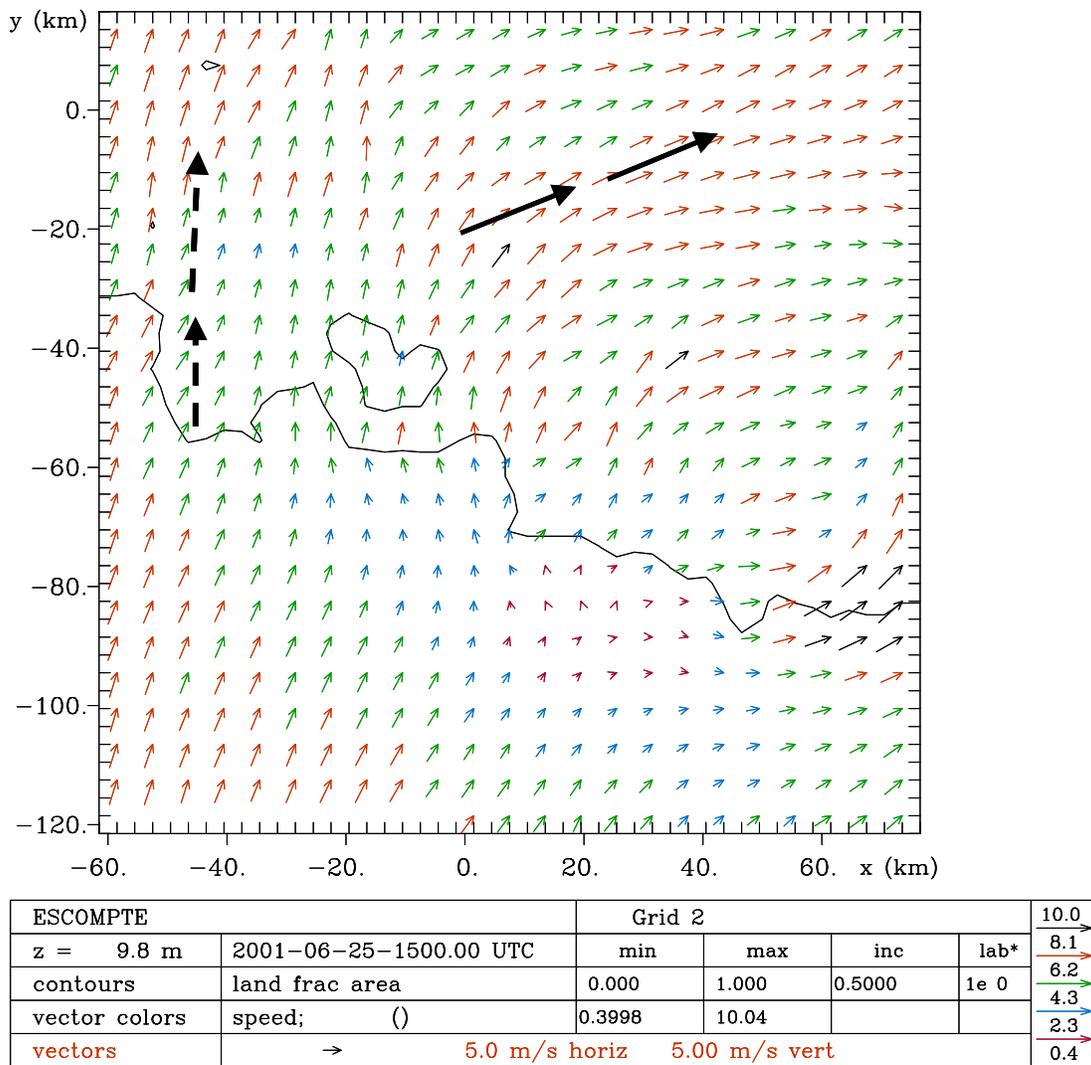


Figure III.24 – Canalisation du vent dans les vallées du Rhône et de la Durance dans le cas de brise de mer (POI2b).

Dans le cas de la vallée de la Durance, le flux entre dans la vallée au-dessus de l'étang de Berre, juste à côté des Alpilles et le long du massif du Lubéron. Ensuite, il suit le trajet de la vallée et transporte les masses d'air jusqu'au fond de cette vallée. Dans les trois POI étudiées, c'est pour la POI2b que la brise de mer, renforcée par le flux de sud, a la plus forte pénétration. Elle remonte jusqu'à Avignon en passant par la vallée du Rhône dans la partie ouest du domaine et elle peut atteindre le fond de la vallée la Durance après 15h TU (Figure III.24).

III.3.3.2 - Les Cellules convectives

Dans le cas de brise, les cellules convectives dépendent fortement des hétérogénéités locales (étang, relief, intensité du flux de brise).

Afin d'examiner les zones convectives que nous pouvons rencontrer dans le domaine d'ESCOMPTE, nous avons subdivisé la zone en quatre endroits différents à cause de la présence de source plus ou moins importante de polluants et aussi à cause de relief plus ou moins escarpé. Il s'agit de 1 -la Crau (zone plate et près du Golfe de Fos), 2- l'étang de Berre (domaine situé entre le Golfe de Fos et Marseille), 3-ville de Marseille et 4-ville de Toulon. La Figure III.25 montre ces cellules pour les quatre endroits.

On a considéré pour les 4 régions, 4 coupes méridiennes correspondant à la même situation dynamique qui présente une forte pénétration de brise de mer : la POI2b

- **La Crau (Bouche du Rhône)**

Au niveau de la Crau (4°54' de longitude) la côte est plate. L'absence de relief près de la côte autorise une importante pénétration de la brise de mer sur le continent qui est associée à une zone d'ascendance verticale positive ($> 5\text{cm/s}$) (Figure III.25). Le massif des Alpilles provoque une forte cellule (20cm/s vers 500m d'altitude) et jouera un rôle dans la redistribution des polluants.

- **Etang de Berre (massif d'Estaque)**

A 5°8' de longitude, les masses d'air maritimes advectées sont d'abord soulevées au niveau du massif de l'Estaque (environ 200 mètres d'altitude) situé très près du rivage, puis subissent une subsidence au niveau de l'étang de Berre (au nord du massif). Cette succession de mouvements ascendants et descendants provoque au-dessus de l'étang de Berre, des vitesses verticales de l'ordre de 10cm/s vers 400m d'altitude (Figure III.25). Cet endroit est caractérisé par d'importants rejets de polluants. A 60km du littoral, les montagnes du Luberon permettent un transport vertical maximal jusqu'à 25cm/s à 700m d'altitude. Ce massif situé à l'arrière du domaine, jouera un rôle dans la redistribution des polluants, si la brise de mer pénètre suffisamment à l'intérieur des terres.

- **Marseille**

En partant de Marseille ($5^{\circ}14'$ de longitude) et en remontant vers le nord, on rencontre une succession de reliefs : le massif de Marseille Veyre, la chaîne de l'étoile, puis la chaîne de la Trévaresse et enfin le grand Luberon. Ce sont des massifs relativement élevés (environ 500 mètres jusqu'à plus de 1000 mètres au nord du domaine). Ils produisent des ascendances verticales significatives (50cm/s pour le massif le plus élevé à 800m d'altitude). Ce relief jouera évidemment un rôle important dans la redistribution de la pollution urbaine (Figure III.25).

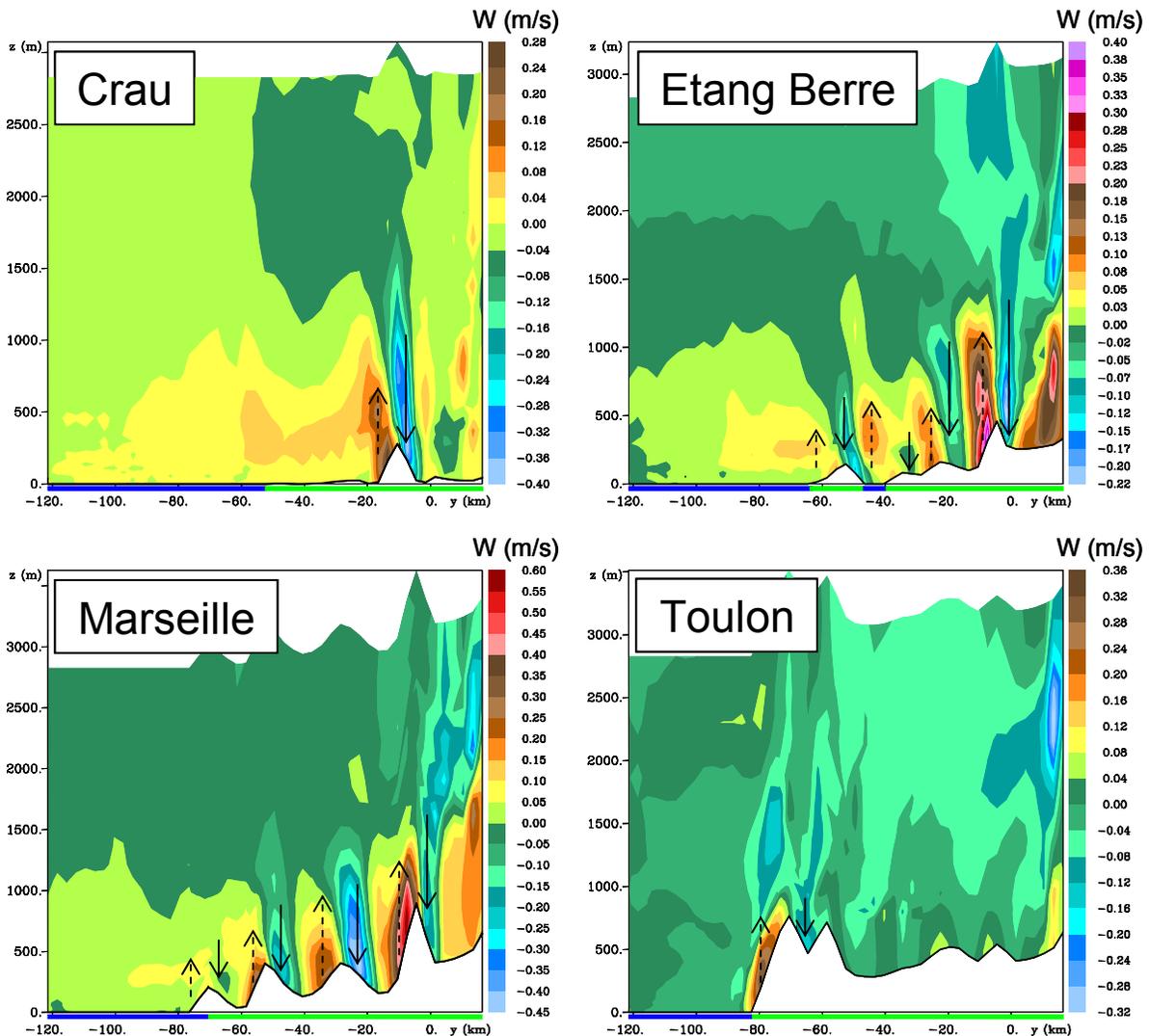


Figure III.25 – Les cellules convectives sur la Crau, l'étang de Berre, Marseille et Toulon, le 25 Juin à 15H TU, pour la POI2b.

• **Toulon (massif près de la mer)**

Au niveau de Toulon (5°58' de longitude) le relief est très important près du littoral (700 mètres d'altitude, relief de Grand cap et Montagne de la Loube). Ce relief situé le long de la côte est associé à des cellules convectives très fortes qui ont des vitesses d'ascendance de l'ordre de 30cm/s à 300m d'altitude dès 11HTU. Cette conjonction, relief et côte, produit une circulation singulière où la brise est plutôt orientée vers l'est nord-est et contourne le relief (Figure III.25).

III.3.3.3 - Champs de vent en surface et à 1000m

La figure III.26 montre que la circulation en altitude (a) et à la surface (b) est très différente pour le 24 Juin 2001 (POI2b). Sur les figures III.26, les flèches en noir représentent cette différence au niveau de la direction du vent. A 1000m, le flux synoptique est dominant (direction nord-ouest) alors qu'à la surface le vent est dans le secteur sud-ouest. Toutefois, on note qu'au niveau de la Crau où le relief est très bas ou près du littoral, les champs à 1000m sont faibles et encore influencés par la circulation de brise.

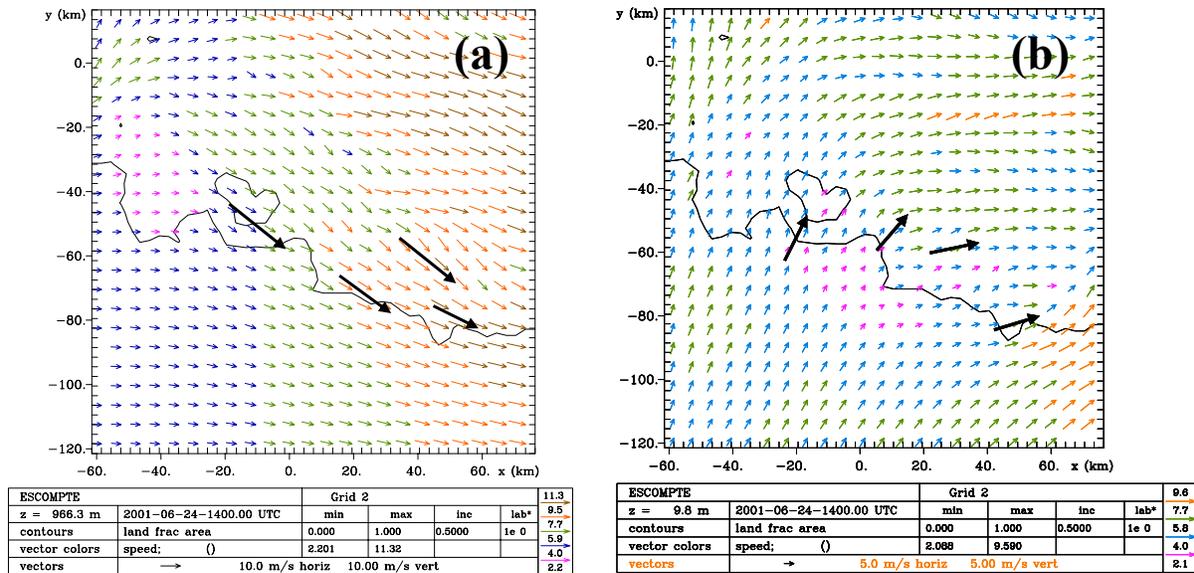


Figure III.26 - Circulation du vent à la surface et en altitude.

Pour les flux situés au-dessus des cellules convectives présentées ci-dessus, cette différence de circulation à différents niveaux peut engendrer des stratifications au sein de la redistribution verticale de la masse d'air.

III.3.3.4 - Front de la brise

La pénétration du front de brise de mer est une caractéristique importante à connaître car, ce front peut transporter une grande quantité de masse d'air de la côte vers le continent. Vu la circulation complexe que nous avons dans le domaine d'ESCOMPTE, il est très difficile de quantifier la pénétration de la brise seule, car nous avons toujours une influence plus ou moins marquée du flux synoptique soit de direction nord (POI0 et POI2a), soit de direction sud (cas du 25 juin POI2b). Les champs de vent en surface pour les POI2a et POI2b (figure III.26) montrent que la pénétration couvre toute la grille 2 et est plus importante au niveau du delta du Rhône, dans la plaine de la Crau, qu'à l'est du domaine où nous avons de nombreux reliefs. Nous présentons pour la grille 1, deux coupes méridiennes de champ d'humidité et de vent (Figures III.27) au niveau de la plaine de la Crau et de la ville de Marseille afin d'évaluer cette pénétration pour la POI2b qui correspond à la pénétration la plus importante. Pour la plaine de la Crau (figure III.27), on a une pénétration de l'ordre de 60 à 80 km à l'intérieur des terres (isocontour de 10 g/kg), et un peu moins grande pour la coupe méridienne au niveau de Marseille, de l'ordre de 40 à 60km.

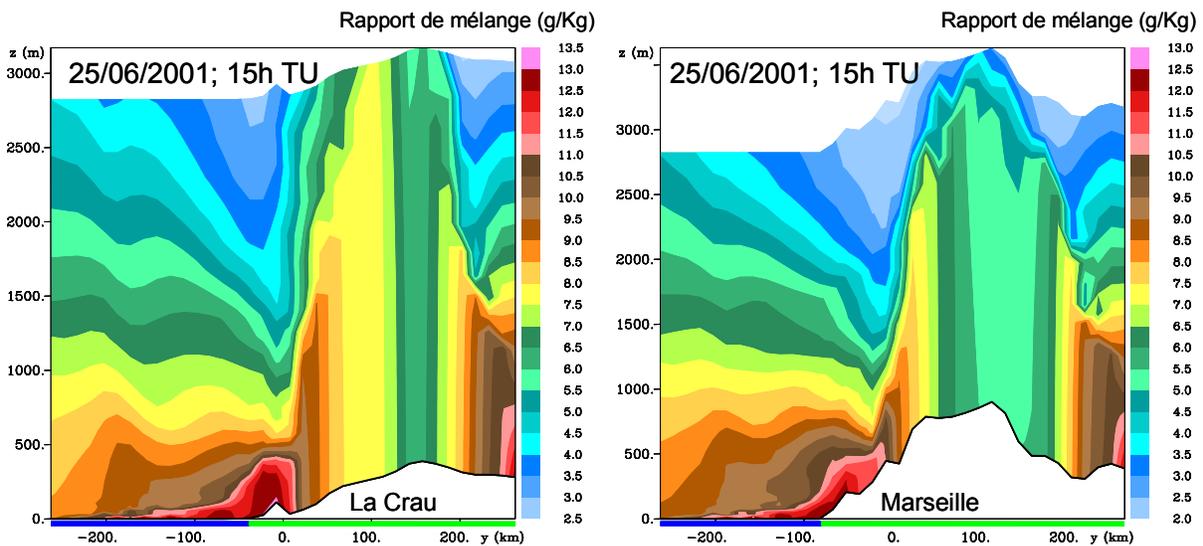


Figure III.27 – Front de la brise de mer à la Crau et à Marseille, le 25 juin 2001 à 15h TU (POI2b)

III.3.3.5 - Hauteur de la cellule de la Brise (coupe méridienne du vent)

Pour mieux caractériser la cellule de brise, nous examinons une coupe méridienne du champ de vent, à 15 heures, où la brise est à son maximum, pour les 24 et 25 Juin, au niveau de la Crau et

près de Marseille. Pour déterminer les limites de la cellule de brise nous avons retrouvé la structure d'une brise classique (figure III.28, Cautenet S.; 1988). Pour déterminer les limites horizontales, nous avons considéré l'endroit où la composante horizontale du vent devient faible et la composante verticale significative. Pour déterminer la hauteur de la cellule de brise, nous avons repéré l'endroit où la vitesse horizontale a une composante nord-sud.

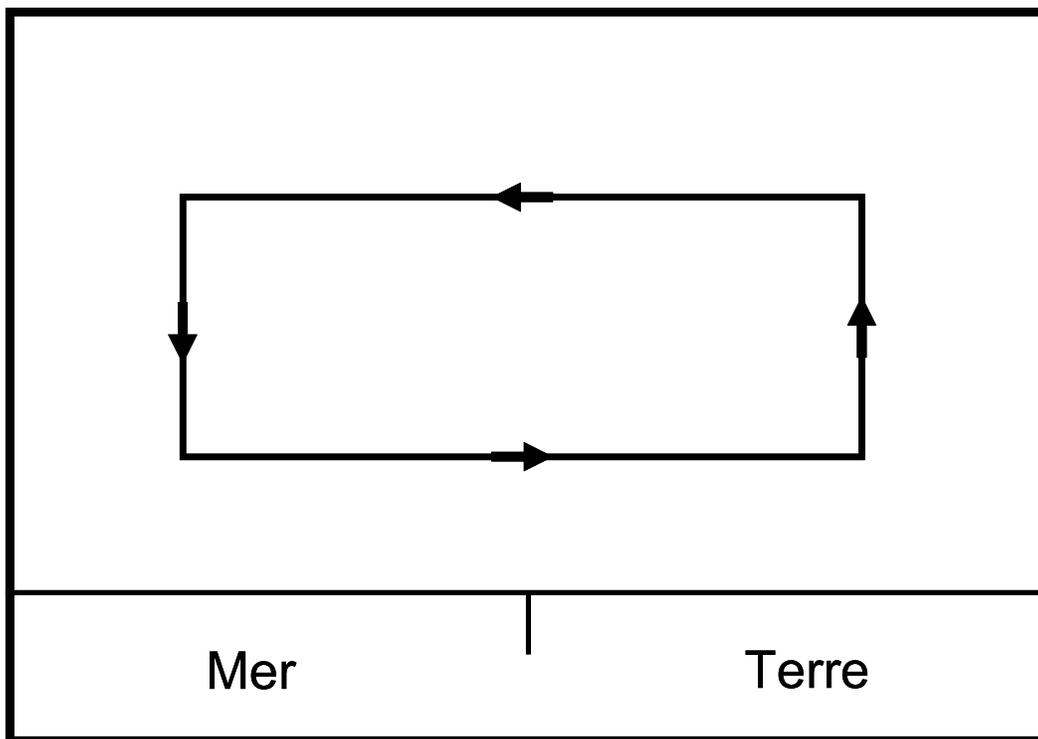


Figure III.28 – Trajectoire fermée le long de laquelle est calculée la circulation de brise

Le 24 Juin, au niveau de la Crau, (Figure III.29), l'extension horizontale est de l'ordre de 200km dont 110km sont sur la terre. A cet endroit, la rencontre de la brise avec un flux du nord produit une convergence et une ascendance jusqu'à 3000m. A la même heure, au même endroit, pour le 25 juin, l'extension de brise en présence de flux de sud s'étend jusqu'à 300km.

Le vent descendant de la cellule de brise a pour origine une masse d'air mélangée: d'une part le flux de nord et d'autre part le flux de brise. L'altitude de la cellule de brise de mer atteint environ 1500m le 24 juin et 2500m le 25 juin.

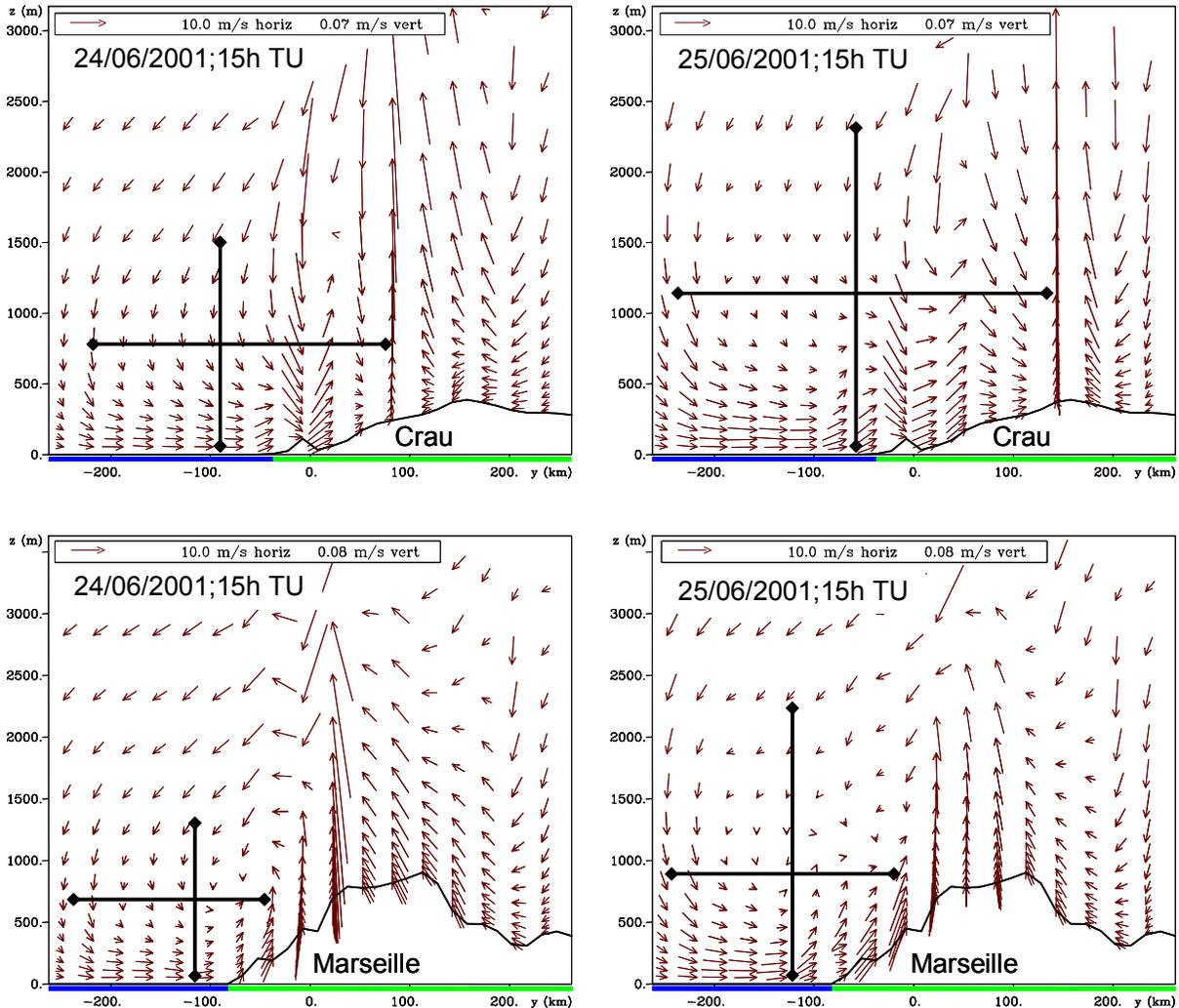


Figure III.29 – Cellule de brise à la Crau et à Marseille pour le 24 et 25 Juin 2001 à 15 heures (POI2b).

Les différents paramètres qui peuvent affecter la hauteur de la cellule de brise sont: la topographie locale, la rugosité, l'écart thermique entre la température de l'eau de mer et de la surface de la terre. Comme on peut voir sur une coupe méridienne au niveau de Marseille, les cellules de brise sont beaucoup plus petites qu'au niveau de la Crau avec une longueur de 40 à 60km et une hauteur de 1200m à 2000m pour les 24 et 25 juin respectivement. On constate que dans ce deuxième cas, contrairement au cas d'un flux de Mistral, la masse d'air venue du sud (air

maritime) sera bien transportée à l'intérieur du continent, puis s'élèvera et enfin redescendra sur la mer.

III.3.4 - Brise de terre

La nuit, le phénomène inverse de brise de mer se produit. La terre perd sa chaleur plus rapidement que la mer.

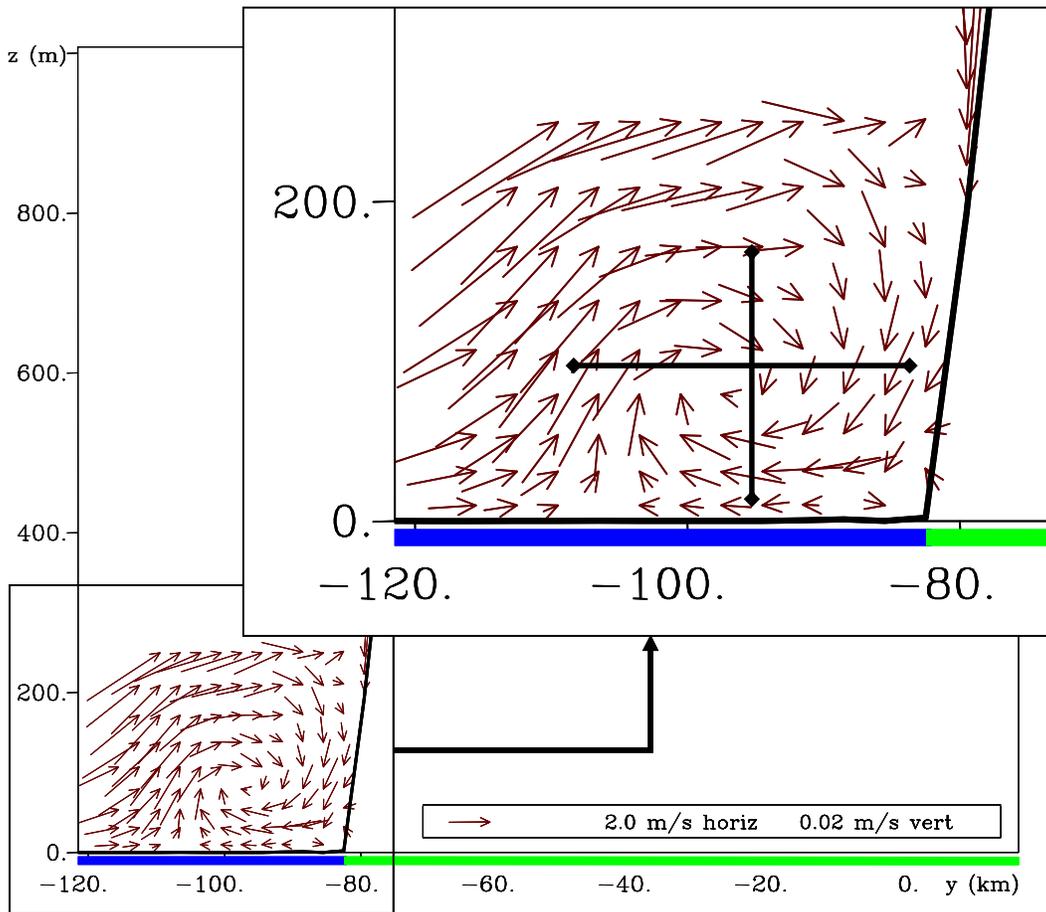


Figure III.30 – Cellule de brise de terre à Toulon, le 26 juin 2001 à 3h TU (POI2b).

Un gradient de pression et de température s'établit lorsque la terre devient plus froide que la mer et il se crée une basse pression sur la mer. Afin de combler le vide relatif de cette basse pression, un écoulement d'air s'établit de la terre vers la mer. Dans les meilleures conditions météorologiques (absence de flux synoptique), la brise de terre pénètre très faiblement sur la mer.

La hauteur de la cellule de brise de terre est beaucoup plus petite que celle de brise de mer. Durant les POI0 et POI2a, le flux du nord est dominant et ne permet pas de visualiser la brise de terre. Pour la POI2b, le flux de sud empêche qu'une brise de terre se développe. Le seul cas simulé qui présente une brise de terre est celui qu'on voit à Toulon. Cette cellule de brise de terre est certainement associée aux vents catabatiques dus aux reliefs de Toulon. Malgré sa force faible, la brise de terre peut transporter relativement une quantité importante de masse d'air de la côte et la disperser sur la mer pendant toute la soirée.

III.4 - Conclusion

Les trois épisodes étudiés (POI0, POI2a et POI2b), sont tous caractérisés par le développement d'une cellule de brise. Cette brise est plus ou moins importante puisqu'elle est associée à un flux de nord (mistral) ou de nord ouest (flux océanique) ou de flux de sud (flux méditerranéen) respectivement. Ces flux ne sont pas persistants tout au long des trois épisodes et sont très variables.

Globalement, les résultats des simulations de ces trois POIs à la surface sont assez satisfaisants. Les champs dynamiques et thermodynamiques obtenus pour les simulations de la POI0 sont les meilleurs. La POI2a présente l'écart maximum entre les mesures et les simulations. On a déjà vu que pour les POI2a et POI2b, les résultats sont meilleurs au nord et ensuite au sud du domaine. La différence de la température entre le nord du domaine et le sud du domaine est minimale pour la POI0 (24,01°C au nord (Avignon) et 23,20°C au sud à Toulon ; soit moins de 1°C). Cette différence est maximale pour la POI2a (26,02°C au nord (Avignon) et 22,02°C au sud à Toulon ; soit 4°C) ; 4 fois plus grand que pour la POI0.

Notre centre d'intérêt, dans cette étude de pollution urbaine et péri urbaine, se situe plutôt dans la couche limite et en dessous de 3000m. Nous avons constaté à plusieurs reprises que dans la troposphère libre (2000-3000m), les champs simulés présentent une sous-estimation de quelques degrés pour la température, quelques différences pour la vitesse du vent ou l'humidité, comme on peut le voir dans les comparaisons des résultats du modèle avec le radiosondage et les mesures aéroportées. Par contre, nous avons un bon accord globalement pour les champs météorologiques dans la couche limite. Les mesures très fines du sodar, par contre, nous montrent que les très fortes et très faibles valeurs du vent ne sont pas bien restituées. En général, les champs météorologiques de la POI2b semblent mieux simulés que ceux de la POI2a. Un point faible du modèle est la restitution des couches stratifiées dans la couche limite, ce qui justifie le fait de prendre un grand nombre de niveaux verticaux (15 niveaux en dessous de 1500m d'altitude).

Les résultats des simulations montrent que dans le cas d'un flux de nord, le Mistral, en rencontrant les reliefs, provoque des cellules ascendantes du côté nord de ces massifs, et entraîne une dispersion de ces masses d'air en altitude. Dans le cas de Mistral, on observe la canalisation dans la vallée du Rhône qui permet de transporter des quantités importantes de masse d'air. La canalisation dans la vallée de la Durance est sensible à la direction du vent synoptique.

Dans le cas de la POI2b, la forte brise de mer est associée à un flux de sud et provoque des cellules convectives dont la hauteur et la vitesse dépendent de la vitesse de vent et de la topographie locale. Ces cellules convectives sont plus importantes près de Marseille qu'au niveau de la Crau. La cellule de brise de mer, dans ce cas, pénètre profondément dans le domaine d'ESCOMPTE.

La brise de terre peut se présenter à Toulon: la largeur de la cellule de brise de terre à cet endroit ne dépasse pas une vingtaine de Km et sa hauteur est environ de 300 m.

CHAPITRE IV



Chimie

IV.1 - La chimie de l'ozone, des NO_x et des COV

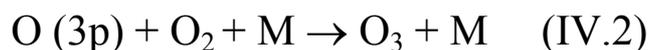
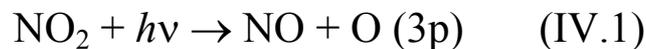
Dans le chapitre II, au paragraphe 3, on a présenté brièvement le modèle MOCA 2.2. Dans ce chapitre nous allons examiner les différents résultats chimiques obtenus à partir des simulations. Mais les interprétations de ces résultats comme on l'a déjà mentionné, nécessitent quelques rappels sur la chimie de l'ozone, des NO_x et des COVs. Dans le cadre de la production de l'ozone, nous allons examiner les différents régimes NO_x-limité et COV-limité.

On évoque, ici, également la chimie urbaine de NO_x - COV, dans un plus large contexte, liée aux processus photochimiques dans la troposphère éloignée. Plusieurs limites analytiques communes (radicaux d'hydrogène impairs, oxygène impair, et efficacité de production de l'ozone) sont également présentées et définies ici.

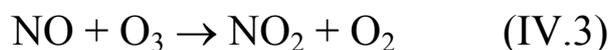
Dans ce paragraphe, les régimes chimiques de NO_x-limité et COV- limité sont interprétés de différentes façons. En associant les champs météorologiques, les positions des sources d'émission et leur répartition, on examine les résultats des simulations chimie-transport à trois dimensions.

IV.1.1 - Production d'ozone dans l'atmosphère propre, cycle de Leighton (1961)

L'ozone est produit directement par la photolyse de NO₂ :



où l'atome d'oxygène (O) se recombine rapidement avec l'oxygène moléculaire (O₂) pour produire l'ozone (O₃). Normalement, cette réaction est équilibrée par la réaction de NO avec l'ozone:



Prises ensemble, les réactions (IV.1) et (IV.3) ne produisent aucun changement net de l'ozone. Chacune de ces réactions se produit rapidement, sur une échelle de temps de 200s ou moins. Typiquement, les deux composés principaux de NO_x (NO et NO₂) s'ajustent et on obtient un état équilibré entre les réactions (IV.1) et (IV.3). Cependant, il y a deux situations distinctes pour lesquelles ces réactions entraînent un changement net dans la concentration d'ozone: (i) la perte d'ozone par l'intermédiaire de la réaction (IV.3) le soir ou à proximité de sources intenses de NO_x (parfois désignées sous le nom de titration **de** NO_x) et (ii) la production nette d'ozone lors de la photochimie des NO_x-COV. La perte d'ozone se produit quand la réaction (IV.3) domine sur la réaction (IV.1).

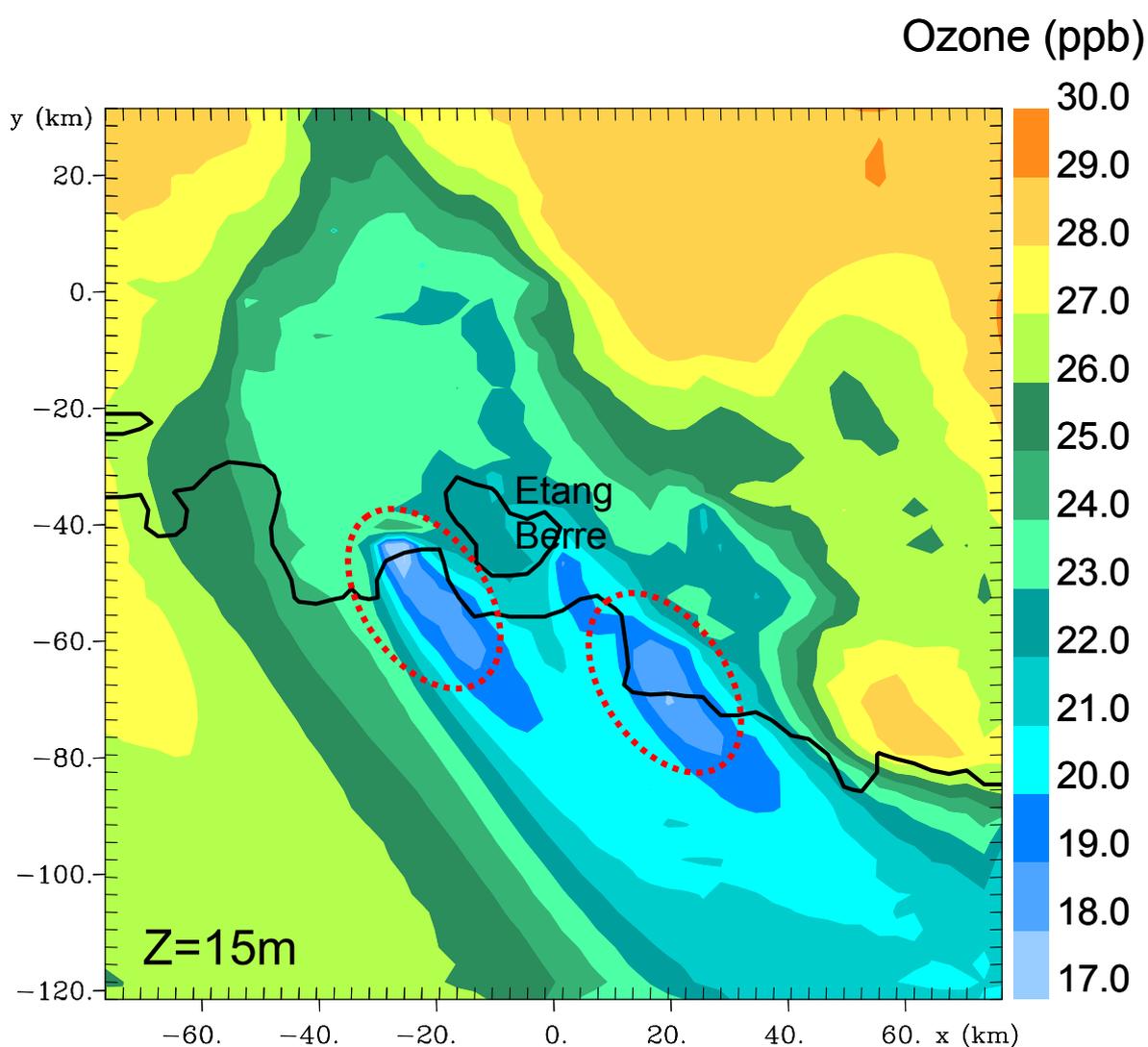


Figure IV.1 - Titration d'ozone sur la ville de Marseille et sur la zone industrielle de Fos-sur-mer (pointillé rouge) à 7 heures du matin (29/06/2000, PO10)

La concentration en ozone à la surface est faible (<30ppb) la nuit puisque les taux de photolyse sont nuls, et localement très faible en raison de la titration d'ozone due aux NOx. Pendant la journée la perte significative de l'ozone par la réaction (IV.3) se produit au voisinage des grandes sources d'émission de NO. La Figure IV.1 montre cette situation sur la ville de Marseille et sur la zone industrielle de Fos-sur-mer. Dans ces situations les concentrations ambiantes de NOx atteignent 50 ppb ou plus qui est équivalent à des valeurs de concentration d'ozone.

IV.1.2 - Le concept de l'oxygène impair

Les analyses de la chimie de l'ozone emploient souvent le concept de l'oxygène impair : $O_x = O_3 + O + NO_2$ (Logan et al, 1981). Cela permet de séparer le processus de titration de NOx, des processus de formation et perte d'ozone qui se produisent sur des échelles de temps plus longues. L'oxygène impair n'est pas affecté par les réactions (IV.1) et (IV.3) et reste constant dans les situations dominées par la titration de NOx, telle que dans l'état initial des rejets des cheminées d'usine. La production de l'oxygène impair est seulement attribuée à la chimie des NOx-COV-CO, et la perte de l'oxygène impair est produite par la conversion de NO₂ en PAN et HNO₃ ou par des réactions plus lentes de perte d'ozone (par exemple réaction (IV.8)), plutôt que par les réactions plus rapides de (IV.1) et (IV.3). Le temps de vie chimique de l'oxygène impair relativement à ces pertes est typiquement 2-3 jours dans la basse troposphère.

IV.1.3 - La production d'ozone par les réactions impliquant COV, CO et NOx

Le processus chimique de la formation de l'ozone se produit par des réactions impliquant les COV, le CO et les NOx, qui ont comme conséquence la conversion de NO en NO₂ par d'autres processus que la réaction (IV.3). La conversion de NO₂ en NO est suivie de la réaction (IV.1) et puis de la formation d'ozone (IV.2). Ces réactions sont presque toujours démarrées par les réactions des hydrocarbures RH ou CO avec OH:

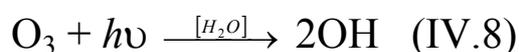


Suivi des réactions radicalaires de RO₂ et HO₂ avec NO





Les réactions (IV.6) et (IV.7) transforment NO en NO₂ et entraînent la formation d'ozone par la réaction (IV.1). R'CHO représente l'espèce organique intermédiaire, comprenant en général des aldéhydes et des cétones. Ces réactions modifient donc le rapport NO₂/NO. Des valeurs mesurées de ce rapport peuvent être employées (particulièrement dans la troposphère libre) pour identifier le processus de formation d'ozone. Quand le rapport NO₂/NO est plus élevé que s'il était déterminé seulement par les réactions (IV.1) et (IV.3), il va guider la formation d'ozone (Ridley et al, 1992). Les réactions (IV.1), (IV.3), (IV.6) et (IV.7) peuvent être combinées pour connaître la concentration des radicaux HO₂ et RO₂ à partir de mesure d'ozone, NO, NO₂ et du rayonnement solaire (Duderstadt et al, 1998). Pour NO_x > 0.5 ppb (typique sur des sites urbains et ruraux pollués en Europe de l'ouest), les réactions (IV.6) et (IV.7) représentent les processus réactionnels dominants pour les radicaux HO₂ et RO₂. Dans ce cas, le taux de production d'ozone est dirigé par la disponibilité des radicaux d'hydrogènes impairs, définis par Kleinman (1986), HO_x comme étant la somme d'OH, HO₂ et RO₂, et en particulier par le radical OH en liaison avec les réactions (IV.5) avec CO et (IV.4) avec les hydrocarbures. La séparation entre les régimes NO_x-limité et COV-limité est étroitement associée aux sources et aux pertes de radicaux. Des radicaux d'hydrogène impairs sont produits par la photolyse de l'ozone, du formaldéhyde et d'autres produits organiques intermédiaires:



Ils sont détruits par les réactions qui produisent les peroxydes et l'acide nitrique :



La formation de peroxyde acétyle nitrate (PAN) est également une perte significative pour l'hydrogène impair. La séparation entre les régimes NO_x-limité et COV-limité est déterminée

aussi par les réactions de peroxyde et de formation d'acide nitrique (Sillman et al, 1990; Kleinman, 1991). Quand l'acide nitrique représente une perte dominante pour l'hydrogène impair, alors la concentration d'OH est déterminée par l'équilibre entre les réactions (IV.8) et (IV.12). Dans ce cas, OH diminue avec l'augmentation de NO_x. Le taux de formation d'ozone est dirigé par les réactions des hydrocarbures-OH (IV.4) et augmente avec l'augmentation de COV et diminue avec l'augmentation de NO_x. C'est le régime COV-limité.

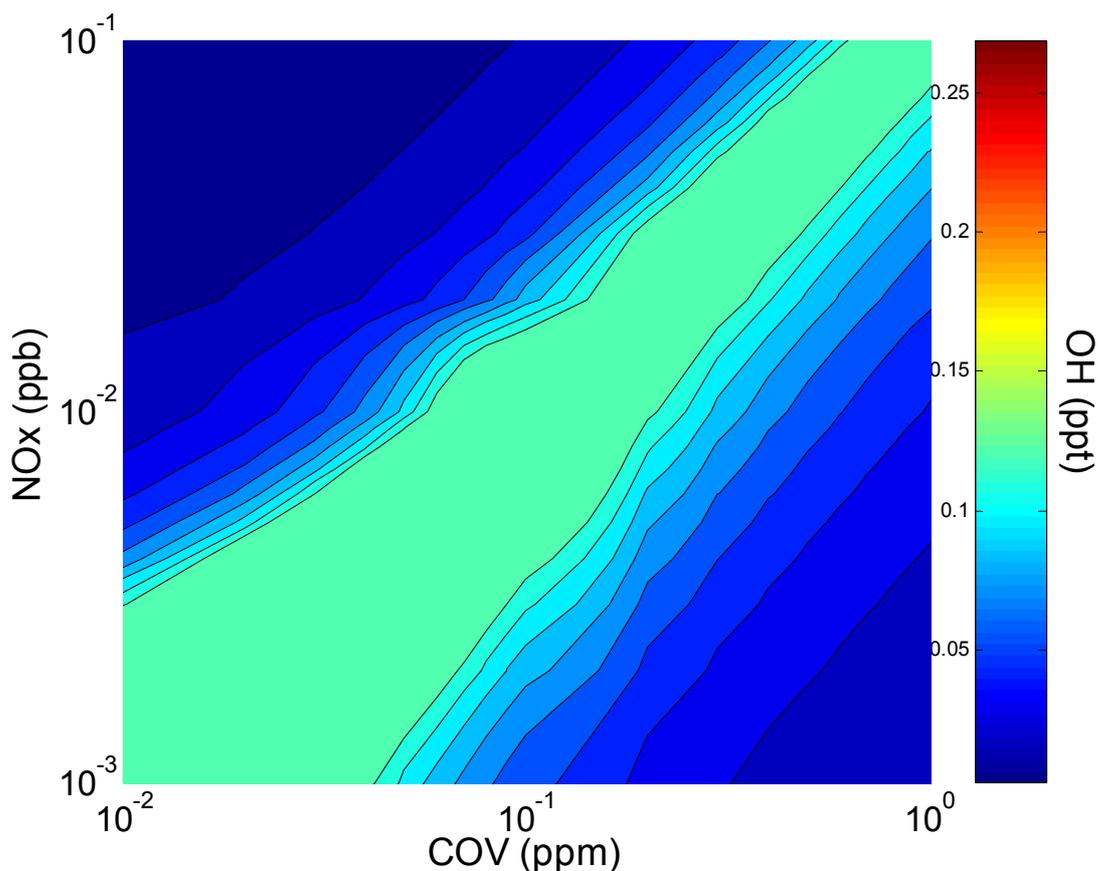


Figure IV.2 – Isocontours de la concentration de OH (ppt) en fonction de NO_x et COV, issus des simulations 0D du modèle MOCA 2.2.

Quand les peroxydes représentent la perte dominante pour l'hydrogène impair, alors la somme HO₂ + RO₂ est relativement peu sensible aux changements de NO_x ou de COV. Le taux de formation d'ozone, approximativement égal au taux des réactions (IV.6) et (IV.7), augmente avec l'augmentation des NO_x et n'est pas affecté par les COV. C'est le régime NO_x-limité. Ces exemples sont illustrés par les figures IV.2 et IV.3, présentant les résultats de simulation avec le modèle 0D, qui montrent la concentration des radicaux OH et HO₂+ RO₂ en fonction

de la concentration de NO_x et COV pour des conditions correspondant aux graphes des isocontours d'ozone de la figure II.11.

La ligne Y dans la figure II.11 qui sépare grossièrement la chimie de NO_x-limité et COV-limité correspond à de fortes concentrations de radicaux OH, alors que les radicaux HO₂ + RO₂ sont plus élevés dans la région correspondant à la chimie NO_x-limité. Les radicaux OH sont faibles pour les deux conditions : NO_x très élevé (dû à la perte d'OH par la formation d'acide nitrique, réaction IV.11) ou NO_x très bas (dû au taux lent de transformation de HO₂ vers OH par la réaction (IV.7)).

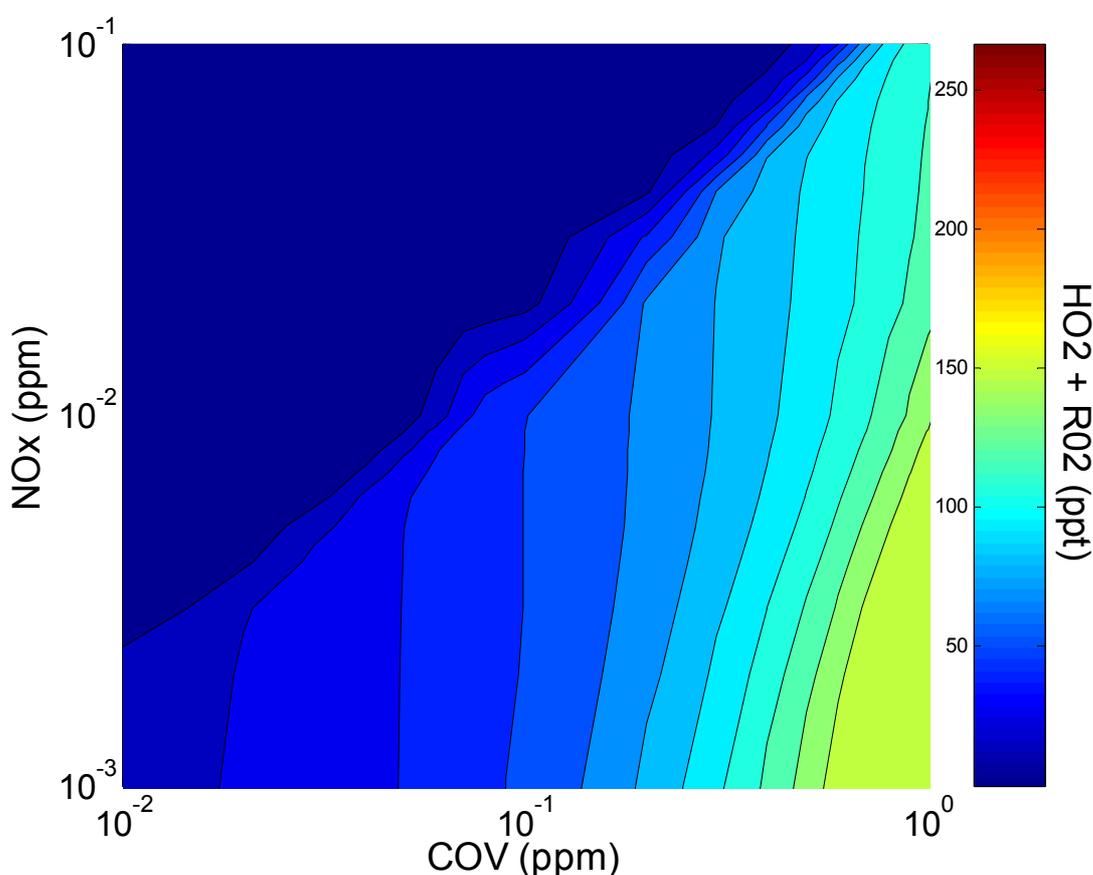


Figure IV.3 – Isocontours de la concentration de HO₂+ RO₂ (ppt) en fonction de la concentration des COV (ppb) et NO_x (ppb) issus de la simulation 0D du modèle MOCA 2.2

La Figure IV.4 montre le rapport du taux de formation des peroxydes (réactions (IV.10) et (IV.11)) divisés par le taux de formation du HNO₃, basé sur la simulation de modèle 0D (voir aussi : Kleinman et al, 1997 ; Sillman et al, 1990). Une comparaison avec la figure II.11.a

montre que ce rapport est étroitement associé à la séparation entre les régimes de NO_x-limité et COV-limité. Le rapport est en général 0.8-0.9 ou plus élevé pour des conditions NO_x-limité, où les peroxydes dominent le HNO₃ comme la perte pour l'hydrogène impair, et 0.1 ou moins pour des conditions COV-limité. La ligne Y (Figure II.11.a) qui sépare les régimes chimiques de NO_x-limité et COV-limité correspond à un rapport de 0.2-0.3. Ce résultat fournit la base pour l'usage des peroxydes et de l'acide nitrique comme « indicateurs » pour la chimie de NO_x-COV (Sillman, 1995; Kleinman et al, 1997; Perros et Marion, 1998). Kleinman (1991, 1994a) a constaté que la chimie des NO_x-COV est liée à la taille relative des sources de radicaux d'hydrogène impairs (réactions (IV.8) et (IV.9)) et NO_x (déterminé par les émissions et/ou le transport).

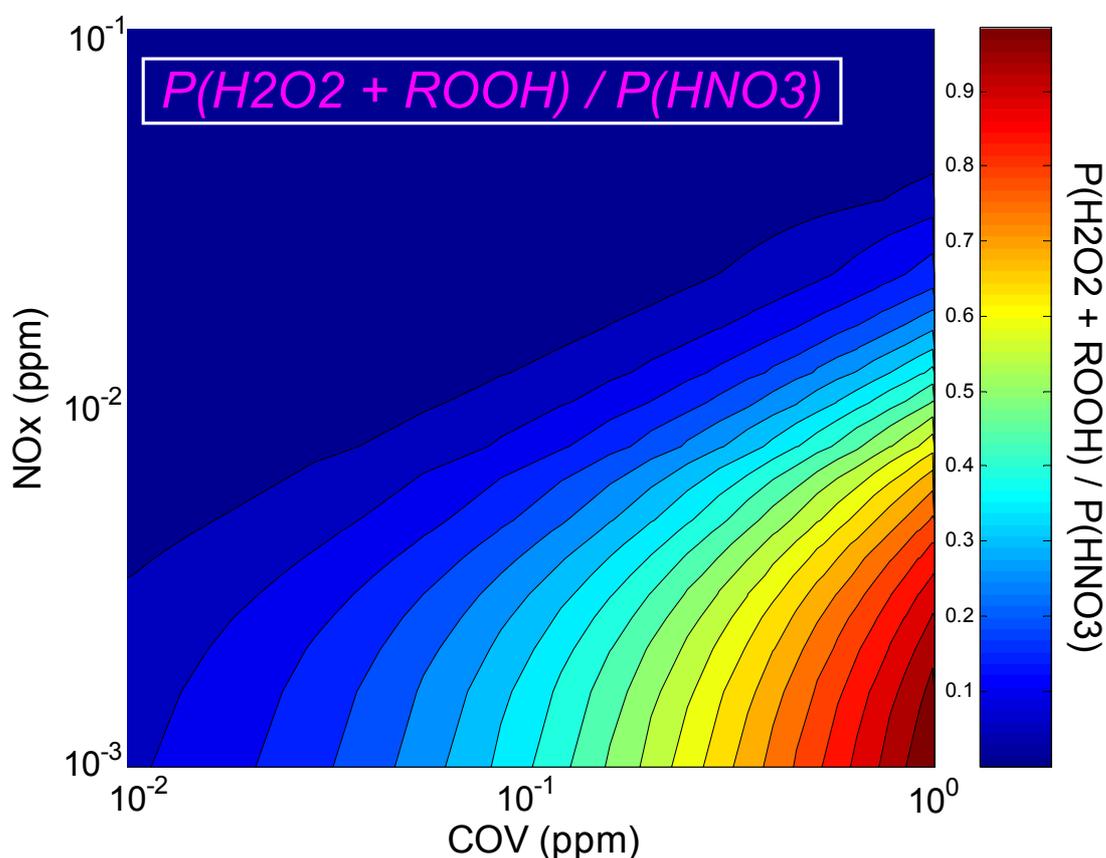


Figure IV.4 - Isocontours montrant le taux de production des peroxydes (incluant H₂O₂ et produits organiques) divisé par le taux de production de HNO₃ en fonction de COV (ppb) et de NO_x (ppb) issus de la simulation 0D de modèle MOCA 2.2.

Si la source des radicaux excède la source de NO_x, alors les peroxydes deviennent dominants pour la perte de l'hydrogène impair et les conditions NO_x-limité s'appliquent. Si la source de

NO_x excède la source des radicaux, alors les faibles valeurs d'OH pour permettre le démarrage des réactions de formation d'ozone sont limités par les NO_x. L'acide nitrique devient dominant pour la perte des radicaux et nous sommes dans des conditions de NO_x-saturées.

Un autre concept central pour la chimie de NO_x-COV est l'efficacité de production d'ozone (Liu et al., 1987; Lin et al., 1988; Trainer et al., 1993). L'efficacité de production d'ozone représente le rapport de la production de l'oxygène impair à la destruction des NO_x = (P(O₃+ NO₂)/L(NO_x)). Liu et al. (1987) et Lin et al. (1988) ont constaté que les efficacités de production sont les plus élevées pour de faibles concentrations de NO_x, même lorsqu'on suppose que COV augmente avec l'augmentation de NO_x. Lin et al. (1988) ont également constaté que les efficacités de production augmentent avec COV. Dans la théorie, les efficacités de production d'ozone sont données par le rapport entre les réactions (IV.4+IV.5) et (IV.12), c.-à-d. par le rapport de la somme des réactivités pondérées de COV et CO à NO_x, bien qu'ils soient également influencés par le taux de formation des nitrates organiques.

Des études récentes (Sillman et al, 1998; Ryerson et al, 1998; Nunnermacker et al, 1998; Trainer et al, 1995) estiment une efficacité de production d'ozone de 3-5 pendant des épisodes de pollution. Les caractéristiques du régime NO_x-saturé peuvent être expliquées en partie par la chimie des radicaux d'hydrogène impairs et en partie par l'efficacité de production de l'ozone. Dans le régime NO_x-saturé le taux de perte de NO_x est limité par la disponibilité des radicaux, de sorte que le taux de traitement chimique de NO_x n'augmente pas avec l'augmentation de NO_x. En même temps, l'accroissement des NO_x est associé à une faible efficacité de production d'ozone. Ces deux facteurs associés entraînent un taux inférieur de production d'ozone à mesure que NO_x augmente. Dans le régime NO_x-limité une augmentation des concentrations de NO_x est toujours associée à un taux absolu plus élevé de perte de NO_x, et par conséquent à la production accrue d'ozone. Le taux de production d'ozone est déterminé par le taux de perte de NO_x et de l'efficacité de production d'ozone.

Jaegle et al, (1998) ont décrit une séparation similaire entre les régimes photochimiques NO_x-limité et NO_x-saturés dans la troposphère libre. Cette séparation est associée aux taux relatifs de formation des peroxydes et de l'acide nitrique et d'autre part de l'intensité de la source des radicaux par rapport à celle des NO_x, comme décrits par Sillman et Kleinman pour la troposphère polluée. La source des radicaux excède la source des NO_x pour l'ensemble de la troposphère, de telle sorte que la capacité d'oxydation de la troposphère doit davantage transformer les NO_x imposé par des activités humaines. Pour cette raison, la troposphère est dans un état NO_x-limité plutôt que NO_x-saturé. Cependant les calculs des modèles suggèrent que l'ozone augmente avec celle des COV même en état de NO_x-limité dans la troposphère libre (Jaegle et al, 1998; Kanakidou et al, 1991), apparemment parce que la réaction (IV.1) démarrée par les hydrocarbures conduit à une plus grande formation d'ozone par le radical OH puis par la réaction (IV.3) démarrée par CO (Sillman, 1999) qui domine dans la troposphère

libre. L'ozone croît avec l'augmentation des COV dans les régimes NO_x-limité et NO_x-saturés dans la troposphère libre, la chimie NO_x-saturée se produit aux concentrations inférieures de NO_x dans la troposphère libre que dans des régions polluées (1 ppb ou plus dans la troposphère, 5-10 ppb ou plus dans des régions polluées) parce que la source radicale (conduite par moins de H₂O par la réaction (IV.8)) est inférieure.

IV.2- Amélioration de la modélisation chimique

Nous avons recherché l'amélioration de la modélisation chimique afin de réaliser un des objectifs de cette thèse, qui était la validation du mécanisme chimique MOCA2.2 sur une zone urbanisée et péri urbanisée. Bien que l'utilisation des grilles imbriquées dans les modélisations météorologiques soit courante, nous avons essayé de l'appliquer dans le cadre d'une imbrication *Two Way Nesting* sur les modélisations chimiques en couplage on-line avec un modèle météorologique. Ce travail est original et a fait l'objet d'une publication (Taghavi et al, 2003a). Nous allons montrer l'importance de l'utilisation de cette technique sur le domaine d'ESCOMPTE.

On montre que la présence de grilles imbriquées permet d'avoir des conditions aux limites pour les champs chimiques de la grille fille. Deux simulations ont été effectuées avec et sans l'utilisation de grilles imbriquées et les résultats ont été comparés aux observations au sol et en altitude. On constate que dans le cas de la POIO, où se présente un faible flux de nord (Mistral), les stations de surface situées près de la frontière de la grille fille comme Avignon, sont affectés dès le premier jour de simulation et on obtient une sous estimation par rapport à la simulation ayant une seule grille (Figures 8 et 9 de la publication). Cet impact se présente sur toutes les stations situées au centre et au sud de domaine pour les jours suivants. En altitude, sur les mesures aéroportées (figure 7 de la publication), on peut constater que, lorsque les polluants du nord sont arrivés sur le domaine, les cellules convectives, montrées dans le chapitre précédent, sont efficaces pour transporter verticalement les polluants dans le cas de l'utilisation des grilles imbriquées. Les simulations avec une seule grille sous estiment très nettement les concentrations en ozone, parce que l'ozone de la région lyonnaise venu par la canalisation de la vallée du Rhône, n'est pas là pour augmenter la concentration de la région ESCOMPTE. Cette étude a été publiée dans le journal d **Atmospheric Chemistry and Physics Discussions (ACPD)** et a été acceptée pour être publié dans le journal de **Atmospheric Chemistry and Physics (ACP)**.

Simulation of ozone production in a complex circulation region using nested grids

M. Taghavi, S. Cautenet, and G. Foret

Laboratoire de Météorologie Physique, OPGC-CNRS and Université Blaise Pascal, Aubière, France

Received: 2 February 2003 – Accepted: 4 June 2003 – Published: 25 July 2003

Correspondence to: M. Taghavi (M.Taghavi@opgc.univ-bpclermont.fr)

Abstract. During ESCOMPTE precampaign (June 15 to July 10, 2000), three days of intensive pollution (IOP0) have been observed and simulated. The comprehensive RAMS model, version 4.3, coupled on-line with a chemical module including 29 species, has been used to follow the chemistry of the zone polluted over southern France. This on-line method can be used because the code is paralleled and the SGI 3800 computer is very powerful. Two runs have been performed: run1 with one grid and run2 with two nested grids. The redistribution of simulated chemical species (ozone, carbon monoxide, sulphur dioxide and nitrogen oxides) was compared to aircraft measurements and surface stations. The 2-grid run has given substantially better results than the one-grid run only because the former takes the outer pollutants into account. This on-line method helps to explain dynamics and to retrieve the chemical species redistribution with a good agreement.

1 Introduction

During the last century, the atmospheric composition has been considerably modified by human activities. One of the consequences of this change is the high ozone concentrations observed in polluted zones. In the recent years, strong ozone concentrations have been reported in the south of France, where there are strong anthropogenic and biogenic emissions. The ESCOMPTE campaign (2000–2001) took place in this region (Cros et al., 2003). High concentrations of ozone and other photochemical oxidants have an impact on lung functions of human beings (Bates (1995a); Bates (1995b)) and are recognized as having negative effects on public health, crops and forests (Taylor (1969); Heck et al. (1984)). In order to study the transport of pollutants and their chemistry regime, it is hence very important to as-

sess the ozone production: for instance, the Current Directive 92/72/EEC for the European Union requires that the member states set and continually monitor the O₃ thresholds, with emphasis on the excess concentrations cases (Gangoiti et al., 2002). A numerical model, describing meteorology, pollutants emission, transport, chemistry and deposition is a powerful tool to solve the problem and to allow effective control strategies. First, the model must undergo a validation step using reliable observational data, which ensures to some extent its accuracy. In fact, some uncertainty is inevitable, because there are more than 3000 different chemical species in the atmosphere, involving a complex chemistry. For instance, the explicit oxidation mechanism of even one organic compound includes hundreds of reactions. Hence, the amount of reactions quickly becomes unmanageable for a VOC-NO_x mixture when the number of organics increases. An example of complex explicit mechanism is the NCAR gas-phase master mechanism (Madronich and Calvert, 1989), with 4930 chemical reactions. Thus, there are three major problems: (i) a large CPU time is required for an explicit solution; (ii) the wide range covered by the chemical timescales leads to highly stiff systems, which requires specific solvers (Djouad and Sportisse, 2002); (iii), as a general rule, kinetic coefficients and emission rates are not available for each organic species, but for a whole group. As a result, these explicit chemical mechanisms are not used in pollution studies, except to describe the inorganic NO_x chemistry, which is relatively straightforward. Condensed schemes are therefore recommended (Aumont et al., 1996). One way to reduce (condense) the problem is the lumping method. In this method, the organics with similar chemical reaction properties are grouped, as non-aromatic VOCs (Jenkin et al., 1997) or alkanes (Wang et al., 1998). Two approaches have been used in developing condensed mechanisms for the organic compounds. The first one groups these species according to their traditional classifications, e.g., alkanes, alkenes, and aromatics. The second one ranks the organic compounds in terms

Correspondence to: M. Taghavi (M.Taghavi@opgc.univ-bpclermont.fr)

of bonding (carbon bond mechanism) (Finlayson-Pitts and Jr., 2000). There are different methods to use the chemical model. It can be used as a 0 dimension or box model (Schere and Demerjian (1978); Kuhn et al. (1998)). However, Eulerian models must be used to assess realistic pollutant transport and concentrations:

- Urban-scale models : the UAM (Urban Airshed Model: Reynolds et al. (1973); Tesche and McNally (1991)), the CIT model (California Institute of Technology model: McRae et al. (1982b); Russell et al. (1988)), and the SMOG model (Surface Meteorology and Ozone Generation model; Lu et al. (1997a); Lu et al. (1997b)) where the horizontal size of each grid is of the order of a few kilometers, e.g., 4 or 5 km square grids with the vertical height split into 5-20 layers of increasing thickness beginning at ground level.
- Regional-scale models: RADM (Regional Acid Deposition Model: Chang et al. (1987)), ADOM (Acid Deposition and Oxidant Model: Venkatram et al. (1988)), STEM II (Sulfur Transport Eulerian Model: Carmichael et al. (1991)), RTM-III (Regional Transport Model III: Liu et al. (1984)), LIRAQ (Livermore Regional Air Quality Model: MacCracken et al. (1978)), CALGRO (Yamartino et al., 1992), and ROM (Regional Oxidant Model: Lamb (1983)), the scale is of the order of 15-130 km. The number and size of the vertical layers can vary from 6 to 30.

The chemistry models can be coupled either online or offline with the meteorological models. In offline case, care must be taken of the frequency of the sampling rate of the meteorological fields as regards transport. For example, a 3-hour frequency is used in the offline coupling of LOTOS model (VanLoon et al., 2000) whereas a 1-hour frequency is taken for TVM (meteorological model) coupled off line with the chemistry model RACM (Thunis and Cuvelier, 2000). It is evident that, in these cases, we cannot have a good accuracy of the species transport, because the meteorological data are averaged in time. The emission rates and the transport play an important role in the chemistry regime for the meso-scale studies, specially in case of complex circulation. For instance, if we use a 3-hourly meteorological dataset, a problem arises during the afternoon, as at 16 LST, may occur a sea breeze regime, whereas at 19 LST, a land breeze onset may already be effective. On the other hand, the offline method is useful in large scale studies.

The aim of this study is to find a chemistry/transport model, which reconciles two antagonistic requirements: a minimum CPU time and a maximum accuracy. To this end, it is certainly better to use an online coupling between the meteorological and the photochemical models, since computers as SGI 3800 are very powerful and fast for parallel codes. In this modelling, the RAMS (Regional Atmospheric Modelling Systems) meso-scale model (Cotton et al., 2003) has

been coupled online with the MOCA 2.2 chemical model (Aumont et al., 1996). It is named RAMS-chemistry. We have focussed on transport, dynamical impact and chemical redistribution from primary or secondary species.

In this paper, we first remind briefly the context of ESCOMPTE precampaign. We display the emission database and the modelling. We examine the meteorological conditions during the pollution period and compare the modelled meteorological fields to the observed values (surface station and aircraft measurements). Then, we describe the chemistry mechanism (code MOCA 2.2) coupled online with RAMS. Finally, we assess the numerical results of ozone, monoxide of carbon, nitrogen oxides and sulfur dioxide in comparison with aircraft and surface observations, and we discuss their redistribution.

2 ESCOMPTE pre-campaign

The ESCOMPTE pre-campaign was conducted in June and July of 2000 in south-eastern France (<http://medias.obs-mip.fr/escomppte/maquette/pagef.php3>). During the ESCOMPTE precampaign (2000), an Intensive Observed Period (IOP0) was performed in June 29, 30 and July 01. For these three days, we have results of meteorological and chemical surface stations and also aircraft measurements. For the modelling group, the aim of this pre-campaign was to perform runs in order to locate flight plans and surface stations. The pre-campaign includes chemical and meteorological data, which are required to run and validate the models. We have: (i) the anthropogenic and biogenic emissions with two different resolutions (15 km and 3 km); (ii) information about meteorological situation during the pollution period; (iii) surface measurement (fix and mobile stations) for both meteorological and chemical data; (iv) airborne measurements (aircraft and balloon). Two aircrafts were operated: the PIPER AZTEC of Météo France and the ARAT of INSU (Institut National des Sciences de l'Univers), with several flights during the studied days. Some of the main objectives of the ESCOMPTE campaign are to answer the following questions: 1- What is the respective role of the various dynamic and chemical mechanisms on the pollutants redistribution ? 2- How to take the urban emissions in the regional or global models into account? 3- Can we develop an operational forecast of pollution period? 4- What strategy is necessary to develop in order to reduce the pollutants concentration ?

3 Meteorological modelling description

The RAMS (Regional Atmospheric modelling System; <http://www.atmet.com>; Cotton et al. (2003)) model is a parallel mesoscale model allowing the simulation of meteorological fields with horizontal scale spanning from one kilometer to about one hundred kilometers. It includes nested

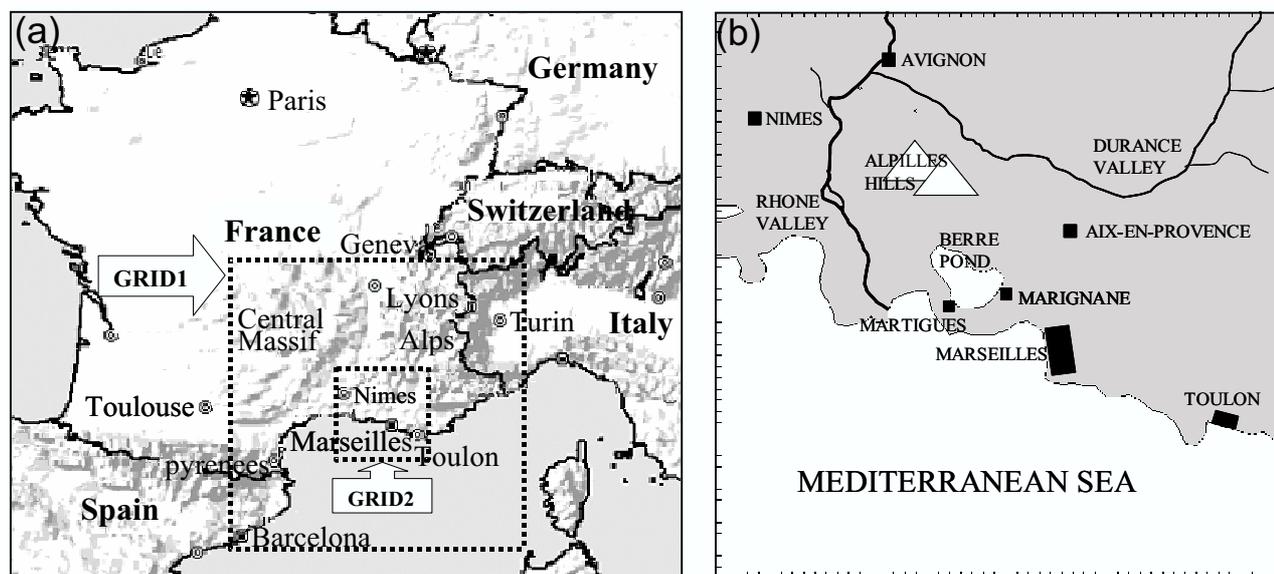


Fig. 1. (a) Geographical map and configuration of nested grids, grid 2 represents the ESCOMPTE domain; (b) A zoom on grid 2 with location of some observation stations.

grids. Many investigations on regional pollution were previously made using RAMS model (Lyons et al. (1995); Milan et al. (1997); Edy and Cautenet (1998); Cautenet et al. (1999); Poulet et al. (2003)).

Simulations have been performed using two nested grids simultaneously to take the synoptic and local circulations into account. In a simulation with 2 nested grids, each grid covering a particular domain size (Figure 1), a two-way interactive process is involved. Grid1 covered southern France, a part of the Northern Spain and a part of the northern Italy, resulting in 36 square meshes of 15km. Grid2 represents the ESCOMPTE domain. It has 52 meshes of 3km. We used a time step of 10 seconds and 35 levels in the vertical dimension (the same in both grids) with 15 levels from surface to 1500m, which ensured a fine description of the boundary layer. The coarse domain included the Lyons, Turin and Barcelona cities to the north, east and southwest respectively. Moreover, it comprised the Pyrenees, Massif Central and Alps mountains. This topography introduces a complex circulation associated with sea breeze. In the fine grid (Grid2), we have Marseilles, Toulon and Avignon cities with the Alpilles hills, the Durance and Rhone valleys. The meteorological fields have been initialized and nudged every 6 hours by ECMWF (European center for Medium-Range Weather Forecasts) database. The simulation started on the June 28th, 2000 at 00 UTC and ends on July the 1st, 2000 at 2100 UTC. The soil vegetation model included 30 classes issued from USGS (United States Geophysical Survey) at a 1km resolution. The patches configuration allowed us to keep the 1 km information. The topography at a 1km resolution was also provided by USGS. The sea surface temperature was obtained from satellite and OOM (Observatoire

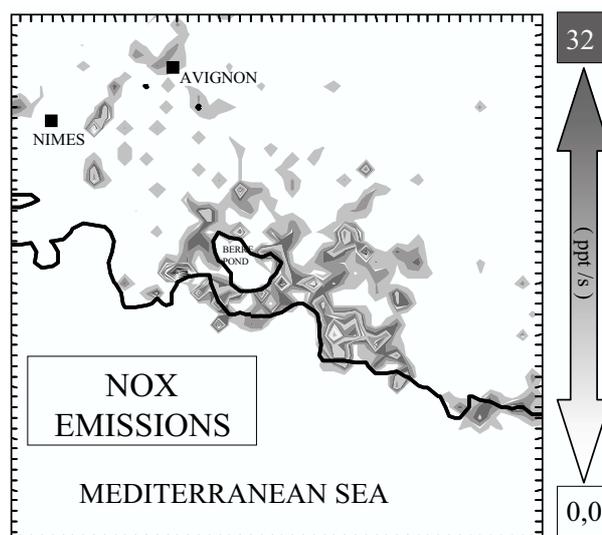


Fig. 2. NO_x emission map for an ordinary day of July at 12 UTC

d'Océanographie de Marseille) for the shore data.

4 Emissions

4.1 Anthropogenic emissions

A key point of the atmospheric chemistry is the influence of human activity on emissions. For example, humans have doubled the natural rate of N fixation (Vitousek et al., 1997). In fact, one of the important reasons to study atmospheric chemistry in southeastern France is the high anthropogenic

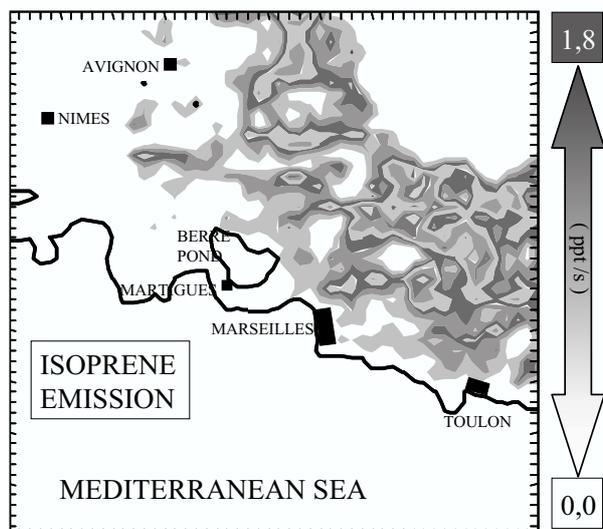


Fig. 3. Isoprene emission map for an ordinary day of July at 12 UTC

emission due to many industrial factories, a great number of oil refineries, EDF (France Electricity) power stations and other large factories such as "Air Liquide" situated in the industrial zone of Fos-Sur-Mer or Berre Pond. In addition, highways and the polluted cities such as Marseilles and Toulon, in shore, and Aix-en-Provence or Avignon, inland, increase the emissions. These high anthropogenic emissions are illustrated in Figure 2, where the NO_x emissions are shown at 1200 UTC for an ordinary day of July.

4.2 Biogenic emission

This region is covered by a Mediterranean vegetation, providing important biogenic emission. In France, the results of experimental data indicate a periodical annual evolution of biogenic emissions characterized by a rapid growth from March up to a maximum reached in July-August, followed by a net decrease in September-October. Isoprene appears as the most abundant species (Simon et al., 2001). This compound is mainly due to Holm oak. In Figure 3, we can see the isoprene emission at 1200 UTC for an ordinary day of July.

4.3 Database

For Grid1 with a resolution of 15km, the emissions were obtained from GENEMIS database. For the fine domain (Grid2), we used an inventory derived from GENEMIS and additional local data gathered in the ESCOMPTE region (<http://medias.obs-mip.fr:8000/escomppte>). For both grids, emissions were calculated from data of 1994 for anthropogenic emission and 1997 for biogenic emission. Hourly values were used for each mesh and for two days: July 5 and 6, 1994 for anthropogenic

sources and July 21 and 22, 1997 for biogenic sources. A new and more realistic inventory with a high resolution (1 km) specially dedicated to the ESCOMPTE experiment will be available in 2003.

5 Two-way nesting

In mesoscale chemical and meteorological modelling, the boundary conditions must be specified. Modelling can be strongly influenced by them, especially, when there is a strong flow crossing the borders. For chemistry/transport models, the existence of a high emission near the study domain can not be insignificant because a strong wind will transport a large amount of the emitted pollutants from the outside source inside modelling domain. The boundary conditions can be provided by global modelling results, which generally have a resolution of about 50 x 50 km or more. This crude resolution is not sufficient to obtain realistic results with respect to chemistry. In our study, we want to realistically retrieve the chemical fields in Grid2. In fact, the coarse grid or Grid1 (15 x 15 km) was used to provide boundary values for the fine grid or Grid2 (3 x 3 km). Two-way nesting is very important to obtain realistic simulations because at each time step, the fine grid (Grid2) provides its data to the coarse (mother) grid, which in turn forces the fine (daughter) grid. The two grids communicate with each other in a two-way scheme described in Clark and Farley (1984). In particular, such a scheme allows emissions far outside Grid 2 to influence pollutant budget within this Grid2. For instance, we take the emissions of pollutants from Lyons, Barcelona and Turin cities into account. The pollutants from Lyons are channeled in the Rhone valley and have an impact on the ozone production in the ESCOMPTE domain.

6 High-resolution meteorological simulation: comparison with the surface data and airborne measurements

The redistribution of pollutants and therefore the ozone production is very dependent on meteorological conditions. The observed meteorological situation during IOP0 is summarized in Table 1. Generally, it is not cloudy. On June 29, the west-northwesterly wind prevailed; on June 30, a sea breeze developed; finally, on July 1, the sea breeze was intensified by a southwesterly flow.

To validate the simulated meteorological fields, we compare the model results to surface observations and airborne measurements. Some of these comparisons are shown in Figure 4 and 5. To compare the model issues with the station data, we use the statistical method (Cai and Steyn, 2000). In fact, we have many stations: about 5 for each of the 4 towns in the model area (Marseilles, Toulon, Marignane and Avignon). These data can be strongly influenced by local effects. Marseilles and Toulon are located near the shore; Marignane lies in the center of the domain; Avignon is the furthest in

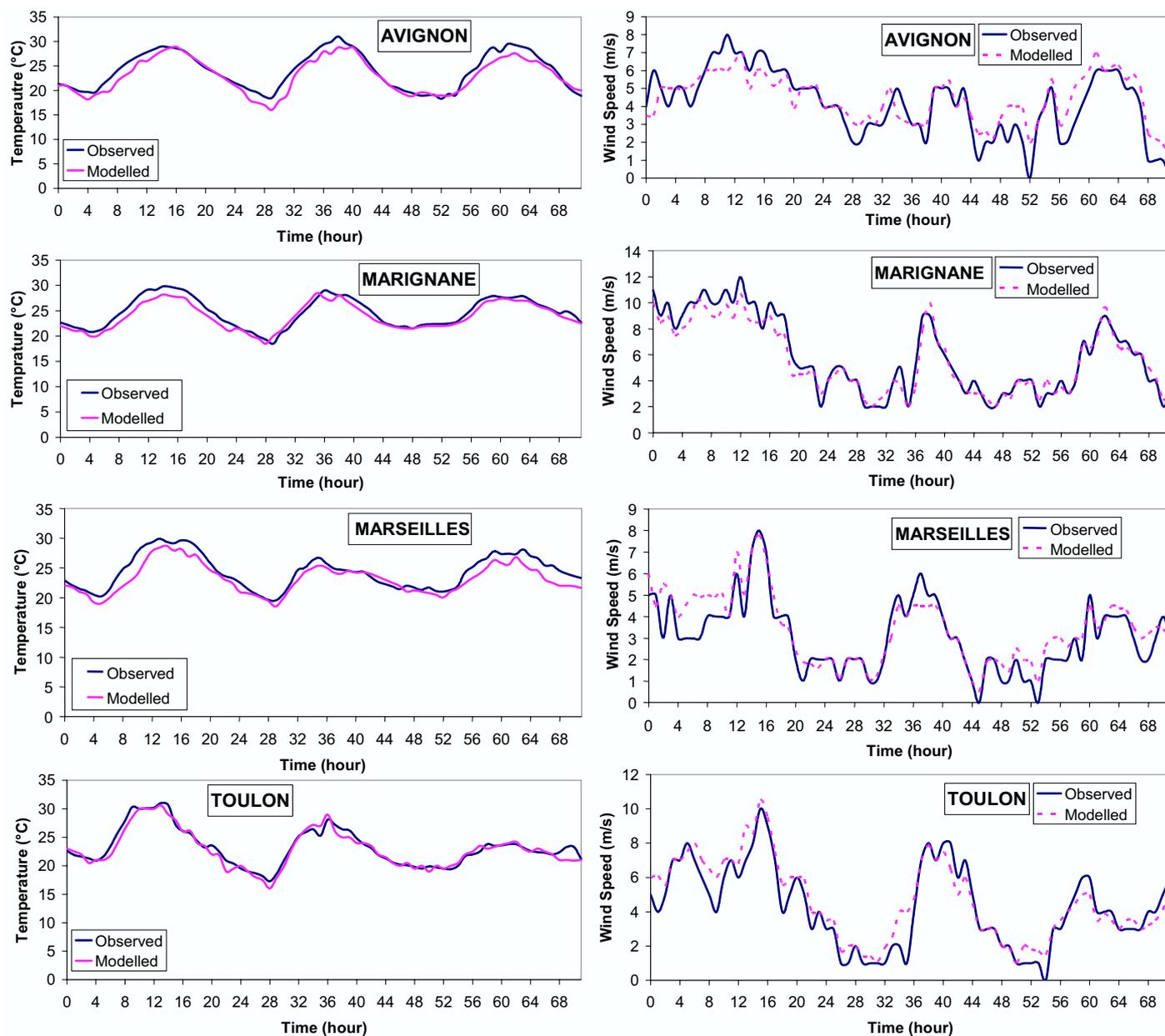


Fig. 4. Time variation (UTC) of temperature and wind speed from June 29 - July 01, 2000 for 4 cities, Avignon inland in north of ESCOMPTE domain, Marignane in center, Marseilles and Toulon in shore.

Table 1. Meteorological situation during IOP0.

DATE	SITUATION IN THE UPPER AIR	SITUATION AT SURFACE	CLOUDY COVERAGE	TEMPERATURE		WIND
				minimum	maximum	
June 29, 2000	Strong westerly or northwesterly flow	Regime of prevailing northwesterly flow	Partly cloudy	between 18°C and 20°C	between 29°C and 31°C	Mistral, moderate to strong, exceeding 12 m/s locally
June 30, 2000	Persistence of west-northwesterly flow	shallow low	Clear to partly cloudy	between 14°C and 19°C	around 30°C	In the early hours, the wind is directed to the northwest sector, weak to moderate (6 m/s in Arles, 4 m/s in Marignane, 5 m/s in Istres), then it turns to the west sector strengthening to 5 - 7 m/s. After 18:00 UTC it weakens, its orientation oscillates between the southwest and the southeast
July 01, 2000	Progressive gap of the ridge of height eastward, forming (training) of a minimum on the near Atlantic ocean generating a southwesterly flow	Little active front over the western country	Very cloudy the morning clearing up early in the afternoon	between 16°C and 20°C	between 25°C and 30°C	Regime of breezes. In the morning, the wind is weak (<4 m/s) In Marignane the breeze begins at about 08:00 UTC from the southwest-south and blowing at a speed of 5 to 8 m/s at 19:00 UTC. Elsewhere (Arles, Sainte Marie, Marseilles) it turns to the southeast south direction.

land. The station data referred to as "hourly" have been averaged over the last 15 minutes. In Figure 4, we note that the observed and modelled temperature for the three days of IOP0 are in good agreement for all surface stations, the same for the wind speed in Figure 4.

With respect to airborne data (Figures 5 and 6), potential temperature, specific humidity, wind speed and direction measurements are in good agreement with modelled values. However, we note some small differences for potential temperature, wind speed and direction around 51500s and 54500s (Figure 5). In these times AZTEC is situated in low level (Figure 7) where the altitude is drawn versus time. For ARAT, wind speed and direction are different around 38500s (Figure 6) in free troposphere (Figure 7), and for wind direction and specific humidity around 45000s (Figure 6) in low levels (Figure 7 for ARAT). Finally, we can say that the simulated meteorological fields are very realistic and then they cannot involve a bias for chemical fields.

7 Chemical model

The mechanism used is given in Annex 1. It is a condensed version of MOCA 2.2 (Aumont et al., 1996). It takes 29

species and 64 reactions into account. It can account for the main processes driving the ozone concentration in a polluted zone. The hydroperoxyl/ aldehyde conversion allows to describe the degradation of the various organic compounds from the anthropogenic emissions. The main 3 ways of isoprene oxidation (strongly emitted by Mediterranean forest) are taken into account. Our chemical module calculates PAN concentration, which allows to represent NO_y transport. Lastly, the model includes NO₃/N₂O₅ equilibrium for night chemistry.

The chemical solver is the QSSA or Quasi Steady State Approximation (Hesstvedt et al., 1978), faster than matrix solver like Gear solver (Gear, 1971), but quite accurate (Shieh et al. (1988); Dabdud and Seinfeld (1995); Saylor and Ford (1995)). At each time step and each mesh, chemical rates are evaluated from temperature and pressure calculated in the RAMS model. Photolysis rates are estimated from Madronich model (Madronich, 1987), which takes solar incident radiation and molecular properties of atmospheric gases into account. These rates are updated every five minutes. Actinic fluxes are estimated by delta-Eddington approximation (Joseph et al. (1976); Wiscombe (1997)). Three photolysis reactions, not integrated in the Madronich's program, have

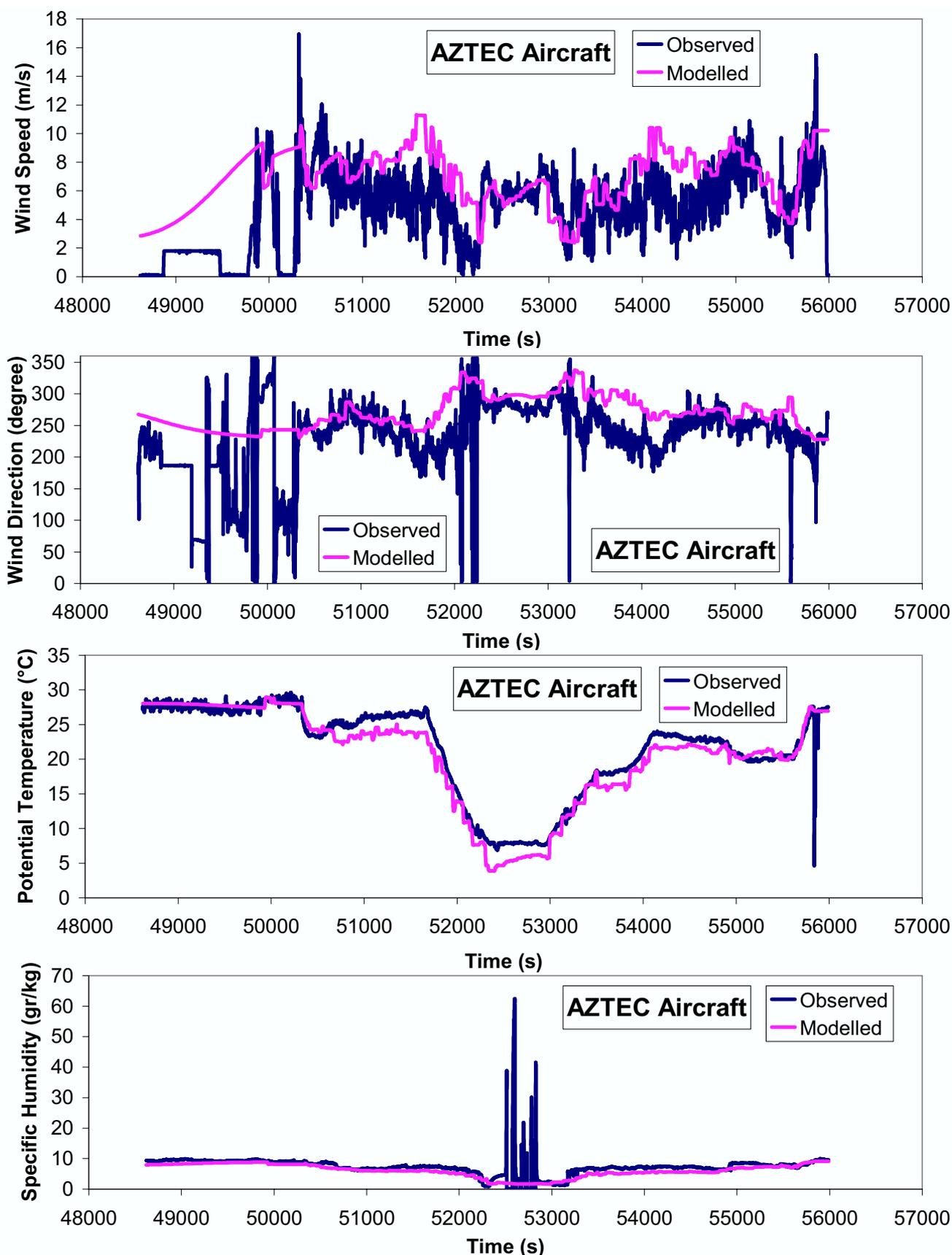


Fig. 5. Wind speed and direction, potential temperature and specific humidity for AZTEC plane (flight of June 30, 2000 at 13:59 UTC)

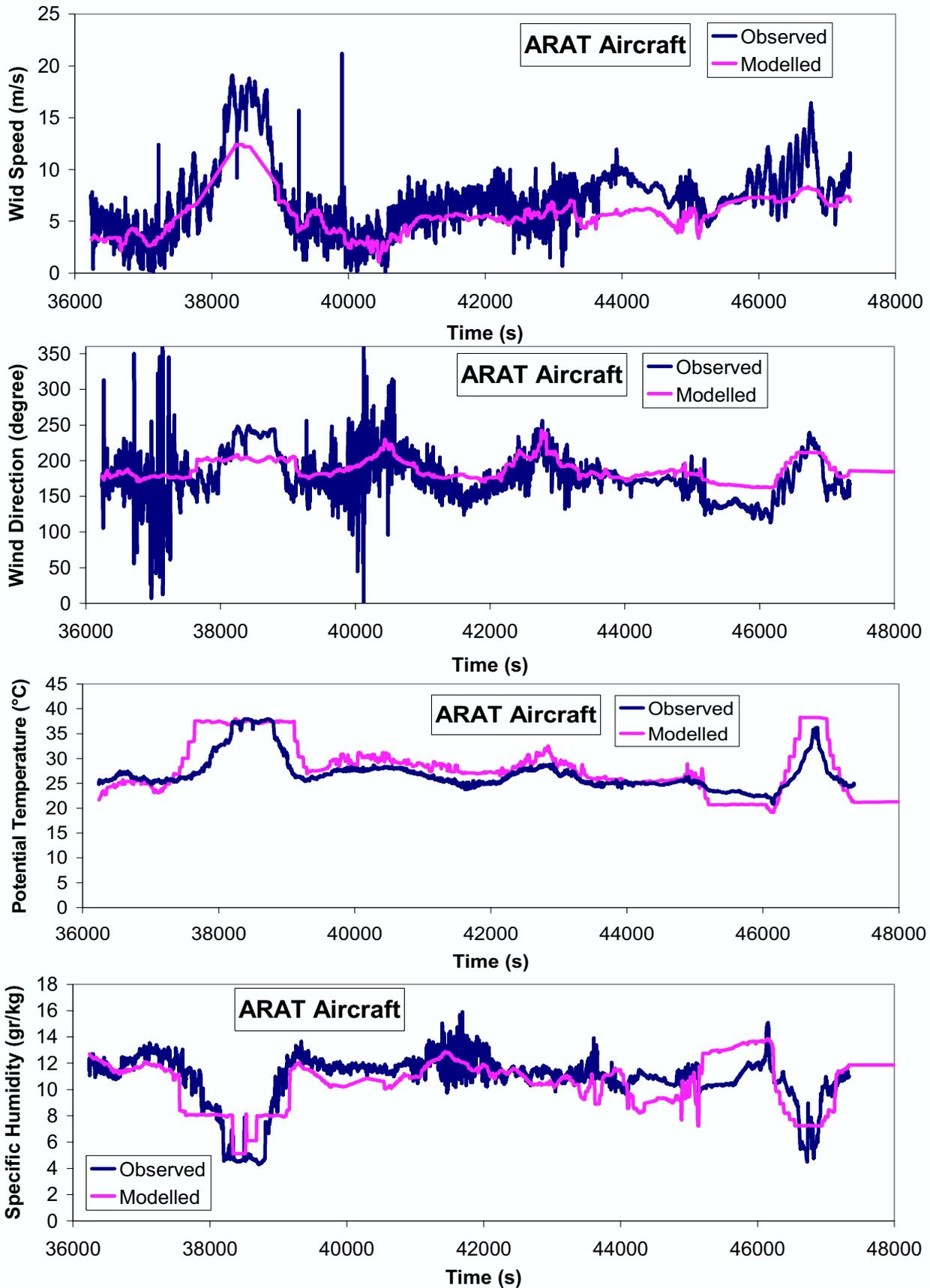


Fig. 6. Wind speed and direction, potential temperature and specific humidity for ARAT plane (flight of July 01, 2000 at 10:03 UTC)

been added in this model: the quantum yield and the absorption efficiency (Aumont et al., 1996).

To reduce the CPU time calculation, we have developed an original way of chemical constant rate evaluation (Poulet et al., 2003). Chemical kinetic coefficients are calculated from a complex expression dependent on temperature and pressure. Since temperature and pressure vary at every mesh, calculations are made for each of them and therefore require a very long time. In our scheme, a lookup table has been created for each chemical kinetic coefficient before simulation for all the temperature and pressure conditions in the atmosphere. So, during the run, RAMS-chemistry merely chooses the coefficient fitted to the meteorological conditions in the lookup table. The interest of such a method with a parallelized code is that CPU time is short: it allows to strongly reduce the simulation time (for SGI 3800 computer : 1h30 CPU for a simulated day).

8 Chemical results

In the ESCOMPTE region, the emissions are mainly anthropogenic and are located along shore (Figure 2), and specially around the Berre Pond, but there are also biogenic emissions from the forest inland (Figure 3). In the troposphere, ozone production is dependent on many parameters such as: dynamical conditions, radiation intensity, NO_x/VOC ratio, etc.. It is sensitive to VOC and NO_x emissions (Weimin et al., 1997). The maximum in ozone occurs when there is a high concentration in VOC and NO_x that can be due to emission or transport (Dodge (1997b); Finlayson-Pitts and Jr. (1993)). The sensitivity of ozone production to each of these parameters is variable. If one of these parameters is not taken into account correctly, an error in ozone concentration occurs.

Two runs are performed: run1 with one grid, Grid 2 which represents the ESCOMPTE region; run2 with two nested grids (Grid1 and Grid2). To evaluate the skill of RAMS-chemistry model, we compare the aircraft and surface stations measurements with numerical results. During the run, at each time step, the coordinates of aircraft (altitude, latitude, longitude) are noted and the fitted numerical values are written in a file. Then the modelled values correspond exactly to the same place and the same time than aircraft.

8.1 Aircraft measurements

Figure 7 presents the comparisons between model results and airborne data during IOPO for run1 and run2. For both flights (AZTEC and ARAT), the modelled ozone curve follows the observed ozone curve (same maximum and minimum), with, however, a weak, but systematic underestimation in model values. We think this difference could originate from two reasons: (i) our chemical model includes the main species, but not all, and (ii) errors can exist in emissions rates data and in sources locations. Recall that these emissions were

calculated from a 1994 database for anthropogenic emissions and from a 1997 file for biogenic emissions. When the aircraft altitude is high, i.e. when the measurements are performed within the free troposphere, we note weak ozone values. For the lower levels, near the ground, the values are generally high, except for the landing. Planes took off and landed at Marignane airport, which is very close to high emissions sources of NO_x and they flew at low altitudes over smokestacks. In this case, where there are a high NO_x concentrations, the ozone titration is very probable, especially in the absence of sufficient amount of VOC, or in other term, when the NO_x/VOC ratio is not favorable (Finlayson-Pitts and Jr., 2000). However, we remark that for both flights, run2 which takes the pollution from Grid1 into account gives better results than run1.

8.2 Surface stations

For some surface stations, the numerical results are compared with the ozone, carbon monoxide, sulphur dioxide and nitrogen oxide observations. Figure 8 shows that for four stations, the ozone results of run2 follow better the observations than run1. In Avignon, town located to the north of Grid2 (Figure 1), on 29 and 30 June (0100 UTC to 4800 UTC), the ozone values are higher than on July 1 (4800 UTC to 7200 UTC) (Figure 8). On the 29th of June, the values are above 70 ppb because of transport of pollutants from northern areas. On the contrary, in Marignane, Toulon and Marseilles, towns located near shore (Figure 1), the maxima of ozone are found for June 30. During this day, the wind is weak and the sea breeze is well developed, we have a maximum of 80 ppb at Toulon and 70 ppb at Marignane. In Figure 9, for two stations (Marseilles and Aix), the NO_x measurements are slightly different from numerical results for both runs. Again, we note that run2 is always better than run1. The observations show that the NO_x are limited only at Aix on June 29. The same occurs at Aix and Marseilles on July 1 (which is a Saturday). The NO_x levels are very strong for both towns on June 30 which is a Friday (a day of departure for summer holidays). In Figure 9, we can see the CO variations for the three days. The levels are high, particularly on June 30 and July 1. The numerical results are better the first day (where the traffic is regular) than the next days. In Figure 9 we display the time evolution of the SO₂ concentration for two stations (Aix and Avignon). In Aix, there is a local SO₂ emission. In Avignon, the levels are low, except on the last day because of synoptic transport (Southerly flow). For both cases, run2 is slightly better than run1.

We have examined four compounds during three days, and each of them has a different time evolution due to their differences in nature: ozone is a secondary pollutant; CO is an inert tracer; NO_x is a primary pollutant and is driven by photochemistry; finally, SO₂ is a primary pollutant.

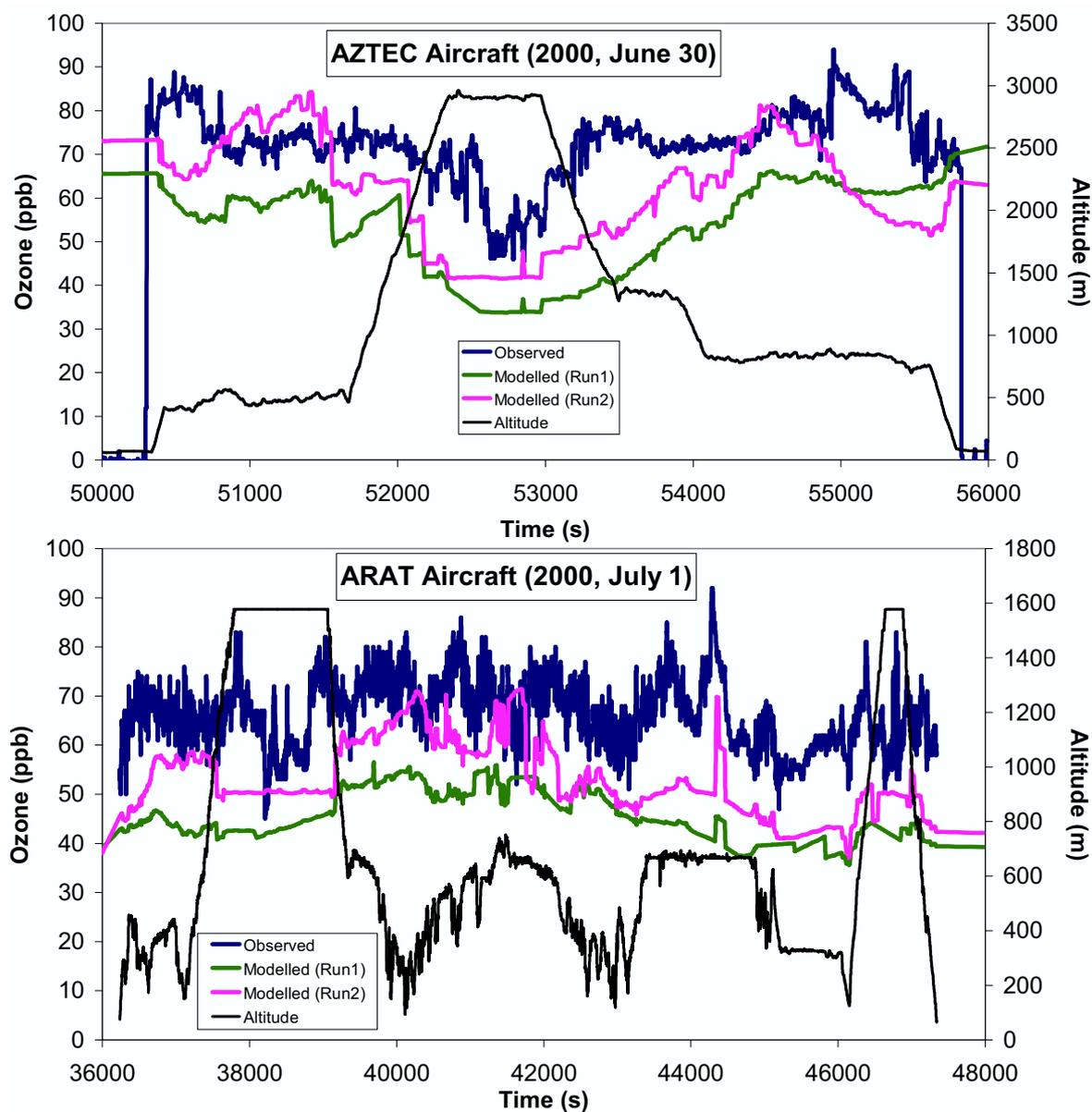


Fig. 7. Ozone concentration, observed with AZTEC plane (June 30, 2000) and ARAT plane (July 01, 2000), and modelled using only one grid (Run1) and using two nested grids (Run2)

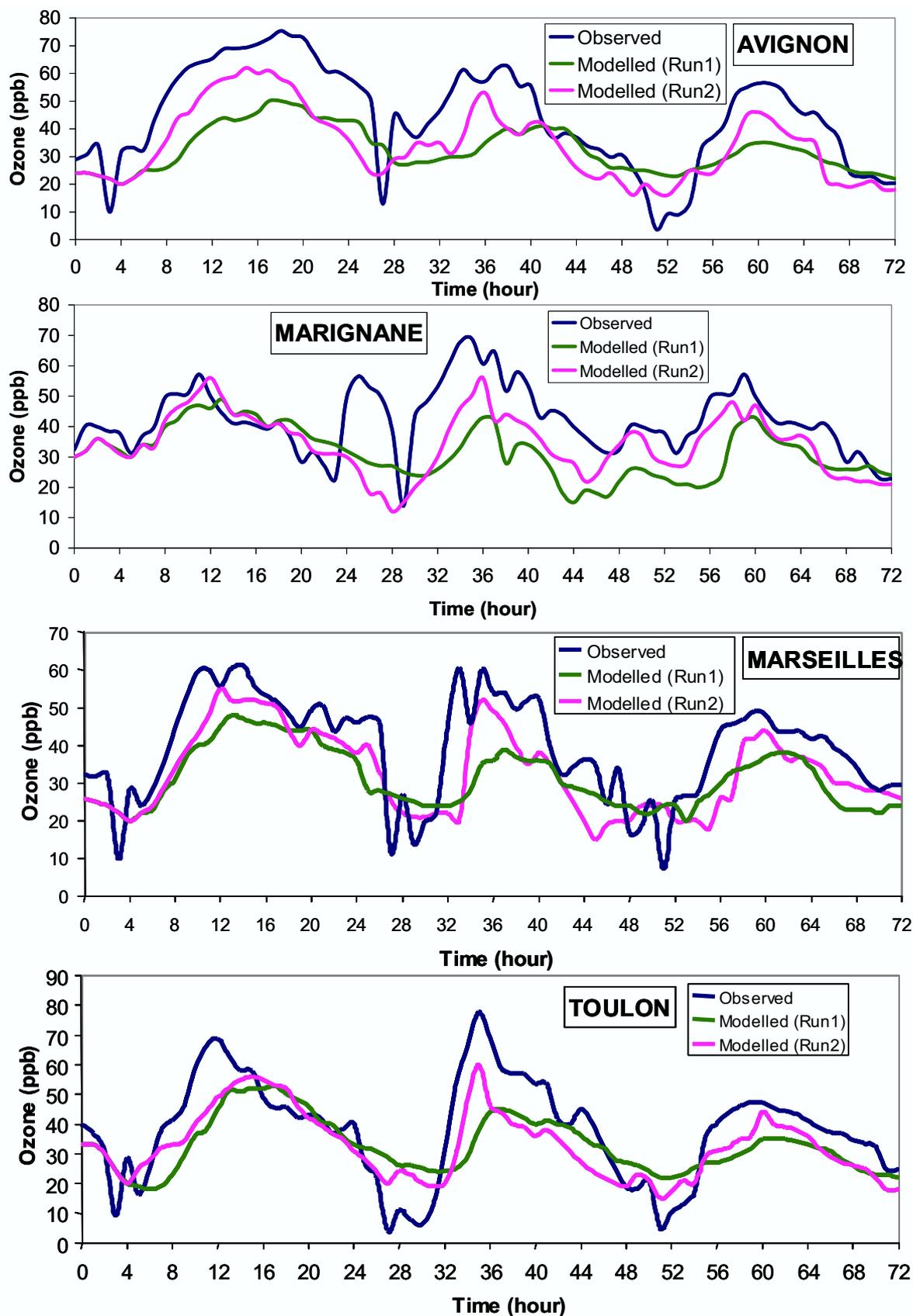


Fig. 8. Time variation (UTC) of observed and modelled (Run1 and Run2) ozone concentration (ppb) from June 29 - July 01, 2000 for 4 cities: Avignon inland in north of ESCOMPTE domain, Marignane in center, Marseilles and Toulon in shore.

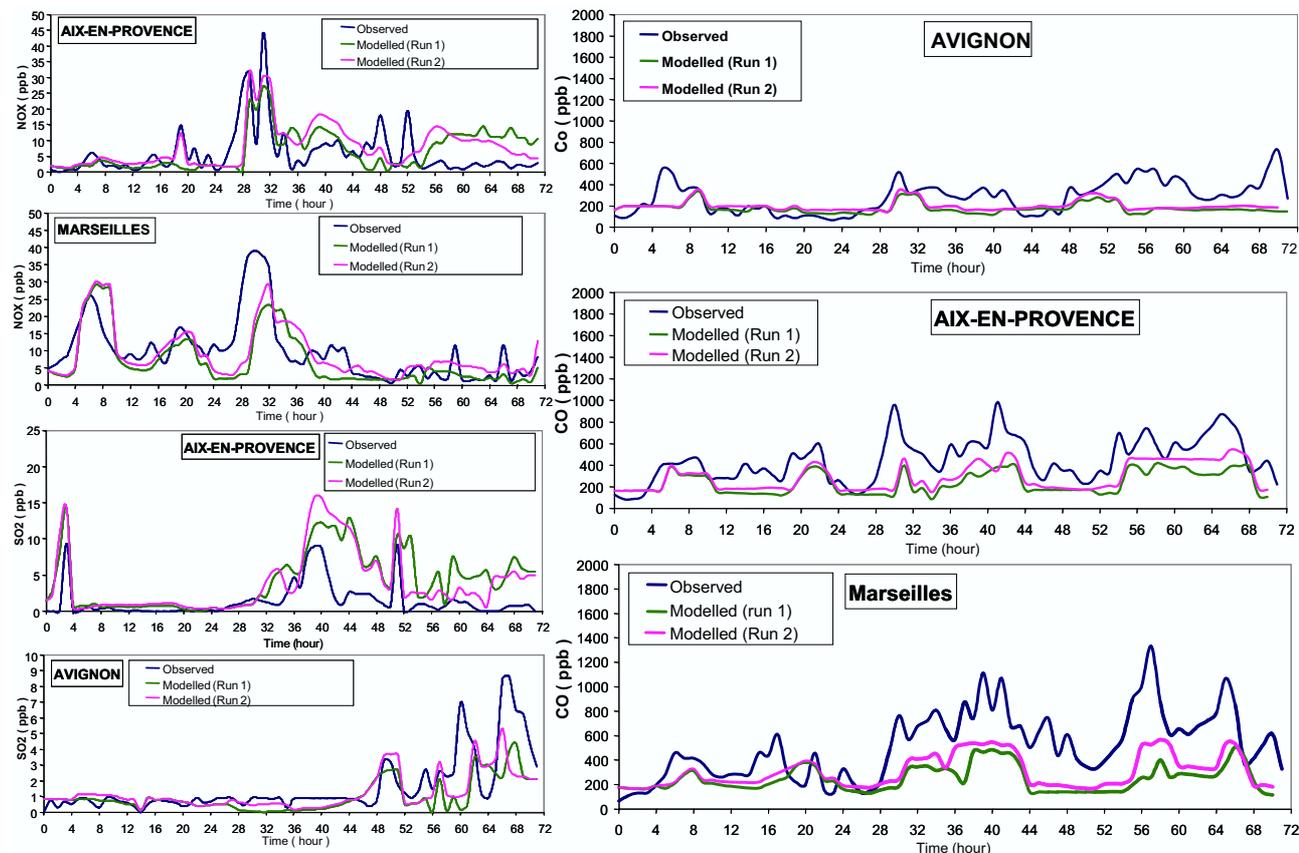


Fig. 9. Time variation (UTC) of observed and modelled (Run1 and Run2) NO_x, SO₂ and CO concentration (ppb) from June 29 - July 01, 2000 for 3 cities: Avignon inland in north of ESCOMPTE domain, Aix-en-Provence close to center and Marseilles in shore.

8.3 Discussion

For the four stations of Marignane, Marseilles, Toulon and Avignon, and during the three days of IOP0, we have an ozone peak every day, in spite of the fact that the meteorological and chemistry regimes are very different. The first day (Thursday, the 29th of June) is a normal day as regards emissions, because the levels of CO, SO₂ and NO_x concentrations are not very high (Figure 9, from 0000 to 2400 UTC). The sea breeze is weak and is associated with a northerly synoptic flow (Mistral). The ozone production is more important in Avignon than in the other cities because the channelling along the Rhone valley brings the pollutants from the north region. In this case, the impact of Lyons city must be taken into account and this is the reason, for which run2 is better than run1. For this day, in Figure 10, we can see that the maximum in ozone at 0900 UTC in Grid 2 is due to the northerly flow which transports the pollutants along the Rhone valley.

The second day (June 30), the traffic is very important because it is the departure of summer holidays, so that the emissions are wrong because they refer to a normal day. We can see in Figure 9, from 2400 to 4800 UTC, that the high levels of NO_x and CO are not retrieved by either run1 or run2. On

the contrary, the SO₂ concentration is well retrieved. We are in the case where the inventory is not adapted for NO_x and CO. During this day, the northerly wind is weak and the sea breeze is well developed. Photochemistry is active and ozone peaks are higher near the shore (Marignane, Marseilles and Toulon) than inland (Avignon).

On the third day (July 1), we can see in Figure 9, from 4800 to 7200 UTC, that the CO concentration is still high because it is an inert gas, and, moreover, the wind is weak and therefore the diffusion is not efficient. During this day (Saturday), the traffic is less important than during the previous day. The sea breeze is associated with a weak southwesterly wind. The photochemistry is active and we have an ozone production with limited NO_x (Dodge (1997b); Finlayson-Pitts and Jr. (1993)). We remark that SO₂ concentration is higher in Avignon than during the previous days at this same place, where there is no emission, because of the southwesterly flow.

Although the June 30 and the July 1 present different chemistry and meteorological conditions, the ozone values are fairly retrieved in both the mixed boundary layer and the free troposphere (Figure 7).

Throughout this study, the numerical results from run2 ex-

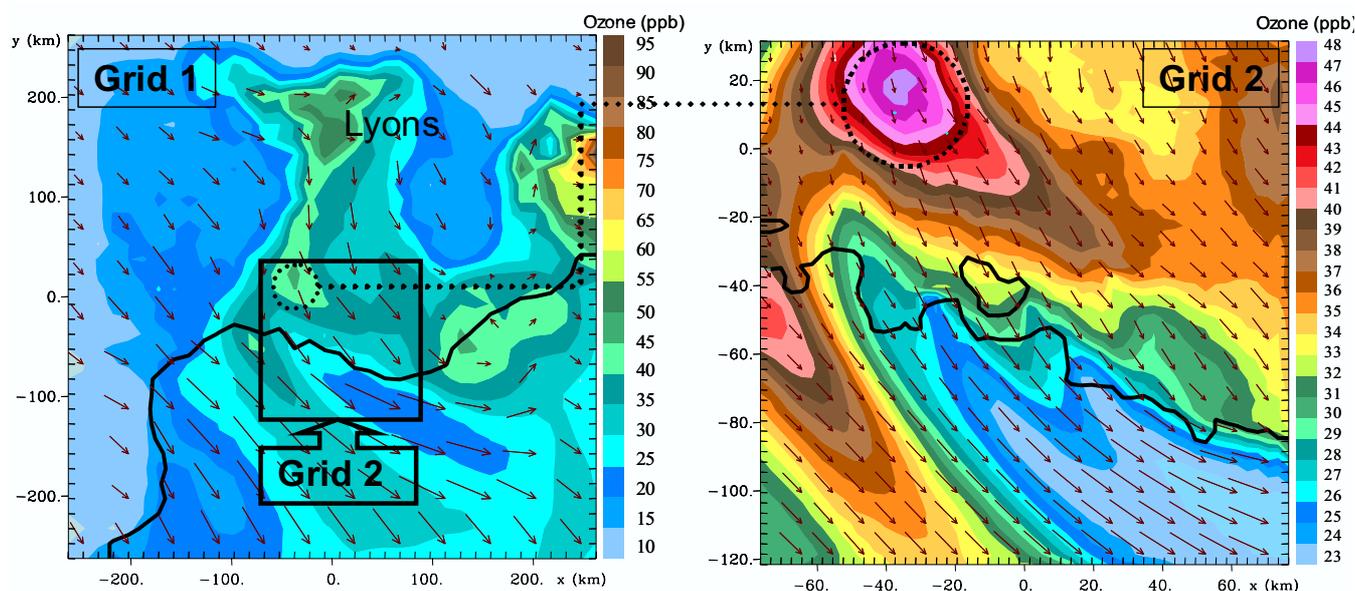


Fig. 10. Ozone concentration (ppb) and Wind speed (ms^{-1}) - Left: Grid 1, Right: Grid 2; June 29, 2000 at 9:00 UTC

plain better the redistribution of chemical species than those from run1. However, this method is more relevant to retrieve the ozone concentration, which is a secondary species than the concentration of primary compounds like NO_x or SO_2 in a polluted region. We have remarked that the emission inventory has a strong impact for the species locally emitted. Further investigation using the measurements of the campaign in 2001, will compare the results obtained from this inventory and a new one specially built for the ESCOMPTE experiment.

9 Conclusions

RAMS-Chemistry, the RAMS code coupled online with a chemistry model (MOCA 2.2), including 29 species, allows to retrieve the main maxima of ozone and to follow the photochemistry of a polluted zone. In the view of saving CPU time, the chemical kinetic coefficients and photolysis rates are precalculated into look up tables. The CPU time is 1H30 on SGI 3800 computer for a simulated day over the ESCOMPTE domain. Two runs are performed. Run1 with one grid and run2 with two nested grids. The simulated meteorological fields (wind, temperature, humidity)

and ozone redistribution are compared with aircraft measurements and four surface stations during IOP0. Primary species like carbon monoxide, nitrogen oxides and sulfur dioxide are investigated in several stations. The 2-grid run looks substantially better than the one grid run because the former takes the outer pollutants into account. However, this method is more relevant to retrieve the ozone concentration, a secondary species, than the concentration of primary compounds like NO_x or SO_2 which are closely linked to emission sources. The impact of the channeling along the Rhone valley has been demonstrated with run2. Dynamical processes (synoptic flow and the sea-breeze circulation) are involved to explain the ozone production and the redistribution of CO , NO_x and SO_2 .

We can conclude that the condensed chemistry code satisfactorily simulates the chemical species redistribution for an urban polluted zone where the meteorological circulations are complex (topography and sea breeze).

Appendix: Chemical mechanism (MOCA 2.2)

Table 2 demonstrates the chemical mechanism used in MOCA model.

Table 2. Chemical mechanism (MOCA 2.2)

Chemical mechanism (MOCA 2.2)				
N°	Reaction	A	N	E
1	$O_3 + NO \Rightarrow NO_2$	1.8 E-12	0	1370
2	$O_3 + NO_2 \Rightarrow NO_3$	1.2 E-13	0	2450
3	$O_3 + OH \Rightarrow HO_2$	1.9 E-12	0	1000
4	$O_3 + HO_2 \Rightarrow OH$	1.4 E-14	0	600
5	$NO + NO_3 \Rightarrow NO_2 + NO_2$	1.8 E-11	0	-110
6	$NO + HO_2 \Rightarrow \text{nothing}$	3.7 E-12	0	-240
7	$NO_2 + NO_3 \Rightarrow NO + NO_2$	7.2 E-14	0	1414
8	$OH + HO_2 \Rightarrow \text{nothing}$	4.8 E-11	0	-250
9	$OH + H_2O_2 \Rightarrow HO_2$	2.9 E-12	0	160
10	$HO_2 + HO_2 \Rightarrow H_2O_2$	2.2 E-13	0	-620
11	$HO_2 + HO_2 + M \Rightarrow H_2O_2 + M$	1.9 E-33	0	-980
12	$NO_3 + HO_2 \Rightarrow HNO_3$	9.2 E-13	0	0
13	$NO_3 + HO_2 \Rightarrow OH + NO_2$	3.6 E-12	0	0
14	$NO + NO + M \Rightarrow NO_2 + NO_2 + M$	6.93E-40	0	-530
15	$OH + HNO_4 \Rightarrow NO_2$	1.5 E-12	0	-360
16	$OH + CO \Rightarrow HO_2$	1.5 E-13	0	0
17	$OH + CO + M \Rightarrow HO_2 + M$	3.66E-33	0	0
18	$NO + OH (+ M) \Rightarrow HONO (+ M)$	Falloff		
19	$NO_2 + OH (+ M) \Rightarrow HNO_3 (+ M)$	Falloff		
20	$NO_2 + HO_2 (+ M) \Rightarrow HNO_4 (+ M)$	Falloff		
21	$HNO_4 (+ M) \Rightarrow NO_2 + HO_2 (+ M)$	Falloff		
22	$NO_2 + NO_3 (+ M) \Rightarrow N_2O_5 (+ M)$	Falloff		
23	$N_2O_5 (+ M) \Rightarrow NO_2 + NO_3 (+ M)$	Falloff		
24	$OH + SO_2 (+ M) \Rightarrow HO_2 + H_2SO_4 (+ M)$	Falloff		
25	$HO_2 + HO_2 \Rightarrow H_2O_2$	Special		
26	$N_2O_5 \Rightarrow 2HNO_3$	Special		
27	$O_3 + h\nu \Rightarrow 2OH$	Photolyse		
28	$O_3 + OLSB \Rightarrow \text{nothing}$	Special		
29	$NO_2 + h\nu \Rightarrow NO + O_3$	Photolyse		
30	$H_2O_2 + h\nu \Rightarrow OH + OH$	Photolyse		
31	$NO_3 + h\nu \Rightarrow NO$	Photolyse		
32	$NO_3 + h\nu \Rightarrow NO_2 + O_3$	Photolyse		
33	$HONO + h\nu \Rightarrow NO + OH$	Photolyse		
34	$\langle RO_2 \rangle + NO \Rightarrow NO_2 + HO_2$	4. 2E-12	0	-180
35	$\langle RO_2 \rangle + HO_2 \Rightarrow ROOH$	4. 1E-13	0	-790
36	$\langle NONO_2 \rangle + NO \Rightarrow NO_2$	4. 2E-12	0	-180
37	$\langle NONO_2 \rangle + HO_2 \Rightarrow ROOH$	4. 1E-13	0	-790
38	$OH + HCHO \Rightarrow HO_2 + CO$	1.25E-17	2	-648
39	$OH + CH_3CHO \Rightarrow CH_3COO_2$	5.55E-12	0	-311
40	$CH_3COO_2 + NO \Rightarrow NO_2 + HCHO + \langle RO_2 \rangle$	2.0E-11	0	0
41	$HO_2 + CH_3COO_2 \Rightarrow 0.3 O_3 + 0.7 ROOOH$	4.3E-13	0	-1040
42	$C_2H_5CHO + OH \Rightarrow C_2H_5COO_2$	8.5E-12	0	-252
43	$C_2H_5COO_2 + NO \Rightarrow NO_2 + CH_3CHO + \langle RO_2 \rangle$	2.0E-11	0	0

44	$C_2H_5COO_2 + HO_2 \Rightarrow 0.3 O_3 + 0.7 ROOH$	4.3E-13	0	-1040
45	$C_2H_5COO_2 + NO_2 \Rightarrow PPN$	8.4E-12	0	0
46	$PPN \Rightarrow C_2H_5COO_2 + NO_2$	1.6E17	0	14073
47	$O_3 OLSB + SO_2 \Rightarrow H_2SO_4$	1.0E-13	0	0
48	$ROOH + OH \Rightarrow OH$	1.0E-12	0	-190
49	$ROOH + OH \Rightarrow \langle RO_2 \rangle$	1.9E-12	0	-190
50	$ROOH + OH \Rightarrow \langle RO_2 \rangle$	Falloff		
51	$CH_3COO_2 + NO_2 (+M) \Rightarrow PAN (+M)$	Falloff		
52	$PAN (+M) \Rightarrow CH_3COO_2 + NO_2 (+M)$	Photolyse		
53	$HCHO + h\nu \Rightarrow 2HO_2 + CO$	Photolyse		
54	$HCHO + h\nu \Rightarrow CO$	Photolyse		
55	$CH_3CHO + h\nu \Rightarrow HCHO + \langle RO_2 \rangle + HO_2 + CO$	Photolyse		
56	$C_2H_5CHO + h\nu \Rightarrow CH_3CHO + \langle RO_2 \rangle + HO_2 + CO$	Photolyse		
57	$C_3H_6 + OH \Rightarrow CH_3CHO + HCHO + \langle RO_2 \rangle$	4.85E-12	0	-504
58	$C_3H_6 + OH \Rightarrow CH_3CHO + HCHO + \langle RO_2 \rangle$	2.54E-11	0	-410
59	$ISOP + O_3 \Rightarrow 0.5 HCHO + 0.5 C_2H_5CHO + 0.275 O_3 OLSB + 0.4 CO + 0.28 HO_2 + 0.34 CH_3CHO + 0.07 C_2H_6 + 0.15 OH + 0.31 \langle RO_2 \rangle$	1.23E-14	0	2013
60	$ISOP + NO_3 \Rightarrow HCHO + C_2H_5CHO + NO_2 + \langle NONO_2 \rangle$	2.54E-11	0	1080
61	$O_3 + C_3H_6 \Rightarrow 0.53 HCHO + 0.5 CH_3CHO + 0.225 O_3 OLSB + 0.28 HO_2 + 0.4 CO + 0.31 HCHO + 0.31 \langle RO_2 \rangle + 0.07 CH_4 + 0.15 OH$	5.51E-15	0	1878
62	$C_2H_6 + OH \Rightarrow CH_3CHO + \langle RO_2 \rangle$	4.85E-12	0	-504
63	$C_2H_4 + O_3 \Rightarrow HCHO + 0.37 O_3 OLSB + 0.44 CO + 0.12 HO_2$	9.14E-15	0	2580
64	$C_2H_4 + OH \Rightarrow a_1 HCHO + a_2 CH_3CHO + \langle RO_2 \rangle$	1.96E-12	0	-438
where the stoichiometric coefficients a1 and a2 depend on temperature				

Acknowledgements. This modeling study is supported by funding of the CNRS (Centre National de la Recherche Scientifique) and the PNCA (Programme National de Chimie Atmosphérique). This work makes a large use of RAMS model, which was developed under the support of the National Science Foundation (NSF) and the Army Research Office (ARO). Computer resources were provided by the CINES (Centre Informatique National de l'Enseignement Supérieur) project amp2107. The authors wish to thank also the computer team of the LaMP (Laboratoire de Météorologie Physique) of the Blaise Pascal University (France): A. M. Lanquette and F. Besserve.

References

- Aumont, B., Jaeger-Voirol, A., Martin, B., and Toupance, G., Tests of some reduction hypotheses made in photochemical mechanisms, *Atmos. Environ.*, *30*, 2061–2077, 1996.
- Bates, D. V., Ozone: A critical review of recent experimental, clinical and epidemiological evidence, with notes causation, part1, *Can. Resp. J.*, *2*, 25–31, 1995a.
- Bates, D. V., Ozone: A critical review of recent experimental, clinical and epidemiological evidence, with notes causation, part2, *Can. Resp. J.*, *2*, 161–171, 1995b.
- Cai, X.-M. and Steyn, D., Modelling study of sea breezes in a complex coastal environment, *Atmos. Environ.*, *34*, 2873–2885, 2000.
- Carmichael, G. R., Peters, L. K., and Saylor, R. D., The STEM-II regional scale acid deposition and photochemical oxidant model. i. an overview of model development and applications, *Atmos. Environ.*, *25*, 2077–2090, 1991.
- Cautenet, S., Poulet, D., Delon, C., Delmas, R., Grégoire, J., Pereira, J., Cherchali, S., Amram, O., and Flouzat, G., Simulation of carbon monoxide redistribution over central africa during biomass burning (experiment for regional sources and sinks of oxidants (EXPRESSO)), *J. Geophys. Res.*, *104*, 30 641–30 657, 1999.
- Chang, J. S., Brost, R. A., Isaksen, I. S. A., Madronich, S., Middleton, P., Stockwell, W. R., and Walcek, C. J., A three-dimensional eulerian acid deposition model: Physical concepts and formulations, *J. Geophys. Res.*, *92*, 14 681–14 700, 1987.
- Clark and Farley, Severe downslope windstorm calculations in two and three spatial dimensions using anelastic interactive grid nesting: A possible mechanism for gustiness, *Journal of the Atmospheric Sciences*, *41*, 329–350, 1984.
- Cotton, W., Sr, R. P., R.L.Walko, G.E.Liston, Tremback, C., Jiang, H., McAnely, R., Harrington, J., Nicholls, M., Carrio, G., and McFadden, J., Rams 2001: Current status and future directions, *Meteorol. Atmos. Phys.*, *82*, 5–29, 2003.
- Cros, B., Durand, P., and Ponche, J. L., The ESCOMPTE program: An overview, *Atmos. Res.*, 2003.
- Dabdud, D. and Seinfeld, J. H., Extrapolation techniques used in the solution of stiff odes associated with chemical kinetics of air quality models, *Atmos. Environ.*, *29*, 403, 1995.
- Djouad, R. and Sportisse, B., Solving reduced chemical models in air pollution modeling, *Appl. Numer. Math.*, 2002.
- Dodge, M. C., Combined use of modelling techniques and smog chamber data to derive ozone-precursor relationships, in *Proceedings of the International Conference on Photochemical Oxidant Pollution and its Control*, EPA-60/3-77-001b, edited by B. Dimitriadis, vol. 2, pp. 881–889, 1997b.
- Edy, J. and Cautenet, S., Biomass burning : Local and regional redistribution, *Air Pollution Modeling and its application*, pp. 63–69, 1998.
- Finlayson-Pitts, B. J. and Jr., J. N. P., Volatile organic compounds: Ozone formulation, alternative fuels, and toxics, *Chem. Ind., October 18*, 796–800, 1993.
- Finlayson-Pitts, B. J. and Jr., J. N. P., *Chemistry of the Upper and Lower Atmosphere*, Academic Press, 2000.
- Gangoiti, G., Alonso, L., Navazoa, M., Albizurib, A., Perez-Landac, G., Matabuenaa, M., Valdenebroa, V., Maruria, M., Garcia, J., and Millan, M. M., Regional transport of pollutants over the bay of biscay: Analysis of an ozone episode under a blocking anticyclone in west-central europe, *Atmos. Environ.*, *36*, 1349–136, 2002.
- Gear, C., *Numerical Initial Value Problems in Ordinary Differential Equations*, Prentice-Hall, Englewood Cliffs, New Jersey, 1971.
- Heck, W. W., Cure, W. W., Rawlings, J. O., Zaragoza, L. J., Heagle, A. S., Heggstead, H. E., Kohut, R. J., Kress, L. W., and Temple, P., Assessing impacts of ozone on agricultural crops, II, crop yield functions and alternative exposure statistics, *J. Air Pollut. Control Ass.*, *34*, 810–817, 1984.
- Hesstvedt, E., Hov, O., and Isaksen, I. S., Quasy steady state approximations in air pollution modeling : Comparison of two numerical schemes for oxidant prediction, *Int. J. Chem. Kin.*, *10*, 971, 1978.
- Jenkin, M. E., Saunders, S. M., and Pilling, M. J., The tropospheric degradation of volatile organic compounds: A protocol for mechanism development, *Atmos. Environ.*, *31*, 81–104, 1997.
- Joseph, J. H., Wiscombe, W. J., and Weinman, J. A., The delta-eddington approximation for radiative flux transfer, *J. Atmos. Sci.*, *33*, 2452–2459, 1976.
- Kuhn, M., Builtjes, P. J. H., Poppe, D., Simpson, D., Stockwell, W. R., Andersson-Sköld, Y., Baart, A., Das, M., Hov, F. F., Kirchner, F., Makar, P. A., Milford, J. B., Roemer, M. G. M., Ruhnke, R., Strand, A., Vogel, B., and Vogel, H., Intercomparison of the gase-phase chemistry in several chemistry and transport models, *Atmos. Environ.*, *32*, 693–709, 1998.
- Lamb, R. G., Regional scale (1000 km) model of photochemical air pollution, part I. theoretical formulation, Tech. rep., Environmental Sciences Research Laboratories, Research Triangle Park, North Carolina, EPA/600/3-83-035, 1983.
- Liu, M. K., Morris, R. E., and Killus, J. P., Development of a regional oxidant model and application to the northeastern united states, *Atmos. Environ.*, *18*, 1145–1161, 1984.
- Lu, R., Turco, R. P., and Jacobson, M. Z., An integral air pollution modeling system for urban and regional scales: 1. structure and performance, *J. Geophys. Res.*, *102*, 6063–6079, 1997a.
- Lu, R., Turco, R. P., and Jacobson, M. Z., An integral air pollution modeling system for urban and regional scales: 2. simulation for SCAQS, *J. Geophys. Res.*, *102*, 6081–6098, 1997b.
- Lyons, A., Tremback, C. J., and Pielke, R. A., Applications of the regional atmospheric systems (RAMS) to provide input to photochemical grid models for the lake michigan ozone study (LMOS), *J. Appl. Meteor.*, *34*, 1762 – 1785, 1995.
- MacCracken, M. C., Wuebbles, D. J., Walton, J. J., Duewer, W. H., and Grant, K. E., The livermore regional air quality model. i. concept and development, *J. Appl. Meteorol.*, *17*, 254–272, 1978.
- Madronich, S., Photodissociation in the atmosphere. 1. actinic flux and the effects of ground reflections and clouds, *J. Geophys. Res.*, *92*, 9740, 1987.

- Madronich, S. and Calvert, J. G., The NCAR master mechanism of the gas phase chemistry, Technical Note 2.0, NCAR, 1989.
- McRae, G. J., Goodin, W. R., and Seinfeld, J. H., Development of second-generation mathematical model for urban air pollution -i. model formulation, *Atmos. Envir.*, *16*, 679–696, 1982b.
- Millan, M., Salvador, R., Mantilla, E., and Kallos, G., Photooxidant dynamics in the mediterranean basin in summer : Results from european research projects, *J. Geophys. Res.*, *102*, 8811 – 8823, 1997.
- Poulet, D., Cautenet, S., and Aumont, B., Simulation of the chemical impact of the bush fires emissions, in central africa, during the EXPRESSO campaign, *Submitted to J. Geophys. Res.*, 2003.
- Reynolds, S. D., Roth, P. M., and Seinfeld, J. H., Mathematical model of photochemical air pollution, i. formulation of the model, *Atmos. Envir.*, *7*, 1033–1061, 1973.
- Russell, A. G., McCue, K. F., and Cass, G. R., Mathematical modeling of the formation of nitrogen-containing air pollutants. 1. evaluation of an eulerian photochemical model, *Environ. Sci. Technol.*, *22*, 263–271, 1988.
- Saylor, R. D. and Ford, G. D., On the comparison of numerical methods for the integration of kinetic equations in atmospheric chemistry and transport model, *Atmos. Envir.*, *29*, 2585, 1995.
- Schere, K. L. and Demerjian, K. L., A photochemical box model for urban air quality, in *Proceedings of the 4th Joint Conference on Sensing of Environmental Pollutants*, pp. 427–433, Am. Chem. Soc., Washington, DC, 1978.
- Shieh, D. S.-S., Chang, Y., and Carmichael, G. R., The evaluation of numerical techniques for solution of stiff ordinary differential equations arising from chemical kinetic problems, *Env. Software*, *3*, 28–38, 1988.
- Simon, V., Luchetta, L., and Torres, L., Estimating the emission of volatile organic compounds (VOC) from the french forest ecosystem, *Atmos. Envir.*, *35 Supplement No. 1*, S115–S126,, 2001.
- Taylor, O. C., Importance of peroxyacetyl nitrate (PAN) as a photo-toxic air pollutant, *J. Air Pollut. Control Ass.*, *19*, 347–351, 1969.
- Tesche, T. W. and McNally, D., Photochemical modeling of two 1984 SCCAMP ozone episodes, *J. Appl. Meteorol.*, *30*, 745–763, 1991.
- Thunis, P. and Cuvelier, C., Impact of biogenic emissions on ozone formation in the mediterranean area - a BEMA modelling study, *Atmos. Envir.*, *34*, 467–481, 2000.
- VanLoon, M., Builtjes, P. J. H., and Segers, A. J., Data assimilation of ozone in the atmospheric transport chemistry model LOTOS, *Environmental Modelling*, *15*, 44, 2000.
- Venkatram, A., Karamchandani, P. K., and Mistra, P. K., Testing a comprehensive acid deposition model, *Atmos. Environ.*, *22*, 737–747, 1988.
- Vitousek, P. M., Aber, J. D., Howarth, R. W. L., Matson, G. E., Schindler, P. A., Schlesinger, D. W., and Tilman, W. H., Human alteration of the global nitrogen cycle : Sources and consequences, *Ecological Application*, *7*, 737–750, 1997.
- Wang, S. W., Georgopoulos, P. G., Li, G., and Rabitz, H., Condensing complex atmospheric chemistry mechanisms. 1. the direct constrained approximate lumping (DCAL) method applied to alkane photochemistry, *Environ. Sci. Technol.*, *32*, 2018–2024, 1998.
- Weimin, J., Donald, L., Singleton, M. H., and McLaren, R., Sensitivity of ozone concentrations to VOC and NO_x emissions in the canadian lower fraser valley, *Atmos. Envir.*, *31*, 627–638,, 1997.
- Wiscombe, W. J., The delta - m method : Rapid yet accurate radiative flux calculations for strongly asymmetric phase functions, *J. Atmos. Sci.*, *34*, 1408, 1997.
- Yamartino, R. J., Scire, J. S., Carmichael, G. R., and Change, Y. S., The CalGrid mesoscale photochemical grid model. i. model formulation, *Atmos. Envir.*, *26A*, 1493–1512, 1992.

IV.3 - Résultats de simulation des POI2a et POI2b: Impact de la dynamique

IV.3.1 - Validation des champs chimiques

Finalement après avoir effectué tous les tests de sensibilité pour obtenir la simulation des champs météorologiques la plus réaliste possible, la simulation des champs chimiques a été réalisée. Les simulations avec 2 grilles et avec l'inventaire d'émission (MEI) mis à jour pour les POI2a et POI2b donnent les meilleurs résultats. Toutefois, nous avons utilisé le pré inventaire d'émission pour la POI0, seul disponible. Les champs chimiques simulés ont été comparés aux mesures de surface et en altitude. Un ensemble de ces comparaisons pour l'ozone, le CO, les NOx et le SO2 pour des stations de surface et des mesures aéroportées, durant la POI0, a été présenté dans le paragraphe précédent dans le cadre de la publication ACP (Figures 7, 8 et 9) où l'on montre l'importance d'utiliser des grilles imbriquées pour des modélisations méso-échelle.

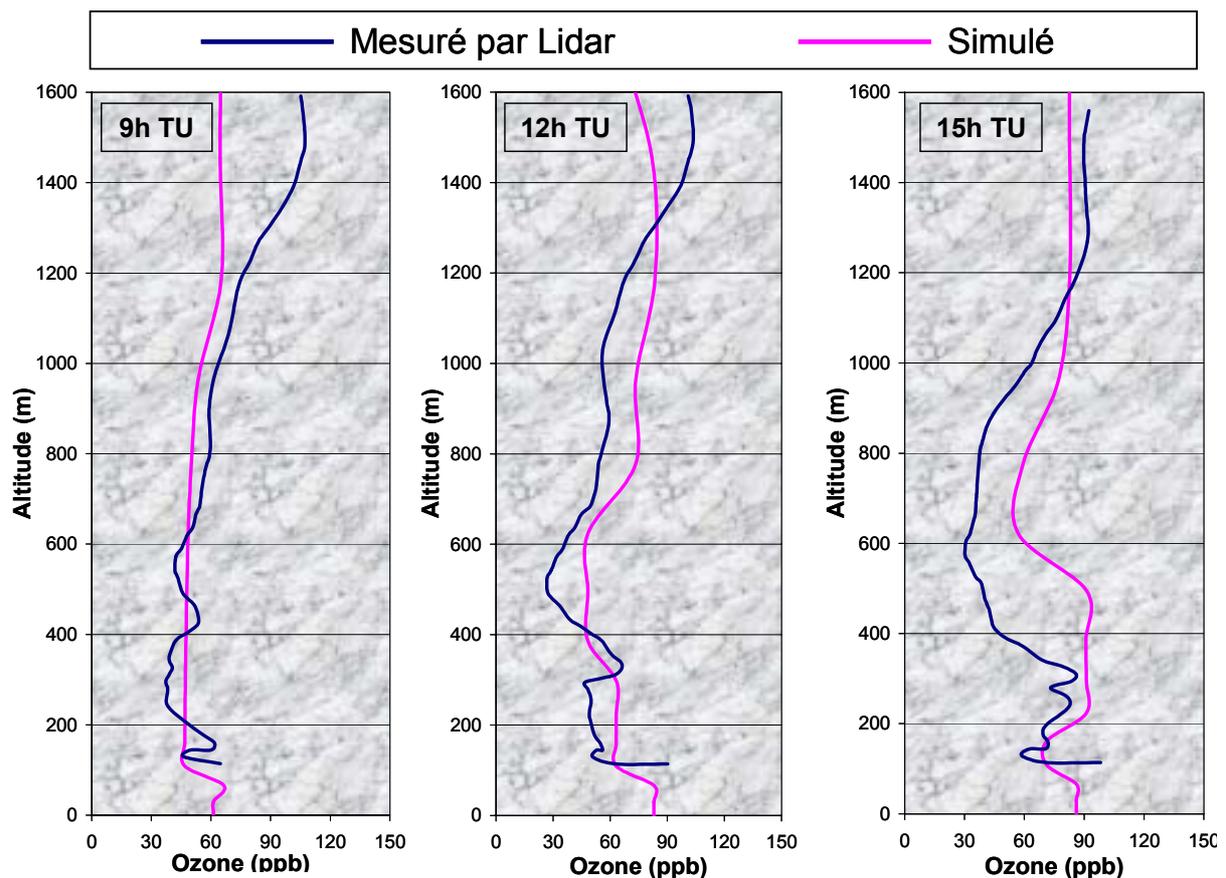


Figure IV.5 – Comparaison du profil vertical de la concentration d'ozone à Aix-les-Milles mesuré par le lidar Alto et les valeurs simulées, le 22/06/2001 (POI2a) pour 9HTU, 12HTU et 15HTU

Les figures 6, 8, 9 et 11 présentées dans le paragraphe IV.4 concernant la publication soumise à Atmos. Res. montrent ces comparaisons à la surface pour des espèces primaires et secondaires, durant les POI2a et POI2b, pour les deux inventaires d'émission (PEI et MEI). On voit que pour les NO_x les résultats numériques sont plus proches des valeurs observées pour le cadastre à haute résolution (MEI), alors que pour une espèce secondaire comme l'ozone c'est plus difficile de se prononcer. Les figures 7 et 10 présentent pour l'ozone, la différence instantanée entre les observations et les valeurs simulées et la valeur moyenne de la valeur absolue de ces différences pour les POI2a et POI2b. En moyenne, les résultats sont meilleurs avec le cadastre MEI.

Les figures 4 et 5 de la publication soumise à Atmos. Rech. montrent les comparaisons entre les valeurs simulées et les mesures de l'avion Dornier pour le 22 juin (POI2a) et de l'ARAT pour le 25 juin (POI2b). Pour les deux cas, on peut voir que le cadastre (MEI) permet de mieux retrouver les valeurs observées, notamment dans les basses couches.

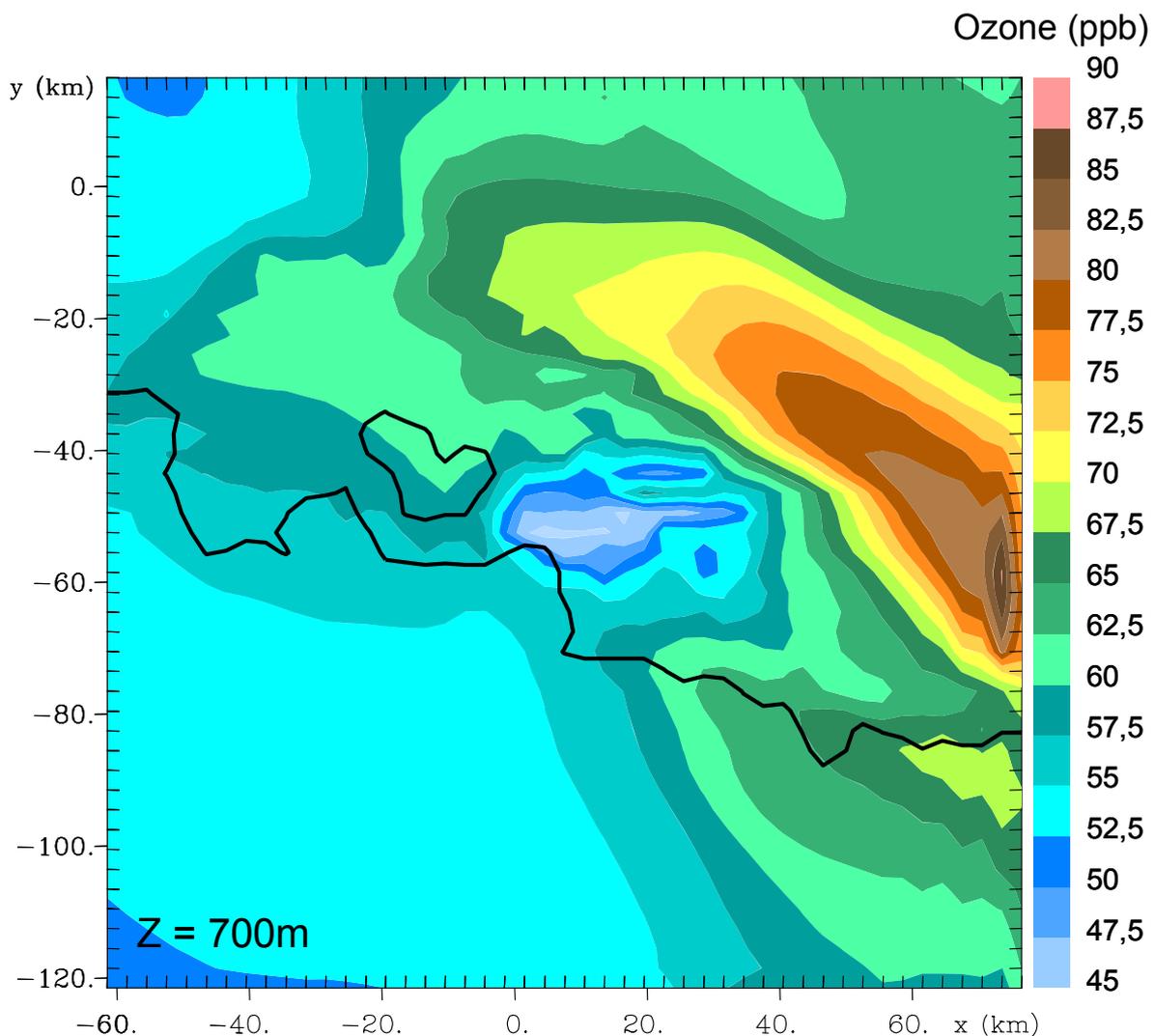


Figure IV.6 – Concentration d'ozone à 700m, le 22/06/2001 à 15HTU.

Beaucoup d'autres comparaisons ont été effectuées. Nous présentons dans la figure IV.5, la comparaison pour le 22 Juin 2001 (POI2a) avec les mesures fines d'ozone du Lidar ALTO situé à Aix les Milles (station au centre du domaine), qui montrent de nombreuses couches stratifiées dans la couche limite. Les valeurs simulées ont le même ordre de grandeur que les valeurs observées. A 9HTU les deux profils (observé et calculé) sont très proches, les stratifications sont peu marquées avec du 60ppb au sol et du 40ppb en moyenne au-dessus de 100m d'altitude.

A 12HTU, le maximum de 90ppb est retrouvé au sol, ainsi que le minimum de 60ppb vers 100m d'altitude. Par contre le minimum de 30ppb au niveau 500m n'est pas retrouvé, mais le minimum est marqué avec une valeur de 50ppb. A 15HTU où les ascendances sont plus marquées et les couches stratifiées plus importantes, on retrouve bien la tendance autour de 100m à 200m, le minimum de 30ppb autour de 600m n'est pas simulé. Nous pouvons remarquer que dans la figure IV.6 qui représente une coupe des concentrations d'ozone à 700m d'altitude, un noyau de valeurs faibles (45ppb) se situe bien aux alentours d'Aix les Milles. Par contre, au-dessus de 1200m, les valeurs de 70ppb sont reproduites.

IV.3.2 - Différents régimes chimiques : titration ou production d'ozone

Dans la première section de ce chapitre nous avons indiqué une possibilité de titration d'ozone dans un environnement à forte émission de NO_x comme la région de Fos. Nous avons remarqué qu'il se produit un trou d'ozone dans la nuit à cet endroit fortement pollué, dans un régime extrême de COV limité. Par exemple, le 29 Juin 2000 dans le cas de la POI0 où l'on a un flux important de nord ouest, qui partage le domaine en zone avec peu d'ozone (< 20ppb) et une autre zone plus au nord-est du domaine, avec de l'ozone supérieur à 20ppb.

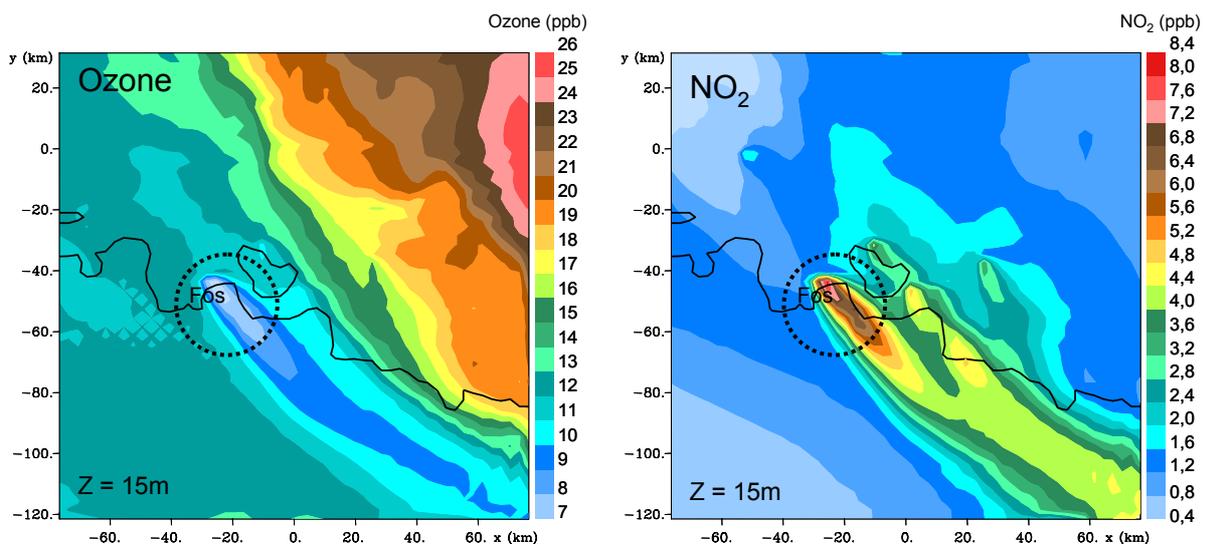


Figure IV.7 - Coupe horizontale en surface de l'ozone et du NO₂, POI0, (29/06/2000 à 0H TU).

Près de l'étang de Berre où les émissions de NO_x sont très importantes et où il n'y a pas de photochimie (la nuit), on observe (Figure IV.7) un panache très faible en ozone (< 10ppb) associé au panache enrichi en NO_x (6-7 ppb).

Un autre phénomène, qui nous est apparu intéressant, est observé dans une coupe méridienne au niveau de l'étang de Berre, pour la POI2b où le phénomène de brise est bien établi (Figure IV.8). Le maximum d'ozone, à 0HTU, se situe au-dessus de la mer, vers 200m d'altitude, et nous observons, localisées au-dessus de l'étang de Berre, de très faibles valeurs d'ozone, dues à une titration d'ozone. A 13HTU, la photochimie s'active et le panache d'ozone est situé à l'intérieur des terres avec des valeurs supérieures à 100ppb.

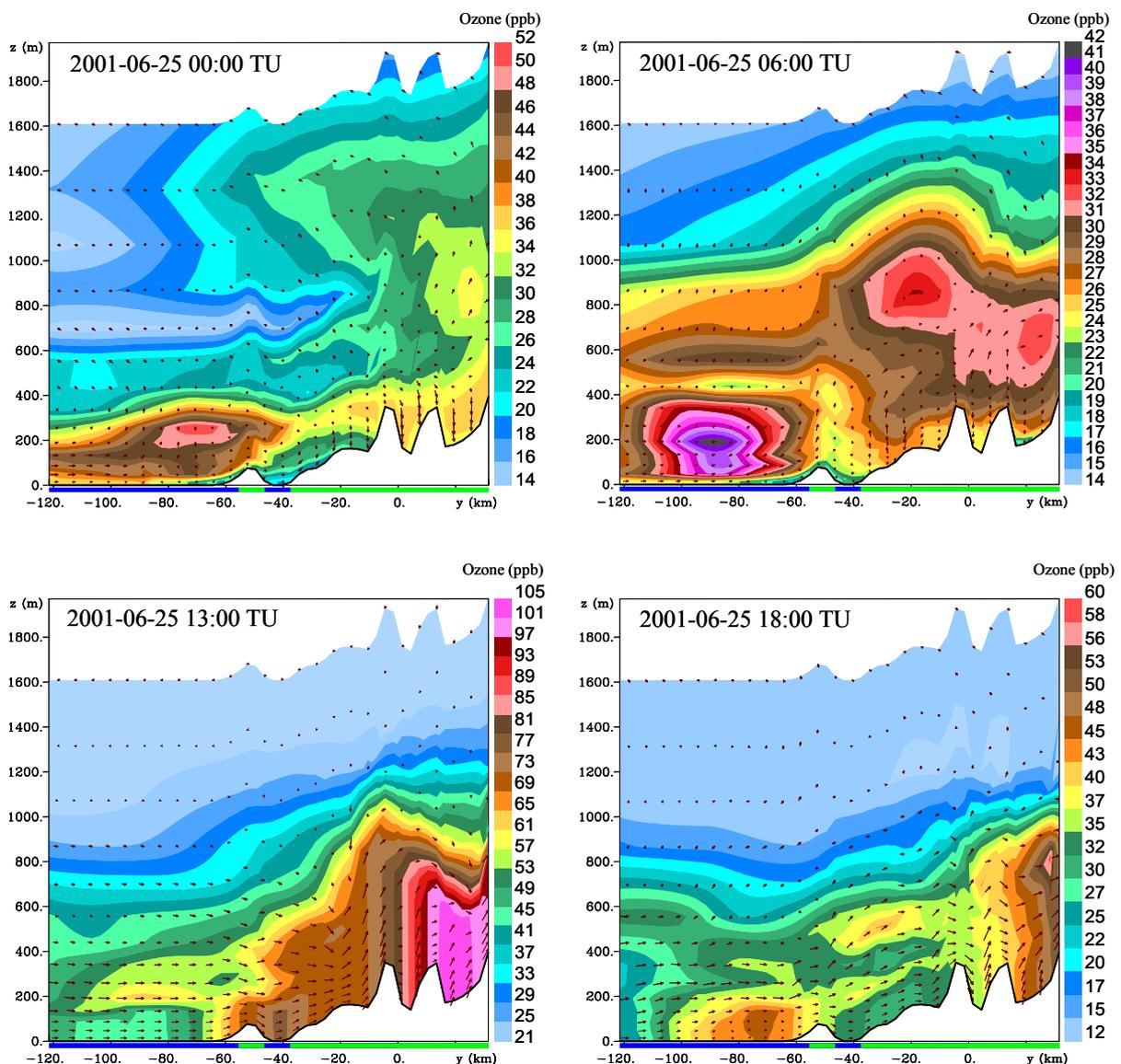


Figure IV.8 - Coupe méridienne de la concentration d'ozone et de la vitesse au niveau de l'étang de Berre (POI2b) pour 0HTU, 6HTU, 13HTU et 18HTU.

A 18HTU, nous observons un minimum d'ozone au niveau de la zone de forte émission (l'étang de Berre), alors que le maximum d'ozone est sorti de la grille 2 et se retrouve dans la grille 1 (pas montré.). La titration d'ozone sur la zone de forte émission fait un trou dans le panache d'ozone formé dans la journée. On observe une zone de concentration relativement plus forte sur la mer et un deuxième maximum sur le continent mais bien à l'intérieur des terres. Ces deux maxima ont été écartés (coupés) par cette titration.

IV.3.3 - Impact des mécanismes dynamiques sur la formation du panache d'ozone

Les simulations démontrent que la dynamique joue un rôle important sur la formation du panache d'ozone et déterminant sur sa localisation. Il est évident que cela est relié aussi aux localisations des sources d'émissions. Donc, ce genre d'étude pourrait être utilisée pour vérifier l'impact d'un site industriel avant son installation. Dans le chapitre III nous avons examiné les conditions dynamiques pour les trois POI étudiées. Les POI2a et POI2b ont des caractéristiques intéressantes, d'abord parce qu'elles se suivent, et sont assez différentes mais représentatives des conditions généralement rencontrées dans la région ESCOMPTE : un flux de nord pour la POI2a qui s'affaiblit et un flux de sud qui renforce la brise pour la POI2b. Nous allons examiner de plus près, cet impact de la dynamique sur le régime chimique.

IV.3.3.1 - Les cellules convectives

La figure IV.9 représente dans une coupe méridienne au niveau de Marseille, la redistribution verticale de quatre composants chimiques : un produit secondaire (ozone) et trois autres espèces primaires très réactives chimiquement (NO₂, et Propène, composants anthropogéniques, émis par la zone industrielle et urbaine de Marseille ; l'Isoprène, composant biogénique, émis par la végétation à l'intérieur des terres). Les graphes de la figure IV.9 correspondent à 11HTU du 25 Juin 2001 (POI2b). Sur ces graphes, nous pouvons voir :

1- les polluants sur la mer jusqu'aux environs de 200m d'altitude sont balayés par la forte brise à l'intérieur de continent. (La concentration est faible pour toutes les espèces). Les émissions sont très localisées sur Marseille sauf celle de l'isoprène que l'on retrouve essentiellement au nord du domaine.

2- Les zones d'ascendance associées à la circulation de brise élèvent en altitude les composants anthropiques : le relief de l'Etoile emmène les NO_x et le propène à 600m d'altitude. Par contre, les espèces biogéniques sont très diluées (500ppt). Le rapport de COV/NO_x est environ égal à 1/40 au-dessus de Marseille, donc c'est un régime limité en COV. On a de très faibles valeurs d'ozone au niveau de la ville de Marseille.

3- Loin de Marseille, (troisième vallée qui est celle de la Durance), nous observons moins de pénétration de NO_x et plus de présence d'Isoprène. Cela diminue le rapport COV/NO_x aux environs de 1 (toujours dans un régime COV limité), et on a un maximum de production

d'ozone. Il faut noter qu'une grande partie d'ozone qu'on observe à cet endroit est dû à la canalisation de la vallée de la Durance.

À cet endroit, au niveau du front de brise, il y a une forte ascendance (voir le paragraphe 3 du chapitre III) qui répartit l'ozone au-dessus de cette circulation de brise. On retrouve un maximum d'ozone au-dessus de 400m sur la mer et vers 800m au-dessus de Marseille.

Sur la figure IV.10, où sont représentés les champs d'ozone en surface et en altitude (850m), nous pouvons voir deux situations extrêmement contrastées. En surface la concentration d'ozone est relativement homogène, faible sur la mer et le long du littoral, forte à l'intérieur des terres avec un maximum à 100ppb.

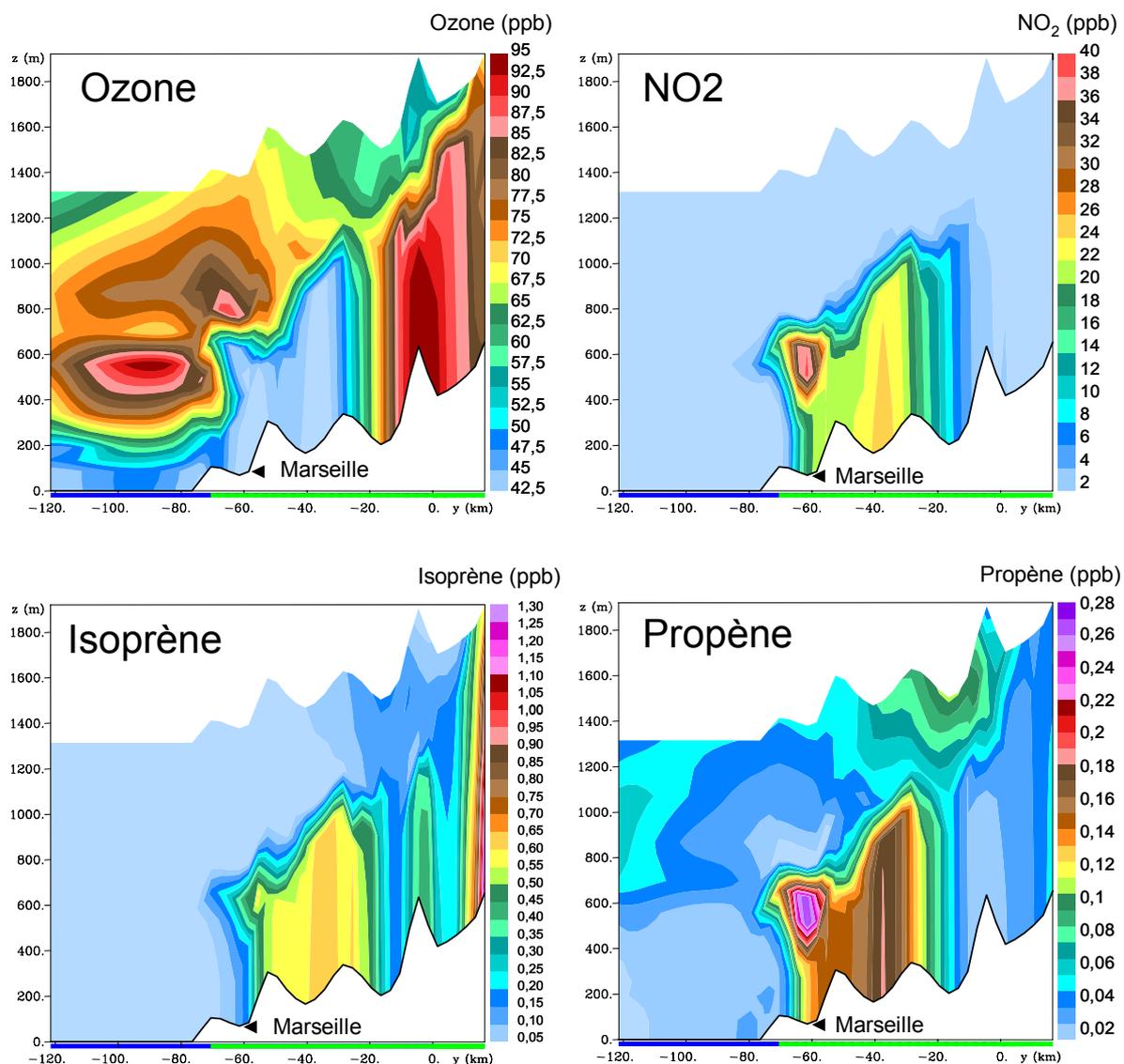


Figure IV.9 - Coupe méridienne de la concentration de 4 composants chimiques (O₃, NO₂, Isoprène et C₃H₆) au niveau de Marseille, POI2b, 11H TU.

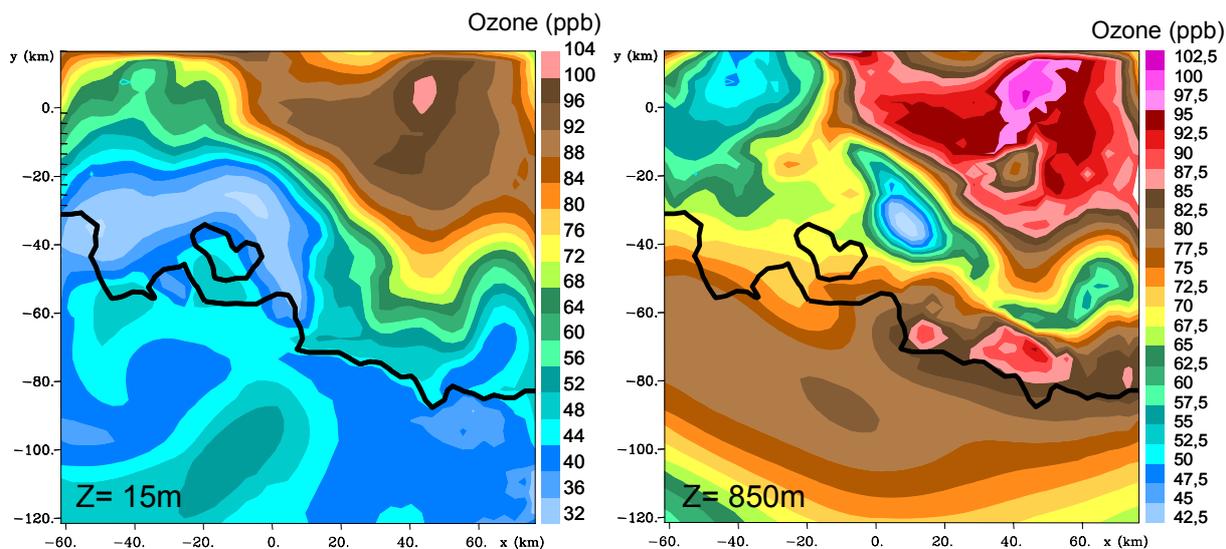


Figure IV.10 Coupe horizontale des champs d’ozone à la surface et à 850m d’altitude pour la POI2b (25/06/2001 à 11H TU)

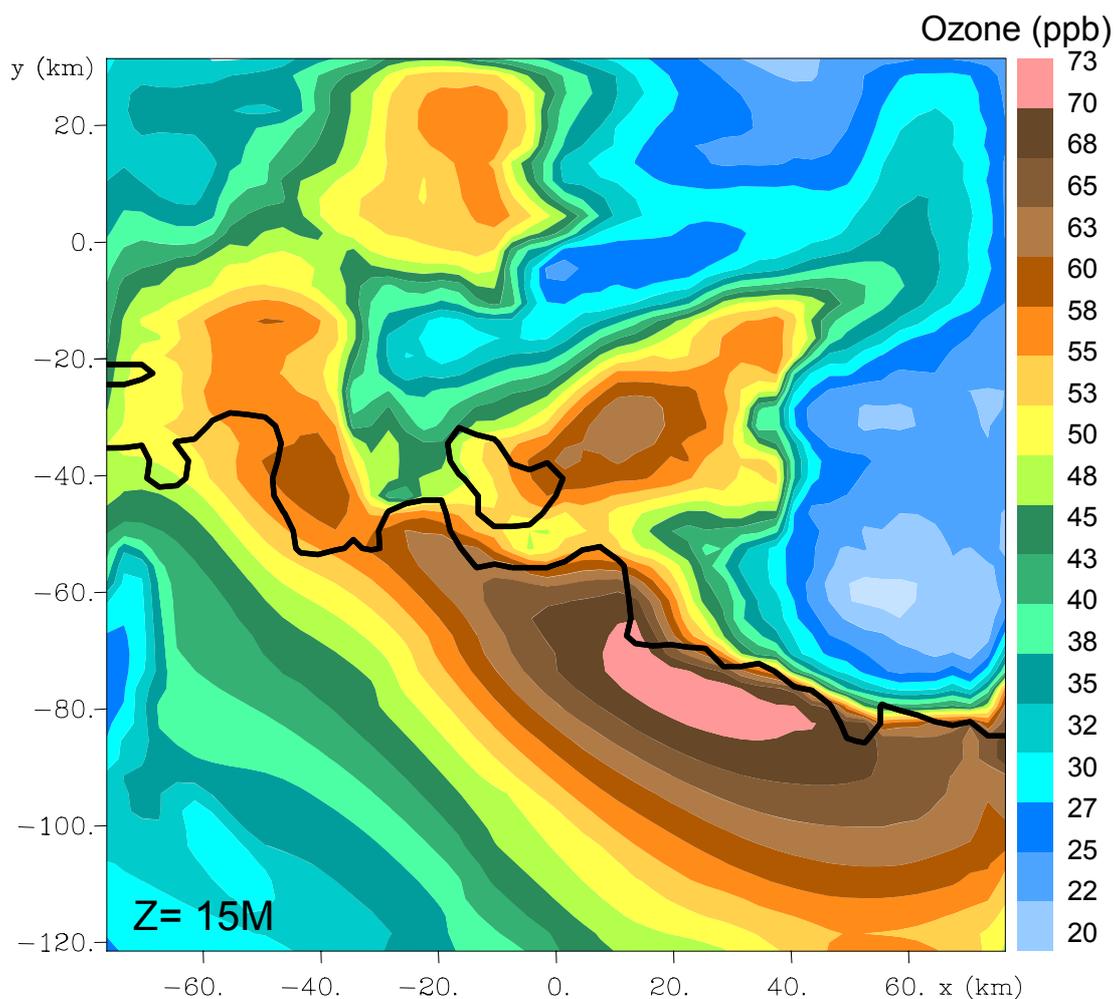


Figure IV.11 - Coupe horizontale de concentration d’ozone en surface (POI0, 30/06/2000 à 12HTU).

En altitude (850m), l'impact des cellules convectives est très marqué. Le champ d'ozone est très contrasté. Au-dessus de la mer et du littoral, les valeurs sont importantes 80ppb avec quelques maxima à 90ppb (Marseille et Toulon), puis des minima dus à des zones de subsidence, et enfin de fortes valeurs au nord du domaine avec des maxima à 100ppb.

IV.3.3.2 - La canalisation dans les vallées

Un autre mécanisme dynamique observé dans le domaine d'ESCOMPTE dans le paragraphe 3 du chapitre III a été la canalisation. Dans un premier temps, nous avons présenté la canalisation des espèces chimiques dans la vallée du Rhône (publication ACP). Cependant, nous avons vu que pour la vallée de la Durance, il était possible d'observer un vent catabatique qui descend la vallée, de direction nord est (Figure III.21.a). C'est le cas de la POI0 où le vent qui descend, transporte des masses d'air peu chargées en polluant. Ce mécanisme a pour conséquence de faibles concentrations d'ozone dans la vallée de la Durance (30ppb), valeur qui persiste encore à 12HTU (Figure IV.11).

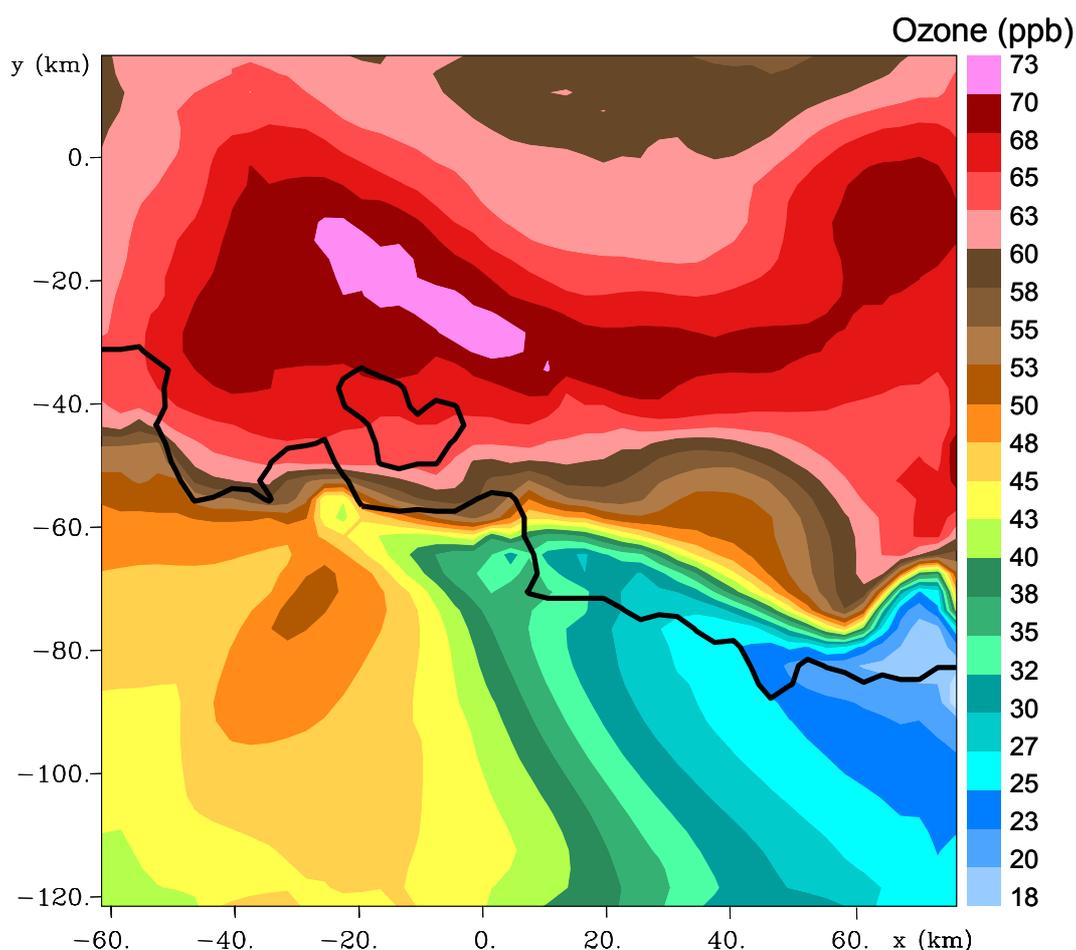


Figure IV.12 - Coupe horizontale de concentration d'ozone en surface (POI2a, 21/06/2001 à 11HTU).

Par contre, pour la POI2a par exemple, on observe un vent qui remonte la vallée associée à la brise de mer (Figure III.21.b). Les masses d'air hautement polluées provoquent la formation d'un maximum d'ozone, avec des valeurs de 70ppb qui suivent la vallée (Figure IV.12)

IV.3.3.3 - La brise de terre à Toulon

Dans le chapitre III, nous avons caractérisé une brise de terre associée à des vents catabatiques dans la nuit de 26 Juin 2001 (POI2b) à Toulon. La circulation de brise de terre est une circulation de dimension très petite, une vingtaine de kilomètres en extension horizontale et 300 m en extension verticale. Ce vent qui va de la terre vers la mer, empêche les polluants primaires comme le NO₂ de diffuser et nous avons un maximum dans les basses couches au niveau de Toulon (Figure IV.13).

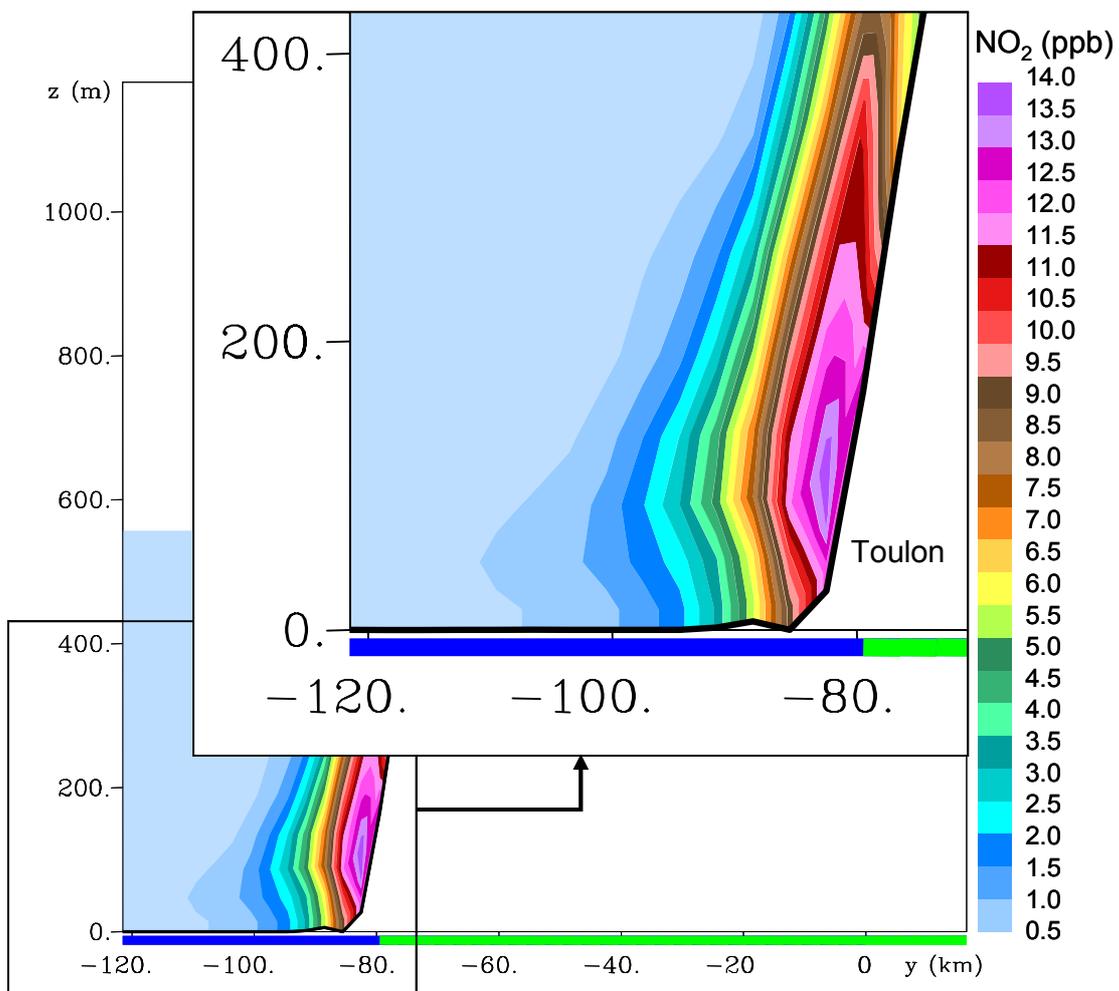


Figure IV 13 : Coupe méridienne de concentration de NO₂ au niveau de Toulon (POI2b, 28/06/2001 à 0HTU).

Comme nous avons vu dans les paragraphes précédents, ces fortes émissions de NO_x, en l'absence de phénomène de photolyse, vont titrer l'ozone et vont séparer le panache d'ozone formé au long de la journée en deux parties : une sur la mer et une autre partie sur le continent (Figure IV.14). Bien que ce jour-là, nous soyons en présence de flux de sud, nous observons l'existence de cette circulation locale qui a une répercussion sur la concentration d'ozone jusqu'à 200m d'altitude.

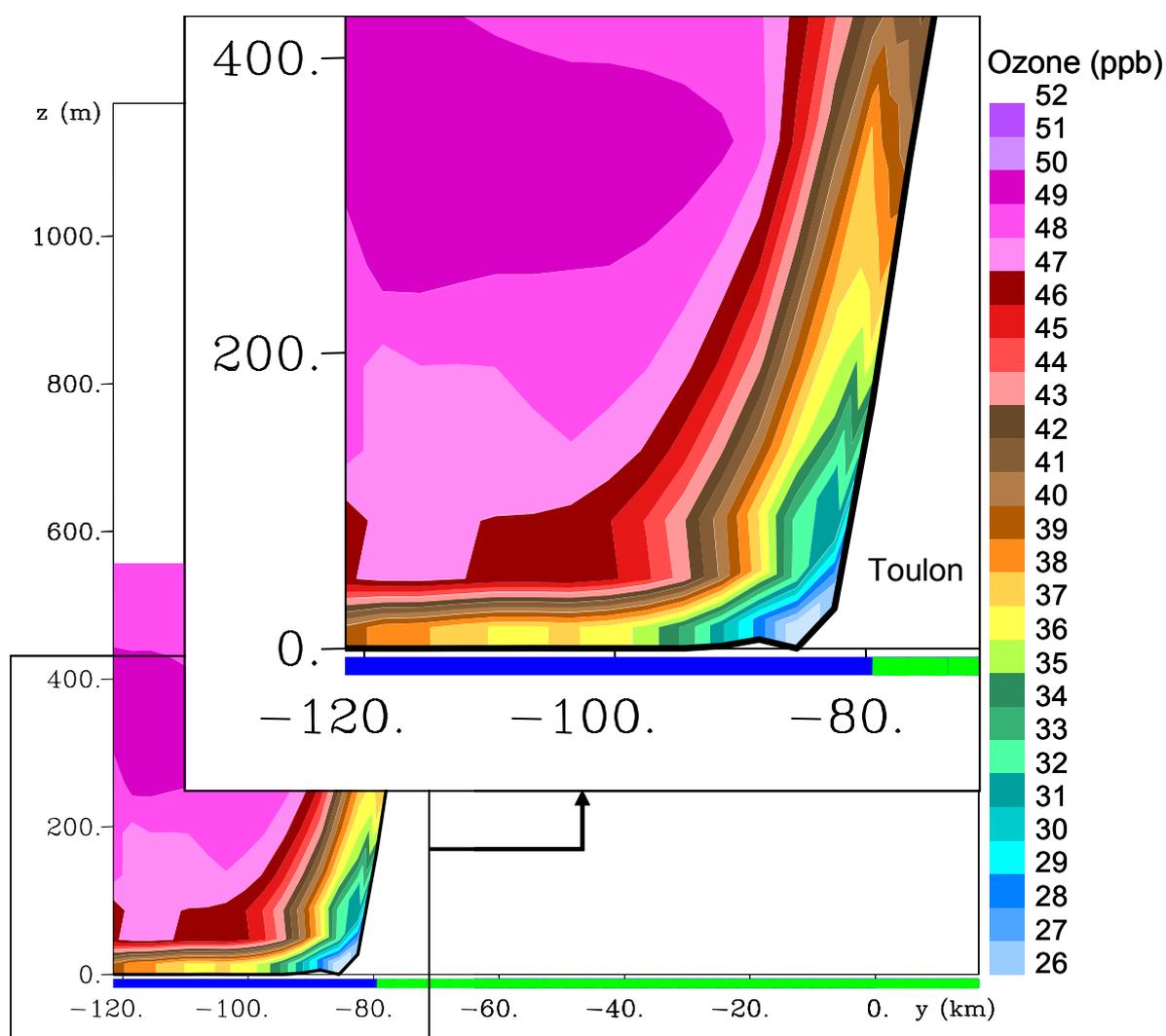


Figure IV.14 - Coupe méridienne de concentration d'O₃ au niveau de Toulon (POI2b, 28/06/2001 à 0HTU).

IV.3.4 - Conclusion

Après avoir validé les simulations effectuées avec le modèle RAMS_Chimie, par des comparaisons avec des stations en surface, des mesures aéroportées ou des mesures LIDAR, nous avons examiné l'impact de la dynamique sur les champs chimiques : espèces primaires ou secondaires, dans cette région à relief très contrasté et à circulation très complexe. Le flux synoptique, la circulation de brise de mer ou de terre, la canalisation dans les vallées peuvent accumuler les polluants d'espèces primaires comme les NO_x, les COV dans certaines zones et entraîner des titrations d'ozone dans ces zones très localisées ou des productions d'ozone suivant les valeurs du rapport NO_x/COV. Les cellules convectives modifient très fortement le champ d'ozone en altitude avec des zones de forte concentration dues à des ascendances et de faible concentration dues à des subsidences. Donc ce genre d'étude peut être utilisé pour vérifier l'impact d'un site industriel avant son installation dans une région.

IV.4 - Etude du rôle d'émission

On sait très généralement que les émissions ont un rôle clé sur la chimie de l'atmosphère. Cet impact est encore plus important sur la pollution des zones polluées comme les zones industrielles, urbanisées et pré-urbanisées. Un débat scientifique et politique actuellement est la réduction des rejets. Trouver une bonne stratégie de réduction des émissions est à l'ordre du jour dans la communauté scientifique. Dans la définition du projet ESCOMPTE, l'un des objectifs majeurs est d'étudier le véritable rôle des émissions. Dans cette thèse nous nous sommes engagés à mener une étude sur le rôle des émissions.

Dans la base de données ESCOMPTE, la possibilité d'utiliser deux cadastres d'émission (PEI et MEI), nous a donné la bonne occasion de réaliser cette étude. Le cadastre PEI (Pre Emission Inventory), issu du cadastre GENEMIS, est moins bon que le cadastre MEI (Main Emission Inventory), qui a été conçu pour le domaine ESCOMPTE avec une haute résolution (1km). Les principales différences entre les deux cadastres sont illustrées par les figures 1 et 2 de la publication. Deux simulations correspondant aux POI2a et POI2b, ont été effectuées avec ces deux différents inventaires d'émission. Les résultats numériques des deux simulations ont été comparés avec les observations des stations de surface (figures 6, 8, 9, 11 de la publication) et aussi en altitude aux moyens des mesures aéroportées (figures 4 et 5 de la publication). Ils montrent que l'erreur dans la localisation des sources d'émission peut fortement influencer les résultats de simulation pour la redistribution des espèces primaires. Pour la localisation et la formation du panache d'ozone (espèce chimique secondaire), on observe une différence moins importante que dans les résultats précédents, mais cette dernière existe soit au niveau de la valeur, soit au niveau de son emplacement. Les régimes chimiques permettent d'interpréter ces résultats. L'étude générale du modèle boîte sur le comportement de la production d'ozone vis-à-vis de différente concentration de NO_x et de COV, présenté dans le chapitre 2, explique ponctuellement le régime gouvernant dans une parcelle. La production d'ozone est un mécanisme non linéaire, et s'il y a assez d'émission d'espèces primaires pour se situer dans le régime chimique à forte production d'ozone, peu importe la quantité réelle de polluants primaires, dans la mesure où le seuil est dépassé.

Ces comparaisons ont permis d'autre part de vérifier la dépendance aux émissions pour obtenir les champs chimiques simulés. Un cadastre qui a des émissions 1/3 en moyenne plus basses que le cadastre à haute résolution, donne tout de même des pics d'ozone. Les simulations indiquent qu'une réduction de 30% sur l'ensemble des émissions ne peut pas empêcher l'occurrence d'un épisode de pollution dans le domaine.

Cette étude caractérise d'une part l'intervalle d'erreur venant d'une mauvaise localisation des sources d'émission et d'autre part la conséquence de la sous estimation des émissions.

Cette étude fait l'objet d'une publication qui a été soumise dans le journal **Atmospheric Research** dans le cadre de l'issue spéciale ESCOMPTE.

Impact of a high resolution emission inventory on modeling accuracy

*M. Taghavi**, *S. Cautenet*, and *J. Arteta*

Laboratoire de Météorologie Physique, OPGC-CNRS and Université Blaise Pascal, Aubière, France.

Abstract

During ESCOMPTE campaign (June 10 to July 14, 2001), two pollution events observed during an intensive measurement period (IOP2a and IOP2b) have been simulated. The comprehensive RAMS model, version 4.3, coupled on-line with a chemical module including 29 species is used to follow the chemistry of a polluted zone over Southern France. This on-line method takes advantage of a parallel code and use of the powerful computer SGI 3800. Runs are performed with two emission inventories: the EPI (Emission Pre Inventory) and the MEI (Main Emission Inventory). The later is more recent and has a high resolution. The redistribution of simulated chemical species (ozone and nitrogen oxides) is compared with aircraft and surface station measurements for both runs at regional scale. We show that the MEI inventory is more efficient than the EPI in retrieving the redistribution of chemical species in space (three-dimensional) and time. In surface stations, MEI is superior especially for primary species like nitrogen oxides. However, in order to simulate and forecast ozone peaks, a crude inventory such as EPI seems sufficient for an air quality model. To understand the realistic geographical distribution of pollutants and to obtain a good order of magnitude in ozone concentration (in space and time), a high resolution inventory like MEI is necessary. Coupling RAMS-Chemistry with MEI provides a very efficient tool able to simulate pollution plumes even in a region with complex circulations such as the ESCOMPTE zone.

1. Introduction

Air quality models require emission inventories of individual compounds with high temporal and spatial resolution. Many modeling have been performed with more or less detailed inventories: at urban scale in the EVA experiment for the town of Augsburg (Slemr et al., 2002), at regional scale in the ESQUIF experiment for the city of Paris (Vautard et al, 2003) and in central California for the city of San Francisco (Linsey et al, 2002). These studies show that the uncertainty of numerical results of atmospheric models is a complex function of uncertainties of emissions of ozone precursors.

The ESCOMPTE (Expérience sur Site pour CONtraindre les Modèles de Pollution atmosphérique et de Transport d'Emissions) project, which was conducted over south-eastern France in summer 2000 and 2001, was funded by the French ministry of environment. During this campaign, surface and airborne measurements of dynamics and chemistry have been carried out (Cros et al, 2003). A large amount of air quality and meteorological data were

* Corresponding author. Tel: +33 473405276; Fax: +33 473405136

E-mail: M.Taghavi@opgc.univ-bpclermont.fr

collected during four high pollution events (Intensive Observation Period, IOP) in view to help air quality models development. During this experiment, a high resolution emission inventory (1km) was developed by François et al.(2004, *this issue*) for these photochemical pollution episodes. This inventory is referred to as Main Emission Inventory (MEI) in this study. It is designed to serve as an input of air quality models at regional scale so as to qualify those models. Model outputs are compared to measurements acquired during the IOP's. The work presented here is intended to help understand complex issues such as the relations between concentrations and emissions, dynamics and high pollution levels, the interaction between rural and urban atmosphere, the influence of aerosols on photochemical pollution, and the amounts of NO_y and VOC transported to the free atmosphere. It is intuitive that a high resolution emission inventory will give better results than an averaged one, but here, we evaluate the impact of this improved inventory.

In this study, we use the RAMS (Regional Atmospheric Modeling Systems) meso-scale model (Cotton et al, 2003) coupled online with the MOCA 2.2 chemical model (Aumont et al, 1996). This combined model will henceforth be referred to as RAMS-chemistry. In a previous work, we had studied an intensive episode (IOP0) of the ESCOMPTE pre-campaign in 2000 (Taghavi et al, 2004a) with this model, which proved able to accurately retrieve dynamics and the ozone, carbon monoxide, sulphur dioxide and nitrogen oxides fields as well. This simulation made use of an old emission inventory, the Emission Pre Inventory (EPI).

In this paper, we first display the emission databases, the models, and the meteorological conditions. We compare the modeled chemical fields with the observed values (surface station and aircraft measurements) for both emission inventories (the EPI and MEI) and for two different sets of meteorological conditions (IOP2a and IOP2b). Finally, we highlight the need for a high resolution and accurate inventory in a region with complex terrain: sea shore, mountains, deep river valleys, contrasting vegetation, where intricate circulations (land/sea breeze, valley channeling, and ascents/descents due to topography) may develop.

2. Emission inventories

Since the composition of the atmosphere is directly related to the emission fluxes, the assessment of these data is a key point for testing models. Two emission inventories, EPI and MEI, are used to drive the model. The former spans over two nested grids. Grid 1 consists of a large domain (500km x 500km), whereas grid 2 is a smaller domain (150km x 150km). Grid 2 is included in grid 1. The latter covers a single grid only.

The EPI database has been established from the already existing GENEMIS European inventory developed by Rainer Friedrich (IER, Stuttgart). The data include 36 anthropogenic species and 5 biogenic species. The biogenic VOC emissions (isoprene and monoterpenes) have been generated from biogenic COV emissions algorithms by Guenther et al. (1995). PAR, temperature, and emission factors for different species were measured in situ (1997) or derived from BEMA (Biogenic Emission of the Mediterranean Area) measurements during campaigns in 1995-1996. Anthropogenic emissions available for 1994 have been used. Ambient temperature for the year 1997 and type of day (week vs. week end) have been used to generate emission data over the ESCOMPTE zone. This inventory covers both grids: the finer grid 2 has been established on an hourly time basis and with a 3 km spatial resolution, and provides the biogenic and anthropogenic emissions; the coarser grid 1 provides the anthropogenic alone with a 9 km resolution. EPI corresponds to two ordinary (week) days (July 5 and 6, 1994) for the anthropogenic sources and to July 21 and 22, 1997, for the biogenic sources. Grid 2 is made up of 54 meshes. Its center is located on the site of the

Marignane airport (43°26'12" N, 05°12'55" E). As the emission inventories are in a continuous improvement process, these data must be considered as preliminary emissions

The MEI inventory has been made for different IOPs during ESCOMPTE campaign (François et al, 2004, *this issue*). For IOP2a and IOP2b, we have hourly data from of June 20, 00:00 UTC to June 26, 24:00 UTC. The general methodology (developed by the emission thematic group) for the emission inventory assessment has provided an optimal quality estimate of inventoried emissions, with minimal uncertainties. In MEI the domain center is moved a few kilometers to southeast when compared to grid 2 of EPI. The spatial resolution is 1 km × 1 km in the horizontal direction. The emissions data include 170 species. All emissions factors of anthropogenic species are calculated from data of 1999. All the available local and regional characteristics for specific sources of the ESCOMPTE region are taken into account. Otherwise the data of European Environment Agency are used for the fixed sources, whereas the mobile sources are derived from the COPERT III database (François et al, 2004, *this issue*). All biogenic emissions factors have been updated with data of 2000, specifically for the ESCOMPTE region (Simon et al 2004a; 2004b, *this issue*), and in some cases they have been corrected from in situ measurements. The spatial location of sources is provided very accurately because the land use data are recent (2000). The algorithms to calculate biogenic emissions have been run with meteorological parameters from ESCOMPTE measurements.

For more information about the assessment methodology of both emission databases, one can refer to a detailed document in the ESCOMPTE database (<http://medias-mip.fr/escomp/te/data/index>). A comparison between the ESCOMPTE, CITEPA (PRQA, 1994), and GENEMIS inventories is explained in detail in François et al. (2004, *this issue*) for anthropogenic emissions.

a- anthropogenic emissions

There are intense anthropogenic emissions over Southeastern France. We find there many industrial factories, a great number of oil refineries, EDF (Electricité de France) power stations and other large factories such as “Air Liquide” situated in the industrial zone of Fos-Sur-Mer or Berre Pond. In addition, highways and the polluted cities of Marseilles and Toulon on the coast and Aix-en-Provence or Avignon inland increase these emissions. The anthropogenic species NO_x, which is the most important anthropogenic precursor of tropospheric ozone, is first presented. To compare both NO_x emission inventories (EPI and MEI), we choose a week day at 8 o'clock, which is generally the time where NO_x peaks are observed because of the high road traffic. In Figure 1, the NO_x emissions maps are displayed. Figures 1a and 1b which have the same scale (0 to 10 kg h⁻¹ m⁻²), show that for the EPI, the NO_x emissions are much more averaged and spread out over the region and for the MEI, the emissions are better located (the main highways and maritime roads are clearly visible). Figures 1c and 1d which have the same scale (0 to 300 kg h⁻¹ m⁻²), show that emission maximum is low for EPI (68 kg h⁻¹ m⁻²); on the other hand, this maximum is quite high for MEI (133 kg h⁻¹ m⁻²). In Figure 2, the NMVOC emissions maps show that for MEI, the sources points are better located than for EPI. In this study, the MOCA2.2 chemistry model considers only three NMVOC compounds: propene, ethene and ethane, which are displayed in Figure 2. The general features in sources distribution are similar for both inventories, i.e. the industrial areas and cities are recognizable in both inventories. It is obvious however that the MEI fields look much more heterogeneous than EPI, which appear fairly more homogeneous and spread over a great number of grid points. However, the total amount of emitted NMVOC is more important for the EPI than for the MEI.

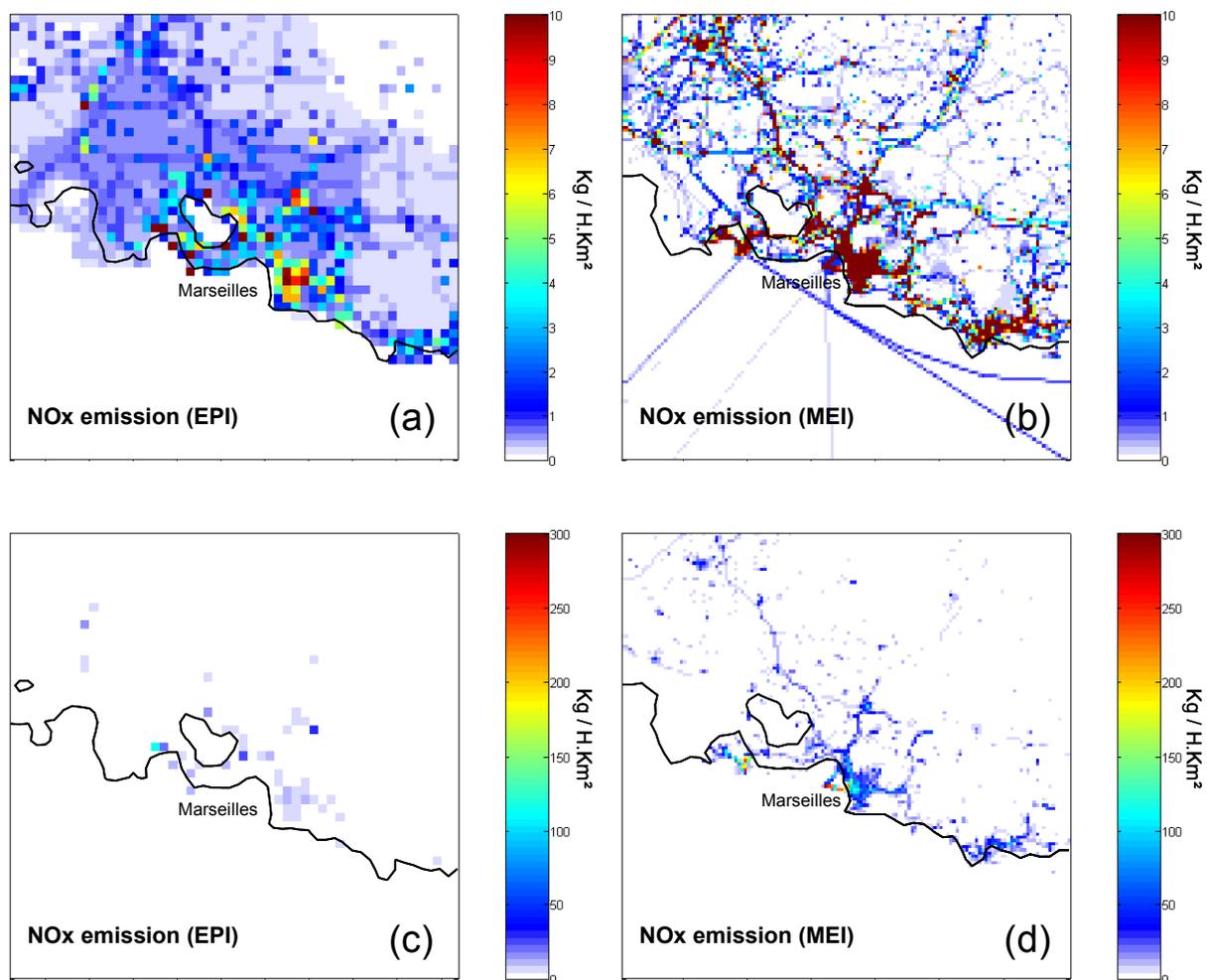


Figure 1: NOx emission from the EPI and MEI inventories for Grid2 a) EPI inventory with a scale 0 to 10 $\text{kg h}^{-1} \text{m}^{-2}$ b) MEI inventory with a scale 0 to 10 $\text{kg h}^{-1} \text{m}^{-2}$ c) EPI inventory with a scale 0 to 300 $\text{kg h}^{-1} \text{m}^{-2}$ d) MEI inventory with a scale 0 to 300 $\text{kg h}^{-1} \text{m}^{-2}$.

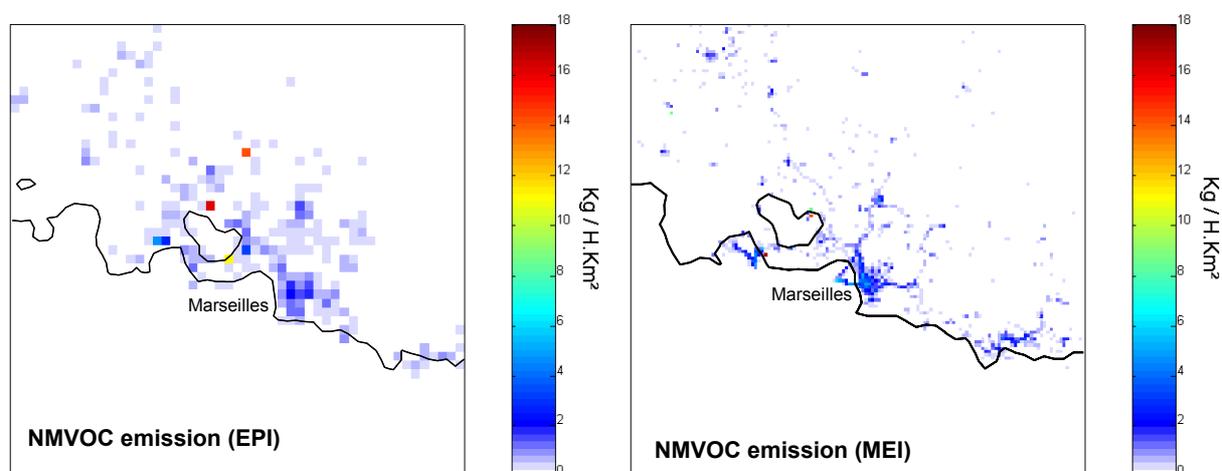


Figure 2: NMVOC emissions (only propene, ethane and ethane) from the EPI and MEI inventories for Grid2.

b- biogenic emissions

The region under study is covered by Mediterranean vegetation which provides significant biogenic emissions. In France, experimental data indicate a periodic annual evolution of biogenic emissions characterized by a rapid growth from March up to a maximum reached in July-August, followed by a net decrease in September-October. Isoprene appears as the most abundant species (Simon et al., 2001). This compound is due mainly to the Holm oak. In Figure 3, for a biogenic species such as isoprene, MEI gives a larger maximum ($10.7 \text{ kg h}^{-1}\text{km}^{-2}$) than EPI ($5.7 \text{ kg h}^{-1}\text{km}^{-2}$). In contrast with NO_x , EPI isoprene source spreads in some places from the coast to inland whereas it covers the whole domain, for MEI.

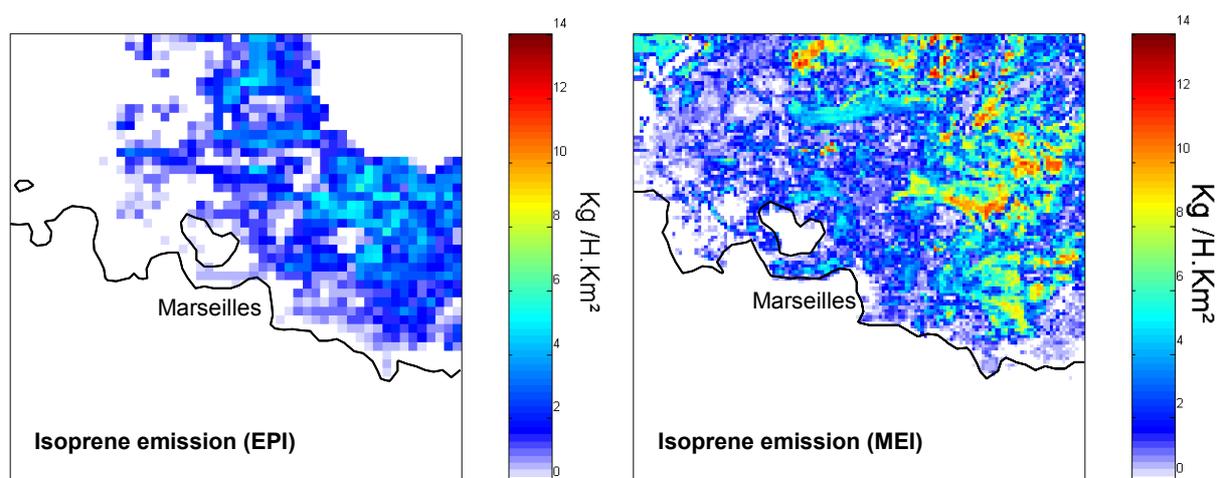


Figure 3: Isoprene emissions from the EPI and MEI inventories for Grid2.

3. Meteorological and chemical modeling description

The RAMS (Regional Atmospheric Modeling System; <http://www.atmet.com>, Cotton et al, 2003) model is a paralleled mesoscale model allowing the simulation of meteorological fields with a horizontal scale spanning from one kilometer to about one hundred kilometers. It is most frequently used for applications ranging from operational weather forecasting to air quality applications. RAMS has been used in a wide variety of air pollution studies. A particularly useful feature of this model consists in the possibility of grid nesting (Walko et al, 1995). Many previous investigations on regional pollution have been made using the RAMS model (Lyons et al., 1995; Millan et al, 1997; Edy and Cautenet, 1998; Cautenet et al, 1999; Poulet et al, 2004, Taghavi et al, 2004a).

Meteorological simulation

We run the model with two nested grids to simultaneously take into account the synoptic and the local circulations. In a simulation with 2 nested grids, each grid covering a particular domain (Figure 4), a two-way interactive process is involved. Grid 1 represents Southern France, a part of Northern Spain and a part of Northern Italy. It has 36 square meshes of 15 km. Grid 2 represents the ESCOMPTE domain. It has 52 meshes of 3km. For this grid, we use a time step of 10 seconds and 35 levels in the vertical dimension (the same in

both grids) with 15 levels from surface to 1500m, which ensures a fine description of the boundary layer. The coarse domain includes the cities of Lyons, Turin, and Barcelona in the north, east, and southwest respectively. Moreover, it comprises the Pyrenees, Massif Central, and Alps mountains. This topography introduces a complex circulation associated with sea breeze. In the fine grid (Grid 2), we have the cities of Marseilles, Toulon and Avignon with Alpilles hills, and the Durance and Rhone valleys. The meteorological fields are initialized and 6-hourly nudged by the ECMWF (European center for Medium-Range Weather Forecasts) database. The simulation starts on June 22, 2001 at 0000 UTC and ends on June 26, 2001 at 2100 UTC. The soil vegetation model includes 30 classes issued from the USGS (United States Geophysical Survey) database with a 1 km resolution. A subgrid-scale scheme called “patch configuration” allows us to keep the 1 km information within our 3 km-mesh. The topography also has a 1 km resolution and is provided by USGS too. The sea surface temperature is obtained from satellite and from in-situ OOM (Observatoire d’Océanographie de Marseille) data.

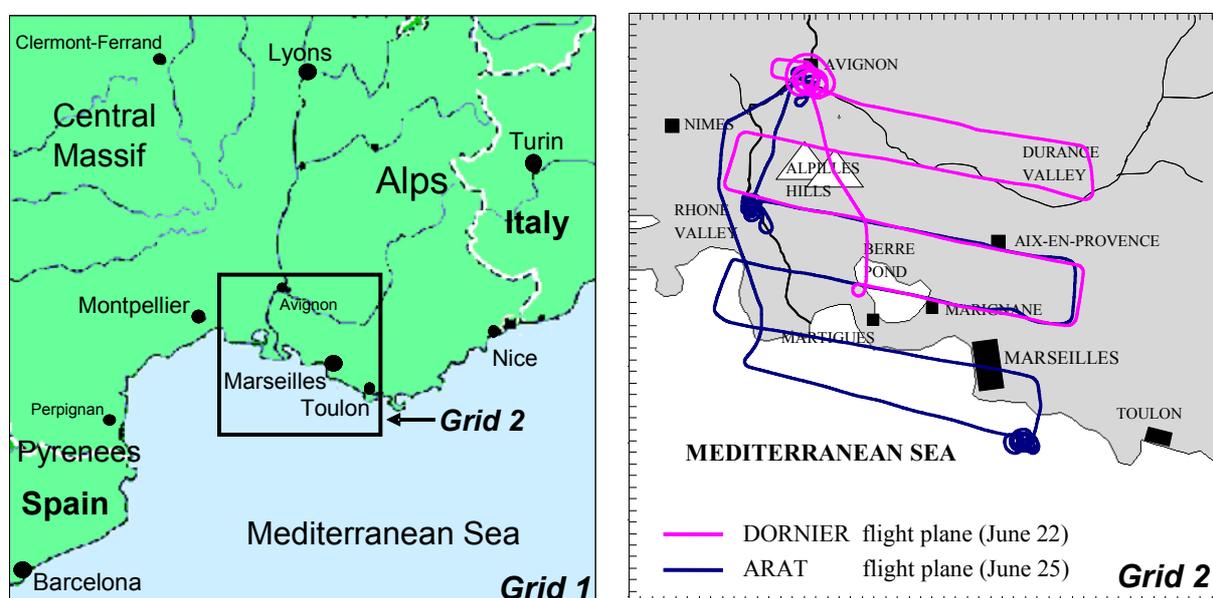


Figure 4: Location of Grid 1 and Grid 2. Tracks of planes: in blue for June 22 (IOP2a) and in pink for June 25 (IOP2b).

Chemical model

In this study, RAMS is coupled online with the MOCA2.2 chemical model (Taghavi et al, 2004a). It is a photochemical model which takes 29 gaseous species into account, including isoprene, propene, ethene, and ethane, and is based upon a set of 65 chemical reactions. It accounts for the main processes driving the ozone concentration in a polluted zone. The hydroperoxyl/aldehyde conversion describes the degradation of the various organic compounds from anthropogenic emissions. The 3 main path ways of isoprene oxidation (strongly emitted by the Mediterranean vegetation) are taken into account. Our chemical module calculates PAN concentration, which allows a realistic representation of NO_y transport. Lastly, the model includes $\text{NO}_3/\text{N}_2\text{O}_5$ equilibrium for night chemistry. The chemical

solver is the QSSA or Quasi Steady State Approximation (Hesstvedt, et al., 1978), which is faster than a matrix solver like the Gear solver (Gear, 1971) but is nevertheless quite accurate (Shieh et al., 1988; Dabdud et al., 1995; Saylor and Ford, 1995). At each time step and each mesh, chemical rates are evaluated from the temperature and pressure calculated in the RAMS model. Photolysis rates are calculated by the TUV model offline (Madronich, 1987) which takes solar incident radiation and molecular properties of atmospheric gases into account. These rates are updated every five minutes. Actinic fluxes are estimated by the δ -Eddington approximation (Joseph et al., 1976; Wiscombe, 1977). Three photolysis reactions, not integrated in the Madronich's program, have been added in this model with the calculation of new quantum yield and absorption efficiency (Aumont et al., 1996).

To reduce the CPU requirements, we have developed a novel approach to chemical constant rate evaluation (Poulet et al, 2004). Chemical reaction rates are calculated from a complex expression dependent on temperature and pressure. Since temperature and pressure vary at every mesh, calculations are made for each of them and thus require a very long computation time. In our scheme, a lookup table has been created for each reaction rate before simulation for all the typical temperature and pressure conditions in the atmosphere. During the run, RAMS-chemistry merely chooses the constant rate fitted to the meteorological conditions in the lookup table. The interest of such a method with a paralleled code is that CPU time is short: it allows a strong reduction of the simulation time (for SGI 3800 computer: 1h30 CPU for a simulated day).

4. Meteorological conditions.

We studied two cases of Intensive Observation Periods (IOP2a and IOP2b) which took place in June 21 and 22 for IOP2a and June 24 and 25 for IOP2b. During both events, the meteorological conditions presented a sea breeze development strengthened by the Durance and Rhone valleys circulations associated with various synoptic flows. On June 21, the wind had the direction West – Northwest to South-South East (Mistral) and the flow was opposite to the sea breeze. On June 22 a sea breeze was weakly developed because the wind direction was West-East. On June 24, the sea breeze was stronger than on June 22, and on June 25 it was intensified by a southwest flow. In summer, these conditions are associated with pollution peaks. The breeze cell shifted inland during the day and offshore during nighttime, bringing a pollutant plume. The next day, this plume was fed again by daily emissions and pollution events were observed. For IOP2a and IOP2b, the simulated meteorological fields were found to be very realistic and thus they do not involve any bias for chemical fields. Detailed comparisons between the observed and modeled values for temperature, humidity and wind are shown in Taghavi et al (2003, 2004b). Convective cells which depend on synoptic wind direction play an important role in transporting chemical species to the free troposphere. For southern flows, the cells are located south of the hills, and for northern flows, cells are located north of the hills. These dynamics features modify the plumes patterns and their location. It is the reason why two different cases: IOP2a and IOP2b are studied in order to compare the impact of both emission inventories.

5. Redistribution of chemical species.

For each event, two runs are performed: the first one (run 1) with the old inventory (EPI), the second one (run 2) with the high resolution inventory (MEI). To evaluate the capability of each emission inventory, we compare the airborne and surface station measurements with model results for both runs, and we examine the main characteristics of plumes.

Aircraft measurements

In general, aircraft measurements are less influenced by local emissions than ground-based measurements and offer a very valuable tool to evaluate a model by comparing spatial distributions of pollutants (Baertsch-Ritter et al, 2003). During the run, at each time step, the coordinates of aircraft (altitude, latitude, longitude) are noted and the fitted numerical values are written in a file. Then the modeled values are compared at the same place and the same time as the aircraft. Figures 5 and 6 display for ozone and nitrogen oxides two comparisons with modeled results and airborne data during IOP2a and IOP2b for run 1 and run 2. The aircrafts are referred by their name: either DORNIER (for IOP2a) or ARAT (for IOP2b).

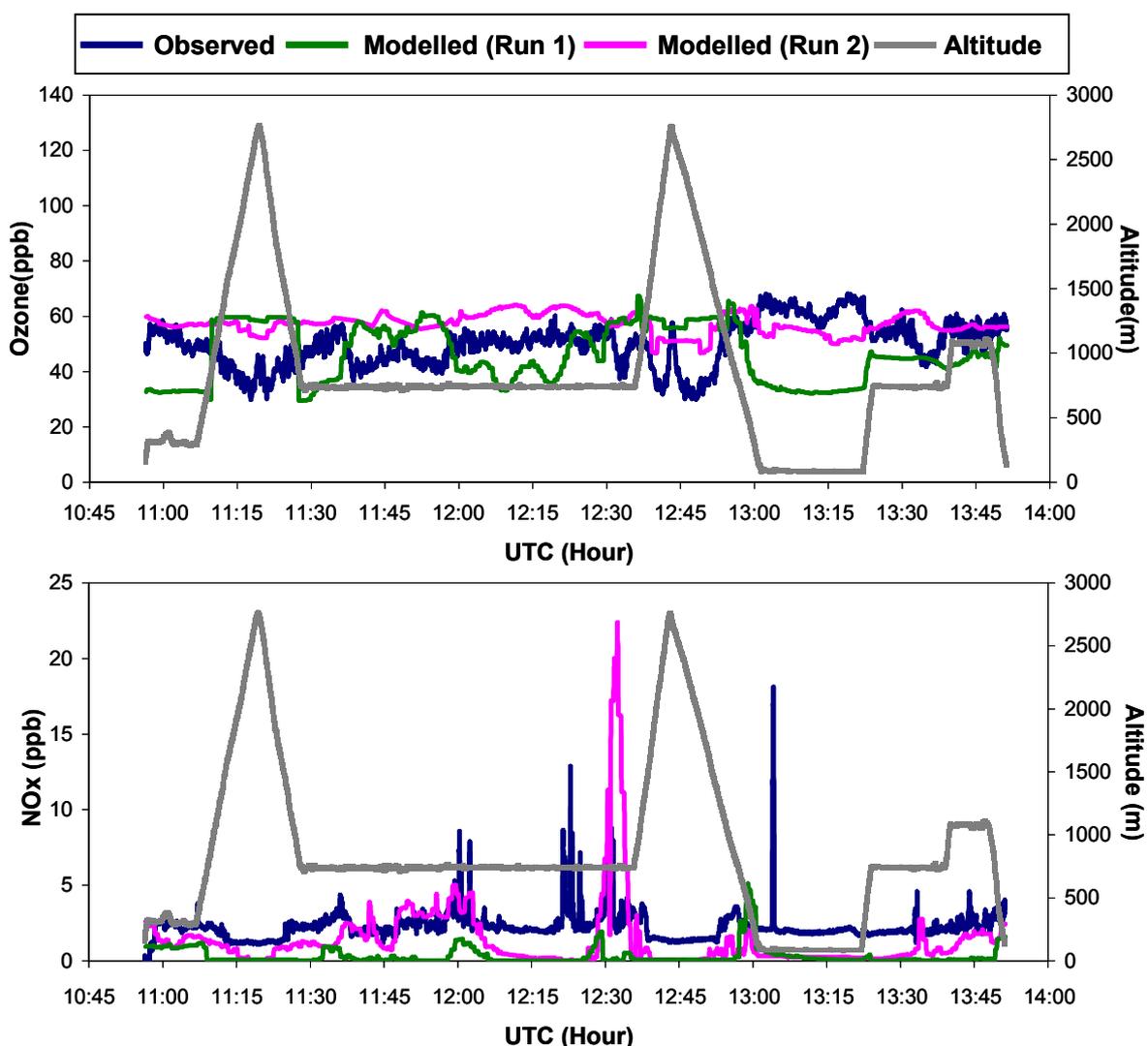


Figure 5: Airborne measurements and modeled results (run1 and run2) for ozone and NOx during IOP2a (22 June 2001).

For IOP2a, after the take off from Marignane airport at 10:56 UTC, the DORNIER plane (Figure 4) goes to Aix en Provence, makes its way to Rhone valley where it ascends to 2500 m in altitude (11:15 UTC), then to Avignon; next, after descending to 700 m, it comes back to

the coast, above Rhone valley, and flies over the sea (12:00 UTC). At the end of this leg, the plane performs a quick ascent to 2500m and descent to 700m again (altitude is displayed in Figure 5); finally, at 700m level, the DORNIER returns to coast: it flies over the city of Marseilles (13:15 UTC), and the Fos industrial zone. Landing occurs at 13:50 at Marignane. Model ozone values (Figure 5) from run 1 and run 2 are rather similar: as a whole, their departures from the experimental data look similar, at least before 13:00 UTC. At that time, the plane undergoes low level legs, and run 2 is better than run 1. Note that this path occurs above regions with high emission rates (Marseille, Fos). As regards NO_x, model values are always better with run 2 than run 1 all along the flight. We remark that run 2 identifies two NO_x plumes when the plane flies over the Rhone valley around 12:00 UTC and over the sea, around 12:30 UTC, whereas run 1 cannot. After 13:00 UTC the plume above Marseilles is retrieved by both runs, but the plume due to industrial emission (Fos-Berre) is better retrieved by run 2.

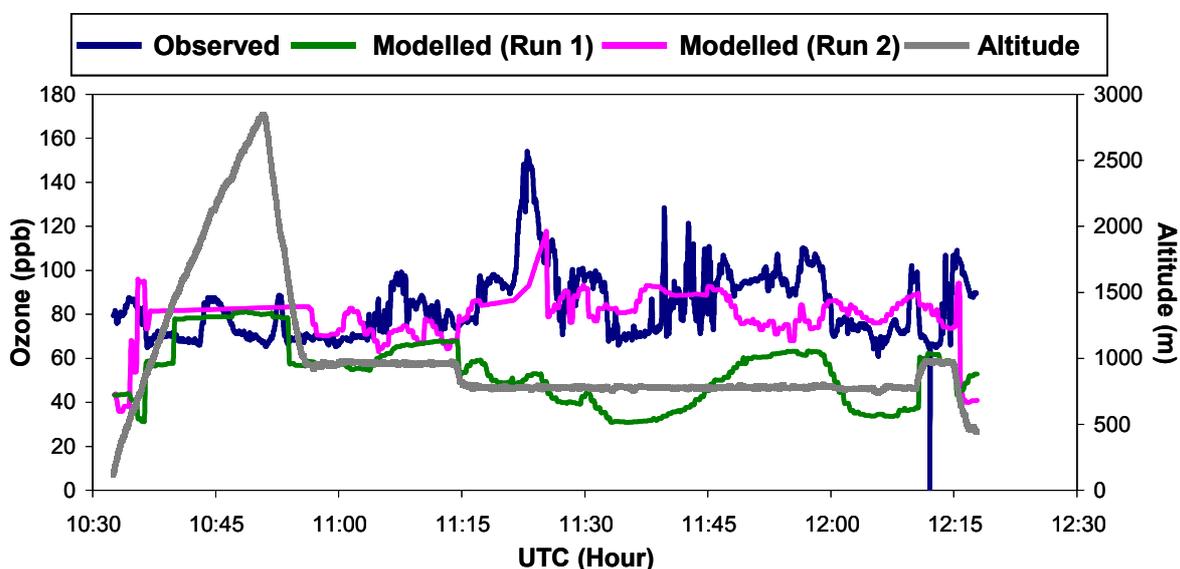


Figure 6: Airborne measurements and modeled results (run1 and run2) for ozone in IOP2b (25 June 2001).

For IOP2b, after the take off from Marignane airport at 10:32 UTC, the ARAT plane (Figure 4) comes to Avignon where it ascends to 2800 m in altitude (10:50 UTC); then it downs to 1000 - 700m levels (see Figure 6 for altitudes), and it crosses many plumes during its leg towards the Durance valley; afterwards, it returns towards the Rhone valley, and flies over the Aix en Provence surroundings (12:00 UTC), north of Marseilles area (12:15 UTC) before landing at Marignane. In the free troposphere (10:50 UTC), both runs retrieve well the ozone values (Figure 6). In the lower levels, we note again that run 2 simulates the plume above Rhone valley (11:25 UTC), the plume of the industrial zone (Fos-Berre at 11:45 UTC), or the Aix en Provence (12:00 UTC) and the north of Marseilles (12:15 UTC) plumes better than run1. However, the ozone peak (150ppb) measured at 11:25 UTC is not exactly retrieved by run 2 (120ppb). However, run 1 gives 50ppb only. Finally, the ozone peak located above the industrial zone (100ppb at 11:45 UTC) is always simulated by run 2 but not by run 1. Although the meteorological conditions are different between IOP2a and IOP2b, the 3D redistribution of ozone and nitrogen oxides is better evaluated by run 2 for both simulated periods.

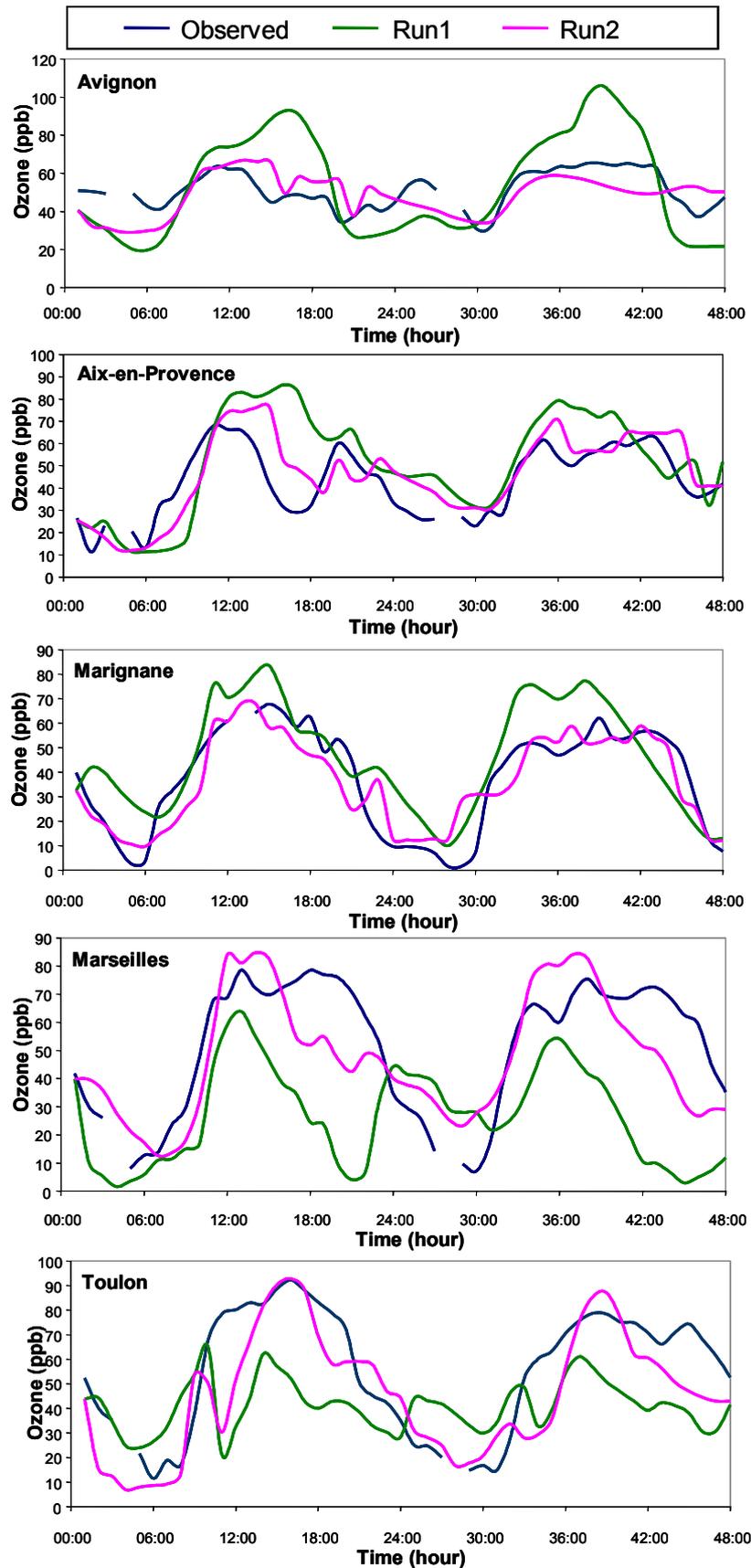


Figure 7: Surface stations measurements and modeled results (run1 and run2) for ozone during IOP2a (21 and 22 June 2001).

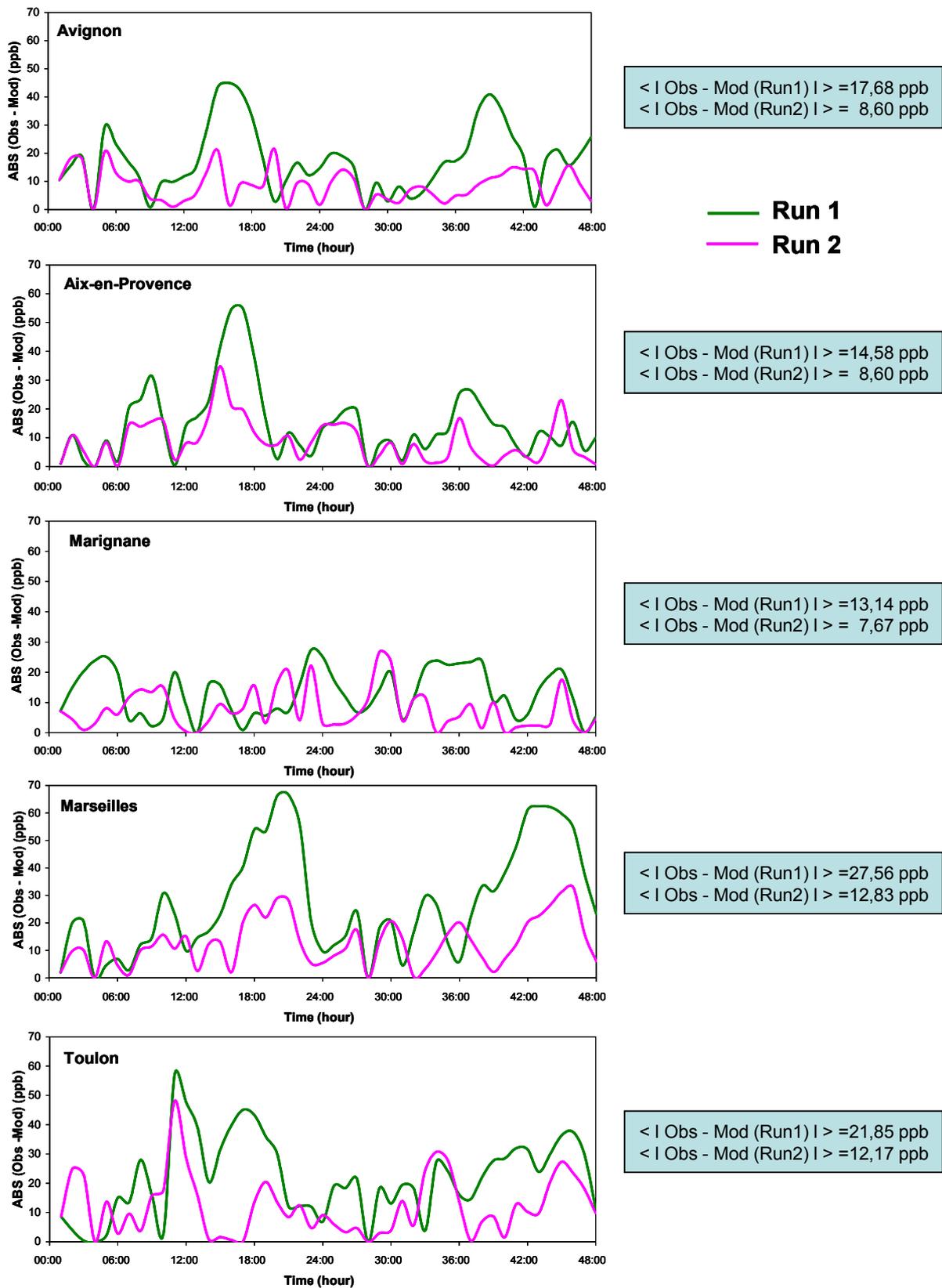


Figure 8: Surface stations measurements and modeled results (run1 and run2) for NOx during IOP2a (21 and 22 June 2001).

Surface stations

We have selected five cities: Marseilles and Toulon near the sea, Marignane and Aix en Provence in the center of the domain, and Avignon further inland. The hourly stations data are averaged over the last 15 minutes of measurement. For both runs, the numerical results are compared with the ozone and nitrogen oxides observations. Figures 7, 8, 9 and 10 show the comparison of ozone and nitrogen oxides evolution between observations and numerical results from run 1 and run 2 for IOP2a and IOP2b for the five stations.

For all stations during IOP2a (Figure 7), ozone values from run 2 match well the observations (same maximum and minimum). For NO_x (Figure 8) during IOP2a, the values from run 1 are always below 20 ppb for all stations while some observed peaks reach more than 100 ppb: again run 2 is much better than run 1. However, the morning peaks are generally underestimated by run 2, with the exception of Marseilles and Avignon on the June 21th. These NO_x peaks around 06:00 UTC and 30:00 UTC, i.e. 08:00 LT, are connected to road traffic. At this time, the boundary layer and the photochemistry are not developed and that is why NO_x concentration is high in low levels. As soon as the photochemistry is effective, the NO_x levels become weaker and the model values (run 2 and run 1 as well) have the same magnitude than observations at all stations except in Avignon: in this station, we note that the NO_x levels from run 1 are always underestimated and very low (below 10ppb). These weak NO_x values are associated with a strong overestimation in ozone concentration (Figure 7).

During IOP2b, for all stations, the agreement between modeled ozone looks better on June 25 than on June 24 for run 2 (Figure 9). As regards NO_x, the values obtained from run 2 are always better than from run 1 (Figure 10). We remark that during IOP2a and IOP2b, ozone from run 1 is overestimated in Avignon (located at the North of grid 2), but underestimated in Marseilles and in Toulon (towns near the coast).

To discriminate between both runs, we calculated the absolute value of the difference between modeled and observed values for run 1 or run 2 (respectively) during IOP2a and IOP2b (Figures 11 and 12). The average of these absolute values for all the stations is below 13 ppb for run 2 and reaches 28 ppb for run 1 during IOP2a (Figure 11). During IOP2b the average reaches 18 ppb for run 2 in Aix en Provence and 21 ppb for run 1. Generally the most important differences are found in the afternoon when the peaks are observed. However, in Marignane, which is close to strong emissions, the differences for both runs are smaller than for others stations during IOP2a and IOP2b.

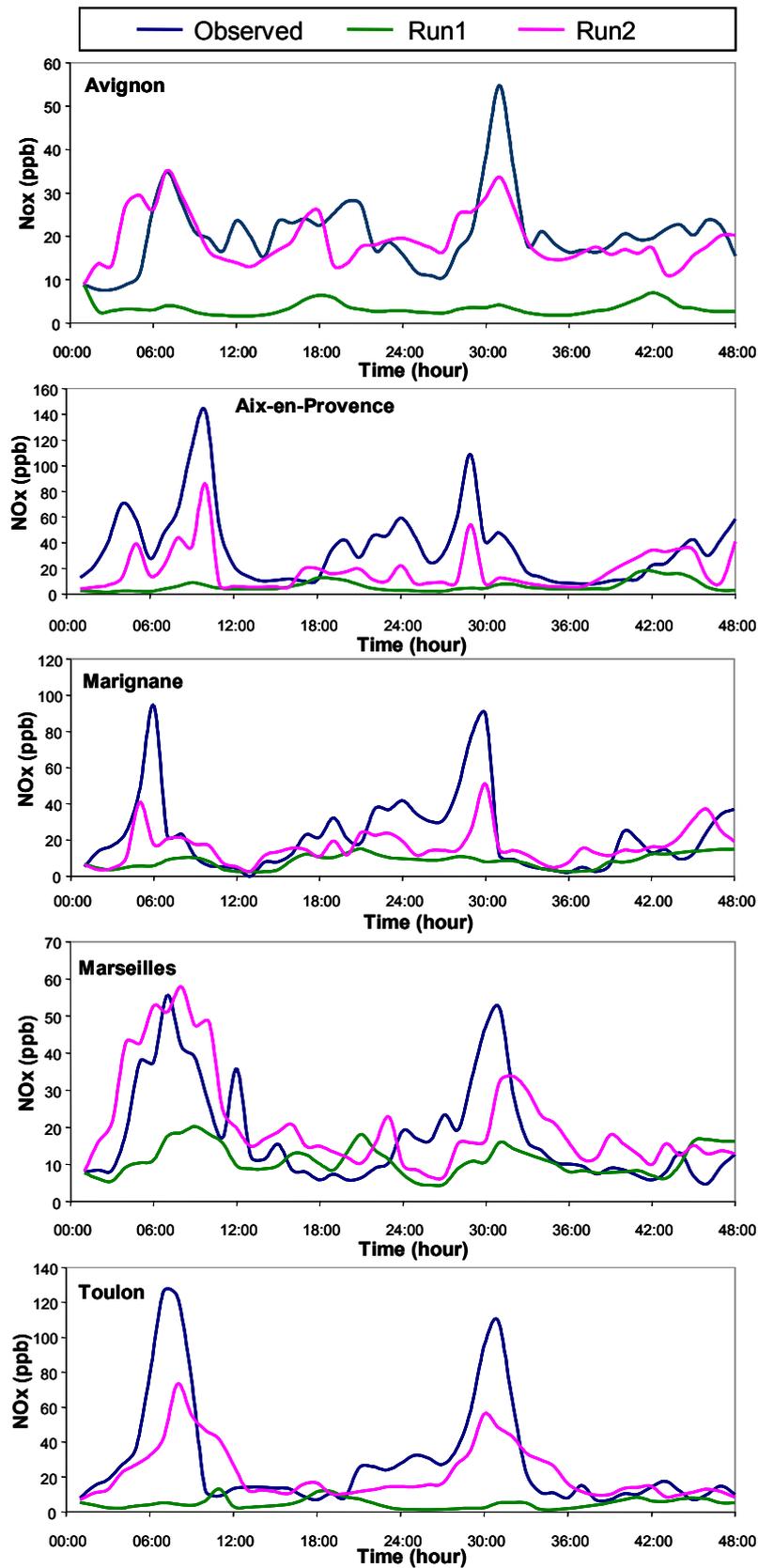


Figure 9: Surface stations measurements and modeled results (run1 and run2) for ozone during IOP2b (24 and 15 June 2001).

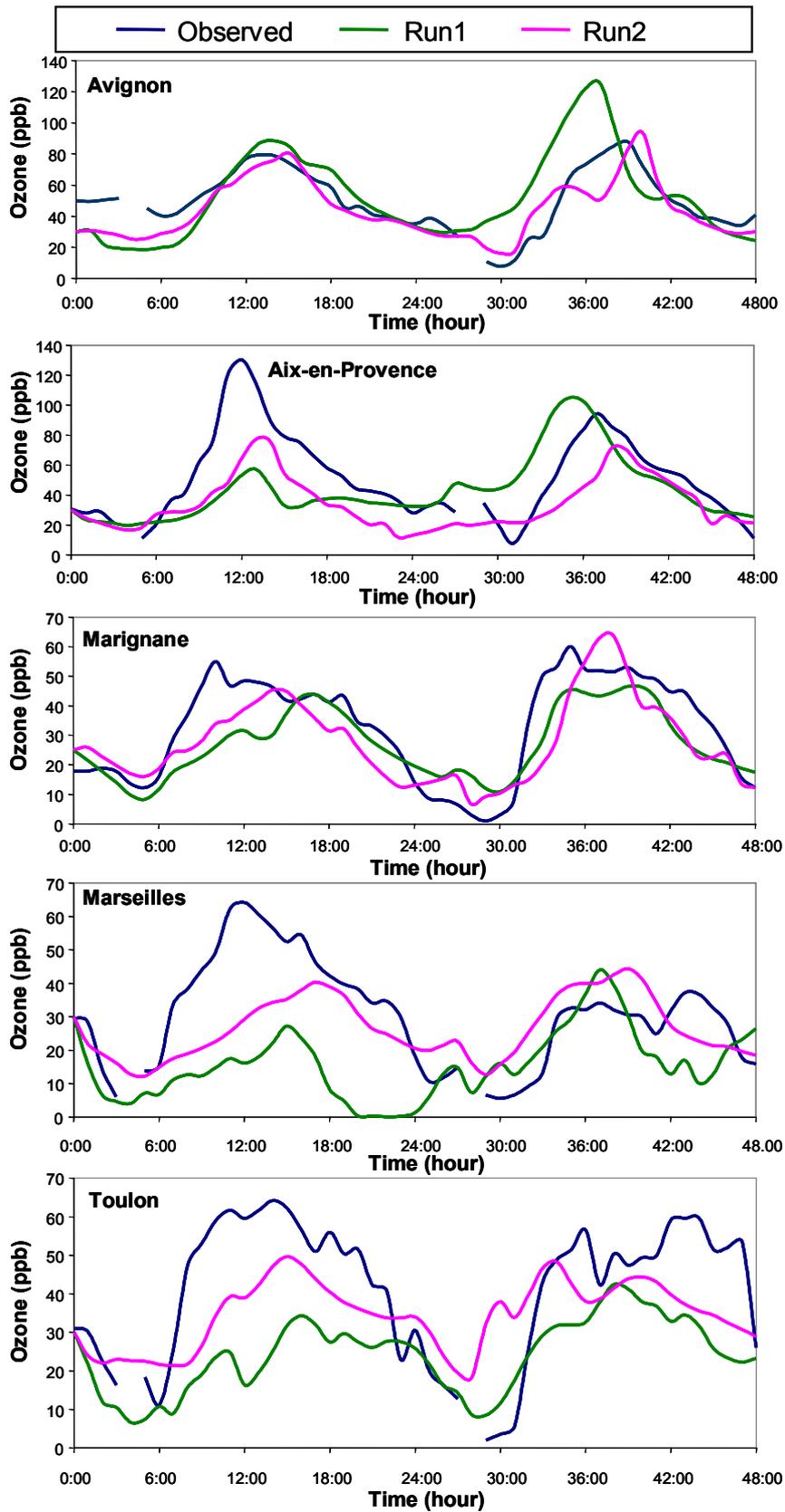


Figure 10: Surface stations measurements and modeled results (run1 and run2) for NO_x during IOP2b (24 and 15 June 2001).

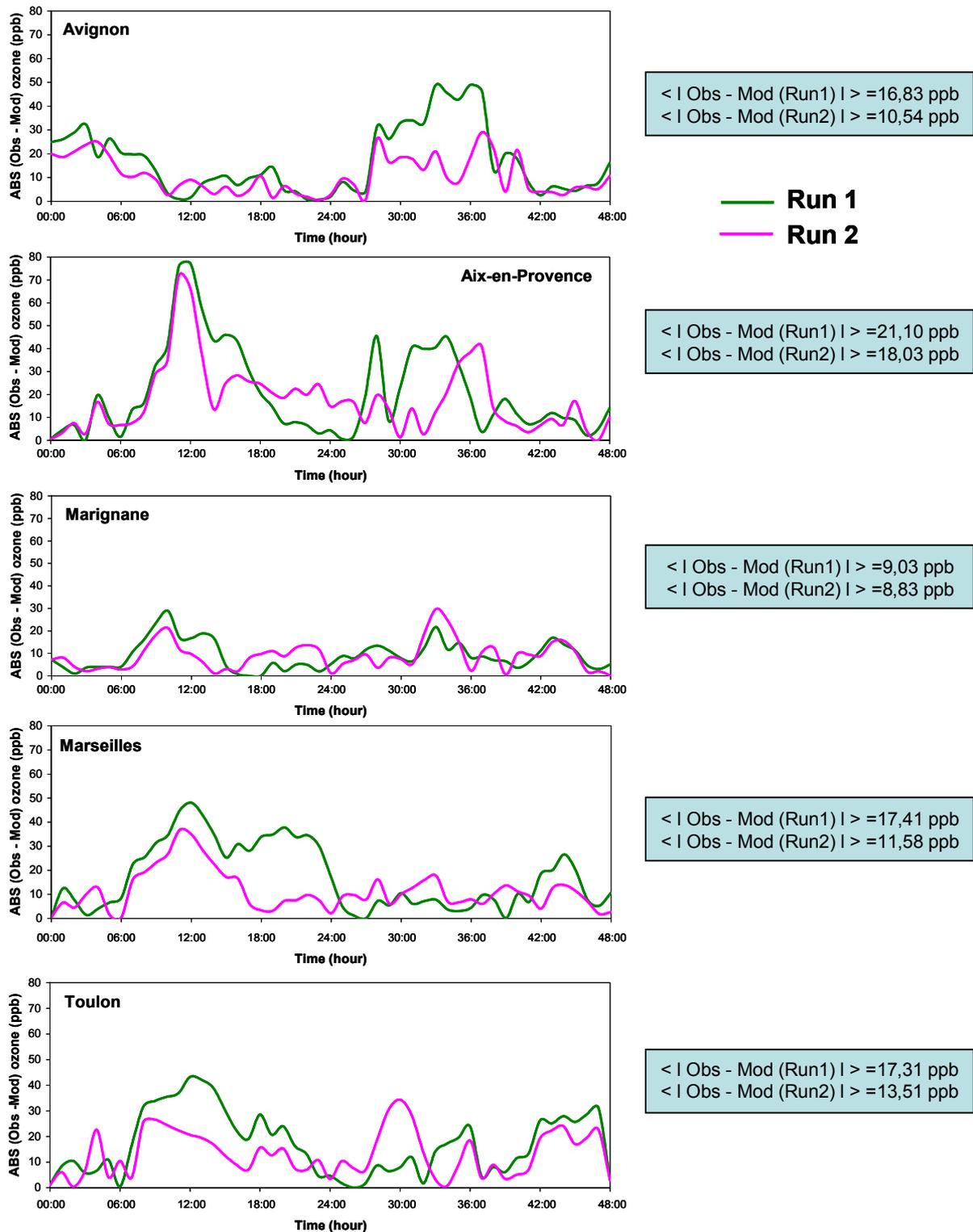


Figure 11: Differences between modeled results and observations for run1 and run2 for ozone during IOP2a (21 and 22 June 2001).

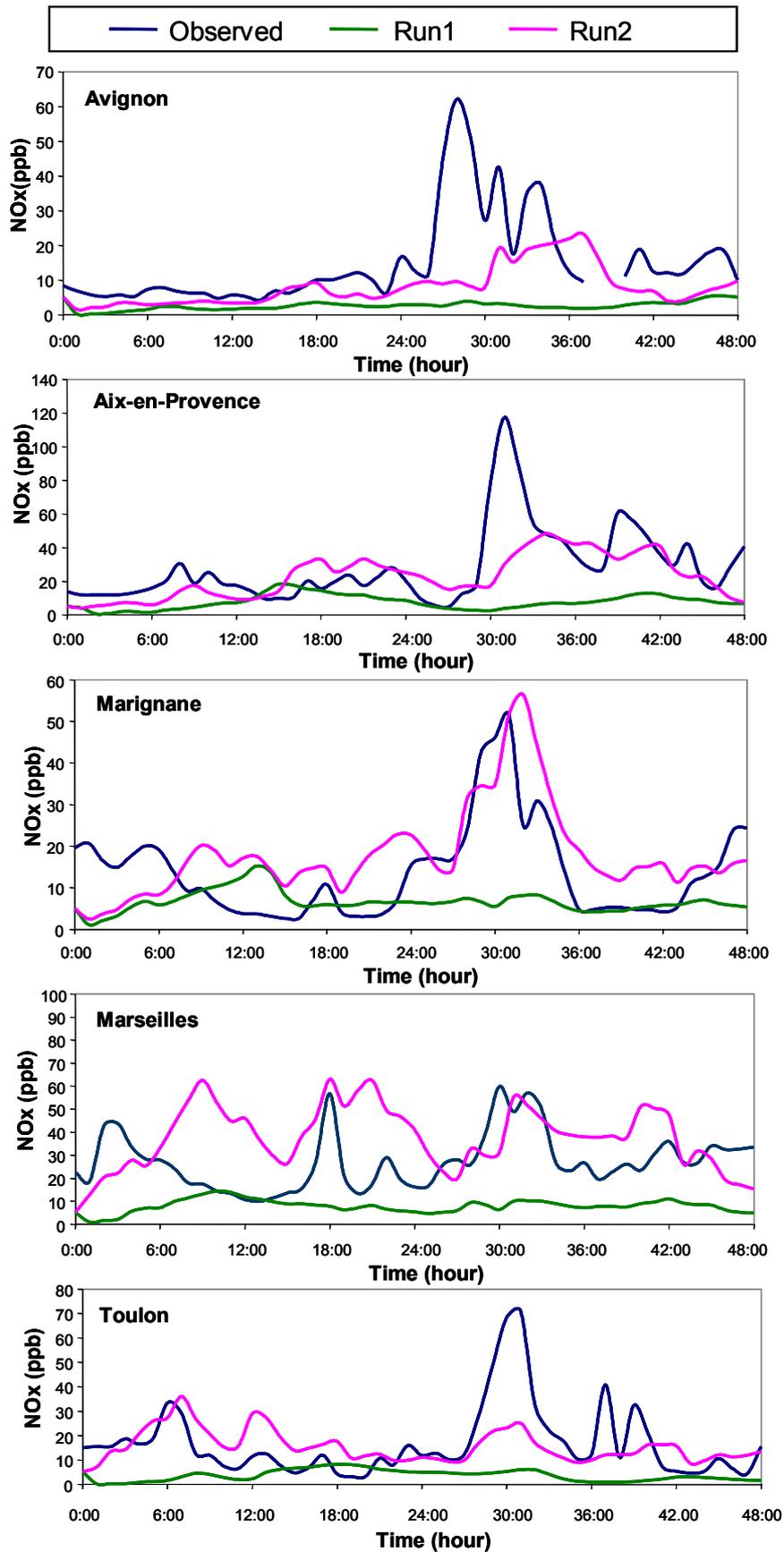


Figure 12: Differences between modeled results and observations for run1 and run2 for ozone during IOP2b (24 and 15 June 2001).

Plume regions

The pattern and behavior of the plumes are very dependent on wind fields and location of pollutants sources. Source points of primary pollutants (NO_x and NMVOC) are located in different areas, and the geographical distribution of plumes is not the same for both events: IOP2a and IOP2b (Figures 13 and 14). In Figures 13 and 14, only propene, ethene, ethane, and isoprene are included in NMVOC. The plume spreads near the coast for IOP2a and migrates inland for IOP2b. The chemical regime is generally saturated in NO_x and the NO_x/VOC ratio becomes favorable to ozone production. AIRMARAIX and AIRFOBEP networks of air quality provided the ozone isocontours obtained by interpolation from hourly maxima of surface measurement stations. We compared these maps with the hourly maxima from numerical results of run 1 and run 2 for both events (Figure 15).

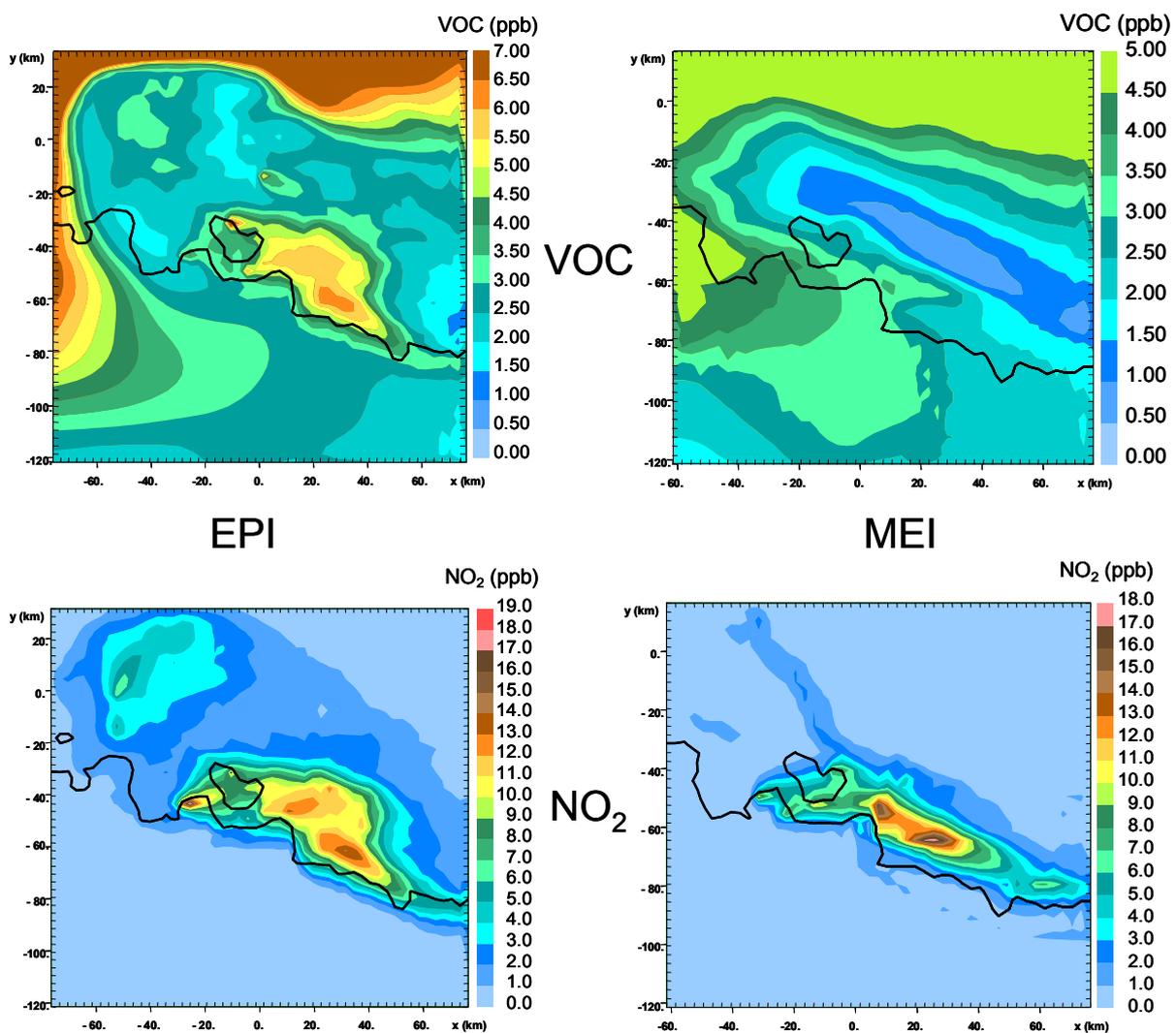


Figure 13: NO_x and NMVOC concentrations at the surface from run1 and run2 for IOP2a on June 22 at 16:00 UTC.

For IOP2a, the wind direction near the coast is West-East and consequently pushes the pollutants along the shore, especially on June 22. On this day, the measurements show high ozone values only near the coast (Figure 15). Two maxima are displayed in ozone isocontours with the EPI for run 1 and are not found with the MEI for run 2, which is in agreement with observations. The reason may be found in the differences between both inventories. In the EPI (run 1), the NO_x and NMVOC emissions are widespread (Figures 1 and 2) so that two plumes are distributed in the domain: one near the coast and the other inland (Figures 13 and 15). This produces an ozone maximum that does not exist on the daily map of the network. This maximum reaches 100 ppb in June 22 at Avignon for run 1 (Figure 6) while the observations are around 60 ppb. This result is retrieved by run 2. This difference in the location of primary sources involves also for the EPI a plume that does not reach 1300m in altitude. For MEI the plume carries 2ppb of NO_x and 80ppb of ozone up to 1300 m near the coast above Toulon (not shown).

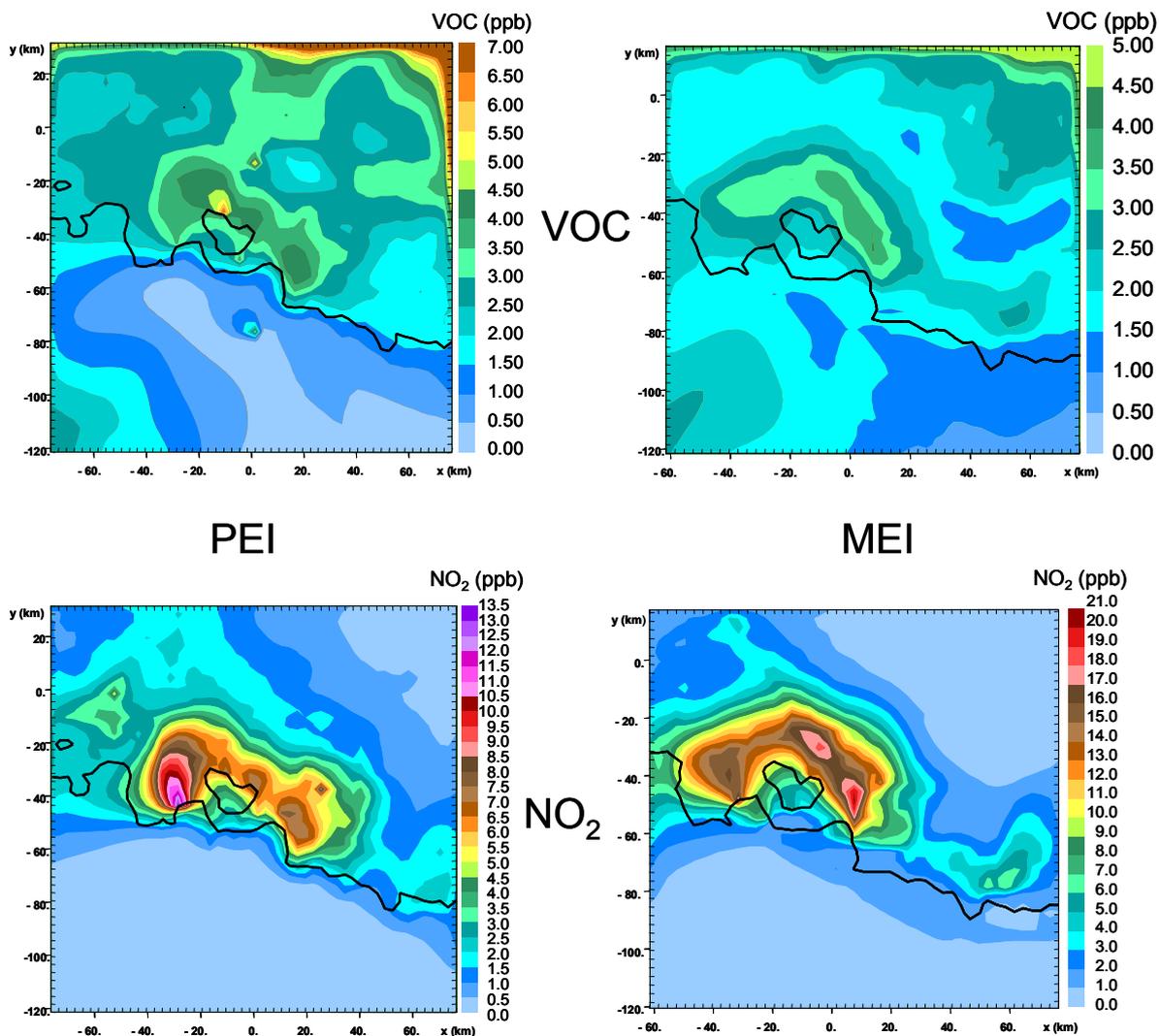


Figure 14: NO_x and NMVOC concentrations at the surface from run1 and run2 for IOP2b on June 25 at 10:00 UTC.

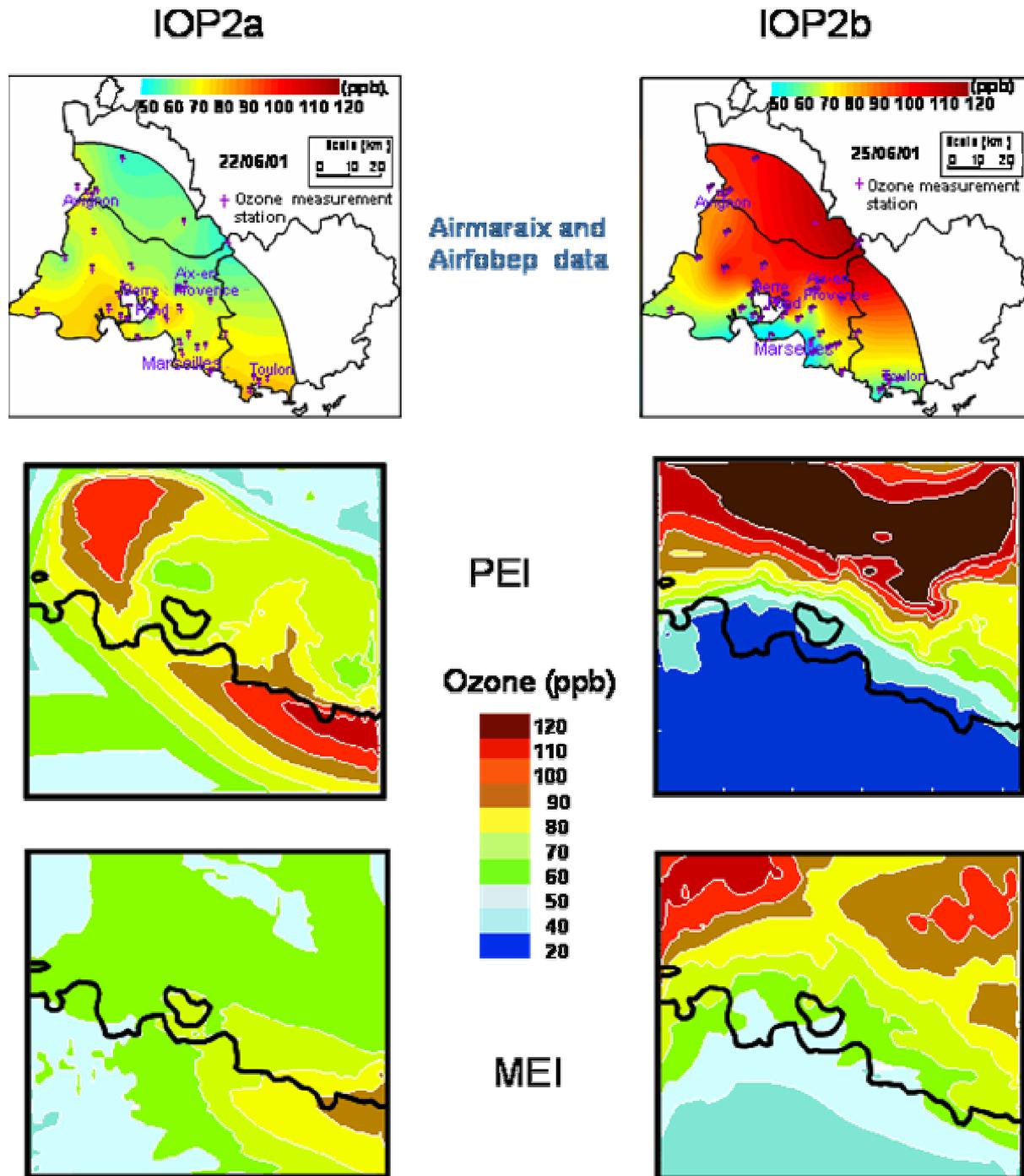


Figure 15: Daily maps of ozone hourly maximum concentration at the surface for IOP2a and IOP2b a) interpolation obtained by the AIRMARAIX and AIRFOBEP networks; b) from run1; c) from run2.

For IOP2b, the sea breeze is developed from June 24 and strengthened by a southern synoptic flow the next day. The plumes of NO_x and VOC are brought further inland (Figure 14). For the EPI, a large plume with a maximum value of 13 ppb for NO_x and 8ppb for NMVOC makes its way towards the north of domain. For the MEI, the plume is narrower with a maximum higher in NO_x (20ppb) and lower in NMVOC (4 ppb). The channeling into the

Durance and Rhone valleys produces very located plumes and brings about both maxima. The measurements (Figure 15) show one maximum in ozone inland. However there are not many stations at the north of domain and it is difficult to know if there were one or two maxima. The ozone maximum from EPI gives values of 120 ppb in a large northern part of the domain. These values are too high. The numerical results from MEI give more realistic values (90 - 110 ppb) but with two maxima. From June 24, the ozone peak is high (120 ppb in Aix en Provence, Figure 9), but in June 25 the ozone maximum is only 100 ppb in Aix en Provence. The NO_x levels are very high in June 25 (Figure 10) and the ozone maximum near the coast is low in Marseilles and Toulon (Figure 9). However run 1 (EPI) gives too low values for ozone over the sea (Figures 9 and 15). In this day, the convective cells are very efficient and strong ascents due to the topography lift the pollutants. The emissions spreading for EPI produce a small NO_x plume at 800 m above the Alpilles hills. At this level, a large simulated plume for MEI carries 110 ppb of ozone whereas aircraft measurements provide a value of 150 ppb above Rhone valley (Figure 5). This simulated plume by run 2 is very well developed because it reaches up to 2000 m with 92 ppb towards Alps Mountains (North West of the grid 2). With EPI (not shown here), the maximum is only 70 ppb.

The analysis of plumes indicates that a high resolution in space and time is very important to evaluate the maxima in various pollutants, such as primary species like NO_x or VOC or secondary species like ozone.

6. Discussions

During both IOPs, which are distinguished by different meteorological conditions, we have examined the time evolution of two compounds (ozone and NO_x). These species were chosen because they are quite different in nature (ozone: secondary pollutant, NO_x: primary pollutant). The EPI inventory gives low NO_x concentrations. Whereas the observed values can reach 100 ppb, run 1 with EPI simulates a maximum of 20 ppb only. As regards ozone concentration, it is difficult to state that run 2 is better than run 1. Figures 11 and 12 which show the difference between the ozone values obtained from run 1 (or run 2 respectively) and the observed values indicate that these differences are not significantly lower for run 2 than for run 1. The NO_x levels may double and we can still obtain the same magnitude in ozone (Peters et al, 2001).

During IOP2a, the ozone maximum is located near the coast and only run 2 predicts this maximum at Marseilles and Toulon (Figure 7). On the other hand, during IOP2b, when the ozone maximum is located in Avignon, run 2 provides 100 ppb, whereas run 1 predicts 120 ppb against a measured value of 100 ppb (Figure 9). We explain the overestimation in ozone maximum from run 1 by the low NO_x levels and the ozone transport from remote polluted areas (Rhone valley). In the case of run 2, the NO_x levels are four times higher, so that we have an ozone titration and we retrieve the observed ozone maximum. However, we note that the ozone maximum of 120 ppb on June 24, in Aix en Provence is simulated neither by run 1 nor by run 2. The daily hourly maximum is better retrieved by run 2 than by run 1 (Figure 15). In addition, the source points of pollutants (NO_x and NMVOC) are very concentrated for the MEI and run 2 simulates narrow plumes which can make their way via channeling into Durance or Rhone valleys and may be lifted to the free troposphere due to high topography.

In spite of its shortcomings, EPI gives numerical results which indicate peaks of pollution and whether they exceed the threshold value of 180 $\mu\text{g m}^{-3}$ (or 90 ppb). However, if someone wants to understand the geographical distribution of pollutants and to obtain a good order of magnitude in ozone spatio-temporal distribution, a high resolution inventory like MEI is necessary.

The RAMS-chemistry model associated with an accurate inventory such as MEI is a very efficient tool to simulate plumes in a region with complex circulations like the ESCOMPTE zone.

7. Summary and Conclusions

In the ESCOMPTE zone, a simulation with two nested grids has been performed with RAMS-Chemistry, i.e. the RAMS code coupled online with a condensed chemistry model (MOCA 2.2). This on-line method can be used because the code is paralleled and run on a very powerful computer (here a SGI 3800). Two emissions inventories, the EPI (a pre inventory) and the MEI (an inventory with a high resolution in space and time) are compared. The EPI inventory is characterized by NO_x and NMVOC emissions averaged and spread out over the region, and isoprene emissions located at some places. The MEI inventory has a high resolution: the NO_x and NMVOC emissions are source points well located (the main highways and maritime roads are distinguished) and isoprene emissions cover the whole domain from the coast to inland.

Two runs are performed: run 1 with EPI and run 2 with MEI for two periods characterized by different meteorological conditions. Both inventories have been discriminated from comparison of the numerical results with surface stations and airborne measurements for primary species like nitrogen oxides and secondary species like ozone. Generally, the EPI inventory gives low NO_x concentrations which lead to bad ozone estimation. Daily maps of hourly ozone maxima drawn by air quality networks (AIRMARAIX and AIRFOBEP) compared with numerical results from run 1 and run 2 show that run 2 (with MEI) is superior to run 1 (with EPI). Next, the modeled plumes of NO_x, NMVOC, and ozone are investigated. They help to explain and to understand the impact of a high resolution inventory in the context of complex circulation such as sea breeze, channeling by river valleys (Durance and Rhone), and vertical movements induced by high topography. Generally, we show that the MEI inventory is superior to EPI to retrieve the redistribution of chemical species in space and time. When comparing with surface stations data too, runs with MEI are better, especially for primary species like nitrogen oxides. For a secondary pollutant like ozone, an inventory such as EPI is sufficient to obtain the ozone pollution peaks. Runs with EPI are rather accurate to decide whether the threshold value of 180 $\mu\text{g m}^{-3}$ or 90 ppb is exceeded. Consequently, it is possible to simulate and forecast ozone peaks with a crude inventory like such as EPI. However, to understand the realistic geographical distribution of pollutants and to obtain a good order of magnitude in ozone spatio-temporal distribution, a high resolution inventory like MEI is necessary. Coupling RAMS-Chemistry with MEI provides a very efficient tool quite able to simulate pollution plumes even in a region with complex circulations such as the ESCOMPTE zone.

Acknowledgements: This modeling study is supported by funding of the French Centre National de la Recherche Scientifique (Programme National de Chimie Atmosphérique). This work makes use of the RAMS model, which was developed under the support of the National Science Foundation (NSF) and the Army Research Office (ARO). Computer resources were provided by CINES (Centre Informatique National de l'Enseignement Supérieur) project amp2107. The authors also wish to thank the computer team of the laboratoire de Météorologie Physique de l'Université Blaise Pascal (France); A.M. Lanquette, F. Besserve and Ph. Cacault.

References

- Aumont B.,A. Jaeker-Voirol, M. Martin and G. Toupance, Tests of some reduction hypotheses made in photochemical mechanisms. *Atmos. Environ.*, 30, 2061-2077, 1996.
- Baersts-Ritter N., A.S.H. Prevot, J. Dommen, S. Andreani-Aksoyoglu, J. Keller, Model study with UAM-V in the Milan area (I) during PIPAPO: simulations with changed emissions compared to ground and airborne measurements, *Atmos. Environ.*, 37, 4133-4147, 2003.
- Cautenet S., D. Poulet, C. Delon, R. Delmas, J.M. Grégoire, J.M. Pereira, S. Cherchali, O. Amram and G. Flouzat, Simulation of carbon monoxide redistribution over Central Africa during biomass burning (Experiment for Regional Sources and Sinks of Oxidants (EXPRESSO)), *J. Geophys. Res.*, **104**, 30641-30657,1999.
- Cotton W.R., R.A. Pielke Sr, R.L.Walko, G.E.Liston, C.J. Tremback, H. Jiang, R.L. McAnely, J.Y. Harrington, M.E. Nicholls, G.G. Carrio, and J.P. McFadden, Rams 2001: Current status and future directions, *Meteorol Atmos Phys.*, 82, 5-29, 2003.
- Cros B., P. Durand, H. Cachier, Ph Drobinski, E. Frejafon, Ch. Kottmeier, P.E. Perros, J.L. Ponche, D. Robin, F. Saïd, G. Toupance and H. Wortham, The ESCOMPTE Program: an Overview, *Atmos Res.*,69, 3-4, 241-279, 2004.
- Dabdud, D. and J. H. Seinfeld, Extrapolation techniques used in the solution of stiff odes associated with chemical kinetics of air quality models, *Atm. Env.*, 29, 403, 1995.
- Edy, J. and S. Cautenet, Biomass burning: local and regional redistribution, *Air Pollution Modeling and its application*. 63- 69.Plenum Press, New-York, 1998.
- François S., S. Fayet,E. Grondin and J.L. Ponche, The Air Quality Oriented Atmospheric Emission Inventories of the ESCOMPTE Program: Methodology and Results., *Atmos. Rech., This issue*.
- Gear, C. W., The automatic integration of ordinary differential equations, *ACM Comm.*, 14, 176, 1971.
- Guenther A., C. N. Hewitt, D. Erickson, R. Fall, C. Geron, T. Graedel, P. Harley, L. Klinger, M. Lerdau, W.A. McKay, T. Pierce, B. Scholes, R. Steinbrecher, R. Tallamraju, J. Taylor and P. Zimmerman, Aglobal model of natural volatile organic compound emissions, *J. Geophys. Res.*, **100**, 8873-8892, 1995.
- Hesstvedt, E., O. Hov and I. S. Isaksen, Quasy steady state approximations in air pollution modeling : comparison of two numerical schemes for oxidant prediction. *Int. J. Chem. Kin.*, **10**, 971, 1978.
- Joseph J. H., W. J. Wiscombe and J. A. Weinman, The delta-Eddington approximation for radiative flux transfer, *J. Atm. Sci.*, **33**, 2452, 1976.
- Linsley C.M., S. N. Gregory and R.A Harley, Formation of photochemical air pollution in central California 2.Impact of revised emissions on Eulerian model predictions, *J. Geophys. Res.*, **107**, D6, 10, 2002.
- Lyons, A.W., C. J. Tremback and R. A. Pielke, Applications of the regional atmospheric systems (RAMS) to provide input to photochemical grid models for the lake Michigan ozone study (LMOS), *J. Appl. Meteor.*, **34**, 1762 – 1785, 1995.
- Madronich S., Photodissociation in the atmosphere. 1. Actinic flux and the effects of ground reflections and clouds, *J. Geophys. Res.*, **92**, 9740, 1987.
- Millan, M.M., R. Salvador, E. Mantilla and G. Kallos, Photooxidant dynamics in the smtag307 Mediterranean basin in summer: Results from European research projects, *J. Geophys. Res.*,**102**, 8811 – 8823, 1997.
- Peters W., M. Kroi, F. Dentener, A. Thompson and J. Lelieveld, Chemistry – transport modeling of the satellite observed distribution of tropospheric ozone, *Atmos. Chem. Phys.*, 1, 337-378,2001.

- Poulet D, S. Cautenet and B. Aumont, Simulation of the chemical impact of the bush fires emissions, in Central Africa, during the EXPRESSO campaign *In revision to J. Geophys. Res.*, 2004.
- Saylor, R. D. and G. D. Ford, On the comparison of numerical methods for the integration of kinetic equations in atmospheric chemistry and transport model, *Atmos. Environ.*, 29, 2585, 1995.
- Shieh D. S.-S., Y. Chang and Carmichael G. R., The evaluation of numerical techniques for solution of stiff ordinary differential equations arising from chemical kinetic problems, *Env. Software*, 3, 28-38, 1988.
- Simon V., L. Luchetta, L. Torres, Estimating the emission of volatile organic compounds (VOC) from the French forest ecosystem, *Atmos. Environ.*, 35 Sup 1, S115-S126, 2001.
- Simon V., L. Domergues, P. Bouchou, L. Torres and A. Lopez, Isoprene emission rates and fluxes measured above a Mediterranean oak forest, *Atmos. Res.*, *This issue*, 2004a.
- Simon V., L. Domergues, S. Solignac and L. Torres, Biogenic emission from *Pinus halepensis*: a typical species of the Mediterranean area, *Atmos. Res.*, *This issue*, 2004b.
- Slemr F., G. Baumbach, P. Blank, U. Corsmeier, F. Fiedler, R. Friedrich, M. Habram, N. Kalthoff, D. Klemp, J.Kuhlwein, K. Mannschreck, M. Mollmann-Coers, K. Nester, H.-J.Panitz, P. Rabl, J. Slemr, U. Vogt and B. Wickert, Evaluation of modeled spatially and temporarily highly resolved emission inventories of phosmog precursors for the city of Augsburg: the experiment EVA and its major results. *J. Atmos. Chem.*, 42, 207-233, 2002.
- Taghavi M. Etude de la pollution en zone urbaine et péri-urbaine à l'aide d'une modélisation méso-échelle durant la campagne ESCOMPTE. Impact de la dynamique et des inventaires d'émission. Thèse de doctorat d'Université, n° 1454, Clermont II, Novembre 2003.
- Taghavi M, S. Cautenet and G.Foret, Simulation of ozone production in a complex circulation region with nested grids, accepted in *Atmos. Chem and Phys.*, 2004a.
- Taghavi M and S. Cautenet, Modelling of chemical species redistribution in an urban region, *to be submitted to Atmos. Environ.* 2004b.
- Vautard R., D. Martin, M. Beekmann, P. Drobinski, R. Friedrich, A. Jauberie, Kley, M. Lattuati, P. Moral, B. Neininger and J. Theloke, Paris emission inventory diagnostics from ESQUIF airborne measurements and a chemistry transport model, *J. Geophys. Res.*, **108**, D17, 8564, 2003.
- Walko R.L., Tremback C.J., Pielke R.A., and Cotton W.R., An interactive nesting algorithm for stretched grids and variable nesting ratios, *J. Apl. Meteor.*, 34, 994-999, 1995.
- Wiscombe, W. J., The delta – M method : rapid yet accurate radiative flux calculations for strongly asymmetric phase functions, *J. Atm. Sci.*, **34**, 1408, 1977.

IV.5 – Conclusion

En l'absence de pollution, c'est le cycle de Leighton (1961) qui domine la production d'ozone dans la troposphère. Dans ce cas, aucun changement diurne net de l'ozone n'est observé.

Les fortes sources d'émission de NO_x à Marseille et en zone industrielle détruisent l'ozone et entraînent une baisse de sa concentration ambiante à ces deux endroits, inférieure à la valeur moyenne observée pour les zones polluées (>30 ppb-50ppb).

La simulation de la concentration des radicaux OH et HO_2+RO_2 en fonction de la concentration de NO_x et COV montre que le rapport de NO_x/COV pour le maximum de production d'ozone correspond à de fortes concentrations de radicaux OH, alors que les radicaux HO_2+RO_2 sont plus élevés dans la région correspondant au régime chimique NO_x -limité. Les radicaux OH sont faibles pour les deux conditions : NO_x très élevé (dû à la perte d'OH par la formation d'acide nitrique, réaction IV.11) ou NO_x très bas (dû au taux lent de transformation de HO_2 vers OH par la réaction IV.7).

Le rapport du taux de formation des peroxydes (réactions (IV.10) et (IV.11)) divisé par le taux de formation de HNO_3 , est obtenu avec le modèle 0D. Une comparaison de la Figure IV.4 avec la Figure II.11 montre que ce rapport est étroitement associé à la séparation entre les régimes de NO_x -limité et COV-limité. Ce rapport est en général 0.8-0.9 ou plus pour des conditions NO_x -limité, où les peroxydes dominent le HNO_3 correspondant à une perte pour l'hydrogène impair, et 0.1 ou moins pour des conditions COV-limité. La ligne Y (Figure II.11.a) qui sépare les régimes chimiques de NO_x -limité et COV-limité correspond à un rapport de 0.2-0.3. Ce résultat fournit la base pour l'usage des peroxydes et de l'acide nitrique comme « indicateurs » de la chimie de NO_x -COV (Sillman, 1995 ; Kleinman et al, 1997 ; Perros et Marion, 1998).

La comparaison des simulations avec et sans grille imbriquées (Taghavi et al, 2003a) met en évidence qu'une bonne définition des conditions aux limites pour la chimie est indispensable pour la validation d'un modèle. L'utilisation de grilles imbriquées a permis de prendre en compte d'une façon réaliste l'influence des polluants de la zone industrielle lyonnaise sur le domaine ESCOMPTE.

On a montré que la présence de grilles imbriquées permet d'avoir des conditions aux limites pour les champs chimiques de la grille fille.

Après avoir validé les simulations effectuées avec le modèle RAMS_Chimie, par des comparaisons avec des stations en surface, des mesures aéroportées ou des mesures LIDAR, nous avons examiné l'impact de la dynamique sur les champs chimiques pour les espèces primaires ou secondaires, dans cette région à relief très contrasté et à circulation très complexe. Le flux synoptique, la circulation de brise de mer ou de terre, la canalisation dans les vallées peuvent accumuler les polluants d'espèces primaires comme les NO_x , les COV dans certaines zones et entraîner des titrations d'ozone dans ces zones très localisées ou des productions d'ozone suivant les valeurs du rapport NO_x/COV . Les cellules convectives modifient très fortement le champ d'ozone en altitude avec des zones de forte concentration

dues à des ascendances et de faible concentration dues à des subsidences. Donc, ce type d'étude peut être utilisé pour vérifier l'impact d'un site industriel avant son installation dans une région. Les comparaisons des deux simulations effectuées avec deux cadastres d'émission (PEI et MEI), avec les observations des stations de surface et aussi en altitude au moyen des mesures aéroportées démontre que la validation d'un modèle chimique dépend fortement de l'inventaire d'émission utilisé. On a montré que l'erreur dans la localisation des sources d'émission peut fortement influencer les résultats des simulations pour la redistribution des espèces primaires. Pour la localisation et la formation du panache d'ozone (espèce chimique secondaire), on observe une différence moins importante que dans les résultats précédents, mais cette dernière existe soit au niveau de la valeur, soit au niveau de son emplacement.

CONCLUSION



La modélisation atmosphérique soit météorologique, soit pour la pollution atmosphérique sont des problèmes majeurs aujourd'hui qui touchent directement et indirectement notre vie quotidienne. Les hautes concentrations d'ozone dans les zones urbanisées et même rurales associées à des périodes de sécheresse sont des exemples de ces problèmes, car elles sont les conséquences des émissions des composants chimiques de l'atmosphère par les être humains. Il va devenir très important de bien prévoir les pics d'ozone et autres polluants, de faire des études de réduction de rejets, d'impact des zones industrielles. Ce travail de recherche dans le cadre de la campagne ESCOMPTE participe à cette action.

Dans une première étape, l'évaluation des outils numériques a été réalisée. Ce travail est dans la continuité du groupe de modélisation méso-échelle du LAMP dont le but consiste à élaborer un modèle de transport-chimie capable de restituer les champs chimiques dans tous types d'atmosphère. A partir des divers travaux (Edy, 1997 ; Poulet, 2000 ; Foret, 2003), nous avons amélioré l'outil RAMS_Chimie (version 4.3) parallélisé et bien performant. Dans cette étape, tous les codes numériques du mécanisme chimique (MOCA2.2, initialisation et émission) ont été reformulés pour la version parallèle. L'efficacité du taux de parallélisation du modèle RAMS seul et du modèle couplé obtient les valeurs de 0.96273 et 0.98022 respectivement suivant la loi d'Amdahl. L'augmentation de ce pourcentage est la garantie d'un bon couplage en version parallèle. Sur la SGI 3800 du CINES, le temps réel de calcul du modèle RAMS_Chimie optimisé (en utilisant 16 processeurs) est égal à 1h30 pour une journée de simulation.

L'étape suivante a permis de restituer les champs météorologiques les plus réalistes possible. Pour obtenir ce type de résultats, nous avons dû intervenir sur le module de sol, pour une initialisation hétérogène des profils d'humidité du sol, faire des tests sur l'option de topographie à utiliser, sur les températures d'eau de mer. L'utilisation des grilles imbriquées a permis de simuler les champs des conditions aux limites pour la grille la plus fine qui correspond au domaine ESCOMPTE. Les résultats météorologiques des simulations ont été comparés et validés avec les mesures des stations à la surface, les profils verticaux des Lidars et des Sodars et le profil vertical des radiosondages, ainsi qu'avec les mesures aéroportées sur différents trajets. Nous avons montré que les résultats de la POI2b sont dans l'ensemble meilleurs que ceux des POI2a et POI0. La POI2b se caractérise par une circulation de brise de mer bien développée avec un flux de sud dominant, alors que les POI0 et POI2a sont des situations de fin de Mistral avec une brise de mer moins développée. Les hétérogénéités de surface (topographie, végétation, humidité du sol, texture du sol, température de l'eau de mer) sont bien reproduites dans le modèle méso-échelle et assurent une meilleure restitution des champs météorologiques pour le cas où ces paramètres jouent un rôle plus important : la POI2b.

Ces simulations décrivent la dynamique complexe de cette région et sont un complément aux mesures détaillées de la campagne ESCOMPTE. En effet les champs simulés nous ont permis d'interpréter et d'étudier la dynamique de trois POIs avec une précision convenable. Ainsi, on a pu évaluer la pénétration de la circulation de la brise de mer en différents endroits stratégiques par rapport aux émissions de polluants anthropiques. Nous avons montré le rôle du Mistral ou de la circulation de brise de mer associés aux mécanismes de canalisation dans les vallées du Rhône et de la Durance ainsi que leur impact sur la redistribution des masses d'air au niveau du sol. Les cellules convectives associées au front de brise ont été étudiées, et nous avons montré leur impact sur la redistribution verticale des masses d'air.

Dans la partie chimie, nous avons tout d'abord testé la sensibilité à la production d'ozone pour différentes concentrations de NO_x et COV, avec le modèle de boîte du mécanisme chimique condensé MOCA2.2. Les résultats sont en très bon accord avec le cas référencé par différents modèles chimiques explicites, comme EKMA (Dodge, 1977). Cela nous prouve que ce modèle est capable de simuler les régimes de NO_x et COV limité et un rapport NO_x/COV de 10 pour obtenir un maximum de production d'ozone.

Dans une deuxième étape, nous avons réalisé la simulation tridimensionnelle des champs chimiques. L'importance d'une condition aux limites chimiques ainsi que l'impact des régions voisines avec des fortes émissions a nécessité de prendre en compte les grilles imbriquées (Two way nesting). Deux simulations avec et sans grilles imbriquées sont effectuées. Les concentrations des espèces primaires et secondaires ont été comparées avec les observations de surface, ainsi qu'en altitude (mesures aéroportées) dans le cadre de la POI0. Dans tous les cas, les résultats de simulation avec grilles imbriquées sont meilleurs (Taghavi et al, 2004a). L'impact des polluants de la région industrielle lyonnaise transportés dans la vallée du Rhône et la canalisation dans cette vallée empêchent la dispersion de ces polluants et ils arrivent en quantité importante sur le domaine d'ESCOMPTE. Cela nous a montré que l'utilisation des grilles imbriquées est indispensable.

La redistribution des concentrations d'ozone en surface simulées sont en très bon accord avec les cartes qui présentent l'interpolation des mesures du réseau de la qualité de l'air de la région PACA, pour les POI2a et POI2b. Ces redistributions montrent le rôle important et déterminant de la dynamique sur la formation du panache d'ozone. Dans le cas de la POI2a, le panache se trouve au sud du domaine, le long du littoral et plutôt sur Toulon et pour la POI2b, il se trouve au nord de domaine sur le continent avec deux maxima, l'un dans la vallée du Rhône près d'Avignon et le deuxième dans la vallée la Durance (Taghavi et al, 2004b).

Deux inventaires d'émission ont été utilisés dans le cadre de la campagne ESCOMPTE : le premier comme pré inventaire (PEI) et le deuxième, à haute résolution (1km), comme l'inventaire approprié, mis à jour pour la campagne 2001 (MEI). Des différences entre les deux inventaires d'émission ont été démontrées au niveau de la qualité de localisation des sources mais aussi au niveau des quantités journalières et aussi des pics horaires. Ces deux cadastres différents nous ont permis d'effectuer une estimation sur l'importance du rôle des émissions. Les comparaisons des résultats des deux simulations avec ces deux cadastres différents pour les POI2a et POI2b démontrent que :

- 1- une sous estimation des espèces primaires comme NO_x, est très importante, car l'intervalle d'erreur sur l'estimation de la concentration de cette espèce en fonction du cadastre est assez grand.
- 2- les comparaisons entre valeurs simulées et observées pour les stations de surface et les mesures aéroportées, montrent que l'erreur dans la localisation des sources d'émission peut fortement influencer les résultats de simulation pour la redistribution des espèces primaires. Ainsi la validation d'un modèle pourrait être mise en doute à cause d'un mauvais cadastre.
- 3- Une différence notable mais faible existe entre les résultats des deux cadastres sur la localisation et la formation du panache d'ozone (espèce chimique secondaire), soit au niveau de la valeur, soit au niveau de son emplacement. Cela est dû au fait que la production d'ozone est un mécanisme non linéaire, et s'il y a assez d'émission d'espèces primaires pour se situer dans le régime chimique à forte production d'ozone, peu importe la quantité réelle de polluants primaires.

Donc on peut conclure (Taghavi et al, 2004b) qu'un cadastre d'émission exact est une nécessité pour la validation d'un modèle de chimie, alors qu'un cadastre de qualité moyenne pourra bien répondre aux besoins pour simuler des panaches de polluants en région urbaine.

Un autre point très important obtenu dans cette étude de comparaison de cadastre d'émission, est qu'il montre qu'un cadastre qui a des émissions 1/3 en moyenne plus basses que le cadastre à haute résolution, donne des pics d'ozone. Les simulations indiquent qu'une réduction de 30% sur l'ensemble des émissions ne peut pas empêcher l'occurrence d'un épisode de pollution dans le domaine.

Enfin, comme on l'a mentionné dans l'introduction de cette thèse, dans la communauté de ce groupe de modélisation de la chimie de l'atmosphère, un débat consiste en l'amélioration des modèles afin de les rendre plus optimisés, soit au niveau des résultats, soit au niveau de la performance numérique. Ce travail montre qu'un modèle chimique condensé, contenant les principaux processus chimiques, est capable de restituer avec une estimation satisfaisante la concentration d'un produit secondaire qui a un impact très important tel que l'ozone.

Perspective :

Vu la richesse de la campagne d'ESCOMPTE au niveau de sa base de données dynamiques et chimiques, des travaux de recherche peuvent continuer avec :

- La modification de la canopée urbaine dans le modèle RAMS en l'ajustant pour les villes européennes. Il est actuellement structuré pour des villes de type américain avec de grands immeubles.

- Un inter comparaison entre le mécanisme chimique MOCA2.2 et un mécanisme plus détaillé incluant plus d'espèces et un nombre plus grand de réactions.

Un autre travail qui peut être envisagé est une simulation avec trois grilles imbriquées, où la grille la plus large sera la grille mère pour la grille 1 actuelle. Cette troisième grille avec des mailles appropriées pourra prendre en compte directement les données d'émission des bases EDGAR ou GIEA. Cette application peut permettre des simulations consécutives sur une dizaine de jours, et pourra être un départ pour aller vers des simulations opérationnelles de prévision des épisodes de pollutions.

BIBLIOGRAPHIE

Amdahl, G.M., 1976: Validity of the single-processor approach to achieving large scale computing capabilities, *In AFIPS Conference Proceedings*, **30**, pp. 483-485. AFIPS Press, Reston, Virginia.

Andersson-Sköld, Y., Simpson D., 1999: Comparison of the chemical schemes of the EMEP MSC-W and IVL photochemical trajectory models, *Atmospheric Environment*, **33**, pp. 1111–1129.

Aumont, B., Jaecker-Voirol, A., Martin, B., Toupance, G., 1996: Tests of some reduction hypotheses made in photochemical mechanisms, *Atmospheric Environment*, **30**, pp. 2061–2077.

Avissar, R., Chen, F., 1993: Development and analysis of prognostic equations for mesoscale kinetic energy and mesoscale (subgrid-scale) fluxes for large-scale atmospheric models, *Journal of the Atmospheric Sciences*, **50**, pp. 3751-3774.

Bates, D. V., 1995a: Ozone: A critical review of recent experimental, clinical and epidemiological evidence, with notes causation, part1, *Canadian Respiratory Journal*, **2**, pp. 25–31.

Bates, D. V., 1995b: Ozone: A critical review of recent experimental, clinical and epidemiological evidence, with notes causation, part2, *Canadian Respiratory Journal*, **2**, pp. 161–171.

Bequelin, A., Dongarra, J., Geist, G.A. , Manchek, R., Sunderam, V., 1991: A User's Guide to PVM - Parallel Virtual Machine, Technical Report ORNL/TM-11826, Knoxville, TN.

Buisson, É., 1999 : Modélisation de la redistribution des polluants en présence de nuages. Application dans le cadre de la campagne de mesures N.A.R.E 1993 (North Atlantic Regional Experiment), *Thèse de l'Université Blaise Pascal*, Clermont-Ferrand, France.

Businger, J.A., Wyngaard, J.C., Izumi, Y., Bradley, E.F., 1971: Flux-profile relationship in the atmosphere surface layer, *Journal of the Atmospheric Sciences*, **28**, pp.181-189.

Cai, X.-M., Steyn, D.G., Gartshore, I.S., 1995: Resolved scale turbulence in the atmospheric surface layer from a large eddy simulation, *Boundary-Layer Meteorology*, **75**, pp.301-314.

Cai, X.-M. Steyn D.G., 1996: The von Kármán constant determined by large eddy simulation, *Boundary-Layer Meteorology*, **78**, pp. 143-164.

Cai, X.-M., 1999: Large-eddy simulation of the urban convective boundary layer, *Quarterly Journal of the Royal Meteorological Society*, **125**, pp.1427-1444.

Cai, X.-M., Steyn, D.G., 2000: Modelling study of sea breezes in a complex coastal environment, *Atmospheric Environment*, **34**, pp. 2873-2885.

Carmichael, G.R., Peters, L.K., 1984: An Eulerian transport/transformation/ removal model for SO₂ and sulfate. I. Model development, *Atmospheric Environment*, **18**, pp. 937-951.

Carmichael, G. R., Peters, L. K., Saylor, R. D., 1991: The STEM-II regional scale acid deposition and photochemical oxidant model. i. an overview of model development and applications, *Atmospheric Environment*, **25**, pp. 2077–2090.

Cautenet S., D. Poulet, C. Delon, R. Delmas, J.M. Grégoire, J.M. Pereira, S. Cherchali, O. Amram and G. Flouzat, 1999: Simulation of carbon monoxide redistribution over Central Africa during biomass burning (Experiment for Regional Sources and Sinks of Oxidants (EXPRESSO)), *Journal of Geophysical Research*, **104**, pp. 30641-30657.

Chang, J. S., Brost, R. A., Isaksen, I. S. A., Madronich, S., Middleton, P., Stockwell, W. R. and Walcek, C. J., 1987: A three-dimensional eulerian acid deposition model: Physical concepts and formulations, *Journal of Geophysical Research*, **92**, pp.14681–14700.

Chen, F. Avissar, R., 1994: The impact of land-surface wetness heterogeneity on mesoscale heat fluxes, *Journal of Applied Meteorology*, **33**, pp. 1323-1340.

Clapp, R., Hornberger, G., 1978: Empirical equations for some soil hydraulic properties, *Water Resources Research*, **14**, pp. 601-604.

Clark, T.L., 1977: A small-scale dynamic model using a terrain-following coordinate transformation, *Journal of Computational Physics*, **24**, pp.186-215.

Clark, T.L., Farley, R.D., 1984: Severe downslope windstorm calculations in two and three spatial dimensions using anelastic interactive grid nesting: A possible mechanism for gustiness, *Journal of the Atmospheric Sciences*, **41**, pp. 329-350.

Clark, T.L., Hall, W.D., 1991: Multi-domain simulations of the time dependent Navier-Stokes equations: Benchmark error analysis of some nesting procedures, *Journal of Computational Physics*, **92**, pp. 456-481.

Cotton W. R., Pielke R.A., Walko, R.L., Liston, G. E., Tremback, C. J., Jiang, H., McAnelly, R. L., Harrington, J.Y., Nicholls, M.E., Carrio, G.G., McFadden, J.P., 2003: Rams 2001: Current status and future directions, *Meteorology and Atmospheric Physics*, **82**, pp. 5–29.

Cros B., P. Durand, H. Cachier, Ph Drobinski, E. Frejafon, Ch. Kottmeier, P.E. Perros, J.L. Ponche, D. Robin, F. Saïd, G. Toupance and H. Wortham, The ESCOMPTE Program: an Overview, *Atmospheric Research.*, **69**, 3-4, pp. 241-279, 2004.

Dabdud, D. and J. H. Seinfeld, 1995: Extrapolation techniques used in the solution of stiff odes associated with chemical kinetics of air quality models, *Atmospheric Environment*, **29**, 403.

Davies, H.C., 1976: A lateral boundary formulation for multi-level prediction models, *Quarterly Journal of the Royal Meteorological Society*, **102**, pp. 405-418.

Djouad, R., Sportisse, B., 2003: Solving reduced chemical models in air pollution modeling, *Applied Numerical Mathematics*, **44**, pp. 49-61.

Dodge, M. C., 1997b: Combined use of modelling techniques and smog chamber data to derive ozone-precursor relationships, in B. Dimitriades (ed.), *Proceedings of the International Conference on Photochemical Oxidant Pollution and its Control, EPA-60/3-77-001b*, **2**, pp. 881–889.

Duderstadt, K.A., Carroll, M.A., Sillman, S., Wang, T., Albercook, G.M., Feng, L., Parrish, D.D., Holloway, J.S., Fehsenfeld, F., Blake, D.R., Blake, N.J., Forbes, G., 1998: Photochemical production and loss rates at Sable Island, Nova Scotia during the North Atlantic Regional Experiment 1993 Summer Intensive, *Journal of Geophysical Research*, **103**, pp. 13,531–13,555.

Durand, P., 2002: Rapport d'expérience de la Campagne de terrain ESCOMPTE, <http://medias.obs-mip.fr/escomppte/projet/index.fr.php>.

Durrán, D.R., 1981: The effects of moisture on mountain lee waves. *Technical Report Ph.D.* Thesis NTIS PB82156621, Massachusetts Institute of Technology.

Durrán, 1983 Fritsch, J.M. and C.F. Chappell, 1980a: Numerical prediction of convectively driven mesoscale pressure systems. Part I: Convective parameterization, *Journal of the Atmospheric Sciences*, **37**, pp. 1722-1733.

Eastman JL, Pielke RA, Lyons WA, 1995: Comparison of lake-breeze model simulations with tracer data, *Journal of Applied Meteorology*, **34**, pp.1398–1418.

Edy, J., 1997 : Modélisation méso-échelle de la redistribution d'espèces chimiques au niveau des tropiques. *Thèse de l'Université Blaise Pascal*, Clermont-Ferrand, France.

Edy, J. and S. Cautenet, 1998: Biomass burning: local and regional redistribution, *Air Pollution Modeling and its application*. 63- 69.Plenum Press, New-York.

Fast, J. D., Doran, J.C., Shaw, W.J., Coulter, R.L., Martin, T.J., 2000: The evolution of the boundary layer and its effect on air chemistry in the Phoenix area. *Journal of Geophysical Research*, pp. 22833-22848.

Finlayson-Pitts, B.J., J. N. Pitts and Jr., Volatile, 1993: Organic Compounds: Ozone Formulation, Alternative Fuels, and Toxics, *Chemistry and Industry*, October 18, pp. 796-800.

Finlayson-Pitts, B.J., Pitts, J.N., 2000: Chemistry of the Upper and Lower Atmosphere, Academic Press.

Freitas, S.R., Silva Dias, M.A.F., Silva Dias, P.L., Longo, K.M., Artaxo, P., Andreae, M.O., Fischer, H., 2000: A convective kinematic trajectory technique for low-resolution atmospheric models, *Journal of Geophysical Research*, 105, 24375.

Fuhrer, J., Achermann, B., 1994: Critical levels for ozone: A UNECE workshop report, *Technical Report 16*, Swiss Fed. Station for Agric. Chem. And Environ. Hyg., Liebefeld-Bern.

Gadd, A.J., 1978: A split explicit integration scheme for numerical weather prediction, *Quarterly Journal of the Royal Meteorological Society*, **104**, pp. 569-582.

Gal-Chen, T., Somerville, R.C.J., 1975: On the use of a coordinate transformation for the solution of the Navier-Stokes equations, *Journal of Computational Physics*, **17**, pp. 209-228.

Gangoitia, G., Alonsoa, L., Navazoa, M., Albizurib, A., Perez-Landac, G., Matabuenaa, M., Valdenebroa, V., Maruria, M., Garcia, J., Millan, M. M., 2002: Regional transport of pollutants over the bay of biscay: Analysis of an ozone episode under a blocking anticyclone in west-central Europe, *Atmospheric Environment*, **36**, pp.1349–136.

Garland, J.A., Atkins, D.H.F., Readings, C.J., Caughey, S.J., 1974: Deposition of gaseous sulphur dioxide to the ground, *Atmospheric Environment*, **8**, pp.75-79,

Gear, C. W., 1971: The automatic integration of ordinary differential equations, *ACM Comm.*, **14**, 176.

Guenther A., C. N. Hewitt, D. Erickson, R. Fall, C. Geron, T. Graedel, P. Harley, L. Klinger, M. Lerdau, W.A. McKay, T. Pierce, B. Scholes, R. Steinbrecher, R. Tallamraju, J. Taylor and P. Zimmerman, 1995: A global model of natural volatile organic compound emissions, *Journal of Geophysical Research*, **100**, pp. 8873-8892.

Haagen-Smit, A.J., Fox, M.M., 1954: Photochemical ozone formation with hydrocarbons and automobile exhaust, *Journal of the Air Pollution Control Association*, **4**, pp.105–109.

Hanna, S.R., Moore, G.E., Fernau, M.E., 1996: Evaluation of photochemical grid models (UAM-IV, UAM-V, and the ROM/UAM-IV couple) using data from the Lake Michigan Ozone Study (LMOS). *Atmospheric Environment*, **30**, pp. 3265–3279.

Harley, R.A., Russell, A.G., McRae, G.J., Cass, G.R., Seinfeld, J.H., 1993: Photochemical modeling of the Southern California Air Quality Study, *Environmental Science and Technology*, **27**, pp. 378–388.

Heck, W. W., Cure, W. W., Rawlings, J. O., Zaragoza, L. J., Heagle, A. S., Heggstead, H. E., Kohut, R. J., Kress, L. W. and Temple, P., 1984: Assessing impacts of ozone on agricultural crops, II, crop yield functions and alternative exposure statistics, *Journal of the Air Pollution Control Association*, **34**, pp. 810–817.

Hesstvedt, E., Hov, O., Isaken, I.S., 1978: Quasy steady state approximations in air pollution modelling : comparison of two numerical schemes for oxidant prediction, *International Journal of Chemical Kinetics*, **10**, 971.

Jaeger-Voirol, A., Lipphardt, M., Martin, B., Quandalle, P., Sallas, J., Carissimo, B., Dupont, E., Musson-Genon, L., Riboud, P.M., Aumont, B., Bergametti, G., Bey, I., Toupance, G., 1998: A 3D regional scale photochemical air quality model: application to a 3 day summertime episode over Paris, *Revue de l'Institut Français du Pétrole*, **53**, pp. 225-237.

Jaegle, L., Jacob, D.J., Brune, W.H., Tan, D., Faloona, I., Weinheimer, A.J., Ridley, B.A., Campos, T.L., Sachse, G.W., 1998: Sources of HO_x and production of ozone in the upper troposphere over the United States, *Geophysical Research Letters*, **25**, pp. 1705–1708.

Jenkin, M. E., Saunders, S. M., Pilling, M. J., 1997: The tropospheric degradation of volatile organic compounds: A protocol for mechanism development, *Atmospheric Environment*, **31**, pp. 81–104.

Joseph J. H., W. J. Wiscombe and J. A. Weinman, 1976: The delta-Eddington approximation for radiative flux transfer, *Journal of the Atmospheric Sciences*, **33**, 2452.

Kallos, G., Kassomenos, P., Pielke, R.A., 1993: Synoptic and mesoscale weather conditions during air pollution episodes in Athens, Greece, *Boundary-Layer Meteorology*, **62**, pp.163–184.

Kanakidou, M., Singh, H.B., Valentin, K.M., Crutzen, P.J., 1991: A two-dimensional study of ethane and propane oxidation in the troposphere, *Journal of Geophysical Research*, **96**, pp.15,395–15,414.

Kleinman, L.I., 1986: Photochemical formation of peroxides in the boundary layer, *Journal of Geophysical Research*, **91**, pp. 10,889–10,904.

Kleinman, L.I., 1991: Seasonal dependence of boundary layer peroxide concentration: the low and high NO_x regimes, *Journal of Geophysical Research*, **96**, pp. 20,721–20,734.

Kleinman, L.I., 1994: Low and high-NO_x tropospheric photochemistry, *Journal of Geophysical Research*, **99**, pp.16,831–16,838.

Kleinman, L.I., Daum, P.H., Lee, J.H., Lee, Y.-N., Nunnermacker, L.J., Springston, S.R., Newman, L., Weinstein-Lloyd, J., Sillman, S., 1997: Dependence of ozone production on NO and hydrocarbons in the troposphere, *Geophysical Research Letters*, **24**, pp. 2299–2302.

Klemp, J.B., Lilly, D.K., 1978: Numerical simulation of hydrostatic mountain waves, *Journal of the Atmospheric Sciences*, **35**, pp. 78-107.

Klemp, J.B., Wilhelmson, R.B., 1978a: The simulation of three-dimensional convective storm dynamics, *Journal of the Atmospheric Sciences*, **35**, pp. 1070-1096.

Klemp, J.B., Wilhelmson, R.B., 1978b: Simulations of right- and left-moving storms produced through storm splitting, *Journal of the Atmospheric Sciences*, **35**, pp. 1097-1110.

Klemp, J.B., Durran, D.R., 1983: An upper boundary condition permitting internal gravity wave radiation in numerical mesoscale models, *Monthly Weather Review*, **111**, pp. 430-444.

Kuhn, M., Bultjes, P. J. H., Poppe, D., Simpson, D., Stockwell, W. R., Andersson-Sköld, Y., Baart, A., Das, M., Fiedler, F., Hov, Ø., Kirchner, F., Makar, P. A., Milford, J. B., Roemer, M. G. M., Ruhnke, R., Strand, A., Vogel, B. and Vogel, H., 1998: Intercomparaison of the gas-phase chemistry in several chemistry and transport models, *Atmospheric Environment*, **32**, pp. 693–709.

Lamb, R. G., 1983: Regional scale (1000 km) model of photochemical air pollution, part 1. theoretical formulation, *Technical report*, Environmental Sciences Research Laboratories, Research Triangle Park, North Carolina. EPA/600/3-83-035.

Leighton, P. A., 1961: Photochemistry of air pollution, Academic Press, New York

Lin, X., Trainer, M., Liu, S.C., 1988: On the nonlinearity of tropospheric ozone, *Journal of Geophysical Research*, **93**, pp.15,879–15,888.

Liu, M. K., Morris, R. E., Killus, J. P., 1984: Development of a regional oxidant model and application to the northeastern United States, *Atmospheric Environment*, **18**, pp.1145–1161.

Liu, S.C., Trainer, M., Fehsenfeld, F.C., Parrish, D.D., Williams, E.J., Fahey, D.W., Hubler, G., Murphy, P.C., 1987: Ozone production in the rural troposphere and the implications for regional and global ozone distributions. *Journal of Geophysical Research*, **92**, pp. 4191–4207.

Linsley C.M., S. N. Gregory and R.A Harley, 2002: Formation of photochemical air pollution in central California 2. Impact of revised emissions on Eulerian model predictions, *Journal of Geophysical Research*, **107**, D6, 10.

Logan, J.A., Prather, M.J., Wofsy, S.C., and McElroy, M.B., 1981: Tropospheric chemistry: A global perspective, *Journal of Geophysical Research*, **86**, (C8).

Louis, J.F., 1979: A parametric model of vertical eddy fluxes in the atmosphere, *Boundary-Layer Meteorology*, **17**, pp. 187-202.

Lu, R., Turco, R.P., Jacobson, M.Z., 1997a: An integral air pollution modeling system for urban and regional scales: 1. structure and performance, *Journal of Geophysical Research*, **102**, pp. 6063–6079.

Lu, R., Turco, R.P., Jacobson, M.Z., 1997b: An integral air pollution modeling system for urban and regional scales: 2. simulation for SCAQS, *Journal of Geophysical Research*, **102**, pp. 6081–6098.

Lyons, W.A., Pielke, R.A., Cotton, W.R., Keen, C.S., Moon, D.A., Lincoln, N.R., 1992: Some considerations of the role of the land-lake breeze in causing elevated ozone levels in the southern Lake Michigan region. In: *Environmental Modeling* (Melli, P., Zannetti, P., eds), chap. 9. Southampton: Computational Mechanics Publications, pp. 51–171.

Lyons, W.A., Tremback, C.J., Pielke, R.A., 1995: Applications of the Regional Atmospheric Modeling System (RAMS) to provide input to photochemical grid models for the Lake Michigan Ozone Study (LMOS), *Journal of Applied Meteorology*, **34**, pp. 1762–1786.

MacCracken, M. C., Wuebbles, D. J., Walton, J. J., Duewer, W. H. and Grant, K. E., 1978: The Livermore regional air quality model. i. concept and development, *Journal of Applied Meteorology*, **17**, pp. 254–272.

Madronich S., Photodissociation in the atmosphere. 1. Actinic flux and the effects of ground reflections and clouds, *Journal of Geophysical Research*, **92**, pp. 9740, 1987.

Madronich, S. and Calvert, J. G., 1989: The NCAR master mechanism of the gas phase chemistry, *Technical Note 2.0*, NCAR.

Mahrer, Y. and R.A. Pielke, 1976: A Numerical Study of the Air Flow over Irregular Terrain. Preprint Volume of the DMG/AMS International Conference on Simulation of Large Scale Atmospheric Processes, August 30-September 4, Homburg, Germany.

McCumber, M.C. and R.A. Pielke, 1981: Simulation of the effects of surface fluxes of heat and moisture in a mesoscale numerical model. Part I: Soil layer, *Journal of Geophysical Research*, **86**, pp. 9929- 9938.

McRae, G. J., Goodin, W. R. and Seinfeld, J. H., 1982b: Development of second-generation mathematical model for urban air pollution -i. model formulation, *Atmospheric Environment*, **16**, pp. 679–696.

Mesinger, F. Arakawa, A., 1976: Numerical methods used in atmospheric models. GARP Publication Series, No. 14, WMO/ICSU Joint Organizing Committee, 64 pp.

Milford, J., Gao, D., Sillman, S., Blossey, P., Russell, A.G., 1994: Total reactive nitrogen (NO_y) as an indicator for the sensitivity of ozone to NO_x and hydrocarbons, *Journal of Geophysical Research*, **99**, pp. 3533–3542.

Millan, M.M., R. Salvador, E. Mantilla and G. Kallos, 1997: Photooxidant dynamics in the smtag307 Mediterranean basin in summer: Results from European research projects, *Journal of Geophysical Research*, **102**, pp. 8811 – 8823.

Moran M.D., Pielke R.A., 1996a: Evaluation of a mesoscale atmospheric dispersion modeling system with observations from the 1980 Great Plains mesoscale tracer field experiment. Part I: Data sets and meteorological simulations, *Journal of Applied Meteorology*, **35**, pp. 281–307.

Moran M.D., Pielke, R.A., 1996b: Evaluation of a mesoscale atmospheric dispersion modeling system with observations from the 1980 Great Plains mesoscale tracer field experiment. Part II: Dispersion simulations, *Journal of Applied Meteorology*, **35**, pp. 308–329.

National Research Council (NRC), 1991: Committee on Tropospheric Ozone Formation and Measurement, Rethinking the Ozone Problem in Urban and Regional Air Pollution, National Academy Press.

Nunnermacker, L.J., Imre, D., Daum, P.H., Kleinman, L., Lee, Y.N., Lee, J.H., Springston, S.R., Newman, L., Weinstein- Lloyd, J., Luke, W.T., Banta, R., Alvarez, R., Senß, C., Sillman, S., Holdren, M., Keigley, G.W., Zhou, X., 1998: Characterization of the Nashville urban plume on July 3 and July 18, 1995, *Journal of Geophysical Research*, **103**, pp. 28,129–28,148.

Orlanski, I., 1976: A simple boundary condition for unbounded hyperbolic flows, *Journal of Computational Physics*, **21**, pp. 251-269.

Pattiaratchi, C., B., Hegge, J., Gould, and I., Eliot, 1997: Impact of sea-breeze activity on nearshore and foreshore processes in southwestern Australia, *Continental Shelf Research*, **17**, No. 13, pp.1539-1560.

Perros, P. E., Marion, T., 1998 : Les indicateurs de la pollution photochimique. la mesure des composés azotés, *Analisis*, **26**(9).

Pielke, R.A., Cotton, W.R., Walko, R.L., Tremback, C.J., Lyons, W.A., Grasso, L.D., Nicholls, M.E., Moran, M.D., Wesley, D.A., Lee, T.J., Copeland, J.H., 1992a: A comprehensive meteorological modeling system—RAMS, *Meteorol. Atmos. Phys.*, **49**, pp. 69–91

Pielke, R.A., Walko, R.L., Eastman, J.L., Lyons, W.A., Stocker, R.A., Uliasz, M., Tremback, C.J., 1992b: Recent achievements in the meteorological modeling of local weather and air quality, *Trends in Atmospheric Science*, **1**, pp. 287–30.

Possiel, N. C., Milich, L. B., Goodrich, B. R., 1991: Regional ozone modeling for northeast transport (ROMNET), Rep. EPA-450/4-91-002a; EPA, Research Triangle Park, NC.

Poulet, D., 2000 : Modélisation méso-échelle de la redistribution des polluants gazeux et particulaires émis par les feux de végétation en Afrique Centrale. Comparaison avec les mesures aéroportées (Campagne EXPRESSO). *Thèse de l'Université Blaise Pascal*, Clermont-Ferrand, France.

Poulet, D., and S. Cautenet, 2000: Redistribution of carbon monoxide in central Africa during biomass burning events (EXPRESSO experiment) in Air Pollution Modeling and Its Application XIII, edited by S. -E. Gryning and E. Batchvarova, Kluwer Academic/Plenum Publishers.

Poulet D, S. Cautenet and B. Aumont, 2003: Simulation of the chemical impact of the bush fires emissions, in Central Africa, during the EXPRESSO campaign. Submitted to *Journal of Geophysical Research*.

Poulos, G.S., Pielke, R.A., 1994: A numerical analysis of Los Angeles basin pollution transport to the Grand Canyon under stably stratified, southwest flow conditions, *Atmospheric Environment*, **28**, pp. 3329–3357.

Reynolds, S. D., Roth, P. M. and Seinfeld, J. H., 1973: Mathematical model of photochemical air pollution, i. formulation of the model, *Atmospheric Environment*, **7**, pp. 1033–1061.

Ridley, B.A., Madronich, S., Chatfield, R.B., Walega, J.G., Shetter, R.E., Carroll, M.A., Montzka, D.D., 1992: Measurements and model simulations of the photostationary state during the Mauna Loa Observatory Photochemistry Experiment: implications for radical concentrations and ozone production and loss rates. *Journal of Geophysical Research*, **97**, pp.10,375–10,388.

Russell, A. G., McCue, K. F. and Cass, G. R., 1988: Mathematical modeling of the formation of nitrogen-containing air pollutants. 1. evaluation of an eulerian photochemical model, *Environmental Science & Technology*, **22**, pp. 263–271.

Ryerson, T.B., Buhr, M.B., Frost, G., Goldan, P.D., Holloway, J.S., Hubler, G., Jobson, B.T., Kuster, W.C., McKeen, S.A., Parrish, D.D., Roberts, J.M., Sueper, D.T., Trainer, M., Williams, J., Fehsenfeld, F.C., 1998: Emissions lifetimes and ozone formation in power plant plumes. *Journal of Geophysical Research*, **103**, pp. 22,569–22,584.

Schere, K. L., Demerijan, K. L., 1978: A photochemical box model for urban air quality, *Proceedings of the 4th Joint Conference on Sensing of Environmental Pollutants*, Am. Chem. Soc., Washington, DC, pp. 427–433.

Shieh D. S.-S., Y. Chang and Carmichael G. R., 1998: The evaluation of numerical techniques for solution of stiff ordinary differential equations arising from chemical kinetic problems, *Environmental Software*, **3**, pp. 28-38.

Sillman, S., Samson, P.J., Masters, J.M., 1993: Ozone production in urban plumes transported over water: photochemical model and case studies in the northeastern and Midwestern U.S., *Journal of Geophysical Research*, **98**, pp. 12,687–12,699.

Sillman, S., He, D., Cardelino, C., Imhoß, R.E., 1997: The use of photochemical indicators to evaluate ozone–NO_x–hydrocarbon sensitivity: Case studies from Atlanta, New York and Los Angeles. *Journal of Air and Waste Management Association*, **47**, pp.1030–1040.

Sillman, S., 1998: The method of photochemical indicators as a basis for analyzing O₃–NO_x–hydrocarbon sensitivity. *Atmospheric Environment*, as part of the NARSTO critical review series.

Sillman, S., 1999: The relation between ozone, NO_x and hydrocarbons in urban and polluted rural environments, *Atmospheric Environment*, **33**, pp. 1821– 1845.

Silva Dias, M.A.F., Machado, A.J., 1997: The role of local circulations in summertime convective development and nocturnal fog in São Paulo, Brazil. *Boundary-Layer Meteorology*, **82**, 1, pp.135-157.

Slinn, W.G.N., 1977: Some approximations for the wet and dry removal of particles and gases from the atmosphere, *Water, Air, and Soil Pollution*, **7**, pp. 513-543.

Sommerfeld, A., 1964: Partial differential equations in physics, Academic press.

Taghavi, M., Cautenet, S., Foret, G., 2003a: Simulation of ozone production in a complex circulation region using nested grids, *Atmospheric Chemistry and Physics Discussion*, **3**, pp. 3833–3867.

Taghavi, M., Cautenet, S., 2003b: Impact of an high resolution emission inventory on modeling accuracy, *submitted to Atmospheric Research (special issue ESCOMPTE)*.

Taylor, O.C., 1969: Importance of peroxyacetyl nitrate (PAN) as a phototoxic air pollutant, *Journal of the Air Pollution Control Association*, **19**, pp. 347–351.

Tesche, T.W., McNally, D., 1991: Photochemical modeling of two 1984 SCCCAMP ozone episodes, *Journal of Applied Meteorology*, **30**, pp. 745–763.

Thunis, P. and Cuvelier, C., 2000: Impact of biogenic emissions on ozone formation in the mediterranean area - a BEMA modelling study, *Atmospheric Environment*, **34**, pp. 467–481.

Trainer, M., Parrish, D.D., Buhr, M.P., Norton, R.B., Fehsenfeld, F.C., Anlauf, K.G., Bottenheim, J.W., Tang, Y.Z., Wiebe, H.A., Roberts, J.M., Tanner, R.L., Newman, L., Bowersox, V.C., Maugher, J.M., Olszyna, K.J., Rodgers, M.O., Wang, T., Berresheim, H., Demerjian, K., 1993: Correlation of ozone with NO_y in photochemically aged air, *Journal of Geophysical Research*, **98**, pp. 2917–2926.

Trainer, M., Ridley, B.A., Buhr, M.P., Kok, G., Walega, J., Hubler, G., Parrish, D.D., Fehsenfeld, F.C., 1995: Regional ozone and urban plumes in the southeastern United States: Birmingham, a case study, *Journal of Geophysical Research*, **100**, pp.18,823–18,834.

Tremback, C.J., Kessler, R., 1985: A surface temperature and moisture parameterization for use in mesoscale numerical models. *Preprints 7th Conference on Numerical Weather Prediction*, 17-20 June 1985, Montreal, Canada, AMS.

Tremback, C.J., 1990: Numerical simulation of a mesoscale convective complex: model development and numerical results. Ph.D. dissertation, Atmos. Sci. Paper No. 465, Colorado State University, Dept. of Atmospheric Science, Fort Collins, CO 80523.

Tripoli, G.J., Cotton, W.R., 1982: The Colorado State University Three-Dimensional Cloud/Mesoscale Model. Part I: General Theoretical Framework and Sensitivity Experiments, *J. de Rech. Atmos.*, **16**, pp.185-195.

Tripoli, G.J., 1992: An explicit three-dimensional nonhydrostatic numerical simulation of a tropical cyclone, *Meteorology and Atmospheric Physics*, Springer-Verlag.

Uliasz, M., Stocker, R.A., Pielke, R.A., 1996: Regional modelling of air pollution transport in the southwestern United States. In: *Environmental Modeling*, Vol. III (Zannetti P, ed), chap. 5. Computational Mechanics Publications, pp. 145–181.

VanLoon, M., Builtjes, P.J.H., Segers, A.J., 2000: Data assimilation of ozone in the atmospheric transport chemistry model LOTOS, *Environmental Modelling*, **15**, 44.

Venkatram, A., Karamchandani, P.K. and Mistra, P.K., 1988: Testing a comprehensive acid deposition model, *Atmospheric Environment*, **22**, pp. 737–747.

Vitousek, P. M., Aber, J.D., Howarth, R. W., Likens, G. E., Matson, P. A., Schindler, D. W., Schlesinger, W. H., Tilman D. G., 1997: Human alteration of the Global nitrogen cycle : sources and consequences, *Ecological Application*, **7**, pp. 737-750.

Wakamatsu, S., Itsushi U., Toshimasa, O., Schere, K.L., 1999: A study of the relationship between photochemical ozone and its precursor emissions of nitrogen oxides and hydrocarbons in Tokyo and surrounding areas, *Atmospheric Environment*, **33**, pp. 3097-3108.

Walko, R.L., Tremback, C.J., Pielke, R.A., Cotton, W.R., 1995: An interactive nesting algorithm for stretched grids and variable nesting ratios, *Journal of Applied Meteorology*, **34**, pp. 994-999.

Wang, S.W., Georgopoulos, P.G., Li, G., Rabitz, H., 1998: Condensing complex atmospheric chemistry mechanisms. 1. the direct constrained approximate lumping (DCAL) method applied to alkane photochemistry, *Environmental Science and Technology*, **32**, pp. 2018–2024.

Wayne, L.G., Kokin, A., Weisburd, M.I., 1973: Controlled Evaluation of the Reactive Environmental Simulation Model (REM), Vol. I, EPA Document NO. R4-73-013a, NTIS Publication PB 220456/8.

Weber R.O., Prévôt, A.S.H., 2002: Climatology of ozone transport from the free troposphere into the boundary layer south of the alps during north foehn, *Journal of Geophysical Research*, **107**, D3, pp. 41–46.

Weimin J., L. Donald, M. H. Singleton, and R. McLaren, 1997: Sensitivity of ozone concentrations to VOC and NO_x emissions in the Canadian Lower Fraser Valley, *Atmospheric Environment*, **31**, pp. 627-638.

Wesely, M.L., 1989: Parameterization of surface resistances to gaseous dry deposition in regional-scale numerical models, *Atmospheric Environment*, **23**, pp. 1293-1304.

Whiteman, C.D., Zhong, S., Bian, X., Fast, J.D., Doran, J.C., 1999: Boundary layer evolution and regional-scale diurnal circulations over the Mexican basin, *Journal of Geophysical Research*, **105**, pp. 10081-10102.

Winner, D.A., Cass, G.R., Harley, R.A., 1995: Effect of alternative boundary conditions on predicted ozone control strategy performance: a case study in the Los Angeles area, *Atmospheric Environment*, **29**, pp. 3451-3464.

Wiscombe, W. J., 1997: The delta – M method : rapid yet accurate radiative flux calculations for strongly asymmetric phase functions, *Journal of the Atmospheric Sciences*, **34**, 1408.

Yamartino, R.J., Scire, J.S., Carmichael, G.R. and Change, Y.S., 1992: The CalGrid mesoscale photochemical grid model. i. model formulation, *Atmospheric Environment*, **26A**, pp.1493–1512.