

Modélisation de la pollution atmosphérique à l'échelle régionale

Laurent MENUT
[menut@lmd.ipsl.fr]

Table des matières

Préface **v**

1 Qu'est ce que la pollution atmosphérique ? **1**
1.1 Présentation de la pollution atmosphérique . . . 1
1.2 Concentrations typiques par saisons . . . 6
1.3 La chimie gazeuse . . . 7
1.4 La chimie des aérosols . . . 10
1.5 La couche limite atmosphérique . . . 12

2 Observations et législation **19**
2.1 Les mesures météorologiques . . . 20
2.2 Les mesures de concentrations atmosphériques . . . 23
2.3 Les campagnes de mesures . . . 29
2.4 Les bases de données . . . 31
2.5 La législation et les normes . . . 31

3 Principe général de la modélisation et application à la météorologie **35**
3.1 Qu'est-ce qu'un modèle ? . . . 35
3.2 Les contraintes d'un modèle régional . . . 38
3.3 Dynamique, physique et paramétrisations . . . 45

4 Les émissions **51**
4.1 Introduction . . . 51
4.2 Les émissions anthropiques . . . 52
4.3 Les émissions biogéniques . . . 58
4.4 Les émissions des feux de biomasse . . . 61
4.5 Les émissions des aérosols minéraux . . . 64
4.6 Les émissions des volcans . . . 71
4.7 Les émissions des éclairs . . . 73
4.8 Les émissions marines naturelles . . . 80
4.9 Le pollen . . . 82
4.10 En résumé pour les émissions . . . 85

5 Les dépôts **87**
5.1 Le dépôt sec . . . 87
5.2 Le dépôt humide . . . 92

6 La modélisation de chimie-transport **97**
6.1 Principe des modèles de chimie-transport . . . 97
6.2 Conditions initiales et aux limites . . . 101
6.3 Prise en compte du transport . . . 102
6.4 La chimie gazeuse . . . 106
6.5 Les aérosols . . . 109
6.6 Le couplage météorologie et chimie . . . 114

7 Qualification et optimisation **119**
7.1 Qualification des résultats de modélisation . . . 119
7.2 Les comparaisons aux mesures ou inter-modèles . . . 122
7.3 L'adaptation statistique ou "tuning" . . . 127
7.4 Les scénarios . . . 127
7.5 Les études de sensibilité . . . 129
7.6 Les calculs d'ensemble . . . 132
7.7 Machine learning . . . 136

8 Assimilation de données, modélisation inverse et prévision **137**
8.1 Assimilation de données . . . 137
8.2 La modélisation inverse . . . 142
8.3 La prévision . . . 143

9 Les impacts de la pollution atmosphérique **147**
9.1 L'impact de la pollution sur le climat . . . 147
9.2 L'impact du climat sur la pollution . . . 148
9.3 L'impact de la pollution sur la santé . . . 149

0 Préface

Ce document présente la modélisation de la pollution atmosphérique à l'échelle régionale. Il reprend le cours de M1 préparé pour le magistère de l'ENS à Paris. Les principes physico-chimiques étant déjà largement présentés dans d'autres ouvrages, le point de vue choisi est la modélisation de tous ces processus. La modélisation étant une simplification de la réalité dans un cadre d'étude particulier, on cherchera à montrer si les processus à représenter, comme les émissions, la chimie, les dépôts, sont bien modélisés ou non. Pour chaque processus, on discutera des hypothèses simplificatrices qui ont été faites, quelles sont les voies d'amélioration possible et quel est l'impact de ces simplifications sur les résultats recherchés. Le document cite des références qui ont été choisies pour leur pertinence mais aussi, autant que possible, car les articles étaient en accès libre sur les sites des journaux scientifiques. Les références sont alors en vert. Lorsqu'il existe et est en accès libre, l'article de review est cité au début d'un chapitre ou d'une section. L'ensemble de ces articles est repris dans la liste ci-dessous.

- Pollution atmosphérique, généralités et mesures :
  - *Monks et al.* (2015) : https ://acp.copernicus.org/articles/15/8889/2015/
  - *Benedetti et al.* (2018) : https ://acp.copernicus.org/articles/18/10615/2018/
- Chimie gazeuse et aérosols :
  - *Stockwell et al.* (2012) : https ://www.mdpi.com/2073-4433/3/1/1
  - *Carslaw et al.* (2010) : https ://www.atmos-chem-phys.net/10/1701/2010/
  - *Kanakidou et al.* (2005) : https ://www.atmos-chem-phys.org/acp/5/1053/
  - *Fuzzi et al.* (2015) : https ://acp.copernicus.org/articles/15/8217/2015/
- Les émissions :
  - anthropiques : *Im et al.* (2018b) : https ://acp.copernicus.org/articles/18/8929/2018/
  - biogéniques :
    - *Guenther et al.* (2006) : https ://acp.copernicus.org/articles/6/3181/2006/
    - *Guenther et al.* (2012) : https ://gmd.copernicus.org/articles/5/1471/2012/
  - feux de biomasse :
    - *Reid et al.* (2005a) : https ://acp.copernicus.org/articles/5/799/2005/
    - *Paugam et al.* (2016) : http ://www.atmos-chem-phys.net/16/907/2016/
  - aérosols minéraux : *Schepanski* (2018) : https ://www.mdpi.com/2076-3263/8/5/151
  - volcans : https ://acp.copernicus.org/articles/special_issue212.html
  - éclairs : *Schumann and Huntrieser* (2007) : https ://www.atmos-chem-phys.net/7/3823/2007/
  - marines : *Gantt and Meskhidze* (2013) : https ://acp.copernicus.org/articles/13/3979/2013/
  - pollen : *Sofiev et al.* (2013a) : https ://www.ncbi.nlm.nih.gov/pmc/articles/PMC3527742/
- Les dépôts :
  - Le dépôt sec :
    - *Pleim and Ran* (2011) : https ://www.mdpi.com/2073-4433/2/3/271
    - *Vivanco et al.* (2018) : https ://www.atmos-chem-phys-discuss.net/acp-2018-104/

  - Le dépôt humide : *Zhang et al.* (2019) : https ://doi.org/10.1029/2018JD029051

- Modélisation :
  - Les modèles actuels : *Baklanov et al.* (2014) : http ://www.atmos-chem-phys.net/14/317/2014/
  - Les modèles d'aérosols : *Semeniuk and Dastoor* (2020) : https ://www.mdpi.com/2073-4433/11/2/156
  - L'assimilation de données :
    - *Sandu and Chai* (2011) : https ://www.mdpi.com/2073-4433/2/3/426
    - *Bocquet et al.* (2015) : https ://acp.copernicus.org/articles/15/5325/2015/
  - La prévision : *Marécal et al.* (2015) : https ://gmd.copernicus.org/articles/8/2777/2015/
  - Le couplage :
    - *Zhang* (2008) : https ://acp.copernicus.org/articles/8/2895/2008/
    - *Baklanov et al.* (2014) : http ://www.atmos-chem-phys.net/14/317/2014/

D'autres articles de revue existent mais ils sont payants. Les références sont alors en bleu. Ils sont cités directement dans le chapitre traitant le sujet. Ce texte s'appuie aussi sur des livres comme *Jacob* (1999), *Delmas et al.* (2005), *Pielke* (2013), *Jacobson* (1999), *Stensrud* (2011), *Shao* (2004), *Seinfeld and Pandis* (2006) et *Stull* (1988).

Pour chaque chapitre, les points clefs sont résumés dans des cadres gris.

1 Qu'est ce que la pollution atmosphérique ?

Ce chapitre présente tout d'abord ce que l'on définit comme une pollution atmosphérique. Puis sont présentés très succinctement les principaux polluants, gaz et aérosols, ainsi que le milieu ou l'on va chercher à les modéliser : la couche limite et la troposphère. Le but ici n'est pas de faire une présentation exhaustive de tous les processus liés à la pollution atmosphérique mais juste d'en présenter les grandes lignes afin de mieux comprendre par la suite ce qui est modélisable ou non et quelles sont les limites dûes aux capacités des modèles.

1.1 Présentation de la pollution atmosphérique

Notion d'atmosphère polluée

La notion de pollution, ou milieu pollué, touche n'importe quelle espèce gazeuse ou particulaire, le "polluant", dès lors que sa concentration dépasse ce qui est communément accepté comme une valeur moyenne ou de fond, ou dès que cette concentration présente un impact non négligeable sur l'humain ou l'environnement *Delmas et al.* (2005). La définition de la pollution est donc très subjective car est liée à son intensité, sa durée et son impact potentiel. La pollution concerne toutes les échelles de temps et d'espace : de la pollution de proximité urbaine et horaire jusqu'au changement climatique global et séculaire. Dans le cadre de ce document, l'étude de la pollution est limitée en espace à **une région**, voire une partie d'un continent : **la méso-échelle**. Les relations directes entre espace et temps (écoulement atmosphérique et durée de vie des espèces) nous place alors naturellement dans un contexte d'étude de **quelques jours à quelques semaines** pour les processus en jeu. En pratique, le travail s'étend sur des études pouvant aller jusqu'à quelques années (pour des études de tendances climatologiques).

Même si l'étude de la pollution atmosphérique est un problème des plus anciens, Figure **??**, la prise de conscience de l'impact de l'humain sur la dégradation de son propre environnement est récente, *Fenger* (2009). De manière générale, pour les études de pollution, on notera simplement ici que le début du 20ème siècle marque une accélération de notre vitesse de destruction de notre propre environnement, la fin du 20ème siècle une timide prise de conscience, et le début du 21ème siècle des premiers signes de tentatives de ralentissement. Les principales questions concernant l'étude de la pollution atmosphérique sont (i) *quels sont les impacts des polluants sur la santé ?* et (ii) *quel est l'impact de la pollution sur le climat ?* Dans les deux cas, ces impacts peuvent être directs et rapides (un pic de pollution urbain ou l'éruption d'un volcan) mais aussi lents et indirects (des maladies liées à une exposition prolongée à un polluant, le changement climatique actuel). Dans tous les cas, le développement d'un modèle de chimie-transport peut apporter des réponses car est un **outil intégrateur de l'ensemble des processus**. De même, il n'y a que l'outil numérique qui peut permettre de prévoir ces impacts. Cependant, il faut un certain niveau de maturité du modèle pour que les réponses soient crédibles. De plus, il ne s'agit pas simplement de pouvoir déterminer la valeur d'une concentration de polluant à un endroit et un instant donné : il faut aussi savoir quelle est son origine, ainsi que l'incertitude attachée à cette valeur. Dès le début des années 1980, et à la suite des développements d'outils puissants pour la modélisation des processus dynamiques, des modèles de chimie-transport ont été mis en chantier. Leur développement était basée sur la même logique que les modèles météorologiques :

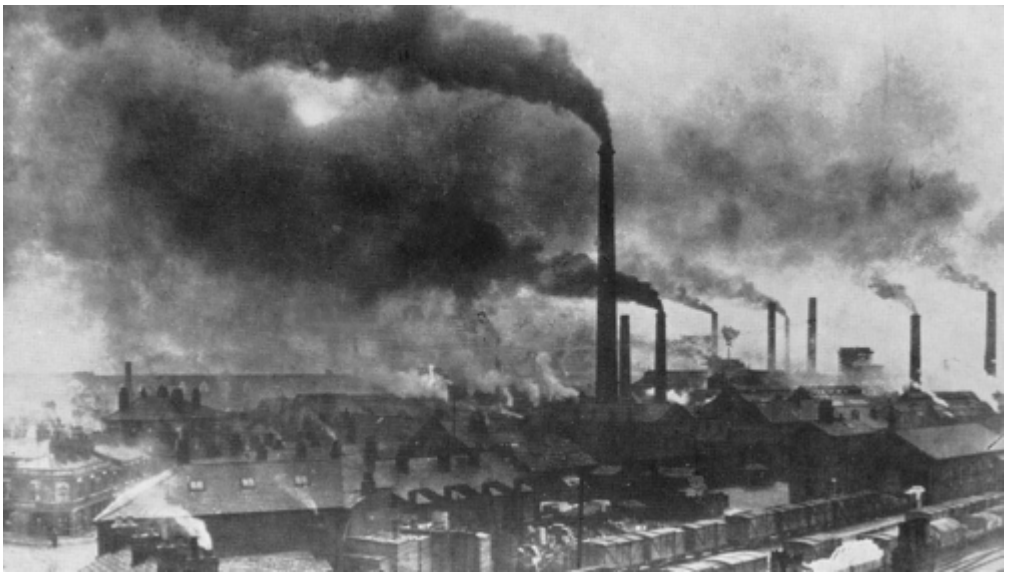


FIGURE 1.1 – *Site industriel au 19ème siècle. (Source domaine public : https ://fr.m.wikipedia.org/wiki/Fichier :Widnes_Smoke.jpg)*

à un système complexe, outil complexe. Les différents modèles alors existants considéraient que plus les processus étaient nombreux et finement représentés, meilleurs seraient les résultats. Cela n'est pas forcément le cas en chimie-transport car le problème est différent : leur sensibilité majeure n'est pas aux *conditions initiales* mais ce sont des *modèles de conditions aux limites*. Il ne s'agit donc pas uniquement de prendre un bon départ mais surtout de respecter les équilibres entre tous les forçages et cela tout au long de la simulation.

Ou sont les grandes zones polluées ?

Le satellite permet d'avoir une image globale de concentrations dans l'atmosphère, *Georgoulias et al.* (2019). Cette information est souvent intégrée verticalement mais donne la répartition des plus grandes zones émettrices et donc, en général, les plus polluées. La Figure 1.2 présente les mesures réalisées par les satellites GOME, SCIAMACHY et GOME-2 pour la période 1997-2017 et pour le NO_2. Les régions les plus émettrices sont clairement l'Europe, l'Amérique du Nord et la Chine. Si l'on effectue un zoom sur l'Europe, on voit alors que les régions aux plus fortes concentrations de NO_2 sont le Bénélux, la plaine du Po ainsi que la plupart des mégapoles Européennes. On note aussi les régions de feux de biomasse comme le centre de l'Afrique. Cette figure montre aussi une analyse de la variabilité temporelle de ces concentrations de NO_2. Par différence des mesures sur la période, on voit clairement les régions du globe qui ont évoluées en terme de réduction ou d'augmentation des concentrations : tendance a priori directement liée à l'intensité des émissions surfaciques. L'impact du développement de la Chine sur la composition atmosphérique apparait alors clairement. Les tendances décennales et globales sont une faible baisse sur l'Amérique du Nord et l'Europe, mais une forte augmentation sur la Chine.

Historiquement, et à l'échelle régionale, l'accent a été mis en priorité sur la composante anthropique : en étant à son origine, elle apparait donc comme plus contrôlable. Souvent liée à des industries ou au trafic automobile, cette pollution est surtout présente en zones urbanisées : les réseaux de surveillance de la qualité

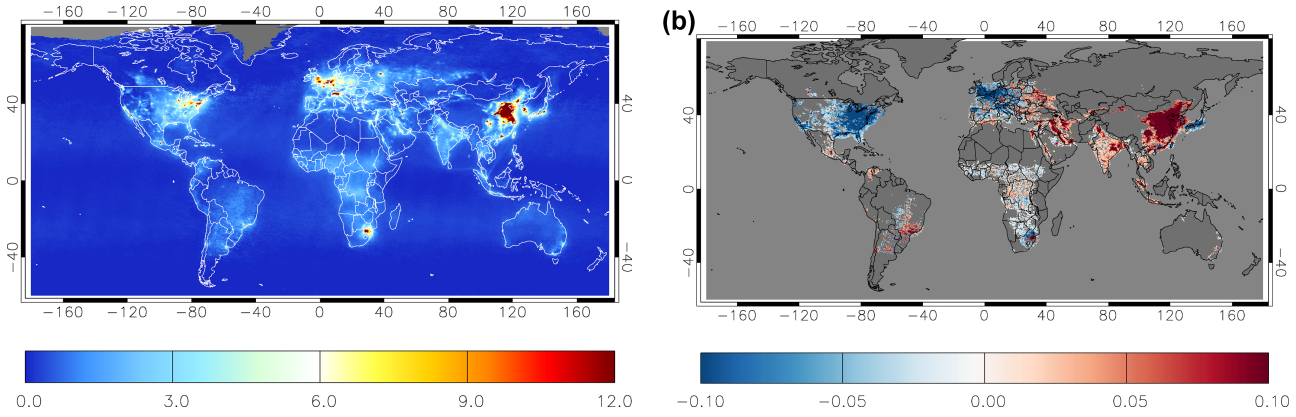


FIGURE 1.2 – *(gauche) Mesures satellites utilisées pour connaitre les distributions globales de polluants : Concentrations intégrées sur la colonne atmosphérique de NO_2 (10^{15} molecules cm^{-2}) pour la période 1997-2017, mesurées par GOME, GOME-2 et SCIAMACHY. (droite) Tendances des concentrations intégrées de NO_2 (10^{15} molecules cm^{-2} an^{-1}) sur la même période. Figures extraites de Georgoulias et al. (2019).*

de l'air ont donc commencé à quantifier la pollution là ou elle était émise et respirée. L'un des premiers polluants 'cible' a été le **dioxyde de soufre**. Aujourd'hui largement réduit, l'attention s'est ensuite portée sur les espèces gazeuses comme **l'ozone et les oxydes d'azote**. Plus récemment, ce sont **les particules** qui sont devenues centre d'intérêt. En parallèle et même si elle a toujours existé, les recherches sur la pollution naturelle ont longtemps été plus modestes. Car elle n'est non seulement non contrôlable mais a souvent été percue (à tort) comme une pollution "de fond" moins intense que la pollution anthropique. Dans les années 1980, on a compris que la pollution pouvait voyager. Au même titre que les espèces à longue durée de vie (d'intérêt pour les études climatologiques), l'ozone et certains de ses précurseurs peuvent être transportés d'une région à l'autre. Cela signifie que l'étude locale, souvent urbaine, est importante, mais que l'agrandissement de la zone d'étude l'est tout autant : l'air respiré dans une ville peut avoir été pollué localement mais aussi à plusieurs centaines de kilomètres, que ce soit de manière anthropique ou biogénique. L'incertitude sur la composition et le devenir des masses d'air polluées augmente alors considérablement : aussi vite que la surface de la zone d'étude et la diversité des processus à prendre en considération.

La composition atmosphérique

L'atmosphère terrestre est principalement composée de gaz et d'aérosols, *Jacob* (1999). La troposphère et la stratosphère représentent 99% de la masse atmosphérique. Parmi l'ensemble des gaz composant l'atmosphère, la vapeur d'eau et le dioxyde de carbone sont les principaux gaz à effet de serre naturels et jouent un rôle particulièrement important sur l'ensemble du système atmosphérique, incluant la variabilité climatique. A l'échelle de la troposphère et de quelques jours ou quelques semaines, la variabilité de la composition atmosphérique sera peu affectée par ces deux gaz.

L'atmosphère est un milieu oxydant, car majoritairement composé de N_2 et de dioxygène, O_2. O_2 étant relativement stable, la capacité oxydante de l'atmosphère sera surtout dépendante de réactions photochimiques. Ces réactions sont initiées par le rayonnement solaire qui permet la production d'espèces radicalaires. La chimie atmosphérique va donc être un processus faisait tendre les espèces primaires vers un état d'oxydation supérieur c'est à dire d'acidification. La composition atmosphérique est pilotée par un cycle biogéochimique composé de **sources** : les émissions de gaz et particules, de **transformations** : la chimie

gazeuse et particulaire, le transport, le mélange et de **puits** : les dépôts secs et humides. Ces transformations sont synthétisées sur la Figure 1.3.

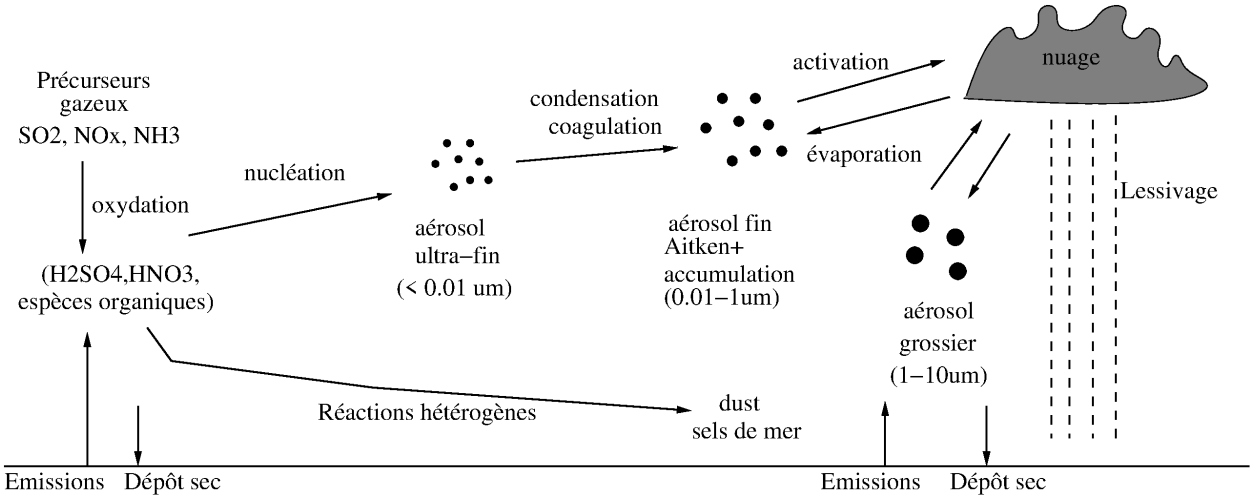


FIGURE 1.3 – *Cycle de vie des gaz et aérosols. Figure adaptée de Jacob (1999).*

Les réactions existent sous trois formes : (i) L'oxydation transforme des composés gazeux en d'autres composés gazeux. La "cinétique" est le processus ou des réactants gazeux entrent en collision et créent un nouveau produit gazeux. La photolyse est le processus ou un réactant gazeux est "cassé" par le rayonnement solaire. La photochimie regroupe l'ensemble des processus de cinétique en phase gazeuse et photolyse. (ii) Peut ensuite intervenir la conversion de gaz vers des particules via différents processus comme la nucléation qui désigne l'aggrégation de molécules gazeuses en une petite particule, puis la condensation quand un gaz s'aggrège à un noyau et passe à l'état liquide, et l'évaporation quand une molécule liquide redevient gazeuse à la surface d'une particule. (iii) Enfin, les réactions hétérogènes et en phase aqueuse vont directement faire interagir un gaz avec une goutte d'eau ou un aérosol naturel déjà formé (dust, sel de mer).

De nombreuses espèces chimiques interviennent dans la troposphère et celles particulièrement d'intérêt en pollution atmosphérique sont présentées sur la Figure 1.4. Ces espèces sont classées en familles selon leur rôle et leur durée de vie. Les espèces à plus courte durée de vie (quelques secondes ou minutes) sont **les oxydants**. Ils sont présents sous la forme atomique et moléculaire (ozone, PANs...) ou de radicaux (OH, HO_2, RO_2, NO_3, ...). Leur action chimique se fait principalement via les **réactions photochimiques**. Les espèces de durée de vie de l'ordre de l'heure à l'année sont les **gaz réactifs**. Ce sont des dérivés du carbone (monoxyde de carbone et composés organiques volatils, COVs), de l'azote (oxydes d'azote, ammoniac..) et du soufre (dioxyde de soufre, sulfures d'hydrogène, ...). Ce sont ces gaz qui sont surveillés pour la pollution atmosphérique. Avec une durée de vie supérieure à l'année, on trouve les **gaz à effet de serre**. Ils absorbent le rayonnement infrarouge et influent sur le bilan radiatif terrestre. Ces gaz sont principalement la vapeur d'eau (H_2O), le dioxyde de carbone (CO_2), le méthane (CH_4), le protoxyde d'azote (N_2O), l'ozone (O_3), les chlorofuorocarbones (CFCs). Ils sont surtout étudiés dans un cadre climatologique.

Il existe différentes unités permettant de quantifier l'abondance des gaz et aérosols dans l'atmosphère. En fonction de l'origine des données, mesures ou modélisation, ces unités peuvent être différentes. On peut quantifier les gaz tout d'abord en **rapport de mélange**. Le rapport de mélange C_x est le nombre de mole du gaz par rapport au nombre de moles d'air (1 mole = N_A = 6.022 10^{23} atomes, le nombre d'Avogadro). Cette quantité est adimensionnée et est invariante quelle que soit la densité de l'air. On utilise alors les *ppb*

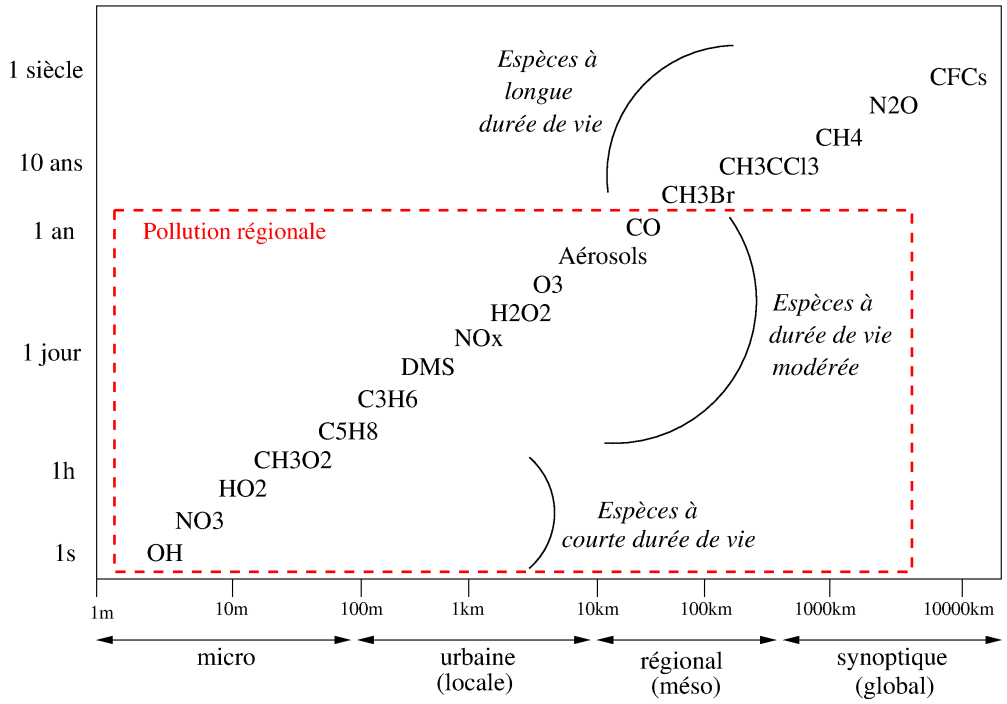


FIGURE 1.4 – *Espèces chimiques dans l'atmosphère et durées de vie. Adapté de Seinfeld and Pandis (2006).*

(parties par milliards) ou *ppm* (parties par millions) pour exprimer ces rapports très faibles. On peut aussi les quantifier en **densité en nombre**. Cette unité, n_x, représente le nombre de molécules par unité de volume d'air. Cela permet de relier la densité de gaz à des grandeurs nécessaires aux calculs optiques, notamment en intégrant verticalement la colonne d'atmosphère. Cette grandeur n'est pas conservée quand la pression ou la température varient. Cette unité est en *molécules* cm^{-3}. Enfin, la concentration peut être quantifiée en **masse**, m_x. Cela représente la masse du polluant par unité de volume et est exprimé en μg.m^{-3}. Cette grandeur est reliée à n_x par la masse molaire M_x du gaz (kg.mol^{-1}) et du nombre d'Avogadro N_A, tel que $m_x = n_x M_x / N_A$

L'ensemble de ces "polluants" va résider plus ou moins longtemps dans l'atmosphère en fonction de leur nature physique ou chimique, ainsi que de leur localisation sur la planète : altitude et latitude, donc des conditions météorologiques de leur environnement. Pour évaluer et quantifier leur persistence dans l'atmosphère, on peut déjà évaluer leur temps de résidence et leurs temps caractéristique de transport. Si l'on considère que ce temps de résidence va être avant tout dépendant des circulations atmosphériques globales, on peut avoir une première idée de ces temps caractéristiques de transport. La circulation générale de l'atmosphère va être pilotée par des mécanismes comme l'instabilité thermique verticale de l'atmosphère, le mouvement de rotation de la Terre et les inhomogénéités de la distribution de l'énergie solaire. Le temps caractéristique de transport est présenté sur la Figure 1.5. On peut voir que le temps de transport à iso-latitude sera de quelques jours à quelques mois alors que le transport iso-longiutde est de l'ordre de l'année. Pour les espèces à très longues durées de vie (comme le CO_2 et le CH_4), on arrive donc à une homogéneisation des concentrations dans la haute atmosphère (hors couche limite), leur temps de vie étant largement supérieur au transport.

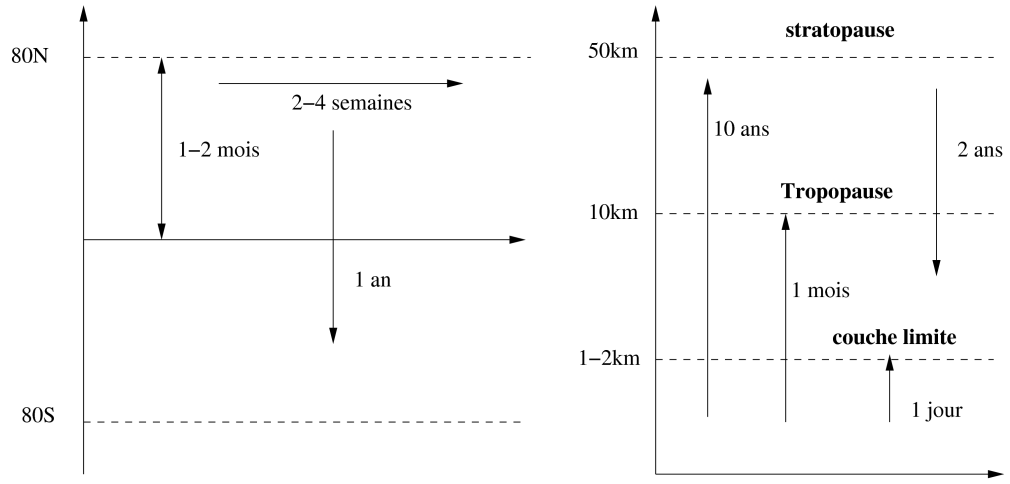


FIGURE 1.5 – *Temps caractéristique de transport. Figure adaptée de Jacob (1999).*

1.2 Concentrations typiques par saisons

Pour un milieu continental, contenant des zones fortement urbanisées, nous présentons ici les principales caractéristiques d'épisodes de pollution hivernaux ou estivaux (sachant que les épisodes d'automne et printemps ont les deux caractéristiques). Pour chacune de ces périodes, les pics de pollution seront liés à des conditions météorologiques et des polluants différents, *Seinfeld and Pandis* (2006).

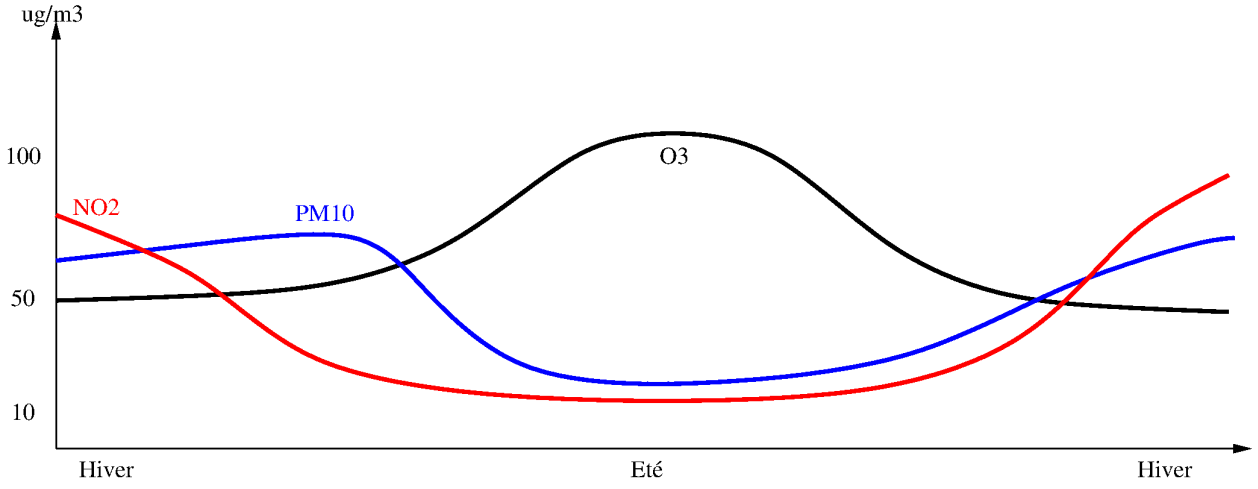


FIGURE 1.6 – *Saisonnalité des polluants. L'ozone est produit par photochimie et a un pic saisonnier en été. Les NO_x et PM_{10} sont plus produits en hiver. Un pic secondaire de PM_{10} peut apparaitre au printemps avec les engrais agricoles.*

Les épisodes de pollution estivale sont avant tout des épisodes photochimiques, conduisant à la production d'ozone en aval des centres urbanisés. Les pics d'ozone sont créés quand des conditions de vent faible, forte température et fort ensoleillement persistent pendant plusieurs jours. C'est le cas des périodes dites

anticycloniques. Durant ces périodes, on a, à la fois, de fortes émissions anthropiques de NO_x et COVs qui stagnent près du lieu d'émissions, des émissions de COVs biogéniques et une photolyse active. Les épisodes hivernaux concerneront plus les oxydes d'azote et les particules. Les émissions anthropiques sont plus importantes en hiver, notamment pour le trafic automobile et le chauffage résidentiel. A cela, se combinent deux effets : la météorologie montre des vents plus faibles et une turbulence moins active. Les températures et l'ensoleillement sont plus faibles, limitant la production de polluants secondaires comme l'ozone. L'ozone de fond (en dehors de pics) va varier entre 30 à 100 μg m^{-3} dans l'année. Les concentrations de NO_x seront deux fois faibles et varier entre 10 et 50 μg m^{-3} durant l'année, avec des maxima en hiver.

1.3 La chimie gazeuse

Article open-access de référence: *Stockwell et al.* (2012)

Abondance et durée de vie des espèces

La chimie gazeuse implique des centaines d'espèces chimiques et de réactions, *Seinfeld and Pandis* (2006). Les principales espèces chimiques concernées sont listées dans le Tableau 1.1. Plus précisément pour la pollution dans la couche limite, les espèces d'intérêt sont en gris. On note que ces espèces ont une durée de vie de quelques jours à quelques semaines. En terme de concentrations, l'abondance relative est faible, d'où leur appellation de gaz traces, *Jacob* (1999).

Constituant	Formule	% volume/air sec	Temps de résidence
vapeur d'eau	H_2O	variable	10 jours
diazote	N_2	78.084	15 millions d'années
dioxygene	O_2	20.948	8000 ans
dioxyde de carbone	CO_2	0.037	15 ans
méthane	CH_4	$1.7.10^{-4}$	9 ans
hydrogène	H_2	5.10^{-5}	10 ans
monoxyde de carbone	CO	$1.2\ 10^{-5}$	2 mois
ozone	O_3	2 à $200\ 10^{-6}$	1 à 2 mois
ammoniac	NH_3	0.1 à 10^{-6}	20 jours
dioxyde d'azote	NO_2	10^{-7}	1 jour
COVs	$C_xH_yO_z$	0.1 à 10^{-6}	qques heures
dioxyde de soufre	SO_2	2.10^{-8}	1 jour
sulfure d'hydrogène	H_2S	2.10^{-8}	1 jour

TABLE 1.1 – *Les espèces chimiques gazeuses dans l'atmosphère. Le cas particulier de la pollution atmosphérique est en gris.*

Les principaux oxydants atmosphériques sont présents sous forme atomique et moléculaire (ozone, PANs...) ou de radicaux (OH, HO_2, RO_2, NO_3, ...). Ce sont des espèces à très courte durée de vie et leur action se fait principalement via les réactions photochimiques. Le processus d'oxydation va conduire à transformer du carbone en CO_2, de l'hydrogène en H_2O, de l'azote en HNO_3, du soufre en H_2SO_4. L'action de l'oxydant O_2 (l'oxygène moléculaire) est prépondérante sur le bilan final. Les espèces gazeuses atmosphériques sont classées en plusieurs familles distinctes en fonction de leur structure moléculaire.

Les **gaz inorganiques** contiennent n'importe quel élément seul ou associé à une molécule d'hydrogène (H) ou de carbone (C). On a par exemple l'ozone O_3, radical hydroxyle OH, vapeur d'eau H_2O, le dioxyde d'azote NO_2, le dioxyde de soufre SO_2, le monoxyde de carbone CO. Les **gaz organiques** contiennent n'importe quel élément plus une molécule d'hydrogène (H) et une molécule de carbone (C). On a par exemple les alkanes (méthane CH_4, éthane C_2H_6), les alkènes (ethène C_2H_4, propène C_3H_6), les aromatiques (alcools, terpènes, aldéhydes dont le formaldéhyde HCHO) et les nitrates (methyl nitrate CH_3ONO_2). Les **hydrocarbures** sont des gaz organiques qui ne contiennent que des molécules H et C. On a donc par exemple les alkanes et les alkènes. Les hydrocarbures non méthaniques sont tous les hydrocarbures excluant le méthane, considéré comme peu réactif à l'échelle de la pollution atmosphérique. Les espèces gazeuses peuvent aussi être différenciées en terme d'origine. Les **polluants primaires** sont émis directement dans l'atmosphère. On a par exemple les espèces NO et NO_2 (NO_x), SO_2 et les Composés Organiques Volatils (COV). Les **polluants secondaires** sont formés à partir des polluants primaires et lors de réactions chimiques. On aura notamment l'ozone O_3, un gaz non visible mais un irritant respiratoire. Le dioxyde d'azote, NO_2, produit notamment par le trafic automobile, un polluant coloré et une odeur acre. Le formaldéhyde, HCHO, produit par les fumées des feux de forêt, les échappements automobiles, le tabac et que l'on nomme aussi *le formol*. L'acide nitrique HNO_3, que l'on trouve dans les pluies acides et que l'on nomme aussi *l'eau forte*. Enfin, l'acide sulfurique, H_2SO_4, aussi trouvé dans les pluies acides et nommé *le vitriol*. Les espèces gazeuses sont aussi classées en fonction de leur action. Les **gaz à effet de serre** absorbent le rayonnement infrarouge et influent sur le bilan radiatif terrestre. C'est le cas de la vapeur d'eau (H_2O), le dioxyde de carbone (CO_2), le méthane (CH_4), le protoxyde d'azote (N_2O), l'ozone (O_3), le chlorofuorocarbones (CFCs). Les **gaz réactifs** sont des dérivés du carbone (monoxyde de carbone et COVs), de l'azote (oxydes d'azote, ammoniac..) et du soufre (dioxyde de soufre, sulfures d'hydrogène, ...).

L'ozone et le cycle des radicaux

L'ozone est une espèce chimique à rôle et impact multiples. Que ce soit dans la stratosphère ou troposphère, l'ozone est produit par recombinaison d'un atome d'oxygène et O_2. C'est l'un des principaux polluants surveillés dans le cadre de la qualité de l'air. Si la destruction de l'ozone est un problème dans la stratosphère (les études sur le "trou d'ozone"), c'est sa trop forte production qui sera un problème à l'échelle régionale et dans la troposphère, notamment près de la surface dans la couche limite. L'ozone est produit dans la troposphère par l'oxydation du CO et des COVs par OH et en présence de NO_x (=NO + NO_2). On note cet ensemble le **cycle des radicaux**. Ce cycle est principalement en action le jour : la photolyse va produire des radicaux dans une atmosphère très réactive chimiquement. Au contraire, la nuit et sans ensoleillement, il y aura peu de radicaux et donc pas de chimie active. Les oxydants principaux intervenant dans ce cycle sont le radical hydroxyle OH (produit par photolyse le jour), l'ozone O_3 (produit par photolyse le jour) et le radical nitrate NO_3 (consommé par photolyse le jour).

Les régimes chimiques

Dans les régions fortement anthropisées, la question se pose de savoir quelles émissions doivent être réduites pour avoir l'efficacité maximale sur les concentrations d'ozone, *Honoré and Vautard* (2000). Les principaux précurseurs étant les NO_x et les COVs, il est intéressant de trouver des indicateurs pour savoir laquelle de ces deux sources doit être réduite en priorité. La chimie étant non linéaire vis à vis de ces deux polluants, une réduction de l'un ou l'autre ne va pas forcément entrainer une baisse de l'ozone, *Sillman* (1999). On définit des régimes chimiques en considérant la part relative des émissions de NO_x et COVs en amont de la région étudiée. La Figure 1.7 présente des iso-valeurs d'ozone (les courbes, dites *diagramme*

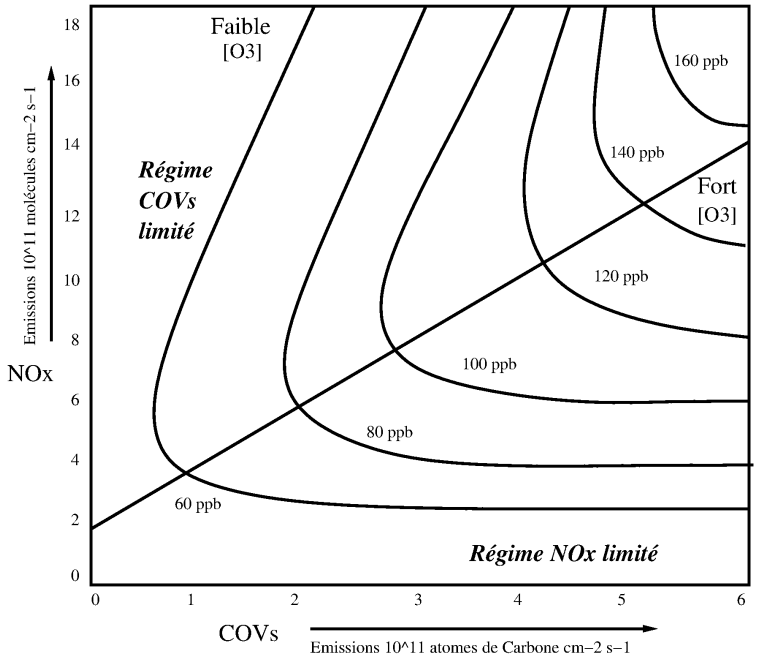


FIGURE 1.7 – *Isoplets caractérisant les régimes chimiques : Evolution des concentrations d'ozone en fonction des émissions relatives de NO_x et COVs. Les valeurs sont données à titre indicatif et sont des ordres de grandeur.*

d'isopleths) en fonction des émissions de NO_x et COVs. Pour la partie en haut à gauche de la diagonale, dit régime COVs limité, la réduction des émissions de NO_x (à COVs constant et faible), va augmenter l'ozone. Ce régime est typique d'un milieu urbanisé. Au contraire, une augmentation des COVs augmentera l'ozone. C'est le cas dans le Nord de l'Europe, *Beekmann and Vautard* (2010). Pour la partie en bas à droite, dans un régime chimique dit régime NO_x limité, l'ozone augmente quand les NO_x augmentent mais est relativement insensible aux changements de COVs. On est la dans un cas plutôt rural, *Seinfeld and Pandis* (2006). La modélisation de ces régimes chimiques ne nécessitent pas un développement particulier dans un modèle : la dynamique de production de l'ozone, comme les autres espèces, en fonction des émissions est implicitement prise en compte dans les mécanismes chimiques utilisés. La seule question qui se pose aujourd'hui est l'influence de la résolution du modèle puisque qu'en fonction de la taille de la maille, des sources de NO_x très localisées peuvent être plus ou moins diluées et donc changer le rapport COV/NO_x.

Typologie de la pollution urbaine

Un épisode de pollution "typique" en milieu urbain est présenté schématiquement sur la Figure 1.8. Les valeurs des concentrations sont indicatives et ne cherchent qu'a montrer l'évolution diurne de chaque type d'espèce chimique. On peut distinguer des concentrations à simple pic (ozone) et à doubles pics (NO_x et COVs) pendant une journée. Les double pics sont liés aux émissions urbaines : les NO_x et COVs sont des espèces primaires. Les NO_x étant en grande partie émis par le trafic automobile, les heures des pics correspondent aux pics de trafic urbain. Les COVs sont aussi émis par le trafic, ainsi que par le chauffage urbain : on a donc un cycle avec des valeurs non nulles tout au long de la journée. Le matin, le décalage temporel entre le NO et le NO_2 s'explique par l'émissions primaire de NO, rapidement converti en NO_2.

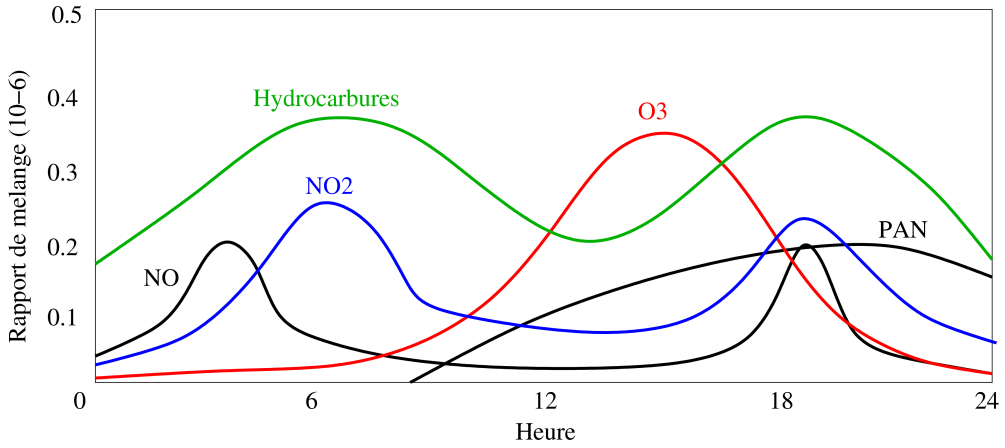


FIGURE 1.8 – *Un épisode de pollution "typique" en milieu urbain.*

Les COVs sont oxydés en radicaux et aldéhydes (R-CHO avec R chaine carbonée, exemple : CH_3CHO, éthanal). En fin de matinée, la décroissance observée des concentrations de NO_x et COVs est un triple effet lié à leur consommation, à la fin de leur émission et au développement de la couche limite convective (et donc leur dilution verticale). L'après-midi, le NO_2 est converti en NO par photolyse. L'oxygène moléculaire se recombine avec O_2 pour former de l'ozone. Cet ozone reste cepnedant plus faible en concentrations en ville qu'en banlieue ou campagne, le régime chimique favorisant sa titration par NO. Les aldéhydes et le NO_2 forment du PAN. Ce PAN va s'accumuler pendant la nuit et pourra être transporté sur de longues distances : c'est une source distante et réservoir de NO_x.

1.4 La chimie des aérosols

Un aérosol est une particule solide ou liquide en suspension dans l'atmosphère et d'un diamètre médian en masse (*Mean Mass Median Diameter*, MMD) allant de ≈ 2 nm à ≈ 100 μm. Il est généralement constitué d'un ensemble de particules avec un noyau solide, une enveloppe liquide ou gazeuse. Pour une même espèce d'aérosol, on peut avoir des particules de tailles différentes. Alors que les polluants gazeux correspondent à des ensembles de molécules, on sait précisément quantifier leur taille, masse et forme. Ce n'est pas le cas pour les aérosols qui peuvent être composés de différentes espèces, avec des tailles et formes très différentes. Même s'ils ne sont pas forcément sphériques, on classifiera les aérosols par leur MMD. Ces aérosols sont aussi notés PM pour *Particulate Matter*. L'ensemble des aérosols de MMD inférieur à 2.5 et 10 μm sont ainsi catégorisés comme des $PM_{2.5}$ et PM_{10}, *Seinfeld and Pandis* (2006).

Les aérosols peuvent être directement émis dans l'atmosphère (aérosols primaires) ou formés par une conversion gaz-particules ou par condensation de composés gazeux sur des particules fines pré-existantes (aérosols secondaires), *Monks et al.* (2009). Les **aérosols primaires** sont principalement composés de (i) **suies** formées par combustion d'hydrocarbures, de **minéraux** produits par arrachement de la surface terrestre et de **sels marins** produits par arrachement de la surface de la mer. Les **aérosols secondaires** sont distribués dans deux familles différentes : (i) Les inorganiques avec les sulfates, nitrates et ammonium NH_4^+, et (ii) les organiques, lorsqu'ils sont composés de C, O, H, N, S, parmi lesquels on trouve les hydrocarbures (C_xH_y), les alcools (R-OH), les ethers (R-O-R'), les aldéhydes (r-CHO) les cétones (R-CO-R') et les acides carboxyliques (R-COOH), *Kanakidou et al.* (2005). Comme le montre la Figure 1.3, le cycle de formation

des aérosols peut se détailler en plusieurs processus : (1) la nucléation, (2) la condensation et (3) la coagulation. De nombreux paramêtres entrent en compte, le plus souvent incertains. Le premier processus est l'oxydation de composés gazeux en semi-volatiles. En fonction de la volatilité, on aura ensuite un transfert entre les phases gazeuses et particulaires. Ce transfert se produira tout d'abord par la nucléation, correspondant à la création de noyaux par transfert de l'état gazeux à l'état liquide/solide de facon homogène. Puis, la condensation qui est le transfert de l'état gazeux à l'état particulaire. Ce transfert pourra intervenir soit par adsorption, c'est à dire de la chimie entre la surface de l'aérosol et la molécule en phase gazeuse, soit par absorption, c'est à dire la dissolution de la molécule en phase gaz à la surface (liquide). En terme de spéciation (i.e. l'abondance relative entre différentes espèces chimiques), on note que l'on trouve une masse équivalente entre les inorganiques et les organiques. Cela est vrai uniquement si l'on considère l'ensemble des aérosols, sans distinction de leur taille. Si l'on distingue l'aérosol fin de l'aérosol grossier (la limite étant un diamètre médian de 2 μm), la spéciation sera différente. Dans le mode fin, l'aérosol sera principalement constitué de sulfates, d'ammonium et de matière organique. Au contraire, le mode grossier verra une prédominance des aérosols primaires naturels : les aérosols minéraux, les sels de mer et les métaux.

Abondance des aérosols

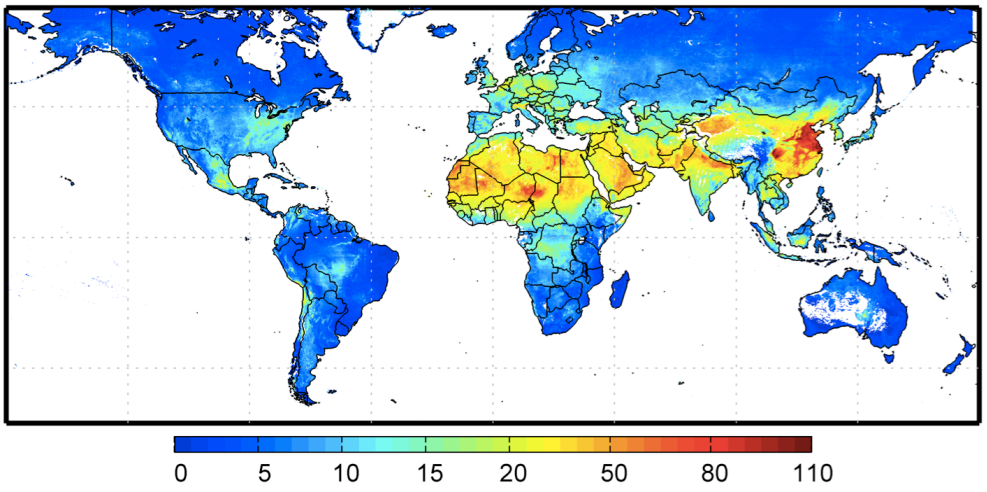


FIGURE 1.9 – *Les aérosols de diamètre inférieur à 2.5 μm sur le globe, Snider et al. (2015).*

La carte présentée sur la Figure 1.9 montre une concentration moyenne d'aérosols en surface et sur le globe. Ces valeurs correspondent aux concentrations de $PM_{2.5}$. Leur origine n'est pas spécifiée et le "mélange" présenté correspond à des aérosols de pollution (dits anthropiques), biogéniques ou naturels. On note que la majeure partie des aérosols se trouve dans l'hémisphère Nord. Les valeurs les plus fortes en masse correspondent aux aérosols minéraux, produits par les zones érodables (déserts en Afrique, Arabie Saoudite, Inde et Chine). De concentrations moindre mais assez importants, on note les régions industrialisées : Amérique du Nord, Europe et Chine. Enfin, l'Afrique Centrale montre aussi des concentrations non négligeables dûes aux feux de biomasse. Ces aérosols vont tous être comptabilisés dans le bilan de pollution mais ils ont des caractéristiques très différentes. Pour évaluer leur cycle de vie, il va falloir quantifier leurs émissions, leur transport et leur dépôt.

Distributions en taille

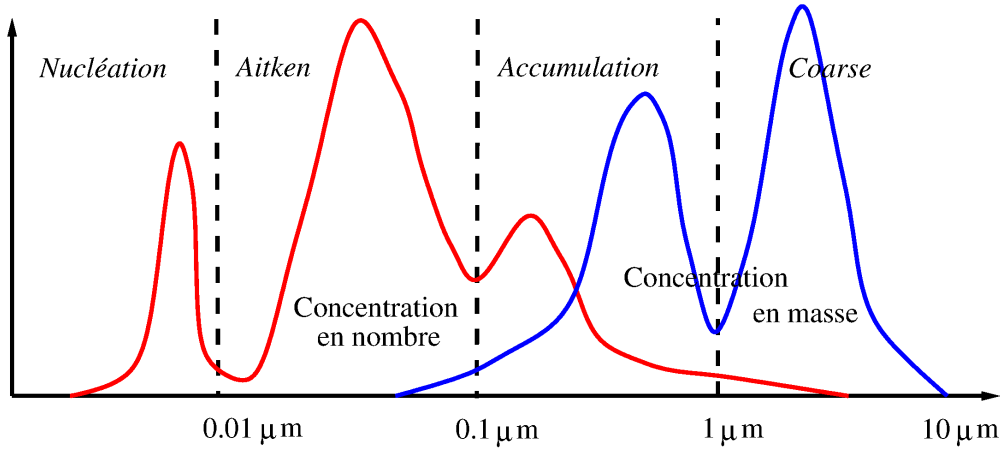


FIGURE 1.10 – *Forme et distribution en taille typique des aérosols.*

Les aérosols vont présenter des distributions en taille différentes dès l'émission mais vont aussi évoluer au cours de leur cycle de vie. Mais, malgré leur grande diversité, plusieurs "modes" se retrouvent systématiquement. La Figure 1.10 présente les deux types de distribution en taille utilisées pour les mesures et la modélisation : la distribution en nombre et en masse. Pour ces distributions, on retrouve des pics d'abondance d'aérosols et qui correspondent à des processus qui seront à modéliser. La nucléation est la création de noyaux d'aérosols se fait pour les pour les gaz et génèrent des très petites particules, de l'ordre de $D_p <$ 10nm. Le mode d'Aitken représente les processus de condensation et coagulation. Ce sont les aérosols de taille 0.01 μm $< D_p <$ 0.1 μm. Le mode d'accumulation représente les aérosols de taille 0.1 μm $< D_p <$ 1 μm. C'est aussi un mode de coagulation et condensation, pouvant mener ici à la formation de goutelettes. Enfin, le mode "grossier" (*coarse*) correspond principalement aux aérosols primaires comme les minéraux.

1.5 La couche limite atmosphérique

La couche limite atmosphérique (CLA) est le siège de la plupart des sources et puits des composés atmosphériques que l'on va étudier et l'endroit où nous vivons et donc l'air que nous respirons. C'est un volume d'air qui va évoluer en fonction de l'heure de la journée et du lieu. Pour la modélisation de la pollution, la connaissance de ce volume va conditionner le mélange des polluants émis à la surface : la précision sur sa valeur va donc être très sensible, puisqu'une erreur de 10% de ce volume va entrainer directement une erreur de 10% sur les concentrations. Il est nécessaire de modéliser à la fois le volume de dilution mais aussi l'intensité du mélange turbulent dans ce volume pour restituer au mieux le profil vertical des polluants dans la basse atmosphère.

Structure générale

La CLA constitue l'interface entre la surface et la troposphère libre. C'est la partie inférieure de l'atmosphère qui est sous l'influence directe des processus terrestres, *Stull* (1988). Son extension verticale va de la surface à quelques centaines ou milliers de mètres d'altitude et dépend directement de tous les paramètres

météorologiques (vent, température, humidité, insolation), mais aussi de la topographie et du type d'environnement (océan, continental rural ou urbain). La CLA est mince (1 à 2km) en comparaison avec le reste de la troposphère (≈11km) ou toute l'atmosphère. La notion d'épaisseur de la couche limite atmosphérique n'a pas de réalité physique instantanée : contrairement à d'autres variables bien plus palpables, comme le vent ou la température, l'épaisseur de la CLA est un bilan statistique. On peut mesurer instantanément une température, mais on ne peut que moyenner des grandeurs physiques pour en déduire une valeur moyenne de la hauteur de la couche limite.

Les processus principaux au sein de la couche limite sont des processus de transport de quantité de mouvement, de chaleur et d'humidité. Ces processus sont avant tout des flux, des processus turbulents. Etudier la CLA revient avant toute chose à étudier la turbulence atmosphérique. Les processus au sein de la CLA seront donc toujours décrits et étudiés en un terme moyen et un terme turbulent.

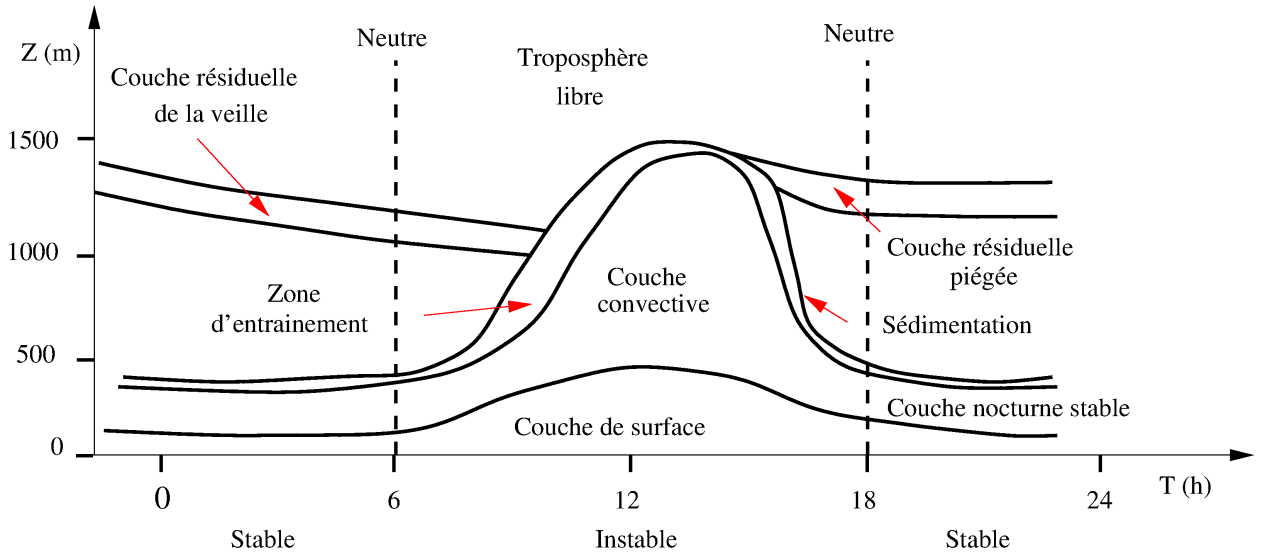


FIGURE 1.11 – *Schéma de l'évolution temporelle de la couche limite. Les heures et altitudes sont données à titre indicatif.*

La CLA va évoluer avec une périodicité diurne, dont les grandes phases sont invariantes dans leur principe (Figure 1.11), mais dont l'amplitude va dépendre des processus dynamiques et thermiques liés au site étudié. On définit plusieurs parties de la CLA en fonction de l'heure de la journée et de l'altitude. La **couche de surface** est présente tout au long du cycle diurne et son épaisseur est approximativement de 10% de la hauteur moyenne de la CLA, notée $\overline{h}$. **La couche mélangée :** Sous l'influence du chauffage à la surface, la couche limite se développe principalement en fonction de la stabilité verticale et dès le début de l'ensoleillement. La CLA est alors le siège d'intenses activités turbulentes, d'origines thermique et dynamique. La **zone d'entrainement** est relativement peu épaisse (quelques dizaines à une centaine de mètres) et constitue le sommet de la couche limite et est l'interface entre la CLA et la troposphère libre. On note ici troposphère "libre" puisque contrairement à la CLA, la partie supérieure de la troposphère n'est pas sous l'influence des processus de surface. La **couche résiduelle :** apparait en fin de journée. En l'absence de forçage dynamique, les aérosols contenus dans la couche mélangée vont soit sédimenter vers la surface, soit rester piégés dans la couche résiduelle. Cette couche résiduelle peut être stable ou rester turbulente (particulièrement en milieu urbain). Enfin, la **couche nocturne stable** se mettra en place après le coucher du soleil. En milieu urbain,

elle pourra cependant rester neutre, voire instable dans certains cas (sous l'effet du chauffage anthropique nocturne, de processus turbulents très locaux comme des recirculations d'air entre les immeubles).

Comme tout milieu fluide, la CLA sera particulièrement sensible aux phénomènes se produisant à ses limites : sa base (la couche de surface) et son sommet (définie par la zone d'entrainement en période convective, marquant le début de la troposphère libre). Ainsi, pour des flux de surface similaires, les conditions de grande échelle vont influencer l'évolution de la CLA. Sur une zone de hautes pressions (comme au centre d'un anticyclone), on est en situation de subsidence des masses d'air. A la surface, on a donc un phénomène de divergence du vent. Au sommet de la CLA, sont souvent observés des cumulus. Les situations anticycloniques sont propices à la mise en place de situations de forte pollution atmosphérique. En zone de basse pression, la couche limite est bien plus basse et le vent convergent. Au dessus, des systèmes convectifs se mettent en place. Ils sont liés à de fortes ascendances et sont propices à la mise en place de conditions orageuses.

Cycle diurne et turbulence

La variabilité de la couche limite à méso-échelle doit donc être étudiée temporellement, horizontalement mais aussi verticalement, *Stull* (1988). En dehors de la topographie, du type de terrain (terre, mer, forêt...), les échanges les plus intenses se feront sur la verticale dans la couche limite. En un lieu donné, et tout au long d'une journée, on peut donc caractériser la couche limite en étudiant des profils verticaux. La Figure 1.12 présente ici quelques profils à différents horaires. Une variable particulièrement utile dans ce cas est la température potentielle, θ :

$$\theta(z) = T(z).\left(\frac{P_0}{P(z)}\right)^{R/C_p} \tag{1.1}$$

avec P_0 la pression de référence surfacique (égale à 1000 hPa, par définition), g l'accélération liée à la gravité, R la constante des gaz parfaits telle que R=287.05 J kg^{-1} K^{-1}, C_p=1005 J kg^{-1} K^{-1}. la capacité calorifique de l'air. Cette température potentielle correspond à la température qu'aurait une parcelle d'air si on l'amenait adiabatiquement (sans échange de chaleur avec son environnement) de sa pression $P(z)$ à la pression P_0. On définit, de plus, la température potentielle virtuelle θ_v, comme la température potentielle prenant en compte les effets d'humidité, telle que :

$$\theta_v(z) = \theta(z)\,(1 + 0.61q) \tag{1.2}$$

avec q l'humidité spécifique (g kg^{-1}).

Pour chacun de ces profils, on peut distinguer la structure verticale de la CLA à différentes heures de la journée (en heures TU). A 4h, θ augmente dans la couche de surface, aussi appelée couche nocturne stable (T diminue). La couche est stable. Dans la couche résiduelle, θ est constant, on a donc une couche neutre. Puis, au dessus dans l'atmosphère libre, on observe un gradient vertical positif, typique de l'atmosphère à plus grande échelle et quasiment constant. En général, ce gradient, noté γ est de l'ordre de 6.5 K/km et, sous nos latitudes, varie peu. Par contre, pour une altitude donnée, une variation de la valeur de γ est représentative d'une advection d'une masse d'air plus chaude ou plus froide à l'échelle synoptique. A 8h : la seule différence avec l'heure précédente est l'apparition en surface de la couche mélangée qui va remplacer la couche stable. Le soleil commence à chauffer le sol, et on obtient un gradient de θ négatif : la couche est instable et toute parcelle va s'élever en altitude par le phénomène de flottabilité. A 11h, la couche mélangée continue son extension verticale et s'aggrège à la couche résiduelle. par exemple, dans le cas de la pollution atmosphérique, c'est à ce moment que des couches résiduelles d'ozone, jusqu'alors piégées en altitude, vont

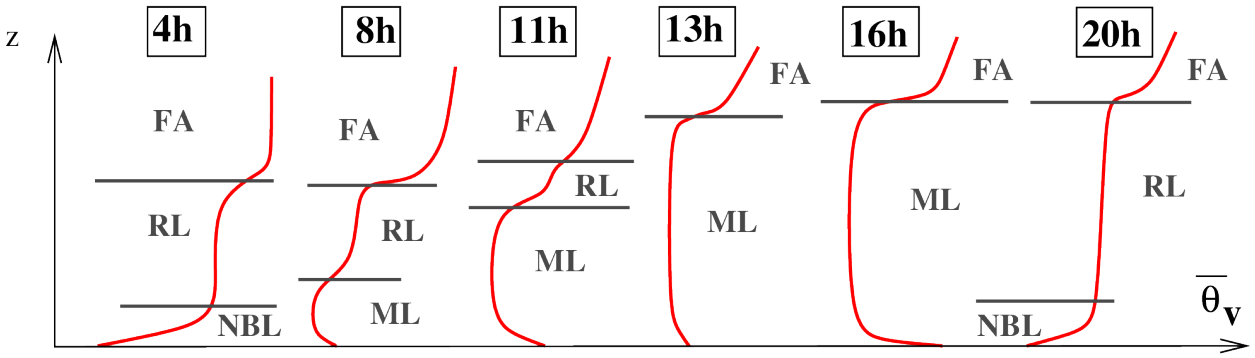


FIGURE 1.12 – *Evolution diurne de profils de température potentielle virtuelle $\overline{\theta_v}$ au sein de la couche limite atmosphérique (CLA). On note : NBL : Nocturnal Boundary Layer, la couche limite nocturne ; SBL : Surface Boundary Layer, la couche limite de surface ; RL : Residual Layer, la couche résiduelle ; FA : Free Atmosphere, l'atmosphère libre ; ML : Mixed Layer, la couche mélangée.*

être absorbées dans la couche mélangée. A 13h, on est en période dite convective, c'est à dire que les processus verticaux dominent largement les processus horizontaux. L'atmosphère est instable ou neutre : toute parcelle d'air à la surface va s'élever jusqu'à la troposphère libre. Dans ces cas, on observe des structures dites de thermiques et qui sont des ascendances rapides. Typiquement, une parcelle d'air peut passer de la surface à 2000 ou 3000m d'altitude en moins de 15mn. A 16h, l'écart se creuse à la surface et le gradient devient de plus en plus fort. A cette heure d'ensoleillement maximum, la CLA atteint son plus haut niveau en altitude. A 20h, le soleil ne chauffe plus et la température au sol diminue très rapidement (moins en ville). On repasse rapidement d'un gradient de surface négatif à positif : les polluants les plus lourds (comme les poussières) vont sédimenter dans la couche de surface, les plus légers (comme l'ozone) peuvent rester piéger dans la couche résiduelle.

En fonction de l'heure de la journée, la couche limite peut être turbulente et donc mélanger plus ou moins rapidement les polluants émis et formés près de la surface. L'intensité du mélange peut complètement modifier les concentrations de polluants mesurés en surface. On caractérise cette turbulence selon la stabilité ou l'instabilité de la couche limite. Ces instabilités se caractérisent par la part relative de production turbulente soit thermique soit mécanique. On définit ainsi le nombre de Richardson de flux, le rapport entre cisaillement et flottabilité, tel que :

$$R_{if} = \frac{\frac{g}{\overline{T}}\overline{w'\theta'}}{\overline{u_i'u_j'}\frac{\partial \overline{u_i}}{\partial x_j}} \tag{1.3}$$

avec $\overline{w'\theta'}$ et $\overline{u_i'u_j'}$ les flux turbulents de chaleur et quantité de mouvement, respectivement. u_i est la composante du vent dans la direction i, les indices pouvant être i, j ou k pour les directions x, y ou z. Pour $R_{if} > 0$, on est en atmosphère stable ; pour $R_{if} = 0$ en atmosphère neutre et pour $R_{if} < 0$ en atmosphère instable. On utilise aussi couramment le nombre de Richardson de couche (*Bulk Richardson number*) R_{ib}, calculé à partir des gradients verticaux des flux.

La couche limite urbaine

Le développement de la couche limite étant avant tout piloté par les caractéristiques de la surface, la couche limite urbaine est très spécifique, *Barlow* (2014). Le milieu urbain étant le lieu de la majeure partie des émissions anthropiques, son étude est primordiale. La modélisation de la couche limite urbaine est un sujet de recherche très développé depuis plusieurs dizaines d'années. Dans cette section d'introduction, nous ne présenterons que les grandes lignes des principales caractéristiques que l'on cherche à modéliser. La modélisation en elle-même sera plus détaillée dans le chapitre 3.

Caractéristiques

Les caractéristiques de la couche limite urbaine (*urban boundary layer*, UBL) ont été décrites dans les années 80, notamment avec les publications de référence de *McRae et al.* (1982) et *Oke* (1982). La notion d'ilot de chaleur urbain y est présentée avec les premiers bilans énergétiques. La modélisation ne sait pas encore prendre en compte correctement cet environnement et les paramétrisations sont juste légèrement modifiées avec des hauteurs de rugosité et flux de chaleur adaptés, *Pielke* (2013).

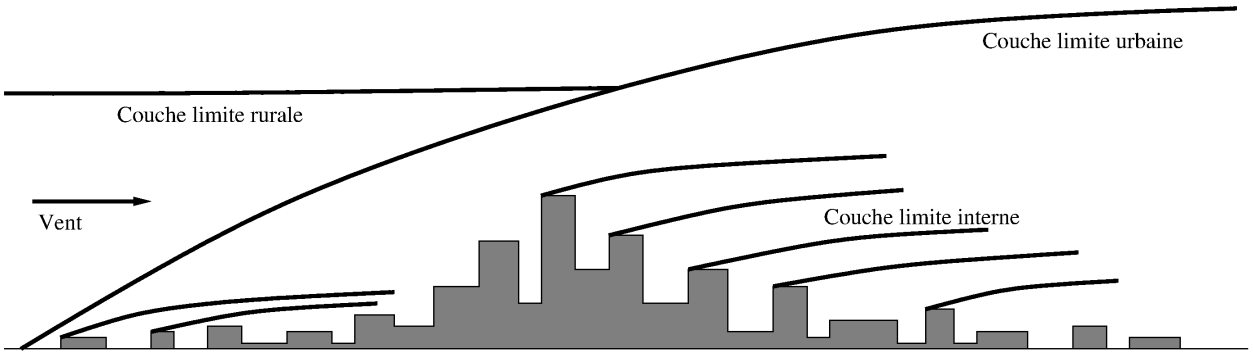


FIGURE 1.13 – *Structure de la couche limite urbaine.*

Pour comprendre la phénoménologie de ce qui doit être modélisé, la Figure 1.13 montre une vue schématique d'une ville entourée d'un milieu sub-urbain (la banlieue) voire rural. Les différences de CLA entre le milieu urbain et le rural sont dûes principalement aux caractéristiques de surface de ces deux milieux : la composition du sol (herbe, bitume) et donc la capacité de stocker de la chaleur et de l'humidité ; la composition de la surface (forêts, champs, bâtiments) et donc différentes rugosités influencant l'écoulement atmosphérique. L'albédo et l'émissivité (la capacité du sol à emmagasiner et restituer du flux par rayonnement) est plus faible en ville qu'en milieu rural, notamment à cause de surfaces goudronnées. De plus, la présence importante d'aérosols en milieu urbain tend à réduire le flux solaire incident, de l'ordre de 10 à 20 % (en fonction des sites d'études). La ville a généralement une température plus élevée que la campagne, due au chauffage, aux petites industries etc. Ce phénomène est accentué en hiver. On définit alors un ilot de chaleur urbain, *Oke* (1982). L'impact net est un flux de chaleur supplémentaire nommé flux anthropique, et qui vient s'ajouter au bilan radiatif que l'on fait sur un milieu : en hiver, on relève des valeurs pouvant aller jusqu'à 30W/m^2. Le module du vent sera plus faible en milieu urbain que rural le jour car la présence de hautes constructions le ralentit. A contrario, il sera plus important la nuit : les effets de forts gradients de température horizontaux devenant dominants. Toujours dû au type de surface et au revètement, l'analyse de l'air urbain montre qu'il est généralement plus sec qu'en milieu rural. Cette différence ne se limite pas que à l'atmosphère : le sous-sol urbain est "creux" ce qui est rarement le cas de la terre. On observe donc des

différences dans la facon dont l'humidité peut être stockée dans le sous-sol (moins longtemps en ville) et dont elle peut être restituée (beaucoup plus facilement et intensément en ville). Le milieu urbain peut reproduire, sous certaines conditions, des phénomènes étudiés en milieu non urbain comme le développement de couche limite interne et de brise de terre. A une échelle plus régionale, de nombreux phénomènes synoptiques vont avoir une importante influence sur le développement de la couche limite convective urbaine. Ces influences peuvent se résument en (i) Une advection d'air froid au dessus de la CLA convective va accélérer son développement, une advection d'air chaud va la ralentir. (ii) De forts gradients de pression à la surface vont imposer des vents forts, (iii) Une faible stabilité va accélerer les processus de mélange et (iv) des vents faibles (au dessus de la CLA) vont réduire les transferts de mouvements verticaux. En période anticyclonique, et par vents faibles, une advection d'air chaud au dessus d'une ville va donc ralentir la croissance de la CLA, et piéger tous les aérosols et les polluants, conduisant à un accroissement de la pollution urbaine.

Modélisation urbaine

Pour représenter ces phénomènes à la fois régionaux et locaux, il faut attendre les années 1990 : les simulations se raffinent en résolution et des modèles sont capables d'étudier explicitement la circulation autour d'un centre urbain, ainsi que les perturbations induites comme l'augmentation du régime des précipitations en aval de la zone urbanisée, *Baik and Chun* (1997). S'ajoutant à la prise en compte de la perturbation par la ville de l'écoulement atmosphérique à l'échelle régionale, la prise en compte de la turbulence et du mélange vertical a aussi été adaptée pour mieux représenter le milieu urbain. De grandes différences étant observées de nuit, les paramétrisations ont été modifiées, *Kot and Song* (1998). Pour les modèles de plus grande échelle, une adaptation de la turbulence dans une maille ne suffit plus : l'environnement urbain a un impact mais sa surface ne représente qu'un faible pourcentage de la surface : il est nécessaire de mettre en place des représentations sous-maille, comme *Calbo et al.* (1998) qui développe des adaptations statistiques pour les émissions urbaines de polluants, en se basant sur des simulations à haute résolution. Dans les années 2000, des schémas intégrant l'ensemble des processus urbains pour respecter un bilan d'énergie sont développés et intégrés aux modèles méso-échelles : ils décrivent de manière statistiques les effets de rue et bâtiments, comme le schéma *Town Energy Budget* (TEB) dans *Masson* (2000), utilisé dans le modèle Méso-NH pour analyser la brise thermique urbaine en région Parisienne dans *Lemonsu and Masson* (2002). La même année est proposé le schéma de *Martilli et al.* (2002) qui sera intégré dans le modèle WRF (voir p.35). Après des études purement météorologiques, la prise en compte du bâti urbain permet de quantifier son impact aussi sur la pollution atmosphérique, *Sarrat et al.* (2006), *Auger and Legras* (2007). Au cours des années 2010, les schémas statistiques de type TEB sont améliorés en ajoutant plus de détails sur les flux de chaleur des buildings et leur impact sur l'écoulement, comme dans *Krpo et al.* (2010). Des études de sensibilité montrent que la prise en comte d'une variabilité sous-maille de l'environnement urbain change globalement les résultats, *Flagg and Taylor* (2011). En parallèle, des études météorologiques à l'échelle locale (i.e la centaine de mètres) sont réalisées avec des outils de *computational fluid dynamics* (CFD) afin d'avoir une quantification explicites de l'impact des bâtiments sur l'écoulement atmosphérique et les flux turbulents, *Milliez and Carissimo* (2008), *Fesquet et al.* (2009), *Burman et al.* (2019). L'ensemble de ces développements de modélisation, souvent basés sur l'adaptation de paramétrisations de plus grande échelle, se font à l'aide de campagnes de mesures dédiées comme les projets ESCOMPTE dans la région de Marseille, *Mestayer et al.* (2005), FUMAPEX à Copenhague, *Baklanov et al.* (2008), Salfex à Salford (UK), *Barlow et al.* (2008), Joint Urban à Oklahoma City, *Finn et al.* (2010). A ce jour, les études sur le milieu urbain, soit expérimentalement, soit en modélisation CFD, ou à fine résolution, ou par variabilité sous-maille, ou par paramétrisations statistiques, continuent à faire l'objet de recherches très actives, *Buccolieri and Hang* (2019). L'enjeu reste la modélisation de la météorologie et de concentrations de polluants mais aussi de l'exposition

des populations pour des études d'impact sur la santé.

2 Observations et législation

Les observations sont un point essentiel de l'analyse de tout processus physico-chimique. Elles représentent la seule réalité, la modélisation n'étant qu'une interprétation de cette réalité. Dans ce chapitre, nous décrivons les différents types de mesures météorologiques et chimiques d'intérêt pour comprendre un épisode de pollution atmosphérique. Sont discutées la faisabilité des mesures, leur précision, leur représentativité. Leur utilisation dans un modèle, sous forme de validation ou d'assimilation de données, est discuté dans le chapitre 7, p.119. Que ce soit pour la météorologie ou la chimie, on distingue plusieurs types de mesures. On a tout d'abord les *mesures in-situ* : elles ont une représentativité très locale, uniquement à l'endroit et au moment ou se fait la mesure. Mais elles sont l'avantage d'être les plus réalistes car correspondent directement à l'information que l'on cherche. On a ensuite les *mesures par télédétection* : elles permettant d'accéder à une information à distance. Dans ces informations à distance, on aura aussi deux sous-groupes : les mesures sous forme de profils (toute la distance balayée est renseignée avec un échantillonnage spatial) ou intégrée (on n'a qu'une valeur moyenne sur le trajet de la mesure).

Journal	Open Access
Journal of Atmospheric and Oceanic technology www.ametsoc.org/ams/index.cfm/publications/journals	très partiel
Remote Sensing www.mdpi.com/journal/remotesensing	oui
Atmosphere www.mdpi.com/journal/atmosphere	oui
Atmospheric Measurements Techniques www.atmospheric-measurement-techniques.net	oui

TABLE 2.1 – *Exemples de journaux scientifiques sur l'observation atmosphérique.*

En fonction de la variable mesurée et de l'instrument utilisé, on aura une grande variabilité sur l'incertitude et la représentativité : deux notions qu'il faudra quantifier quand on voudra comparer des mesures à des résultats de modélisation ou les utiliser pour de l'assimilation de données. Pour un même type d'instrument et la même variable, l'interprétation que l'on pourra faire de la mesure va dépendre de la fréquence temporelle d'acquisition, de la portée et résolution spatiale de l'instrument et du type de variable mesurée.

Pour suivre la recherche sur la mesure dans le cadre de la météorologie et la composition atmosphérique, il existe différents journaux listés dans le Tableau 2.1. Enfin, dans le cadre de la simulation de la pollution, et avec un modèle de chimie-transport, on va être amenés à comparer les résultats à la fois avec des mesures météorologiques et des mesures chimiques.

2.1 Les mesures météorologiques

Les mesures météorologiques permettent tout d'abord de comprendre la nature d'une situation particulière, puis de comprendre si les conditions propices à un épisode de pollution sont présentes. Cela permet aussi de quantifier la pertinence du forçage principal lors d'une modélisation de pollution atmosphérique : la dynamique et la turbulence.

Les mesures in-situ

Les mesures in-situ sont les seules mesures qui représentent la réalité car elles ont été acquises directement là ou l'on cherche l'information. Elles ont cependant une représentativité très limitée spatialement et temporellement, et sont donc généralement non comparables directement à un résultat de modélisation. Ces mesures peuvent être divisées en deux catégories : (i) les mesures de routine des réseaux, (ii) les mesures ponctuelles (campagnes de mesures). Les **mesures de routine des réseaux** ont l'avantage d'avoir plusieurs localisations avec la même mesure, la même fréquence temporelle et la même représentativité. Les instruments sont prévus pour une utilisation et acquisition de données automatiques. Ils doivent donc être robustes et la mesure ne doit pas (trop) dériver dans le temps. Parmi ces mesures de routine, on trouve (i) les stations de surface, (ii) les mâts de mesure, (iii) les radiosondages. Les **stations de surface** sont des stations automatiques qui transmettent leurs données via un réseau dédié. Les données acquises nécessitent peu de post-traitement mais elles sont souvent réservées aux organismes qui les déploient et ne sont pas publiques. Les stations mesurent de nombreuses variables par le biais de différents instruments : température (à 2m), humidité (à 2m), pression (à 2m), vent (à 10m), rayonnement (intégré), nébulosité (intégrée) etc. Les données délivrées sont horaires. Ces mesures régulières et continues en temps permettent d'établir de longues séries chronologiques et de "recadrer" une période particulière par rapport à une période plus grande (une semaine donnée confrontée à l'ensemble de la saison, par exemple). On notera cependant que les données de vent ne sont enregistrées qu'avec une précision de l'ordre du m s^{-1} : les situations de pollution étant souvent des situations de vent faible, la variabilité des mesures est faible.

Les **mâts de mesure** sont aussi considérés comme des mesures de routine. A la différence des stations de surface, les mesures sont réalisées à des hauteurs au dessus du sol qui peuvent varier (même si la "norme" est de mesurer à 10 et 30m du sol). Ces mesures apportent une information supplémentaire importante : la notion de gradient vertical. Cette notion de gradient, si l'acquisition se fait à haute fréquence temporelle, permet d'accéder à des mesures de turbulence. On trouve ainsi sur les mâts des **anémomètres soniques**. Son principe est la mesure des fluctuations du vent à haute fréquence par l'utilisation de coupelles dans les trois directions. On obtient donc directement des valeurs de u', v' et w'. Cela permet de dériver directement la vitesse de frottement u_* et l'énergie cinétique turbulente, TKE. En général, ces mesures servent de référence pour la mesure de la turbulence et permettent de "caler" les mesures des autres instruments. Un exemple de mesures est présenté sur la Figure 2.1. Il montre la mesure de la température et de l'humidité relative sur le mât instrumenté de 30m de haut du *Site Instrumental de Recherche par Télédétection Active* (SIRTA) à Palaiseau. On peut voir la variabilité de ces quantités en fonction d'une petite variation de hauteur par rapport au sol. Le site du SIRTA regroupe un ensemble de mesures de la basse atmosphère à la fois météorologiques et chimiques, *https ://sirta.ipsl.fr/*.

Les **radiosondages** sont à la fois des mesures de routine (selon les réseaux) ou des mesures de campagnes. Ce sont des ballons, lancés plusieurs fois par jour, de différentes stations et qui, au fur et à mesure de leur ascension verticale, vont donner des mesures de vent, température, pression et humidité. Un ballon met en moyenne 30 à 40mn pour aller de la surface à 20km d'altitude. Les données issues de ces radiosondages sont particulièrement précieuses car elles sont la seule mesure réelle *in-situ* d'une tranche d'atmosphère qui

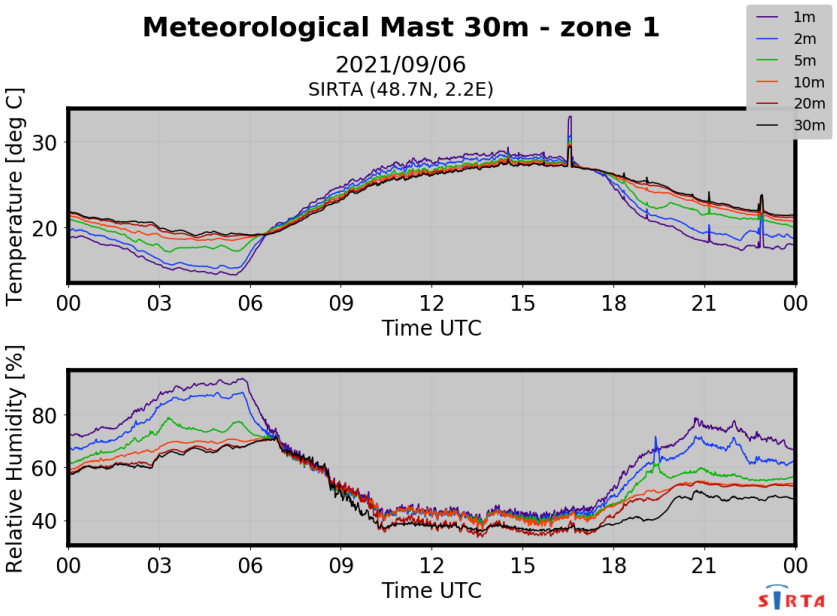


FIGURE 2.1 – *Température et humidité relative à différentes hauteurs sur le mât de 30m du site instrumenté du SIRTA à Palaiseau.*

existe en routine. De plus, les données enregistrées sont à haute résolution verticale (de l'ordre de quelques m) et donnent de nombreuses informations sur la stratification dans la CLA. Le seul défaut du radiosondage est que sa trajectoire n'est pas maitrisée, le ballon peut dériver en fonction du vent en altitude. Pour interpréter les données, il est donc nécessaire de prendre en compte sa trajectoire.

Les **mesures aéroportées** en dynamique servent avant tout à réaliser des mesures sur de longues distances dans des lieux difficilement accessibles (mer, montagne). Des mesures de vent, température, pression et humidité sont réalisées. Lorsque ces mesures sont faites à sufisamment haute fréquence temporelle, on peut déterminer leur valeur moyenne et leur écart-type. Relié à l'incertitude de l'instrument, on peut alors en déduire des flux turbulents. En pratique, ces mesures peuvent servir à contraindre et valider un modèle ou à mettre au point de nouvelles paramétrisations.

Les mesures par télédétection

Les mesures par télédétection permettent d'avoir une plus grande couverture spatiale et temporelle mais nécessitent d'interpréter les mesures pour en faire des données géophysiques. En effet, le signal recu représente un effet mais ne peut pas quantifier précisément la cause : ces mesures permettent d'améliorer les connaissances sur un phénomème physique mais doivent être accompagnées d'incertitudes sur l'interprétation de la mesure, en plus de l'incertitude liée à la représentativité. Pour l'analyse de l'atmosphère près de la surface, on présente ici les instruments **lidar**, **radar** et **sodar**. Ces mesures sont faites au **zénith** ou depuis le sol dans une direction quelconque avec un angle incident, c'est à dire de la surface vers l'atmosphère. Pour le lidar, il existe aussi des mesures aéroportées, à la fois au zénith et au **nadir**. Hors de l'atmosphère, on présentera aussi les mesures **satellite**.

Le **lidar** (*Light Detection and Ranging*) est composé d'une source laser (*Light Amplification by Stimulated Emission of Radiation*), qui émet un faisceau dans l'atmosphère. Ce faisceau va rencontrer au fur et

à mesure de sa propagation des particules et va donc être atténué mais aussi réfléchi (ou rétrodiffusé). Une partie de ce signal rétrodiffusé va revenir vers le sol. Un téléscope est placé près du laser et recueille ce signal, *Piironen and Eloranta* (1995). L'analyse de ce signal par effet Doppler dans la bande de fréquence de son émission va donner un profil vertical de rétrodiffusion. Après correction du signal, et en fonction de la longueur d'onde d'émission, on peut avoir accès à un profil vertical de présence de nuages ou d'aérosols. Un des intérêts de cette mesure est sa haute fréquence d'acquisition (une dizaine de Hz en général) et résolution verticale (quelques mêtres de résolution sur l'ensemble de la troposphère). L'inconvénient est que le signal est souvent bruité, que la mesure doit être inversée pour retrouver des grandeurs géophysiques et que le profil est limité à l'endroit ou se trouve l'instrument. La diffusion de l'émission laser est dite élastique si la fréquence rétrodiffusée est la même que celle émise (comme la diffusion de Mie ou Rayleigh) et inélastique si elle change. La diffusion de Rayleigh est donc la diffusion sur les atomes et molécules, la diffusion de Mie sur les aérosols ou les goutelettes nuageuses. Il existe aussi des lidars Raman, à diffusion sur les molécules, avec une émission inélastique, le changement de fréquence étant une signature de la molécule rencontrée. Les types de lidar utilisés sont principalement à rétrodiffusion (*backscatter*), DIAL (*Differential Absorption Lidar*), Raman et Doppler. Le lidar backscatter mesure le rayonnement rétrodiffusé et la polarisation. Le lidar DIAL mesure la concentration d'espèces chimique en émettant dans deux longueurs d'ondes. Par comparaison entre la longueur d'onde absorbante et celle non absorbante pour la molécule étudiée, la concentration peut être estimée. Le lidar Raman peut aussi mesurer des espèces chimiques ciblées en mesurant la modification de longueur d'onde du signal recu. Les lidars sont des instruments fragiles et couteux, nécessitant un opérateur et une maintenance importante. Ces dernières années, des sociétés ont innové en proposant des lidars plus petits et embarquables dans des avions ou voitures. En fonction du type de laser, du type de mesure et des algorithmes d'inversion, on peut avoir, par lidar, des profils verticaux de concentrations en aérosols, d'ozone ou de vent, *Baumgarten* (2010). Une application la plus souvent réalisée est la détermination de la hauteur de la couche limite atmosphérique, *Menut et al.* (1999), *Hennemuth and Lammert* (2006), *Morille et al.* (2007) etc. En Europe, les lidars sont mis en oeuvre en réseau avec *European Aerosol Research Lidar Network* (EARLINET, https ://www.earlinet.org), *Pappalardo et al.* (2014). Cela permet d'avoir des mesures homogènes en différents points en Europe et de pouvoir suivre un évènement de transport à longue distance, par exemple.

Le **sodar** (*Sound Detection and Ranging*) est aussi basé sur le principe de la rétrodiffusion, non pas à partir d'un laser comme le lidar, mais d'une séquence sonore à différentes longueurs d'onde, *Singal* (1993). On obtient alors des profils de rétrodiffusion, mais aussi (car il dispose de trois antennes distinctes) de la mesure du vent u, v et w. Le son se propageant moins que la lumière dans l'atmosphère, les mesures obtenues que couvrent que des distances allant du sol à 500 ou 600m. Les avantages de cet instrument sont avant tout sa capacité à mesurer des **profils de vent**, ainsi que la possibilité de restituer sur la verticale des **paramètres turbulents**. En pratique, l'emploi de cet instrument s'avère délicat lorsque le "bruit de fond" est important (comme en milieu urbain). Mais il reste régulièrement employé pour des études de couche limite urbaine, notamment en hiver lorsque cette couche reste basse et donc dans la portée de l'instrument, *Dupont et al.* (1999), *Pichelli et al.* (2014). La mesure de base de cet instrument est le signal rétrodiffusé S lié aux fluctuations turbulentes de la température et du vent :

$$S^2\, exp(2az) \;=\; b_1\, \frac{C_T^2}{T^2} + b_2\, C_V^2 \tag{2.1}$$

avec T, la température, a le coefficient d'atténuation, et z la distance entre l'antenne du sodar et la cible atteinte. La quantité C_T^2 (n K^2 m$^{-2/3}$) caractérise l'intensité des inhomogénéités de petites échelles dans le champ de température, et b_1 et b_2 sont des constantes de proportionnalité. Lorsque l'émetteur et le récepteur sont confondus, ce qui est généralement le cas, seules les fluctuations de température contribuent à la

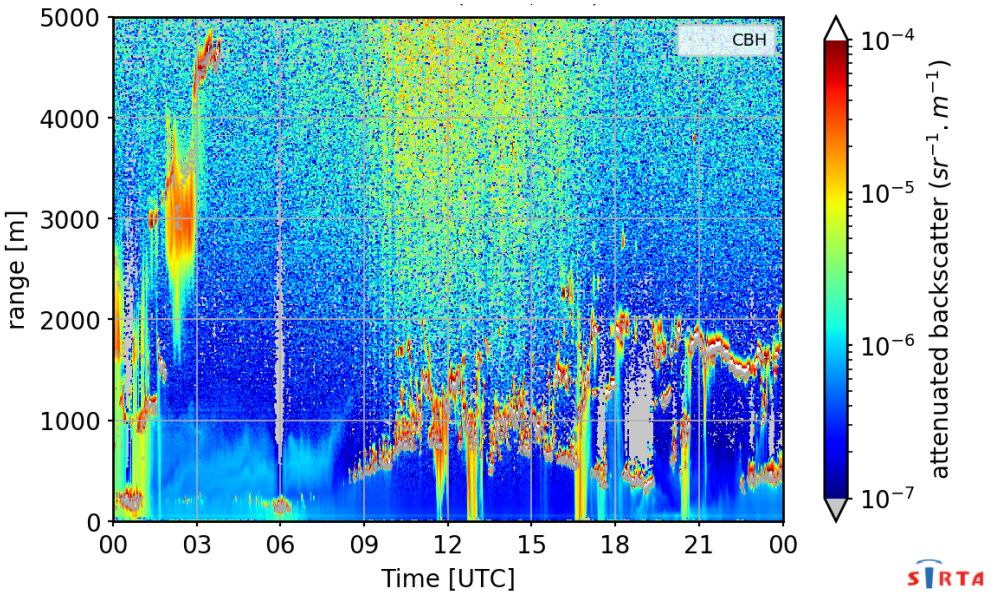


FIGURE 2.2 – *Coupe verticale de signal corrigé lidar sur le site du SIRTA. Figure d'après la base de données publiques https ://sirta.ipsl.fr/data_quicklooks.html.*

rétrodiffusion (i.e le terme en C_V^2 est nul). Le sodar s'avère particulièrement utile pour l'étude de la turbulence dans la couche de surface. Par ses mesures d'écart-type de la vitesse verticale σ_w, des paramétrisations permettent d'obtenir des séries temporelles du flux de chaleur sensible surfacique, *Weill et al.* (1979).

Le **radar** fonctionne sur l'émission d'une impulsion à intervalle régulier. L'antenne permet de mesurer la partie du signal rétrodiffusé sur les goutelettes d'eau en cas de précipitation. Il permet de caractériser en trois dimensions les précipitations, à haute fréquence spatiale et temporelle. La Figure 2.3 présente une coupe verticale de vitesse verticale issue de l'écho radar et pendant une journée de Octobre 2020. La couche limite est basse et matérialisée par la présence nuageuse à altitude constante de 1500m sur la journée.

A partir du sol, différents instruments permettent d'avoir des mesures du flux radiatif incident. Les **photomètres** mesurent le rayonnement lumineux dans les longueurs d'onde tel qu'il peut être ressenti par la vision humaine. Plusieurs longueurs d'onde peuvent être mesurées et leur analyse conjointe permet d'avoir des informations sur la nature des nuages ou aérosols présents dans l'atmosphère. Le **pyranomètres** (rayonnement solaire, (*short-wave radiation*) est un capteur de flux thermique. Il mesure la puissance du rayonnement solaire total en W.m^{-2}. Le **pyrgéomètre** est un radiomètre hémisphérique. Il mesure le flux de rayonnement infrarouge incident (*long-wave radiation*), dû au rayonnement tellurique d'origine atmosphérique ou du sol. Ces instruments sont de faibles encombrements et sont automatiques. Ils permettent de faire des mesures en continu sans opérateur.

2.2 Les mesures de concentrations atmosphériques

Article open-access de référence: *Benedetti et al.* (2018)

Les mesures de concentrations chimiques dans l'atmosphère sont, comme pour la météorologie, organisée en réseau ou mesures ponctuelles. Elles peuvent aussi être *in-situ* ou déduites de mesures de télédétection, *Laj et al.* (2009).

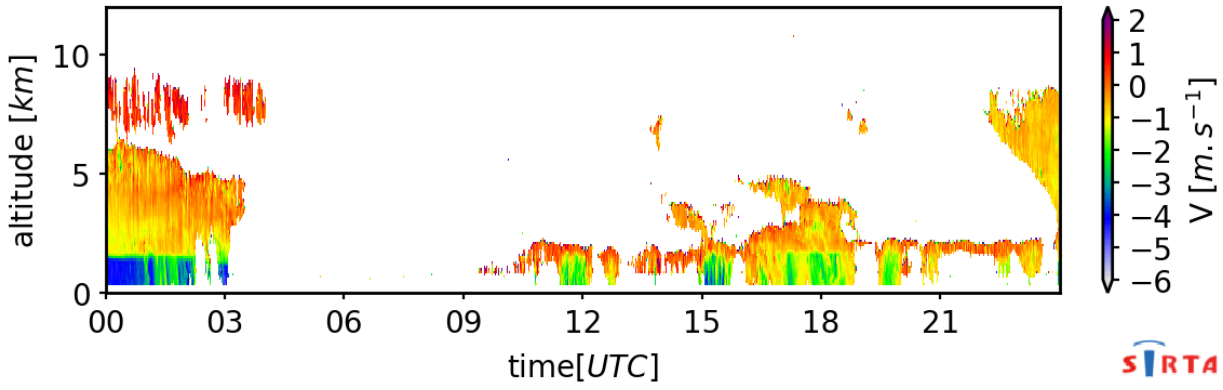


FIGURE 2.3 – *Coupe verticale de signal radar sur le site du SIRTA. Vitesse de chute des hydrométéores. Figure d'après la base de données publiques https ://sirta.ipsl.fr/data_quicklooks.html*

Les mesures in-situ

Les mesures in-situ sont principalement réalisées par des stations automatiques de surface mises en réseau et fonctionnant en routine. Comme les mesures météorologiques, on a accès à des concentrations à fréquence horaire et pour des localisations fixes. Les réseaux sont installés et maintenus principalement par les associations agrées de surveillance de la qualité de l'air (AASQA). Ces AASQA utilisent directement leurs mesures pour des analyses locales, mais les envoient aussi en temps réel à des niveaux nationaux et internationaux. En France, les mesures sont gérées par le Laboratoire Central de Surveillance de la Qualité de l'Air (LCSQA). Au niveau Européen, ces mesures sont ensuite mises en bases de données publiques avec l'organisation Européenne *European Monitoring and Evaluation Programme* (EMEP) (Figure 2.4) et Airbase de l'European Environment Agency (EEA). Il y a plus de mesures au niveau local que Européen, les stations EMEP étant un sous-échantillonnage des mesures correspondant aux stations rurales. Contrairement à la météorologie, le suivi des concentrations mesurées entre dans un cadre législatif : les régions ont obligation de surveiller la qualité de l'air, via la mesure de concentrations. Pour cela, le réseau doit mesurer sans interruption, la représentivité des mesures doit être connue. Les AASQA ont donc un réseau important de stations mais aussi d'autres mesures en parallèle pour maintenir ce réseau. (i) Des mesures dans des véhicules mobiles permettent de connaitre la variabilité, donc la représentativité d'une mesure autour d'une station. (ii) Des mesures dans leur laboratoire de métrologie permettent d'étalonner les instruments de

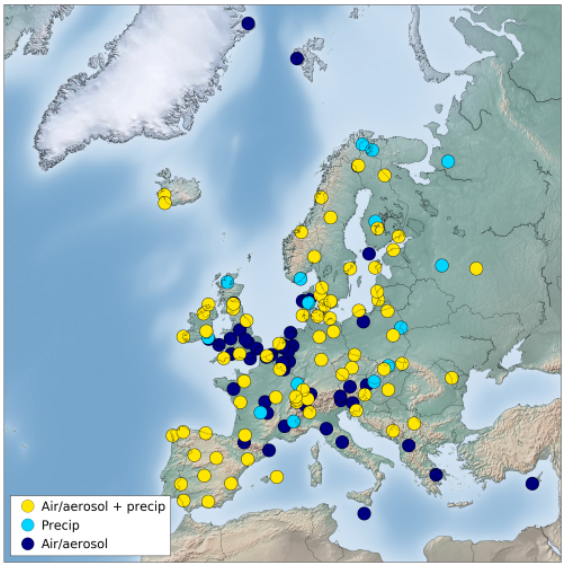


FIGURE 2.4 – *Les stations du réseau de mesures mis en place et géré par le programme Européen EMEP*

mesures, pour réduire des biais dus à des dérives.

En fonction du polluant à mesurer, différents instruments sont développés et utilisés. Parmi les techniques utilisées par les réseaux ou pour des campagnes de mesures, on a tout d'abord la mesure par fluorescence UV ou spectrométrie d'émission. Les mesures sont continues et la limite de détection de l'ordre de quelques ppb. L'instrument est utilisé, par exemple, pour la mesure du SO_2. Le principe est un rayonnement UV des molécules de gaz, passant dans un état excité puis relaxée vers leur niveau fondamental. Cela génère une émission de photon. La concentration est déduite de cette émission. Pour la mesure de NO, NO_2, O_3, des instruments basés sur le principe de la chimiluminescence sont utilisés. Le principe est aussi une émission d'énergie lumineuse, résultat du retour à l'état fondamental du produit d'une réaction chimique se trouvant dans un état excité. Pour cela, le gaz recherché est mis en contact avec un composé en excès pour que la réaction chimique soit complète. On note aussi la spectrométrie d'absorption optique différentielle (DOAS) : un rayonnement sur une molécule donne une diffusion spatialement hétérogène dite *diffusion de Rayleigh*, *Gratsea et al.* (2020). Cette diffusion dépend de la section efficace d'absorption du gaz et de la longueur d'onde incidente. Des études récentes utilisent de nombreux instruments de ce type, en réseau, afin de faire des comparaisons avec des mesures similaires obtenues par satellite, *Verhoelst et al.* (2020).

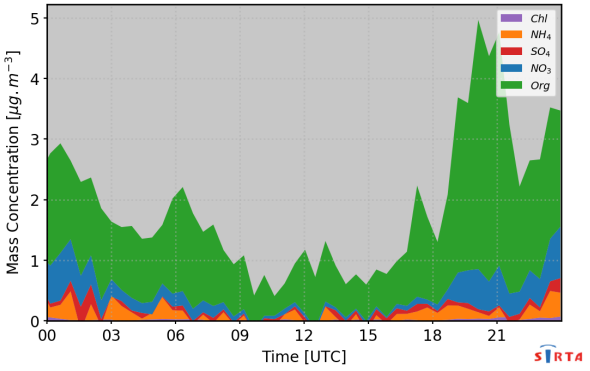


FIGURE 2.5 – *Les mesures par ACSM au SIRTA. Composition de l'aérosol pour la journée du 3 Octobre 2020 en région Parisienne. On voit que la fraction organique de l'aérosol domine.*

La Figure 2.5 présente un exemple de mesure réalisée au SIRTA à Palaiseau avec un *Aerosol Chemical Speciation Monitor* (ACSM). Développé par une société privée, ce n'est pas un prototype mais reste un instrument réservé à une utilisation pointue de mesure et de recherche. Cet instrument est une adaptation des instruments de principe *Aerosol Mass Spectrometer* (AMS). Il permet de quantifier la concentration en sulfate d'ammonium, nitrate d'ammonium, matière organique et carbone suie dans des gammes de taille très fines avec PM_1 et $PM_{2.5}$ (donc de diamètre médian en masse inférieur à 1 et 2.5 μm, respectivement).

Les mesures par télédétection

Les mesures à distance sont de deux types : (i) les mesures en surface qui sondent l'atmosphère verticalement, (ii) les mesures par satellite.

Les mesures depuis la surface

Pour des mesures depuis la surface, le principal réseau mondial d'intérêt est le réseau Aerosol Robotic Network [1], (AERONET), *Holben et al.* (1998), *Dubovik and et al* (2000), *Sinyuk et al.* (2020). Il permet de restituer des grandeurs liées aux aérosols : l'épaisseur optique (intégrée sur toute la colonne atmosphérique) pour différentes longueurs d'ondes et uniquement dûe aux aérosols (un algorithme élimine la contribution nuageuse), le calcul du coefficient d'Angström. Les mesures ne sont pas régulières en temps mais à peu près horaires. Le réseau est très dense spatialement et l'étude de séries chronologiques ou de cartes permet de voir

1. AERONET : http ://aeronet.gsfc.nasa.gov

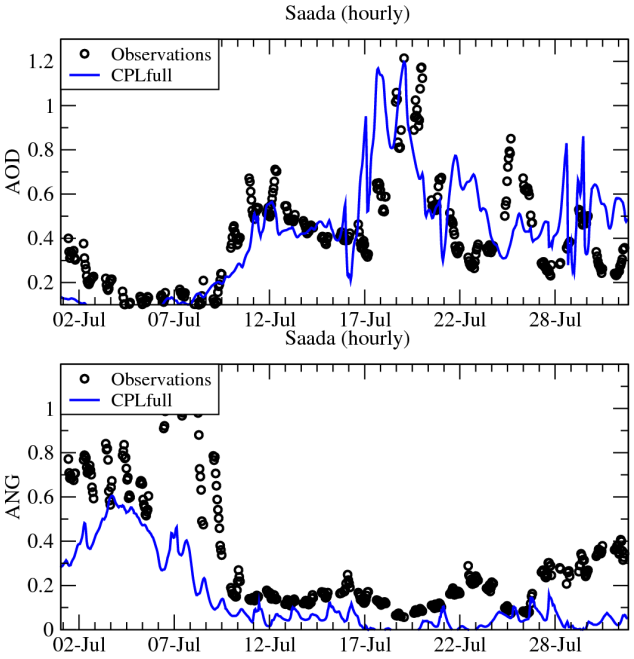


FIGURE 2.6 – *Comparaison d'épaisseur optique (AOD) et de coefficient d'Angstrom (ANG) entre les mesures AERONET et le modèle CHIMERE, pour la station de Saada (Maroc) en Juillet 2016 pendant la campagne DACCIWA. Les données sont issues de Menut et al. (2019).*

si une modélisation a correctement restituée le transport d'un panache dense d'aérosols, par comparaison entre les stations, *Kinne et al.* (2003). Les données de ce réseau sont très utilisées comme, par exemple sur le bassin Méditerranéen, des études de modélisation pour quantifier la véracité de leurs résultats, comme *Bergamo et al.* (2008), *Basart et al.* (2009), *Menut et al.* (2016) etc.

La Figure 2.6 présente une comparaison entre des mesures AERONET et le modèle CHIMERE, pour la station de Saada au Maroc, pendant le mois de Juillet 2016. En début de période, l'AOD est très faible, montrant soit peu d'aérosols, soit des aérols optiquement peu actifs. L'Angström montre des valeurs observées de 0.8, que le modèle sous-estime (0.6). C'est un aérosol fin donc probablement d'origine anthropique. L'augmentation de l'épaisseur optique vers le milieu du mois, jusqu'à une valeur de 1.2, est le signe d'un transport d'aérosols importants en masse. L'Angström correspondant montre des valeurs faibles, inférieures à 0.2, donc un aérosol grossier : il s'agit ici d'aérosols minéraux. Globalement, les variations inter-journalières sont bien reproduites, y compris le phasage des pics, montrant que le modèle a su restituer les émissions et le transport.

Les mesures par satellite

Ces dernières années, les mesures par satellite ont nettement augmenté en nombre et qualité. Les mesures satellitaires de composition chimique de la troposphère ont tout d'abord été utilisées à l'échelle globale. Peu résolues spatialement et temporellement, plutôt qualitatives, elles ont permis de décrire le transport de panaches de polluants à longue distance, pour des espèces ayant une durée de vie atmosphérique de quelques jours. L'amélioration des mesures et les progrès réalisés sur l'algorithmie d'analyse permettent aujourd'hui d'apporter de l'information précise aux échelles régionales, voire métropolitaines. En renseignant des zones

Satellite	Sondeur	Instrument	polluant
Nasa/Terra (1999)	Mopitt (TIR + NIR)	Spectromètre à corrélation. Pixel : 22 km. Revisite 3 jours	CO
Nasa/Terra (1999)	Modis Visible	Spectromètre imageur. Pixel : 250 m Fauchée 2330 km	Aérosol : type, taille, prop. optiques, AOD
Nasa/Aqua (2002)	Airs (TIR)	Spectromètre à réseau. Pixel : 13.5 km. Fauchée : 1650 km	CO, O_3, NH_3
Nasa/Aqua (2002)	Modis (Visible)	Spectromètre imageur. Pixel : 250-1000 m. Fauchée : 2330 km	Aérosol : type, taille, propriétés optiques, AOD.
Nasa/Aura (2004)	OMI	Spectromètre (UV-vis.) Pixel : 13 km Fauchée : 2600 km	NO_2, O_3, SO_2, AOD
Nasa/Aura (2004)	TES (TIR)	Spectromètre à transformée de Fourier. Pixel : 5.3 km	CO, O_3, NH3, SO_2
Cnes/ Nasa Calipso (2006)	Caliop + IRR	Lidar (polarisation orthogonale) + Imageur	Profils verticaux aérosols et nuages
Cnes / Eumetsat / Metop	Gome-2 (UV-vis)	Spectromètre UV-vis Pixel : 40 km Fauchée : 1920 km	NO_2, O_3, SO_2, CH2O
Cnes / Eumetsat / Metop	Iasi (TIR)	Spectromètre TF. Pixel : 12 km. Fauchée : 2400 km	CO, O_3, NH3, SO_2, CH_3OC, HCOOH
Cnes/Parasol (2005-2013)	Polder	Radiomètre imageur Pixel : 6 km. Fauchée : 1600 km	Aérosol : type, AOD, taille, propriétés optiques
Sentinel 5 (2018)	Tropomi (UV, UVIS, NIR)	Spectromètre Pixel : 3 km Fauchée : 2600 km	AOD, ANG, O_3, NO_2, aerosols

TABLE 2.2 – *Quelques exemples de satellites utilisés pour l'analyse de la composition atmosphérique. On note : TIR, thermal IR, infrarouge thermique ; NIR, near IR, proche infrarouge ; VIS, visible ; UV : ultraviolet.*

peu ou pas couvertes par les mesures in situ, les observations satellitaires peuvent être utilisées à différents niveaux : elles peuvent servir à contraindre les inventaires d'émissions de polluants, permettre une analyse fine de résultats de simulation sur de vastes régions et sur toute la colonne atmosphérique, ou encore être assimilées par les modèles pour améliorer la performance de ceux-ci.

De nombreux capteurs existent, chacun avec des caractéristiques techniques permettant de discriminer

une ou plusieurs espèces chimiques atmosphériques, avec des fréquences de mesures et des couvertures spatiales différentes, Tableau 2.2. De ces informations, on peut déduire dans les grandes lignes les avantages et inconvénients des capteurs existants pour les études de pollution atmosphérique régionale. La plupart des polluants que l'on cherche à estimer sont aujourd'hui mesurés par au moins un capteur. Cependant, si la quantification des espèces gazeuses a atteint un bon niveau de précision, ce n'est pas le cas pour les aérosols, souvent uniquement représentés sous la forme de leur effet sur l'épaisseur optique (AOD) sans discriminer les espèces présentes ni la distribution en taille des particules. Par contre, la multiplicité de satellites différents peut permettre de raffiner l'évaluation d'une concentration par recoupements entre les mesures.

Parmi les satellites utilisables pour la composition atmosphérique, on distingue les "LEO" et les "GEO". Les LEO, pour *"Low Earth Orbiters"*, sont des satellites défilants à basse altitude, Ils ont l'avantage d'avoir une résolution verticale plus fine que les GEO, une couverture globale (mais selon des fauchéees plus ou moins larges) et d'avoir des capteurs utilisables pour les espèces chimiques d'intérêt en pollution. Par contre, ils ne passent qu'une fois par jour en un lieu donné et leur sensibilité pour différencier la couche limite du reste de la troposphère est faible. Les satellites GEO, pour *géostationnaires* sont en orbite à point fixe à 36000 km de la Terre. Leur position fixe permet des acquisitions à intervalle temps régulier et donc la possibilité de faire des séries chronologiques, ainsi que des cartes pour une région donnée. Par contre, ils ne font des observations que pour une seule région et n'ont pas de résolution verticale. La résolution horizontale reste faible de par leur éloignement. Enfin, ce sont surtout des satellites dédiés à la météorologie et il n'y a pas à ce jour de mesure en lien direct avec la pollution atmosphérique, au sens de mesures relativement précises de concentrations et près de la surface. Parmi les satellites défilants, on note le 'train' de satellite *"A-Train"* coordonné par la NASA. Il est composé de différents satellites, chacun dédié à une mesure géophysique particulière. Cloudsat pour la réflectivité des nuages ; CALIPSO pour les aérosols, *Winker et al.* (2009), nuages et la glace ; AIRS/AQUA pour les profils de température, la pression au sommet des nuages, la concentration de CO, *Kopacz et al.* (2010) ; TRMM pour les précipitations, *Cecil et al.* (2014) ; AURA pour l'ozone, la vapeur d'eau, les CFCs, le méthane et l'azote et PARASOL qui utilise le radiomètre POLDER (*POLarization and Directionality of the Earth's Reflectance*) pour les caractéristiques de surface, *Deschamps et al.* (1994). Sur la plate-forme Metop, le capteur IASI, initialement concu pour des mesures météorologiques (température), permet aussi d'estimer des concentrations chimiques dans la troposphère : O_3, CO, CO_2, H_2O, CH_4. Près de 1.3 millions de profils sont mesurés chaque jour. Pour retrouver des profils verticaux de concentrations, il faut 'inverser' les données en utilisant des profils *a priori* nommés *averaging kernels*, *Clerbaux et al.* (2009).

L'intérêt de l'observation par satellite est de pouvoir réaliser des mesures sur l'ensemble du globe, indépendamment de l'installation d'un réseau de mesures au sol. Un désavantage est de ne souvent disposer que de mesures intégrées sur la verticale, ce qui en limite fortement l'intérêt pour l'étude de la qualité de l'air qui nécessite la connaissance des concentrations de polluants à proximité de la surface. Par ailleurs, les mesures satellitaires sont potentiellement gênées par la couverture nuageuse ou par des albédos de surface importants (notamment pour l'inversion des aérosols). Enfin, si l'on cherche à caractériser finement un événement de pollution sur une zone urbanisée particulière, leur résolution spatiale ($\approx$ 10 km au mieux) et temporelle (une à deux mesures par jour) reste généralement trop faible. Pour bien comprendre un événement de pollution, sur une durée de quelques jours, ces données vont pouvoir être exploitées en utilisant différentes méthodes. On peut tout d'abord privilégier l'analyse d'événements en s'aidant d'espèces chimiques à longue durée de vie et avec une signature spectrale nette. On peut aussi combiner différents capteurs afin de réduire l'incertitude liée à chacun. L'étude peut aussi consister à réaliser des études de tendance : le manque de couverture spatiale et temporelle est alors compensé par l'accumulation de données et leur exploitation statistique. Un exemple de comparaison mesure/modèle est présenté Figure 7.3 (p.124).

Les micro-capteurs

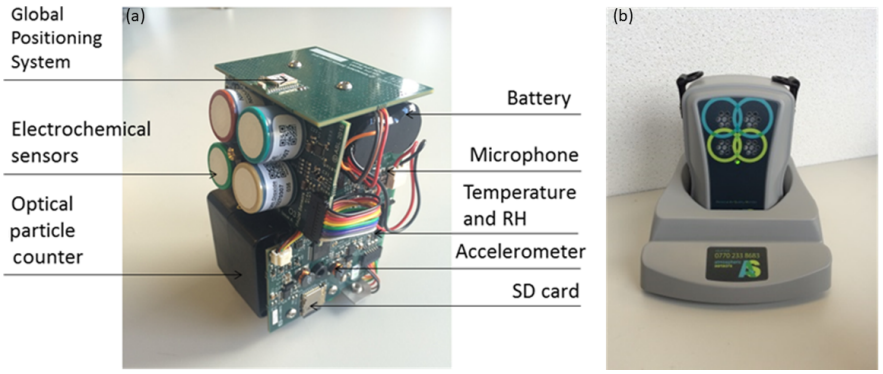


FIGURE 2.7 – *Exemple de micro-capteurs développés pour mesurer la pollution subie par un individu et ainsi estimer l'exposition à la population. Photo d'après Chatzidiakou et al. (2019).*

Depuis quelques années sont apparus de nouveaux moyens de mesures appelés "micro-capteurs", *Chatzidiakou et al.* (2019). Ils sont développés et utilisés pour les problématiques d'impact de la pollution sur la santé : pour raffiner les études actuelles, il est nécessaire de pouvoir faire des mesures de l'exposition humaine au plus près de l'échelle d'intérêt : l'individu. Ces capteurs peuvent donc être installés en un lieu fixe ou être porté (et donc transporté) par un individu. Actuellement, du fait de sa compacité, la technologie embarquée par le capteur est rudimentaire : on a donc une mesure de faible précision, *Moltchanov et al.* (2015), *Fishbain et al.* (2017). Après traitement des données (suppression de biais, filtrage du bruit etc.), l'enjeu de ces capteurs est de compenser leur manque de précision par leur nombre, étant à plus bas prix. On peut donc envisager de les utiliser pour calculer des gradients spatiaux, plus que pour leur valeur absolue. L'enjeu est ensuite de faire de l'assimilation de données à haute résolution spatiale avec ces données. Les mesures acquises sont nombreuses et initient aussi le nouveau champs disciplinaire de la gestion des "big data", *Reis et al.* (2015).

2.3 Les campagnes de mesures

Il existe de très nombreuses campagnes de mesures pour la pollution atmosphérique régionale et le Tableau 2.3 liste uniquement quelques exemples. Pour certains projets, il y a des 'numéros spéciaux' accessibles en lecture comme pour :

— MEGAPOLI : https ://acp.copernicus.org/articles/special_issue248.html,
— CHARMEX : https ://acp.copernicus.org/articles/special_issue334.html,
— DACCIWA : https ://acp.copernicus.org/articles/special_issue914.html

Ces campagnes peuvent se focaliser sur une ville uniquement (en général une mégacité, c'est à dire de l'ordre d'une dizaine de millions d'habitants au minimum) ou une région entière. En fonction de cette couverture spatiale, le thème de recherche permettra de couvrir différents sujets, depuis l'exposition urbaine jusqu'au transport à longue distance. Les campagnes de mesure peuvent durer de quelques jours à quelques semaines. Elles sont extrèmement coûteuses et donc assez rares. Elles mobilisent de nombreux chercheurs et sont généralement réalisées dans le cadre d'un projet de recherche international, comme les projets Européens de type FP6 puis FP7. Elles sont dédiées à la compréhension d'un processus (turbulence de couche

Nom	Thème principal	Référence	Année
ESQUIF	Pollution en région Parisienne	*Menut et al.* (2000)	2000
ESCOMPTE	Pollution en région Marseillaise	*Cros et al.* (2004)	2001
TROCCINOX	Convection tropicale et NO_x	*Huntrieser et al.* (2008)	2005
FUMAPEX	Pollution urbaine en Europe	*Baklanov* (2006)	2006
AMMA	Mousson Afrique de l'Ouest	*Lebel et al.* (2007)	2006
REPARTEE	Pollution à Londres	*Harrison et al.* (2012)	2006
MILAGRO	Pollution à Mexico	*Molina et al.* (2010)	2006
MEGAPOLI	Pollution en région Parisienne	*Beekmann et al.* (2015)	2008
EUCARII	Aérosols en Europe	*Kulmala et al.* (2011)	2008
ARCTAS	Pollution en Arctique	*Jacob et al.* (2010)	2008
CHARMEX	Pollution en région Méditerranée	*Dulac et al.* (2013)	2013
DACCIWA	Aérosols/rayonnement Golfe de Guinée	*Knippertz et al.* (2015)	2018

TABLE 2.3 – *Quelques exemples de campagnes de mesures liées à l'étude de la composition atmosphérique pour la qualité de l'air.*

stable, aérosols organiques secondaires, par exemple). Elles combinent souvent la mesure de paramètres météo et chimie en même temps et colocalisées. Elles cherchent à associer le maximum d'instruments différents pour "fermer" un problème. Les instruments utilisés ne sont pas forcément des instruments de routine mais sont souvent des instruments prototypes de laboratoire. Ces instruments ont pour vocation de mesurer plus de variables et avec une meilleure précision. Ils nécessitent des opérateurs et les mesures ne sont pas en continu.

Le déroulement de campagnes de mesures de ce type a lieu généralement dans un projet de recherche et nécessite plusieurs étapes bien distinctes. L'ensemble des étapes prend quelques années.

- Un chercheur ou une équipe de chercheurs va identifier une question scientifique, assez cruciale pour justifier de la mobilisation d'un budget de recherche important. Pour des projets de ce type, les organismes capables de coordonner et financer sont, par exemple, l'Union Européenne, via ses projets FP7, H2020 *etc.* Ce groupe va coordonner le projet et choisit un porteur individuel comme coordinateur du projet.
- Le coordinateur va créer un consortium, c'est à dire contacter et réunir de nombreux chercheurs, à même de travailler sur toutes les spécialités requises par le projet. Pour la pollution atmosphérique, cela signifie des spécialistes en instrumentation et en modélisation, en physique et en chimie atmosphérique.
- Le projet va prendre corps via la rédaction d'un "livre blanc" listant l'ensemble des questions scientifiques, des verrous à lever, avec la méthodologie et un calendrier.
- Si le projet est accepté et financé, la "campagne de mesures" va être mise en place. Les chercheurs en instrumentation vont déployer leurs instruments (surface, mesures aéroportées) et attendre les situations météorologiques et de pollution en lien avec leur question scientifique. Ils peuvent être aidés par les modélisateurs qui vont faire des prévisions à quelques jours afin d'aider à la prise de décision d'une IOP (*Intensive Observation Period*). Cette phase est la plus contraignante du projet : (i) il faut installer les instruments sur la zone d'étude, souvent à l'étranger et avec moins de facilité que dans le laboratoire de rattachement, (ii) il faut résider sur place pendant toute la campagne et attendre les situations favorables, (iii) il faut savoir gérer les pannes et autres problèmes dans l'urgence pendant la campagne.
- Après l'acquisition des mesures, un traitement de "contrôle qualité" doit être effectué afin d'en faire une base de données, disponible à tous les membres du projet.
- Les équipes de mesures analysent l'ensemble des données et répondent à certaines questions scientifiques

à partir de ces résultats. Les équipes de modélisation analysent les situations documentées, comparent leurs résultats aux mesures et peuvent répondre aux autres questions scientifiques complémentaires. Autant on peut répondre à une question avec des mesures uniquement, autant le modèle doit toujours être accompagné de comparaisons aux mesures, pour assurer de sa pertinence.
- L'ensemble des résultats peut faire l'objet de publications dans des revues de rang A, des présentations à des conférences.

Un exemple de comparaison entre un modèle et des données de la campagne CHARMEX est présenté Figure 7.4 (p.125).

2.4 Les bases de données

Que les mesures soient en routine ou lors de campagnes de mesures, la pérénnité des données passe par la mise en place de bases de données. Ces bases ont énormément évoluées ces dernières années, notamment grâce à des nouvelles réglementations qui imposent de les rendre publiques et facilement accessibles. Ce sont donc maintenant des sites internet ouverts. Le Tableau 2.4 présente des bases de données utilisables pour des études de pollution. Il existe trois types de bases de données : (i) les bases de caractéristiques géophysiques, (ii) les bases des mesures de routine (i.e station ou sondages automatiques), (iii) les bases de campagne de mesures. Les bases de campagne de mesures ont généralement un délai de mise en place de quelques années afin de laisser le temps aux participants du projet d'exploiter en priorité leurs propres mesures.

Nom	Thème principal	Référence
Paramètres géophysiques		
EMEP	Emissions anthropiques	https ://www.ceip.at/webdab-emission-database
ISRIC	Surface et sol	https ://www.isric.org
IIASA	Surface et sol	http ://webarchive.iiasa.ac.at/Research/LUC
JRC	Surface et sol	https ://esdac.jrc.ec.europa.eu
Mesures en routine de concentrations atmosphériques		
EMEP	https ://projects.nilu.no/ccc	
EEA	Polluants en surface en Europe	https ://www.eea.europa.eu/data-and-maps
AERONET	Epaisseur optique	https ://aeronet.gsfc.nasa.gov
Mesures de campagnes		
NASA	Toutes les bases de données	https ://earthdata.nasa.gov

TABLE 2.4 – *Quelques exemples de bases de données d'intérêt pour l'étude de la pollution atmosphérique.*

2.5 La législation et les normes

La pollution atmosphérique est légiférée en France et le cadre actuel est la loi LAURE (Loi sur l'Air et l'Utilisation Rationnelle de l'Energie). Cette loi du 30 décembre 1996 pose un cadre sur trois grands thèmes : Rationaliser l'utilisation de l'énergie, définir une politique publique intégrant l'air en matière de développement urbain et le principe que *"le droit de respirer un air qui ne nuise pas à sa santé est reconnu à chacun"*. Cette loi rend donc obligatoire la surveillance de la qualité de l'air assurée par l'Etat, la définition d'objectifs de qualité, et l'information du public. Pour arriver à ces objectifs, différents outils de gestion ont

été définis : un Plan Régional de la Qualité de l'Air, des Plans de Protection de l'Atmosphère et un Plan de Déplacement Urbain (PDU) (pour les agglomérations de plus de 100.000 habitants).

Acronyme	Nom complet et site	Information
ADEME	Agence de l'Environnement et de la maitrise de l'energie https ://www.ademe.fr/expertises/air-bruit	Documentation
ATMO	Atmo France https ://atmo-france.org/	Documentation
MTES	Ministère de la transition écologique et solidaire https ://www.ecologique-solidaire.gouv.fr/	Documentation
PREVAIR	Prévision nationale de la qualité de l'air http ://www2.prevair.org/	Modélisation
EAQI	European Air quality Index https ://www.eea.europa.eu/themes/air/air-quality-index	Mesures
AirQualityNow	Air Quality in Europe http ://airqualitynow.eu/	Mesures

TABLE 2.5 – *Les organismes en charge de l'information sur la qualité de l'air.*

Pour mettre en oeuvre cette loi, a été mis en place le *dispositif national de la qualité de l'air*. Il est composé de trois entités différentes : Le ministère en charge de l'Environnement, c'est à dire le Ministère de la Transition Ecologique et Solidaire (et plus particulièrement le Bureau de la Qualité de l'Air), les aossiciation de surveillance de la qualité de l'air et le LCSQA (le Laboratoire Central de Surveillance de la Qualité de l'Air). Est aussi défini un indice synthétique de la qualité de l'air, l'indice Atmo. Il a été crée par l'association Atmo France, elle-même créée en 2000. Cette association regroupe les différentes Association de la Surveillance de la Qualité de l'Air (AASQA) en France. Cette association regroupe donc les organismes en charge de la mesure. L'indice Atmo se veut très simple et synthétique : son but est d'indiquer avec un seul chiffre et une seule couleur la qualité de l'air pour une région donnée : il croit de 1 (très bon) à 10 (très mauvais). Un indice Européen existe aussi et comporte cinq valeurs différentes représentant les catégories allant de *"Very low"* à *"Very high"* en terme d'intensité de la pollution moyenne mesurée sur l'ensemble des stations d'une agglomération. Le Tableau 2.5 présente l'ensemble des organismes en charge de l'information sur la qualité de l'air en France et en Europe.

La réglementation s'applique à six polluants différents : le dioxyde de soufre (SO_2), l'ozone (O_3), le dioxyde d'azote (NO_2), les particules ($PM_{2.5}$ et PM_{10}) et le monoxyde de carbone (CO). En fonction des AASQA, d'autres polluants sont aussi surveillés car considérés comme problématiques pour la santé même si la législation ne les considère pas encore comme à surveiller obligatoirement. On définit alors deux seuils : le seuil d'information et le seuil d'alerte. Chacun des deux correspond à des concentrations dans l'air avec des seuils. Comme il y a de nombreuses stations de mesures en surface pour chacun des polluants, les seuils sont estimés de manière différente. Pour l'ozone, le dioxyde d'azote et le dioxyde de soufre, il y a information ou alerte si le seuil est dépassé de manière simultanée sur trois stations de mesure du réseau de surveillance, dont au moins une station de fond. Par contre, pour les particules, il y a information ou alerte si le seuil est dépassé simultanément sur seulement deux stations dont au moins une de fond. Ces seuils d'informations définis et utilisés en France sont présentés dans le Tableau 2.6.

Un bilan synthétique de la qualité de l'air en France et de son évolution sur les 20 dernières années est présenté dans le Tableau 2.7.

Polluant	Seuils d'information (moyenne)			Alerte
	An	Jour	Heure	
Ozone (O_3)			180μg/m^3 (sur 8h)	240μg/m^3
NO_2	40 μg/m^3		200 μg/m^3	400 μg/m^3 (sur 3h)
SO_2		125μg/m^3	350μg/m^3	500μg/m^3 (sur 3h)
CO			10 000 μg/m^3	
Plomb	0.5 μg/m^3			
Benzene (C_2H_6)	5 μg/m^3			
PM_{10}	40μg/m^3	50μg/m^3 (35 jours/an)		
$PM_{2.5}$		25μg/m^3		

TABLE 2.6 – *Les seuils d'information et d'alerte.*

Composé	Evolution	Caractéristiques
Dioxyde de soufre	Amélioration (forte)	Pics en hiver (sites industriels)
Dioxyde d'azote	Amélioration (modérée)	Pics en hiver (seuil non atteint)
Particules	Amélioration (très modérée)	(seuil non atteint)
ozone	Dégradation	hausse niveaux de fond, pics en été
Monoxyde de carbone	Amélioration (forte)	

TABLE 2.7 – *Tendances générales des concentrations de polluants en surface, en Europe et sur la période 1995-2015.*

3 Principe général de la modélisation et application à la météorologie

De nombreux processus participent à l'évolution de la composition atmosphérique à l'échelle d'une région. Une méthode pour prendre en compte l'ensemble de ces processus est de développer des **outils intégrés de modélisation numérique**. Ce chapitre présente tout d'abord les principes de base de la modélisation utilisée en pollution atmosphérique. Sachant que la représentation de la météorologie est le premier pré-requis pour modéliser la pollution atmosphérique, la présentation de ce qu'est un modèle s'appuiera donc sur la modélisation de la météorologie.

3.1 Qu'est-ce qu'un modèle ?

Définition d'un modèle numérique

De manière générale, un modèle numérique est un ensemble d'équations décrivant une certaine réalité physique. Une *certaine* réalité seulement, car les processus physiques réellement observés sont généralement trop complexes pour pouvoir être intégralement décrits et, surtout, calculés. Le modèle est donc un **outil mathématique** qui a pour seul but d'aider à la compréhension d'un phénomène physique complexe. Pour que cette compréhension, appelée *analyse*, soit la plus fidèle possible, le jeu d'équations du modèle doit être adapté *au mieux* au problème traité. Ainsi, il n'existe pas un unique modèle physique, mais quasiment autant de modèles que de problèmes particuliers à traiter. On peut aller plus loin en disant que pour un même type de problème, il existe plusieurs modèles différents, c'est à dire plusieurs facons de simplifier un même phénomène physique étudié. Le modèle est constitué d'équations, elle-mêmes constituées de variables. Le fait de choisir un nombre limité d'équations et donc un nombre limité de variables associées en fait un **système discret**. Décomposer ces équations en temps ou en espace, pour les intégrer, est la **discrétisation**. Dans le cas d'études de météorologie et de chimie atmosphérique, le modèle est donc constitué d'un jeu d'équations décrivant l'atmosphère.

Pour la météorologie, les équations sont basées sur les **équations de Navier-Stokes**. Ces équations incluent l'évolution spatiale et temporelle du vent, de la température, de l'humidité, de la pression de l'air, *Pielke* (2013). La difficulté majeure est que toutes ces variables sont **inter-dépendantes**, ce qui rend le **système non-linéaire**. On a dans ce cas un problème très sensible aux conditions initiales. A l'inverse, et pour la chimie-transport, les équations à résoudre sont constituées du mécanisme chimique. Si les espèces chimiques sont aussi inter-dépendantes, le système est aussi non-linéaire mais nettement mois que la météorologie. On a alors un **problème de conditions aux limites**. Ces conditions aux limites sont principalement à la surface, les émissions de polluants étant le principal moteur de la variabilité des résultats.

Plusieurs intérêts motivent le développement et l'utilisation d'un modèle. Le premier intérêt est de **comprendre** des phénomènes physiques complexes. Comment de grand phénomènes climatiques comme El Nino se produisent-ils ? Quel est l'impact d'une éruption volcanique sur l'atmosphère ? Quelle est la contribution des feux de brousse à la modification éventuelle du climat ? Comment se transporte la pollution atmosphérique d'une ville vers son environnement ? *etc*. Un autre intérêt fort du modèle est de pouvoir **reconstituer** des informations inaccessibles. Tout d'abord en temps, ou l'on peut reconstituer un environ-

nement passé ou faire les études climatiques sur le réchauffement. Puis en espace : La compréhension d'un phénomène physique nécessite des mesures. Cependant, en pratique, il s'avère impossible d'effectuer des mesures partout et à tout instant. Seul l'outil de modélisation est capable de fournir des "champs" réguliers de la variable que l'on veut étudier. Ensuite, on ne peut et ne sait pas mesurer toutes les grandeurs qui vont intervenir dans ce système complexe qu'est la dynamique : le modèle est alors aussi d'un grand secours, permettant de "reconstituer" des variables non mesurées. Le modèle permet aussi de **réaliser des scénarios** de l'évolution du système. Par exemple, en pollution régionale, on peut faire varier les émissions anthropiques et voir l'effet sur les concentrations. Enfin, le modèle permet de faire de la prévision, un outil aujourd'hui indispensable pour la gestion de la qualité de l'air.

Les modèles utilisés peuvent être déterministes ou statistiques. Si l'on veut étudier le transport d'une masse d'air et rester centré sur elle, on privilègiera un modèle Lagrangien. Mais si l'on veut étudier une région ou transitent des masses d'air, mais en restant centré sur la région, on utilisera plutôt un modèle Eulérien. Selon l'échelle du processus étudié, on pourra utiliser un modèle global, ou régional ou très local (comme le quartier d'une ville). Dans le cadre de ce document, et voulant étudier des régions polluées, avec une bonne précision et la possibilité de simuler des situations différentes, on va privilégier un **modèle régional, déterministe et Eulérien**.

Journaux sur la modélisation

Les journaux traitant de la modélisation géophysique sont nombreux. Le Tableau 3.1 liste quelques uns de ces journaux et indique si les articles sont en *open-access* ou non. Le terme "selon auteurs" désigne le fait que l'on peut depuis quelques années publier un article en accès libre (en général en payant un supplément par rapport au prix initial de l'article). Cette possibilité est récente et les articles les plus anciens cités dans ce document sont souvent payants.

Les différents types de modèles eulériens

Les modèles Eulériens (Figure 3.1) étudient les processus sur un domaine fixe : le "maillage". Une parcelle d'air pourra entrer ou sorte du domaine, le but de ces simulations est surtout d'évaluer ce que va subir un point fixe particulier de l'espace au cours du temps. Dans cette famille de modèles, on trouve différentes configurations dépendantes du **nombre d'échelles spatiales** que l'on considère : du 0D au 3D, c'est à dire de la prise en compte uniquement du temps (t) à toutes les dimensions (t,x,y,z).

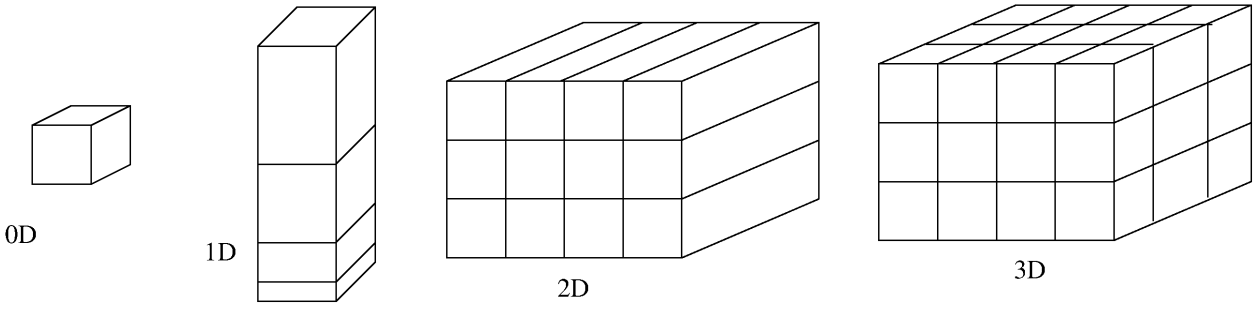


FIGURE 3.1 – *Les maillages des modèles Eulériens 0D, 1D, 2D et 3D.*

Les **modèles 0D** sont avant tout des "laboratoires d'étude" et de mise au point des paramétrisations. En supprimant toute notion d'espace (on calcule des quantités en un point unique), on utilise ces modèles surtout pour jauger de la pertinence d'une nouvelle paramétrisation. Ces modèles peuvent être utilisés en

Journal	Open Access
Atmosphere www.mdpi.com/journal/atmosphere	oui
Atmospheric Chemistry and Physics https ://acp.copernicus.org/	oui
Atmospheric Environment https ://www.journals.elsevier.com/atmospheric-environment	selon auteurs
Atmospheric Research https ://www.journals.elsevier.com/atmospheric-research	selon auteurs
Boundary Layer Meteorology https ://www.springer.com/journal/10546	selon auteurs
Bulletin of the American Meteorological Society https ://journals.ametsoc.org/view/journals/bams/bams-overview.xml	selon auteurs
Environmental Modelling and Software https ://www.journals.elsevier.com/environmental-modelling-and-software	selon auteurs
Geoscientific Model Development https ://gmd.copernicus.org/	oui
Journal of the Atmospheric Sciences https ://www.ametsoc.org/index.cfm/ams/publications/journals/journal-of-the-atmospheric-sciences/	selon auteurs
Journal of Geophysical Research - Atmospheres https ://agupubs.onlinelibrary.wiley.com/journal/21698996	selon auteurs
Monthly Weather Review https ://www.ametsoc.org/index.cfm/ams/publications/journals/monthly-weather-review/	selon auteurs

TABLE 3.1 – *Exemples de journaux scientifiques sur la modélisation atmosphérique.*

dynamique ou en chimie. Par exemple, le modèle GECKO, *Aumont et al.* (2005), permet de simuler des mécanismes chimiques complexes avec un temps de calcul réaliste. Les **modèles 1D** sont couramment utilisés pour quantifier l'impact des paramétrisations sur l'écoulement principal. Les résultats sont des **profils verticaux**. Léger en coût numérique, on ne peut cependant utiliser ce type de modèle que lorsque le vent est très faible, c'est à dire que l'influence de l'écoulement autour du site d'étude n'est pas le processus majoritaire sur l'évolution de la variable étudiée. Les **modèles 2D** sont moins utilisés que les modèles 1D et 3D. Ils sont généralement des version simplifiées des modèles 3D déjà existants. Le calcul s'effectue dans un **plan vertical** et l'on privilégie un des deux axes : x ou y. Le choix est finalement imposé par l'écoulement principal du vent : l'axe retenu étant la direction du vent. Ce type de modèle est utilisé dans le cas d'écoulements très contraints dans une direction, comme par un relief, une brise de mer. Avantage par rapport au 1D, on peut prendre en compte le relief et l'influence du vent d'une maille horizontale à l'autre. La contrainte est que le vent ne doit pas changer de direction pendant la durée de la simulation. Les **modèles 3D** représentent la version la plus complète puisque l'on travaille dans les trois dimensions de l'espace. C'est aussi la version qui est informatiquement la plus couteuse en temps de calcul. L'avantage par rapport au 2D est donc que l'on n'a plus à se soucier de ne faire une simulation que si le vent reste dans la même direction. Ce sont les modèles les plus utilisés aujourd'hui : les progrès réalisés en terme de puissance de calcul retirent quasiment tout intérêt aux versions 1D et 2D.

Quelques modèles météorologiques actuels

Le principe général est d'intégrer les équations de Navier-Stokes en temps et en espace. Ce système d'équation est non-linéaire et cela consiste à calculer à chaque pas de temps, la valeur réactualisée de la pression, du vent, de la température et de l'humidité de l'atmosphère. Pour cela, on doit calculer (i) la loi des gaz parfaits et (ii) les équations de conservation de la masse (dite équation de continuité), de la quantité de mouvement, de l'énergie et de l'humidité. Les calculs décomposent chaque équation en un terme principal et une fluctuation turbulente : ce sont les équations de Reynolds. Le système est assez complexe et, pour plus de détails, toutes les informations sont parfaitement décrites dans *Pielke* (2013). De nombreux modèles existent et sont en *open-source*. Ils sont en développement continu et fournis avec toutes les bases de données nécessaires pour les utiliser, *Baklanov et al.* (2014).

Modèle	Spatial	Caractéristiques	Référence
MPAS	Global	Model for Prediction Accross Scales http ://mpas-dev.github.io/	*Skamarock et al.* (2012)
GFS	Global	Global Forecast System	*Kalnay et al.* (1996)
IFS	Global	Integrated Forecast System ECMWF	*Morcrette et al.* (2009)
COSMO	Régional	convective-scale numerical weather prediction	*Baldauf et al.* (2011)
WRF	Régional	Weather Research and Forecasting Model http ://www2.mmm.ucar.edu/wrf/users/	*Powers et al.* (2017)
Meso-NH	Régional	Modèle méso-échelle Non Hydrostatique	*Lac et al.* (2018)

TABLE 3.2 – *Exemples de modèles météorologiques globaux et régionaux.*

Une liste non exhaustive de ces modèles est présentée dans le Tableau 3.2. Les modèles GFS et IFS sont des modèles globaux et opérationnels. Leurs codes ne sont pas libres d'accès et ne sont utilisés que par les centres opérationnels qui les développent. Par contre, les champs météorologiques calculés sont mis à disposition de la communauté : uniquement la recherche académique pour le modèle IFS du Centre Européen (ECMWF) et en total libre accès pour le modèle américain GFS du NCEP. Parmi les modèles régionaux, le plus utilisé est le modèle WRF. Mis à disposition en code open-source dès le début de son développement, il a alors su agréger une large communauté d'utilisateurs et contributeurs. C'est aujourd'hui une vraie boite à outil contenant plusieurs choix possible de paramétrisations pour un même processus.

3.2 Les contraintes d'un modèle régional

Définition du domaine de calcul

Le maillage va être le support du calcul, mais aussi la représentation finale que l'on aura des résultats. Il faut garder à l'esprit que les résultats obtenus par un modèle ne sont que des **valeurs moyennes dans chaque maille**. Le choix du maillage est avant tout un **compromis** entre différentes contraintes :

- **Dans le domaine :** Simuler une zone de plaine ou une zone montagneuse n'induit pas le même maillage. Plus le relief est important, plus la résolution horizontale choisie doit être importante pour éviter de trop "lisser" le relief, donc influer sur l'écoulement atmosphérique.
- **Aux bords du domaine :** Il faut choisir les limites du domaine de manère à ne pas "couper" un processus importants pourles résultats. Pour la météorologie, on évitera de poser le bord du domaine sur un relief

important. Pour la chimie-transport, on évitera de poser le bord sur une source importante (au milieu d'une mégapole par exemple).

- **les données disponibles pour validation :** Si l'on dispose d'un nombre réduit de données permettant de valider les résultats du modèle par comparaison, il peut être utile de réfléchir au maillage en fonction de la représentativité de ces données.
- **La puissance de calcul :** Tous les points précédents peuvent nous pousser à aller vers un maillage de plus en plus fin : la contrainte de la puissance de calcul disponible est une limite de cette tendance.
- **La turbulence :** On peut aller vers un maillage plus fin dans la limite où les phénomènes turbulents sont bien représentés. Pour la plupart des modèles méso-échelles, les processus turbulents dits de "sous-maille" sont paramétrés. Si l'on veut une résolution inférieure au kilomètre, il faut changer de modèle : la turbulence doit être résolue explicitement pour prendre en compte de manière réaliste les tourbillons. On utilise alors un modèle dit *Large Eddy Simulation*.

Pour le domaine complet, s'il est trop petit, la simulation n'est plus représentative de l'environnement complet que l'on veut simuler. Mais s'il est trop grand, et par rapport au minimum de précision nécessaire, on prend le risque d'avoir un temps de calcul prohibitif (y compris un volume d'informations en sortie énorme). En parallèle, la résolution du maillage doit être adaptée à la taille du domaine et au processus à modéliser. Si elle est trop faible, les résultats obtenus ne sont que des moyennes sur des zones très larges, qui étaient certainement plus contrastées que ce que l'on cherche à reproduire : on "rate" des processus comme des brises, par exemple. Mais si elle est trop grande, le temps de calcul devient inutilement prohibitif. En liaison directe avec le choix du maillage, mais aussi de manière plus générale avec les processus que l'on désire simuler, il faut choisir le **pas de temps**. Ce pas de temps correspond à l'incrément temporel entre deux intégrations successives du modèle : de t à $t + \Delta t$. En fonction de l'écoulement que l'on étudie (lieu et période), et donc en fonction de la vitesse du vent que l'on considère sur toute la période, il faut contrôler que le maillage est adéquat via le calcul du nombre de Courant-Friedrich-Levy (CFL), tel que :

$$CFL = |U|.\frac{\Delta t}{\Delta x} \tag{3.1}$$

Tout au long de la simulation, on doit avoir : CFL ≈ 1. Si cela n'est pas le cas et si CFL $<< 1$: La distance parcourue pendant Δt dûe à l'advection est plus petite que Δx et les schémas de transport génèrent une accumulation artificielle d'énergie cinétique dans une maille. Si CFL $>> 1$, la distance parcourue pendant Δt dûe à l'advection est plus grande que Δx : Des mailles sont évitées. La simulation peut diverger ou, si elle ne diverge pas, les résultats sont faux. Pour les modèles actuels, ces critères sont calculés automatiquement et le pas de temps s'ajuste seul au fur et à mesure de la simulation.

Le **maillage vertical** est tout aussi important que le maillage horizontal. Il peut être irrégulier et les variables représentant cette dimension peuvent être utilisées de manière différente dans les équations. Dans le cas de la modélisation régionale de la couche limite, le maillage vertical sera choisi comme précis près de la surface ($\approx$ 10 à 20m d'épaisseur pour la première maille) puis se détendant avec l'altitude. Les équations de la dynamique telles qu'elles sont résolues peuvent faire l'objet d'un changement de référentiel, afin de bien prendre en compte les irrégularités dûes au relief. Les coordonnées verticales pour la prise en compte du relief sont, par exemple, définies par les coordonnées ζ : Le relief est caractérisé par sa hauteur Z au dessus du sol : $Z = h(x, y)$. Le sommet du domaine est H_t. On peut simplement supprimer le relief : $z' = z - h(x, y)$. On effectue le changement de coordonnées, avec ζ variant de 0 à 1 : $\zeta = (z - h(x, y))/(H_t - h(x, y))$ Pour simuler au mieux la couche limite et la troposphère libre, les modèles météorologiques utilisent des coordonnées hybrides dites "σ-pression" (*sigma-pression*), *Jacobson* (1999).

$$\sigma = \frac{p - p_t}{p_s - p_t} \tag{3.2}$$

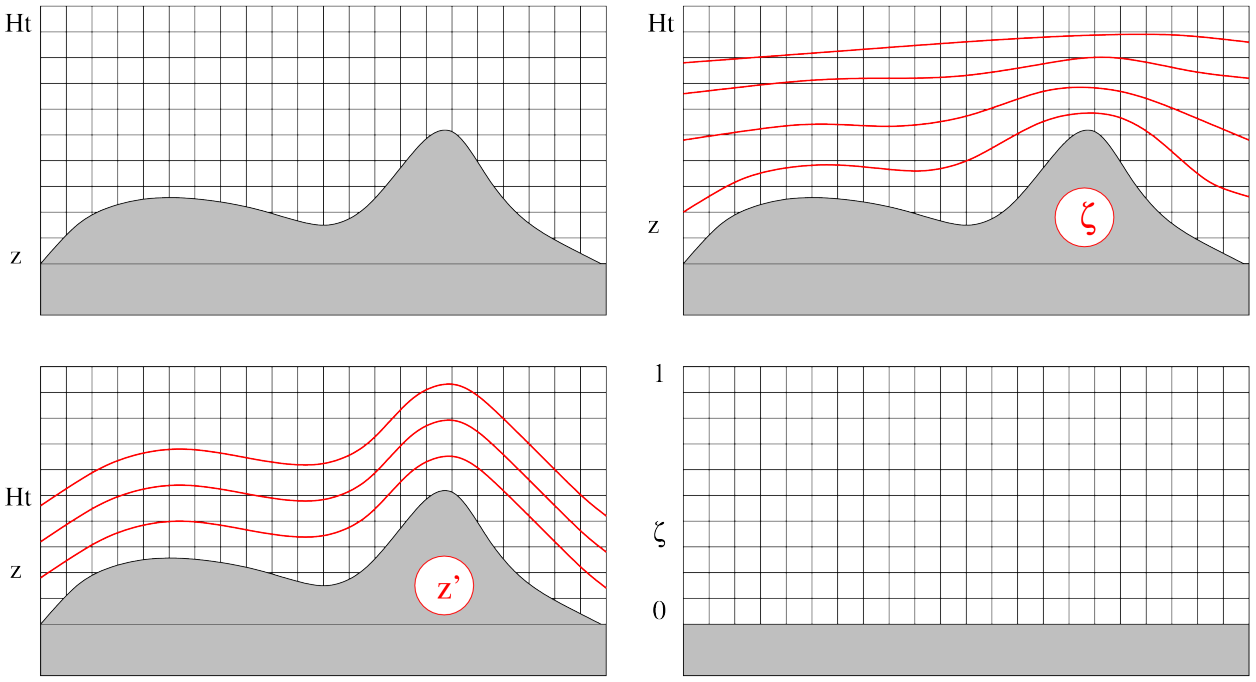


FIGURE 3.2 – *Exemples de maillages verticaux prenant en compte le relief ou non, et avec différents changements de coordonnées.*

avec p la pression atmosphérique en tout point, p_s la pression de surface, p_t la pression au sommet du domaine simulé. A la surface, σ=1, au sommet du domaine σ=0. Un exemple de maillage vertical exprimé en σ-pression est présenté dans le Tableau 3.3.

Niveau	σ	Pression (hPa)	Altitude (km)
1	0.995	995	0.04
2	0.97	972	0.22
3	0.90	905	0.75
4	0.75	763	2.0
5	0.60	620	3.6
6	0.45	478	5.5
7	0.30	355	8.2
8	0.15	193	12.4
9	0	50	22.5

TABLE 3.3 – *Exemple de coordonnees σ-pression pour un modèle à 9 niveaux verticaux.*

L'évolution des modèles actuels est d'aller vers des maillages non structurés. Ce qui existe déjà en CFD (*Computational Fluid Dynamics*) pourrait s'appliquer aux modèles météorologiques. Les applications sont multiples : raffiner le maillage là ou il y a de forts gradients horizontaux comme une région côtière ou une montagne, ou au contraire le détendre vers les conditions aux limites. Le modèle MPAS, *Skamarock et al.* (2012), utilise un maillage non structuré à l'échelle globale. Des applications à des modèles de

chimie-transport sont présentées dans *Garcia-Menendez and Odman* (2011). Mais il y a actuellement peu de modèles régionaux ayant des maillages non structurés. Un des rares est développé par *Zheng et al.* (2015) et un exemple est présenté sur la Figure 3.3.

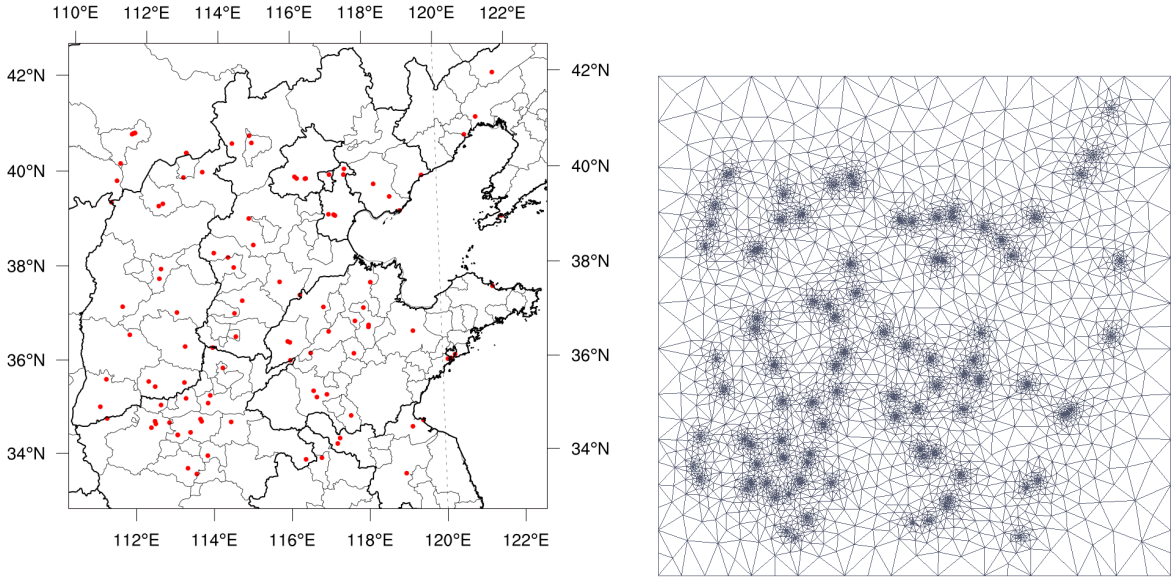


FIGURE 3.3 – *Exemple de maillage non structuré actuellement en développement pour la modélisation de chimie-transport. La carte présente des usines et le maillage est raffiné principalement autour de ces points émetteurs. D'après Zheng et al. (2015).*

Le choix de l'étendue du domaine horizontal, vertical et leur résolution va conditionner la précision des résultats et le temps de calcul. A chaque étude, ces choix peuvent être revus en fonction des contraintes de temps de simulation, de la durée de vie du processus étudié *etc.*

Les conditions initiales et aux limites

La contrainte la plus limitante en modélisation régionale, et contrairement à la modélisation globale, est les **conditions aux limites**. Cela signifie que comme le domaine de simulation est à aire limitée, et que les masses d'air sont transportées, il faut pouvoir donner des informations aux limites du domaine afin de savoir ce qui va entrer et sortir pendant la simulation. Moins le modèle sera soumis à ces conditions aux limites, plus les résultats seront représentatifs de l'intérieur du domaine choisi. Cela va donc contraindre la taille du domaine : il est toujours mieux d'avoir un domaine plus grand que nécessaire. Il faut aussi éviter de définir un domaine ou les limites passent par des *obstacles* au calcul. Ces obstacles peuvent être des régions à fort gradient thermique ou montagneuses. On sait que le calcul de la météorologie y sera délicat et il faut donc ne pas faire un mélange entre calcul du modèle (dans le domaine) et conditions aux limites (juste en dehors du domaine).

Les conditions aux limites doivent être mises en place avec certaines contraintes. Il y a tout d'abord un problème potentiel de **paramétrisations différentes**. Si les deux modèles (celui de forçage et celui régional) n'ont pas utilisé les mêmes paramétrisations pour calculer la même variable, des biais peuvent

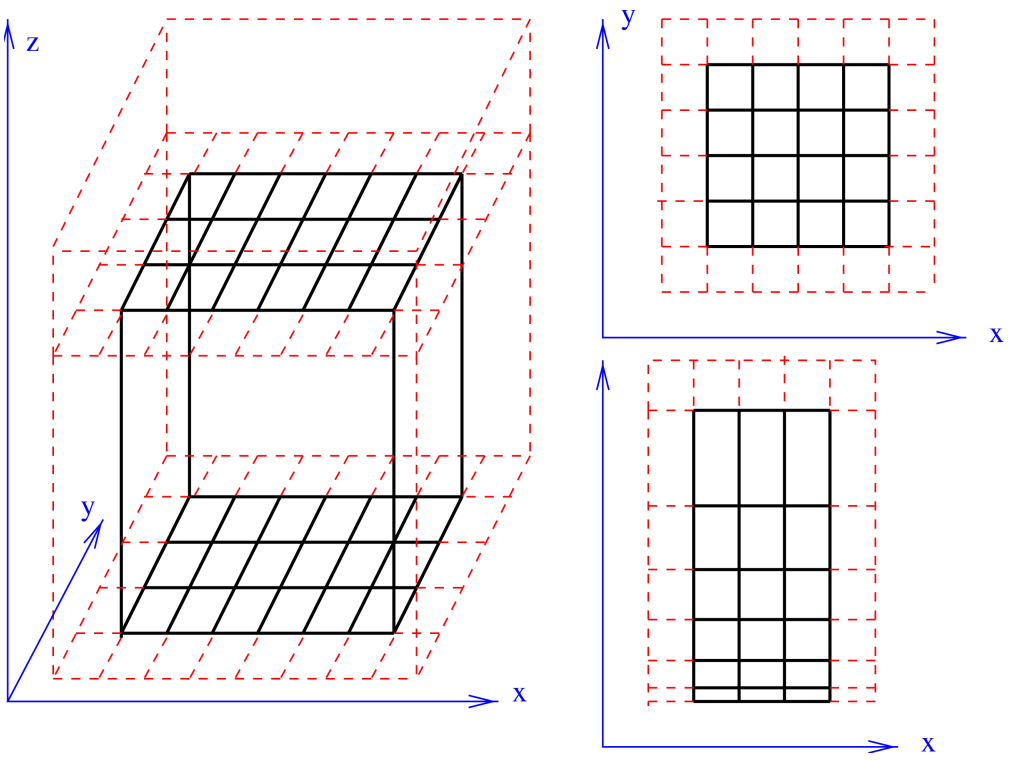


FIGURE 3.4 – *Un exemple de maillage incluant les conditions aux limites. Pour le domaine à aire limitée, il faut fournir les valeurs des variables pour les bords et le sommet du domaine et tout au long de la simulation. A grande échelle, un forçage météorologique toutes les 3 ou 6h peut être suffisant, à l'échelle régionale, des données modèles horaires sont recommandées.*

être introduits dans le calcul régional. Le problème de la représentativité des champs : Les deux modèles à échelles différentes vont présenter des variables mais qui ne représentent pas le même environnement. C'est le problème de la moyenne aux frontières : il faut voir en fonction du maillage régional, comment interpoler (ou moyenner) au mieux des champs de basse résolution vers la plus haute résolution. Les modèles météorologiques actuels savent gérer ces problèmes dans la mesure ou on utilise le même outil pour des domaines imbriqués, ce sont les techniques de *nesting*.

Dans la mesure du possible, les conditions initiales et aux limites devront être disponibles pour toutes les variables ensuite calculées et/ou inter-dépendantes du modèle : les composantes zonales et méridiennes du vent, u et v, la température T, la pression P et l'humidité spécifique q. Sachant que les modèles dynamiques sont fortement non-linéaires, il faudra des **conditions initiales** les plus précises possibles. Deux méthodes sont possibles. On peut initialiser un modèle régional à partir de champs de plus grandes échelles (issus de modèles globaux). Si on ne dispose pas de ces données, on peut démarrer la simulation longtemps avant le cas d'étude pour que les champs se mettent à l'équilibre : c'est le problème du "spin-up". En pratique, pour que le temps de spin-up soit correct, on estime la durée que prendrait une masse d'air pour traverser le domaine d'étude dans sa plus grande longueur et avec un vent moyen. Par exemple, pour une simulation sur l'Europe, et afin de ne pas manquer des évènements importants, une simulation doit commencer 2 à 3 semaines avant la date à laquelle on veut commencer à analyser les résultats. Pour le cas particulier des simulations en prévision, on utilise la simulation précédente pour démarrer la nouvelle prévision. On effectue

une simulation qui débute en utilisant le dernier champ calculé pour la simulation précédente. L'avantage est que les champs calculés correspondent exactement au domaine que l'on utilise. Evidemment, on ne fait que décaler le problème.

Le système météorologique étant fortement non-linéaire, les conditions initiales sont primordiales : chaque erreur étant susceptible de s'amplifier et se propager dans le domaine. Les conditions aux limites d'un modèle régional sont importantes pour la qualité des résultats. En fonction de la source choisie comme données, de sa résolution spatiale et temporelle, on peut créer des biais dans les résultats qui vont se mélanger aux autres erreurs du modèle et donc ensuite difficiles à interpréter.

Données de surface

La surface est une forme de conditions aux limites. En fonction des paramètres à renseigner, ces données peuvent être statiques ou dynamiques, c'est à dire variables en temps. Les modèles actuels sont généralement fournis avec leur propres bases de données de surface, souvent à différentes résolutions possibles afin de pouvoir suivre la finesse du maillage de l'utilisateur. En général, un modèle météorologique va nécessiter : des données de relief, le type de surface (*landuse*), l'albédo, l'émissivité, la hauteur de rugosité, la végétation, le type de sol. Des exemples de valeurs sont propsoées pour appréhender les ordres de grandeur dans le Tableau 3.4

Type de sol	Eau	Forêt	Minéral nu	Bâti diffus	Bâti mixte	Bâti dense
Albédo : A	0.08	0.16	0.25	0.18	0.18	0.18
Emissivité : ϵ	0.98	0.95	0.965	0.88	0.88	0.88
Inertie thermique du sol : C_{sol}	7.6	11.	5.0	7.5	5.7	3.9
Flux de chaleur sensible urbain : Q_0	0	0	0	10	15	30

TABLE 3.4 – *Ordres de grandeur de paramètres météorologiques en fonction du type de surface*

Parmi les paramètres nécessaires, la hauteur de rugosité, z_0, reste la plus difficile à renseigner car elle ne correspond pas directement à une quantité mesurable. On définit trois hauteurs de rugosité différentes. (1) Dynamique : z_{0m}, (2) Thermique : z_{0t}, et (3) Humidité : z_{0q}. En pratique, ces quantités sont très mal connues mais ont un impact majeur sur la turbulence dans la couche de surface et donc tout le développement de la CLA en période convective. En première approximation, il n'est pas rare d'utiliser : $z_{0t} = z_{0m}.e^{-2}$ et $z_{0q}=z_{0t}$. La seule inconnue restante est donc z_{0m}. Des valeurs "typiques" sont z_{0m}=0.1m en milieu rural et z_{0m}=1m en ville. Cette hauteur symbolise la capacité de la surface à ralentir l'écoulement de l'air, c'est à dire la hauteur au dessus du sol où l'on a $\overline{u} = 0$ en $z = z_{0m}$.

Comme le montre la Figure 3.5, on ajoute à cette notion celle de hauteur de déplacement : Lorsque la végétation est assez dense pour que l'écoulement de vent ne puisse y pénétrer, le profil de vent neutre n'est plus logarithmique à partir du sol, mais à partir de h_D. Ce phénomène peut se retrouver avec le tissu urbain s'il est dense. Le Tableau 3.5 présente quelques ordres de grandeurs de hauteurs de rugosité.

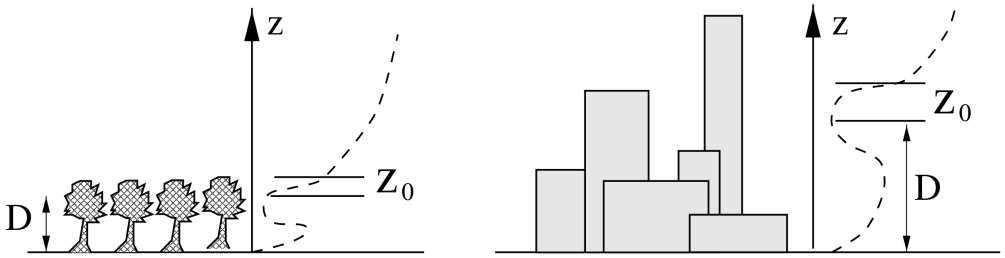


FIGURE 3.5 – *Illustration schématique des hauteurs de déplacement en fonction du milieu*

Type de surface	z_0 [m]	Type de surface	z_0 [m]	Type de surface	z_0 [m]
Glace	10^{-5}	Desert	10^{-3}	Forêt	1
Neige	10^{-3}	Herbes	5.10^{-2}	Ville (banlieue)	2
Mer calme	10^{-3}	Taillis	0.1	Ville (centre)	5 à 10

TABLE 3.5 – *Valeurs typiques de longueurs de rugosité dynamique z_{0m}.*

Les données de surface définissent tout l'environnement qui va permettre de calculer la météorologie dans la couche limite. Les modèles actuels ont des bases de données très complètes, souvent à l'échelle globale et à résolution kilométrique. Mais cela n'empêche pas d'avoir de l'incertitude notamment pour les paramètres "déduits" comme la hauteur de rugosité ou la composition du sol. Une erreur sur des conditions de surface va créer un biais constant dans la simulation, souvent difficile à comprendre et retrouver.

Nudging et nesting

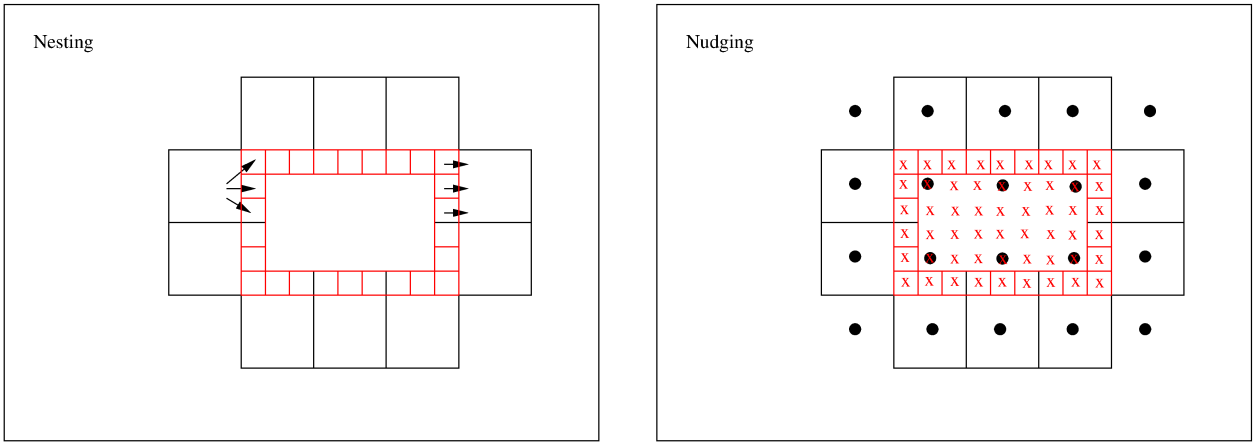


FIGURE 3.6 – *Illustration schématique du nesting et du nudging.*

La Figure 3.6 présente les deux techniques du nesting et du nudging. Le **nesting**, ou emboitement de modèles, consiste à faire tourner le même modèle mais à différentes résolutions et sur différents domaines de

calcul. Cela revient à avoir des conditions aux limites dans les meilleurs conditions : les schémas de calcul sont les mêmes et on a un forçage à la résolution temporelle que l'on veut. Le **nesting one-way** représente un passage d'informations uniquement du grand domaine (D1, en noir) vers le plus petit (D2, en rouge). L'information de la maille la plus grande et aux limites du petit domaine D2 va donc être soit recopiée soit interpolée pour passer l'information. Le **nesting two-ways** signifie que l'information va passer dans les deux sens. Dans ce cas, la haute résolution D2 va être interpolée ou moyennées pour renvoyer une information vers le grand domaine D1. Cette approche a un grand intérêt lorsque l'on doit simuler des événements ou il y a des recirculations atmosphériques. Le **nudging** est la facon de prendre en compte les informations calculées sur le grand domaine D1 dans le domaine D2 (et pas seulement aux limites). On a donc des points de grille dans le petit domaine ou il y a deux informations (D1 et D2). Contraindre D2 à suivre la tendance à grande échelle de D1 se rapproche de l'assimilation de données. Pour être respectueux des différentes échelles de l'écoulement en ne prenant en compte le forçage que pour les grandes échelles et en laissant s'exprimer les petites échelles dans D2, la technique de **spectral nudging** a été développée. Elle permet de poser une *longueur d'onde* de coupure et ne considérer le forçage que pour les longueurs d'onde plus grandes que la coupure, *von Storch and Zwiers* (2001).

Nesting et nudging contiennent des paramètres ajustables dans les modèles : leur adaptation au cas étudié va aussi être une contrainte forte sur la qualité des résultats. Pour le nudging, il faut savoir containdre le petit domaine en altitude avec les champs de grande échelle mais aussi laisser libre le modèle mieux résolu dans la couche limite pour que la turbulence puisse être calculée au mieux.

3.3 Dynamique, physique et paramétrisations

Le modèle météorologique va résoudre les équations de Navier-Stokes mais sous une forme discrétisable appelée équations de Reynolds. La décomposition de Reynolds consiste à scinder une variable c en deux : sa partie moyenne, $\overline{c}$, et sa fluctuation, c', *Jacobson* (1999) : $c = \overline{c} + c'$. Le terme c' correspond aux termes de fluctutation autour de la valeur moyenne que l'on ne sait pas calculer explicitement. Evidemment, plus la résolution du modèle est importante plus on va avoir $c \approx \overline{c}$ et $c' \to 0$. Ainsi, si on avait la puissance de calcul pour faire une simulation à l'échelle globale avec une résolution de 1mm, on n'aurait pas besoin de paramétrisations. Mais ce n'est pas le cas. On va donc estimer les termes de fluctuations c' en développant des paramétrisations adaptées, *Stensrud* (2011). Pour les modèles météorologiques, on dénommera *dynamique* le calcul de l'évolution de $\overline{c}$, *physique* le calcul par paramétrisation de c'. La définition d'une paramétrisation va donc être d'**estimer, pour une certaine variable, sa fluctuation que l'on ne sait pas calculer explicitement**. Cela peut-être aussi de déterminer complètement une variable et sa fluctutation lorsqu'elle est sous-maille par rapport au domaine simulé. On va donc chercher à la diagnostiquer. Pour cela, on va l'estimer en utilisant un mélange de termes connus et de paramètres. Ces paramètres sont des coefficients ou des équations supplémentaires. Une paramétrisation doit respecter quelques principes. Tout d'abord, le paramètre doit avoir la même dimension que l'inconnue. Il doit aussi avoir les mêmes propriétés tensorielles (vecteur, matrice, etc.). Il doit être invariant par rapport au système de coordonnées ou de quelque autre type de transformation dont il ne dépend pas. Enfin, il doit répondre aux même équations et contraintes que l'inconnue que l'on remplace.

Le choix du pas de temps

Le choix du pas de temps de calcul va aussi être le choix de la séparation entre la valeur moyenne et sa fluctuation. Par exemple, la vitesse du vent n'est pas un phénomène stationnaire : $u = \overline{u} + u'$. La Figure 3.7

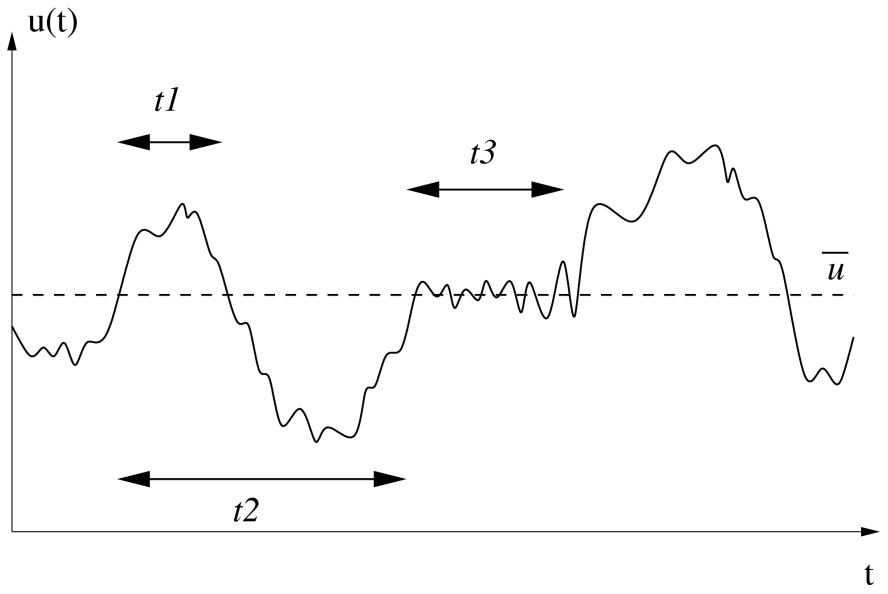


FIGURE 3.7 – *Variation temporelle des valeurs de vent.*

montre un exemple d'enregistrement de valeurs du module du vent, en un point donné et en fonction du temps. Si l'on effectue la moyenne de toutes les valeurs sur tout l'intervalle de temps, on obtient la valeur symbolisée par la ligne pointillée, $\overline{u}$. Ayant des valeurs de u à la fois inférieures et supérieures à $\overline{u}$, le bilan, par intégration, sera ici schématiquement $\overline{u'}$=0. On retrouve une des définitions de la turbulence : la moyenne de toutes les fluctuations est nulle. Cependant, si l'intervalle d'intégration est trop grand, et comme différentes variable (p, u, v, T) interagissent, on risque de sous-estimer les processus turbulents et de ne voir dans le système à résoudre que sa valeur moyenne. On voit donc que choisir un intervalle sans connaitre la nature même de la variabilité de ce que l'on étudie peut amener à un résultat erroné. Plus en détail sur la Figure 3.7 et si l'on moyenne sur l'intervalle t_1 : On moyenne sur des valeurs positives de u, on aura donc $u > 0$ et $u' > 0$, ce qui correspond bien à ce que l'on observe. Par contre, la moyenne sera certainement sous-estimée par rapport au phénomène réel. Si l'on choisit l'intervalle t_2 : on englobe t_1, mais la moyenne donnera dans ce cas $u < 0$ et $u' \approx 0$. En augmentant l'intervalle d'intégration, on a donc artificiellement réduit la turbulence et changé le signe de la variable étudiée. Finalement, si on choisit l'intervalle t_3 : Le vent oscille faiblement autour de sa valeur moyenne. On a dans ce cas $u = \overline{u}$ et $u' = 0$, ce qui est encore irréaliste mais moins aberrant que le choix t_2. Le choix de l'intervalle de temps est donc primordial pour une bonne description de la turbulence. Il en est de même pour les moyennes spatiales que l'on peut être amené à faire. Que ce soit en mesure ou en modélisation, ce problème de turbulence est délicat à résoudre. Au sein de la couche limite, la turbulence va se matérialiser par du transport de quantité de mouvement et de chaleur. La turbulence est donc un problème d'échelle et on doit en définir les bornes. Pour la borne inférieure : il a été montré que la diffusion moléculaire n'avait pas d'impact sur le devenir d'un écoulement dans la couche limite. En effet, les plus petits tourbillons observés sont de taille de plusieurs ordres de grandeurs supérieurs, c'est à dire quelques centimètres. On peut donc décrire correctement la turbulence en utilisant les équations de Navier-Stokes sans ajouter d'équations supplémentaires. Pour la borne supérieure : les plus grands tourbillons sont du même ordre de grandeur que l'extension verticale de la couche limite, les thermiques, donc de l'ordre de 1 à 2km.

Variables diagnostiques et prognostiques

Une **variable diagnostique** est une variable que l'on peut déduire à l'instant t des autres variables de l'écoulement à ce même instant t. Exemple : La température potentielle θ_t est une fonction de la température T_t et de la pression P_t. Une **variable prognostique** est une variable que l'on va essayer de prévoir. C'est donc la valeur d'une variable à l'instant $t + \Delta t$ à partir des autres variables connues (dont elle-même) à l'instant précédent t. Par exemple, en météorologie, on va, via le système de Reynolds, estimer la valeur de la température $T_{t+\Delta t}$ à partir de T_t, P_t, u_t, v_t, q_t *etc...*

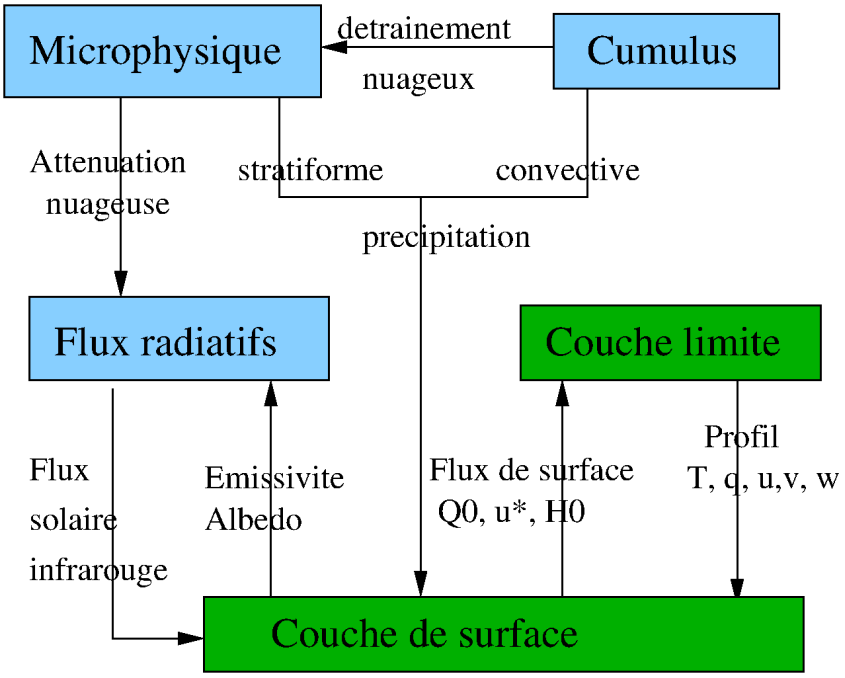


FIGURE 3.8 – *Interactions entre les différentes paramétrisations dans un modèle météorologique.*

Pour les modèles météorologiques, on peut donc scinder le calcul en deux parties : (i) l'intégration des équations de continuité, conservation de la masse de l'énergie et (ii) les paramétrisations physiques qui permettent de "fermer" le système de ces équations en diagnostiquant les parties turbulentes ou les termes inconnus. On aura donc des paramétrisations pour estimer les processus comme : (i) la turbulence dans la couche limite, avec notamment les flux de surface, (ii) les interactions entre sol, surface et atmosphère, (iii) les paramétrisations de transformation de l'eau dans l'atmosphère (formation nuageuse, glace), (iv) les paramétrisations de convection, (v) la microphysique, (vi) les effets radiatifs *etc.*. Comme le montre la Figure 3.8, les différentes paramétrisations sont inter-connectées : elles décrivent chacune des fluctuations sous-mailles dans l'atmosphère en impliquant les mêmes variables. Il y a donc de fortes dépendances entre ces processus.

La couche limite et les flux turbulents

Le premier exemple est l'ensemble des paramétrisations permettant de calculer les flux de surface et les caractéristiques de la couche limite. Les schémas sont nombreux et conceptuellement différents. La connaissance des flux de surface et de la convection au sein de la couche limite va conditionner la précision du calcul

que l'on pourra avoir sur la météorologie mais aussi le mélange des polluants et donc leur concentration près de la surface, *Stull* (1988), (§ 1.5, p.12). Pour une variable moyenne $\overline{C}$, on aura l'équation de bilan de la forme :

$$\frac{d\overline{C}}{dt} = \frac{\partial \overline{C}}{\partial t} + \overline{U}\frac{\partial \overline{C}}{\partial x} + \overline{V}\frac{\partial \overline{C}}{\partial y} + \overline{W}\frac{\partial \overline{C}}{\partial z} = \overline{S} - \frac{\partial \overline{u\,c}}{\partial x} - \frac{\partial \overline{v\,c}}{\partial y} - \frac{\partial \overline{w\,c}}{\partial z} \tag{3.3}$$

avec $\overline{S}$ les termes de source et puits affectant le devenir de la variable C. Les derniers termes de l'équation ont la forme d'une divergence de flux. Ces termes sont dits "sous-maille" et ce sont eux qui nécessitent le développement de paramétrisations pour les évaluer. Si l'o considère que les conditions sont homogène horizontalement et que l'on traite les termes d'advection par ailleurs, la variabilité rapide de la variable peut se résumer à :

$$\frac{\partial \overline{C}}{\partial t} = -\frac{\partial \overline{w\,c}}{\partial z} \tag{3.4}$$

Cette équation représente le terme de diffusion verticale d'une grandeur dans l'atmosphère. Cela montre que le changement temporel d'une variable et lié à la turbulence peut s'estimer par la divergence verticale du flux turbulent $\overline{w\,c}$. Si l'on considère que l'on est période convective, donc que la turbulence est importante et que la couche mélangée est assez homogène verticalement, on peut intégrer l'équation précédente sur la verticale et on a alors :

$$\frac{d\overline{C}}{dt} = \frac{\overline{w\,c_0} - \overline{w\,c_h}}{\overline{h}} \tag{3.5}$$

avec $\overline{w\,c_0}$ le flux turbulent à la surface, $\overline{w\,c_h}$ le flux turbulent au sommet de la couche limite, notée $\overline{h}$. Pour évaluer cette expression, il faut donc calculer les flux de surface et au sommet, ainsi que la hauteur de la couche limite. Des paramétrisations ont donc été développées : le flux va être exprimé en fonction de la variable principale elle-même et de paramètres. Cette approche est dite *bulk* puisque le calcul est fait "en gros" en considérant que la couche limite est bien mélangée et donc le transport vertical assez homogène.

L'estimation de ces termes turbulents peut se faire avec des fermetures turbulentes dites locale ou non-locale. La fermeture locale est lorsque le calcul d'une quantité inconnue se fait à partir de valeurs et gradients de quantités connues au même point. La fermeture non-locale est lorsque ce même calcul utilise des valeurs connues en plusieurs points de l'espace. Pour la turbulence dans la couche limite, la plupart des schémas sont des fermetures turbulentes au premier ordre. Les schémas du second ordre calculent l'énergie cinétique turbulente (TKE) pour diagnostiquer la diffusivité verticale, *Mellor and Yamada* (1974). En fermeture locale et au premier ordre, la théorie la plus employée pour l'estimation des flux verticaux dans la couche limite est la théorie en K, *Troen and Mahrt* (1986), telle que :

$$\overline{w\,c} = -K_c\frac{\partial \overline{C}}{\partial z} \tag{3.6}$$

ou K représente la diffusivité turbulente. On relie un flux turbulent directement à un gradient vertical et à un paramètre au même endroit. En général, on néglige la diffusivité horizontale, considérant que les schémas de transport employés sont suffisamment diffusifs pour représenter ce processus. On se concentre sur la diffusivité verticale, K_z. La dimension de K_z est une échelle de longueur fois une échelle de vitesse donc en $\mathrm{m}^2.\mathrm{s}^{-1}$. Dans le cas de l'équation de conservation de la quantité de mouvement (*momentum*), l'équation revient à chercher le flux $\overline{w\,u}$, donc à utiliser le gradient vertical du vent. Le calcul de ce coefficient dans une couche bien mélangé se fait en général avec des modèles en longueur de mélange. Pour diagnostiquer la hauteur de la couche limite, de nombreux schémas existent, *Shin and Hong* (2011) : le schéma local très

utilisé de *Troen and Mahrt* (1986), le schéma local "Yonsei University" de *Hong et al.* (2006) et le schéma non-local de *Pleim* (2007).

Mais très proche de la surface, les petits tourbillons induisent une variation verticale du vent et de la chaleur différentes, *Deardoff* (1972). Le profil vertical ne correspond plus à une couche bien mélangée et les gradients verticaux sont importants. On doit donc ajouter de nouvelles paramétrisations pour décrire les **flux de surface dans la couche de surface turbulente**. En condition neutre, on a la relation :

$$\frac{dU}{dz} = \frac{u_*}{k\,z} \tag{3.7}$$

avec u_*, la vitesse de frottement, z l'altitude à laquelle on cherche U et k=0.41 la constante de Von Karman. L'intégration verticale de cette relation donne :

$$U = \frac{u_*}{k} log\left(\frac{z}{z_{0m}}\right) \tag{3.8}$$

avec z_{0m}, la hauteur de rugosité pour la quantité de mouvement, *Lettau* (1969). Pour fermer le problème il faut donc déterminer la vitesse de frottement u_*, le flux de chaleur sensible à la surface Q_0, la hauteur de la couche limite $\overline{h}$. En conditions instables, il faut ajouter à ces calculs, des fonctions de stabilité. En période convective, il est aussi nécessaire d'ajouter une autre échelle de vitesse caractéristique : w_* la vitesse verticale convective. On a alors les relations :

$$w_* = \left(\frac{k\,g\,\overline{h}\,z}{\rho C_p T}\right)^{1/3} \tag{3.9}$$

donnant la longueur de Monin-Obukhov L :

$$L = \frac{-z u_*^3}{w_*^3} \tag{3.10}$$

et la relation de gradient vertical du vent près de la surface devient :

$$\frac{dU}{dz} = \frac{u_*}{k\,z}\phi_M\left(\frac{z}{L}\right) \tag{3.11}$$

avec ϕ_M la fonction de stabilité pour la quantité de mouvement, *Paulson* (1970). Les mêmes fonctions de stabilité existent pour les flux de chaleur et d'humidité. On a donc un système qui ne peut être résolu qu'itérativement, puisque les paramètres sont inter-dépendants entre eux. Pour contourner ce problème, des schémas équivalents 'bulk' ont été développés, comme la paramétrisation de *Louis et al.* (1982). Ces schémas sont basés sur le nombre de Richardson de couche, R_{iB} : il exprime le même ratio que la longueur de Monin-Obukhov, c'est à dire le poids relatif des forçages mécaniques par rapport aux forçages thermiques dans la couche mélangée. Mais, il n'a pas besoin de processus itératif pour être estimé car est basé directement sur les gradients verticaux des variables principales. De nombreux schémas existent comme *Holtslag et al.* (1995), *Brutsaert* (1998), *Mahrt and Vickers* (2004), parmi beaucoup d'autres. Plus récemment, *Jiménez et al.* (2012) apporte des corrections à ces schémas pour rendre leur utilisation plus universelle en fonction des conditions atmosphériques.

Les paramétrisations de calcul de la hauteur de la couche limite et de flux de surface sont interconnectées, comme la plupart des schémas de physique dans un modèle. Contenant de nombreuses hypothèses et paramètres, le choix de leur utilisation nécessitent de connaitre les travaux publiés pour les associer au mieux.

4 Les émissions

4.1 Introduction

Les émissions représentent la seule source de polluants dans l'atmosphère. Elles sont très variables en temps et en espace, en fonction de leur origine, *Granier et al.* (2019). Les émissions sont quasiment impossibles à mesurer : on mesure une concentration dans l'air, qui a déjà subi de la chimie, du transport, du dépôt. Il faut donc les estimer à partir d'autres informations. Dans ce chapitre, on va lister toutes les émissions de polluants atmosphériques et voir les différentes incertitudes attachées à ces émissions en fonction de leur méthode d'estimation.

On peut séparer les émissions en deux grandes familles : les émissions **anthropiques** et les émissions **naturelles**. Les émissions anthropiques représentent les activités humaines, qu'elles soient liées à l'industrie (centrales, sidérurgie etc.), le transport (routier, maritime, aérien, rail etc.), l'agriculture (élevage, engrais) et le secteur résidentiel (chauffage). Les émissions naturelles (biogéniques, érosion, pollen) représentent les émissions liées à la végétation (forêts, landes, pollen), les sols (érosion), les océans (sels de mer) et les sources sporadiques (feux, volcans). Les différents types d'émissions émettent quasiment toutes les espèces chimiques d'intérêt pour la pollution (hormis les aérosols minéraux, principalement par érosion éolienne et les pollens). Les processus liés à ces émissions sont principalement sous trois formes. Tout d'abord par **combustion** avec le CO_2, CO, COVNMs (benzène, formaldéhyde...), les hydrocarbures, dioxines, les particules de suie, oxydes de soufre (SO_2). Puis, par **volatilisation** avec les composés organiques volatils (essences, peintures...), les engrais et les ré-émissions de dépôts (POPs). Enfin, par **processus mécanique** avec les métaux (activités industrielles, abrasion des freins...), les poussières minérales (resuspension liée au trafic, agriculture) et les pollens.

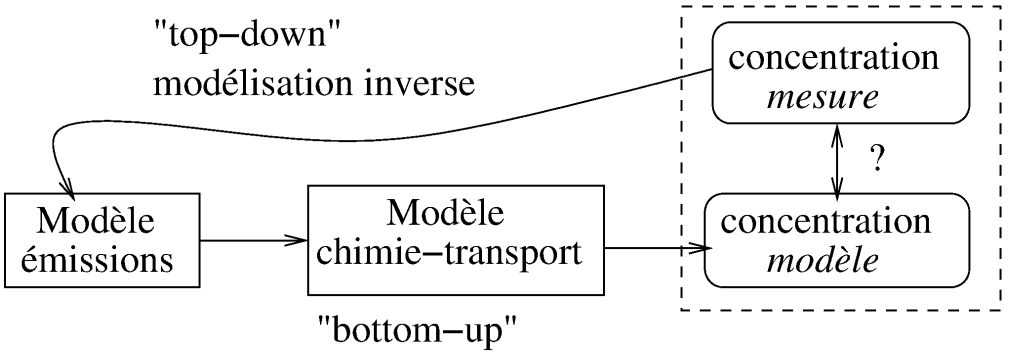


FIGURE 4.1 – *Principe du calcul des émissions avec les approches bottom-up ou top-down.*

Le calcul de ces émissions aboutit à la quantification d'un flux (masse par volume et par temps). Pour arriver à estimer ce flux, il faut pouvoir contraindre spatialement les émissions, à la fois horizontalement avec des bases de données donnant les zones émettrices, verticalement en fonction du type de sources, temporellement, chimiquement avec les espèces, et en masse avec la quantité émise. Pour chacune de ces dimensions,

le calcul pourra être contraint en utilisant des données de mesures in-situ ou des données satellites. On fera alors des hypothèses sur la transition émissions/concentrations, n'ayant jamais de contrainte directe possible sur le flux émis avant que n'agissent les réactions chimiques atmosphériques. La Figure 4.1 résume les deux concepts méthodologiques de détermination des émissions :

- L'approche *bottom-up* représente le traitement d'informations représentant la réalité d'une émission. A partir de données économiques ou géophysiques, un modèle d'émission va agréger l'ensemble des informations pour fournir le flux recherché. Ce flux sera ensuite utilisé par un modèle de chimie-transport qui va calculer des concentrations atmosphériques. La pertinence de la chaine de calcul sera évaluée par comparaison entre le modèle et les observations.
- L'approche *top-down* peut prendre deux formes : (i) utiliser directement les concentrations pour évaluer des émissions. C'est généralement fait à partir de données satellite. Ou (ii) par modélisation inverse en comparant les concentrations simulées et observées pour modifier les flux émis (cf. §8.2, p.142).

Le calcul des émissions se fait forcément avec un modèle (EM), avant même la modélisation de chimie-transport (CTM). Entre les données utilisées et le modèle EM en lui-même, on a dès le départ une grande incertitude sur les flux qui seront utilisés par le CTM. La seule évaluation possible sera de comparer des concentrations observées et modélisées : on multiplie donc les incertitudes entre le modèle d'émissions EM et le modèle CTM. Au final, on va ajuster les modèles EM pour que les CTMs donnent les meilleurs comparaisons possibles entre les concentrations observées et simulées. Les émissions utilisées ne sont pas transférables directement d'un CTM à l'autre car dépendent directement de celui qui a servi à caler les émissions.

4.2 Les émissions anthropiques

Article open-access de référence: *Im et al.* (2018b)

La quantification des émissions anthropiques est cruciale dans l'étude de la pollution atmosphérique puisqu'elles représentent la seule source dûe à l'humain et que l'on peut potentiellement réduire. Logiquement, cette source est localisée là ou sont les activités humaines et est donc concentrée dans les grands centres urbanisés et industriels. De toutes les émissions à calculer pour modéliser la pollution, ces émissions anthropiques sont les moins "physiques". Elles dépendent très peu des conditions météorologiques ou du type de sol. Ce sont avant tout des flux estimés à partir de recensement d'activités humaines.

Les inventaires d'émissions

Pour l'ensemble des systèmes de modélisation, on utilise des bases de données préparées par ailleurs. Elles sont difficiles à établir car sont construites sur des recensements d'émissions en fonction d'espèces et de secteurs d'activités, *Klimont et al.* (2017). Ces sont des approches dites "bottom-up" qui compilent des informations d'origine et de nature différentes pour finalement constituer un "inventaire" d'émissions. Ce laborieux travail de recensement explique que ces bases sont relativement statiques et irrégulièrement mises à jour. Historiquement, les bases de données d'émissions étaient régionales ou continentales. Ce type de base continue encore à être actualisé car représente la dimension d'intérêt pour les organismes de prévision comme les associations agrées de surveillance de la qualité de l'air (AASQA) ou comme l'organisme *European Monitoring and Evaluation Programme* (EMEP), *Tørseth et al.* (2012), pour l'Europe de l'Ouest. Mais aujourd'hui, les développements convergent vers des inventaires uniques, globaux et allant vers l'échelle kilométrique. Cela permettra d'assurer une cohérence des masses émises entre pays, entre continents. Ces

inventaires unifiés sont développés et maintenus par des groupes de travail internationaux comme pour la base de données EDGAR [1] et le projet CAMS de Copernicus, *Granier et al.* (2019).

Les inventaires d'émissions sont délivrés par espèces chimiques (ou regroupement d'espèces et par secteurs d'activités). La nomenclature la plus utilisée est la norme Européenne "Selected Nomenclature for Air Pollution" (SNAP), comprenant 11 secteurs d'activités. Ces codes sont donnés dans le Tableau 4.1. Plus récemment, des instituts travaillant sur ces émissions, comme EMEP, ont mis en place la nomenclature GNFR, modifiant la liste des secteurs. Cela permet de passer de 11 à 18 secteurs, raffinant l'information. Usuellement, les inventaires suivants sont utilisés. L'inventaire EMEP [2] avec une résolution de $0.1\ ^o \times 0.1\ ^o$, avec un inventaire par an de 1990 à 2017. Il ne couvre que l'Europe mais est largement utilisé. Il propose les espèces CO, NH_3, NMVOC [3], NO_x, SO_x, $PM_{2.5}$ et PM_{10}. Les masses données sont annuelles. L'inventaire CAMS [4] a la même résolution mais donne des masses mensuelles. Seules les années postérieures à 2000 sont disponibles.Les même espèces sont proposées plus le carbone suie ("Black Carbon", BC) et le carbone organique ("Organic Carbon", OC) et l'inventaire est global. L'inventaire global HTAP [5] de la base de données EDGAR fournit un inventaire pour 2010 uniquement. Il a aussi une résolution de $0.1\ ^o \times 0.1\ ^o$ et est global. Ces inventaires sont généralement utilisés séparemment mais quelques études les inter-comparent comme *Elguindi et al.* (2020) : censés représenter la même chose, la variabilité entre inventaires est importante et les différences vont du simple au double.

#	Secteur d'activité
01	Combustion dans les industries de l'énergie et de la transformation d'énergie
02	Combustion hors industrie
03	Combustion dans l'industrie manufacturière
04	Procédés de production
05	Extraction et distribution de combustibles fossiles
06	Utilisation de solvants
07	Transport routier
08	Autres sources mobiles et machineries
09	Traitement et élimination des déchets
10	Agriculture et sylviculture
11	Autres sources et puits (sources biogéniques)

TABLE 4.1 – Les secteurs d'activités de la nomenclature Européenne SNAP.

Les inventaires ne sont pas remis à jour chaque année. Cependant, liées aux politiques de réduction de la pollution, ces émissions varient d'une année à l'autre. Il faut donc appliquer des facteurs correctifs afin de conserver les tendances annuelles. Sur l'Europe, ces tendances sont, par exemple, quantifiées dans *Vestreng et al.* (2009) ; en Chine, dans *Zheng et al.* (2018). Des études utilisent aussi des séries temporelles pluri-annuelles de mesures satellites pour estimer la tendance des émissions. Sous l'hypothèse que près des sources, les concentrations de surface d'oxydes d'azote évoluent comme leurs émissions, *Konovalov et al.* (2008) quantifie la variabilité inter-annuelle des émissions EMEP en Europe. L'étude de *Hoesly et al.* (2018) permet aussi de quantifier la tendance sur le long terme des émissions, de 1750 à 2014, par une reconstruction

1. https ://edgar.jrc.ec.europa.eu/
2. https ://www.ceip.at/
3. NMVOC : Non-Methanic Volatil Organic Compounds
4. https ://eccad3.sedoo.fr/
5. https ://edgar.jrc.ec.europa.eu

de l'évolution de l'industrie.

Il existe aussi des inventaires d'émissions pour les scénarios futurs comme les exercices de modélisation du changement climatique. On note tout d'abors les scénarios de type "Representative Concentration Pathways" (RCP), *Moss et al.* (2010). Ces scénarios proposent des données d'émissions et changement de surface (landcover) en fonction d'un niveau de forçage radiatif (en $W.m^{-2}$) attendu pour 2100. Le forçage calculé est basé sur les polluants à effet de serre et ne prennent pas en compte des modifications éventuelles du landuse. Différents scénarios sont proposés : RCP2.6, 4.5, 6.0 et 8.5. Plus récemment, pour l'exercice CMIP6, les scénarios "Shared Socieconomic Pathways" (SSP) [6] ont été proposés pour approfondir les rétroactions entre le changement climatique et les facteurs socioéconomiques, en construisant les scénarios en cohérence entre les deux. De nombreuses études cherchent à établir ces scénarios les plus réalistes possibles, même si ce futur est forcément hautement incertain, comme *Gidden et al.* (2019), *Feng et al.* (2020).

Les cadastres d'émissions

Pour pouvoir utiliser ces données dans un modèle de chimie-transport, il faut transformer ces inventaires sous un format compatible avec le modèle, ce sont les **cadastres d'émissions**. Les contraintes sont que l'on doit avoir des données d'émissions à chaque pas de temps de forçage du modèle (en général horaire), pour chaque maille et formulées en espèces modèles. Il est donc nécessaire de réaliser différents calculs pour passer de l'inventaire au cadastre : la spatialisation, la temporalisation, la spéciation chimique, comme le montre la Figure 4.2.

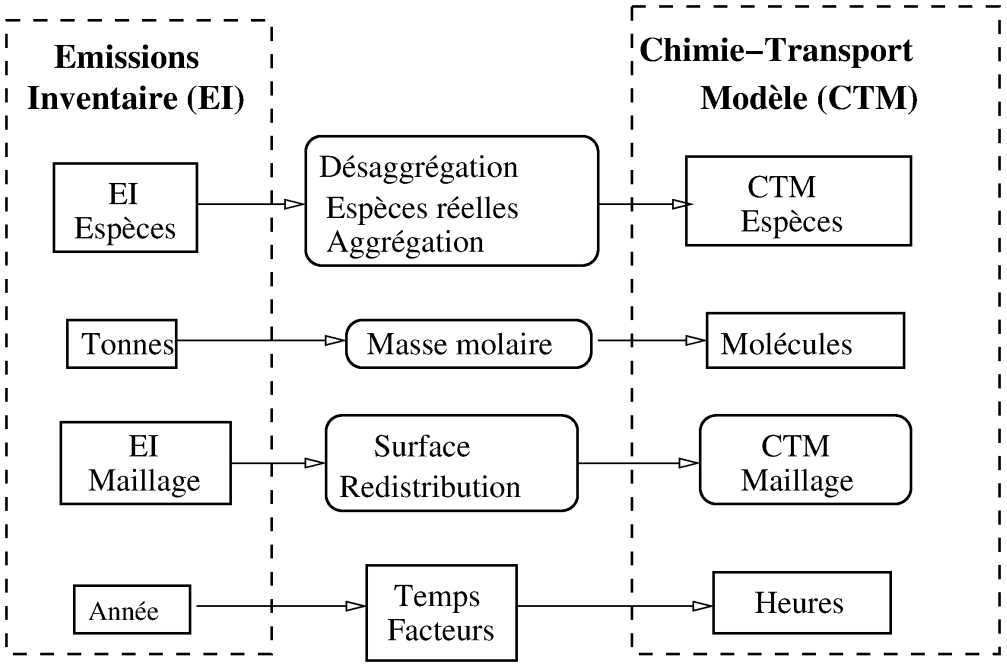


FIGURE 4.2 – *Principe du calcul de passage d'un inventaire à un cadastre d'émissions anthropiques.*

Pour le calcul de ces émissions on a donc deux incertitudes majeures : (i) les données de l'inventaire en lui-même, construit de manière "bottom-up" à partir de recensements et statistiques, (ii) les erreurs réalisées

6. http ://www.ipcc.ch

lors de la projection spatio-temporelle de l'inventaire vers le cadastre nécessaire à une simulation. Des modèles existent pour faire ces calculs comme, par exemple, le code Hermes, *Guevara et al.* (2020), le code EmiSurf, *Menut et al.* (2012), le code DPEC sur la Chine, *Tong et al.* (2020).

Spatialisation

Horizontalement

Les masses émises peuvent être disponibles selon des surfaces très différentes du maillage du modèle utilisé. Cela peut être un maillage cartésien mais décalé, à résolution différente, ou des masses selon des régions, ou des surfaces de communes. Il faut donc projeter ces masses d'une grille (quelconque) à une autre (celle du CTM) tout en conservant la masse. Dans le cas d'une projection vers un maillage mieux résolu, le calcul peut utiliser des informations "sous-maille", dites proxy : des données démographiques, de types de surface pour bien représenter les routes pour les émissions de trafic etc. Cet aspect est particulièrement important car la dilution des émissions dans une maille peut modifier le régime chimique. Un exemple est présenté Figure 4.3 tel que cela est utilisé dans le modèle EmiSurf développé pour préparer les émissions du modèle CHIMERE, *Mailler et al.* (2017).

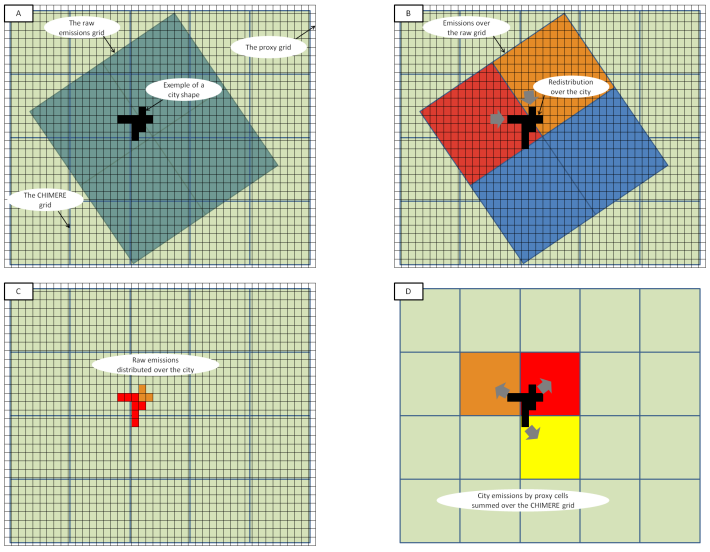


FIGURE 4.3 – *Principe de la projection des masses d'émissions anthropiques depuis le maillage de l'inventaire (grille d'origine) jusqu'au cadastre pour le modèle de chimie-transport. D'après Mailler et al. (2017).*

Pour les secteurs d'activité comme les industries et le résidentiel, l'information de spatialisation est assez facilement accessible puisque consiste à recenser des cartes d'occupation des surfaces, sachant que ce sont des activités qui se déplacent peu dans le temps. Pour le trafic automobile, la spatialisation est plus délicate car si les routes et autoroutes sont bien identifiées, la quantité de véhicules émetteurs est très variable et difficilement prévisible.

Les inventaires fournissent usuellement les données sous trois formes : (i) des **sources surfaciques** représentant des zones industrielles, urbaines, agricoles, (ii) des **sources linéiques** représentant des cours d'eau, autoroutes, rues, lignes de chemin de fer, et (iii) des **sources ponctuelles** représentant des sites in-

dustriels très localisés comme des usines. Chacun de ces types de sources devra être reprojeté spatialement vers le maillage du modèle en veillant à conserver sa représentativité au mieux et sa masse. Les difficultés rencontrées peuvent être par exemple : (i) la source surfacique a une partie en dehors du maillage cible du modèle, (ii) les sources linéiques (comme les bateaux) donnent la masse émise sur toute la trajectoire du bateau, y compris en dehors du domaine cible.

Verticalement

Les masses sont données en deux dimensions et il est nécessaire de les reventiler verticalement. La Figure 4.4 présente les profils verticaux appliqués sur 7 niveaux, de 20 à 1100m, selon la nomenclature EMEP. On peut voir par exemple que le SNAP1 (combustion industrielle) est essentiellement émis par des cheminées, le plus fort pourcentage de redistribution est situé entre 300 et 600m. Au contraire, le SNAP7 (trafic automobile) reste à 100% au premier niveau, près de la surface.

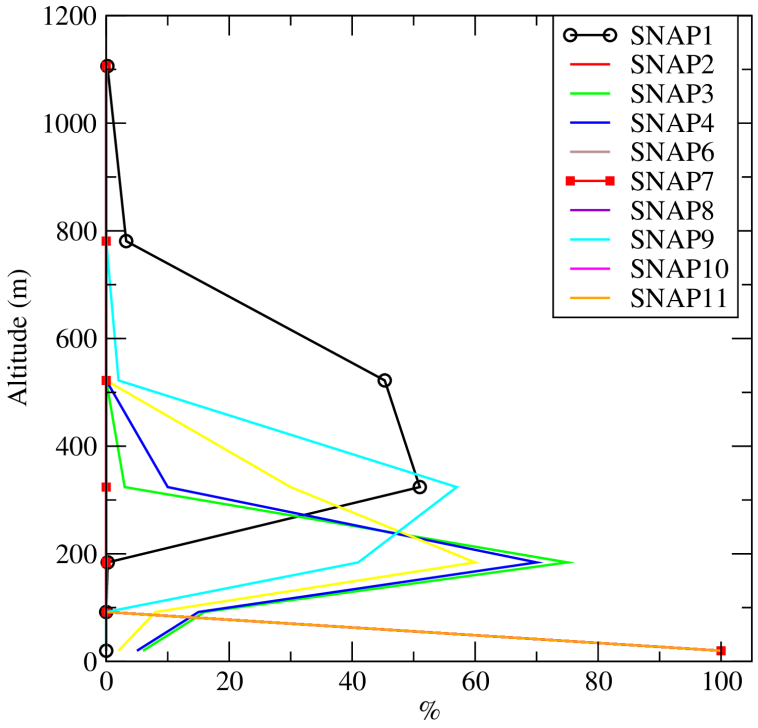


FIGURE 4.4 – *Profils EMEP de reventilation verticale des données surfaciques. D'après des données extraites des données EMEP.*

Temporalisation

Les données sont disponibles en géneral en masse par an. Il faut donc les "reventiler" pour finalement obtenir des flux horaires (cas général des CTM pour la pollution régionale). Cette reventilation suit plusieurs étapes successives : passer de masses par an à des masses par mois pour la prise en compte de la saisonnalité, puis pour chaque mois à des types de jour (pour la prise en compte de la variabilité hebdomadaire), puis estimer un profil diurne (pour la variabilité journalière). Cette reventilation temporelle peut aussi être

dépendante du lieu : deux villes différentes n'auront pas la même activité journalière en terme de trafic. La Figure 4.5 présente un exemple de profils journaliers permettant de passer d'une masse par jour à un profil diurne horaire en fonction du type de jour de la semaine et pour les villes de Londres et Madrid. Le cycle diurne montre une très grande variabilité entre jour de semaine et Samedi, Dimanche.

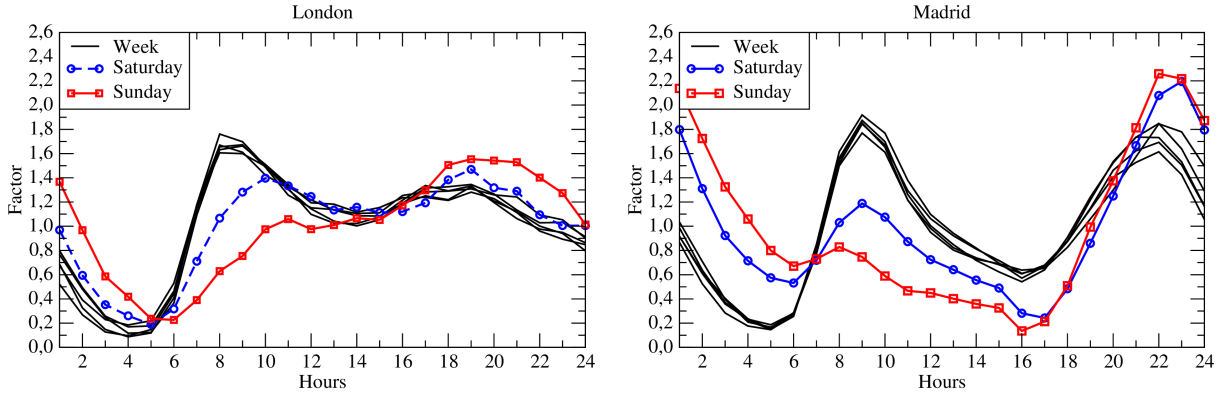


FIGURE 4.5 – *Coefficient représentant le cycle journalier des émissions liées au trafic pour les villes de Londres et Madrid. Pour chaque ville, les profils diurnes sont obtenus avec des mesures de stations 'trafic', avec une moyenne sur plusieurs mois de chaque Lundi, mardi etc. Données extraites de l'étude de Menut et al. (2012).*

Pour l'estimation de ces profils, la méhodologie dépend du secteur d'activité. Pour une source industrielle, il est possible d'avoir l'information sur l'activité de l'usine et donc avoir un profil diurne. Pour le trafic automobile, dépendant du nombre de véhicules, des mesures de concentrations au plus près des sources sont utilisées comme proxis. Des mesures de NO_2 de type 'urbaines' sont utilisées dans *Menut et al.* (2012) pour différencier les villes. L'étude de *Crippa et al.* (2020) compile de nombreuses autres études pour agréger une base de données de profils temporels à l'échelle globale. Les auteurs précisent qu'ils ont créé une base pour l'année 2005, considérée comme une année moyenne et représentative au niveau météorologique. En effet, l'utilisation de mesures de concentrations dans l'air comme proxies inclue que ces mesures ont une variabilité liée aux émissions mais aussi potentiellement à la dynamique. L'étude de *Tunved and Ström* (2019) montre qu'il peut y avoir une variabilité saisonnière aussi dans la distribution en taille des aérosols, dépendantes de la tendance des émissions d'une année à l'autre : ce type de variabilité correspond actuellement à un raffinement peu pris en compte dans les modèles d'émissions.

Spéciation chimique

Les données de masse d'émissions sont délivrées pour des espèces représentant des espèces vraies (comme le SO_2), des regroupements d'espèces vraies (comme les NO_x et les VOCs). De plus, ces masses sont données par secteurs d'activités alors que le modèle utilise une simple espèce chimique. Il faut donc construire des matrices de désagrégation puis réagrégation des espèces vraies vers les espèces modèles. Une procédure en deux temps doit être appliquée : désagréger les espèces "modèles" de l'inventaire vers des espèces "vraies", puis agréger ces espèces "vraies" vers les espèces modèles du schéma chimique du CTM utilisé. Selon les modèles, deux types de réagrégations sont réalisées : une pondération en masse molaire ou en réactivité. Pour une pondération en réactivité α_i, on utilise la relation :

$$\alpha_i = \frac{1 - exp(-k_i \times I_{OH})}{1 - exp(-k_{Model} \times I_{OH})} \tag{4.1}$$

$$E_{Model} = \sum_i \alpha_i E_i \tag{4.2}$$

avec k_i le taux de réactivité de OH du composé réel et k_{model} de l'espèce réelle. I_{OH} est l'intégration sur une journée des concentrations de OH en ppt.mn^{-1}. On notera que la plupart des inventaires donnent des masses de NO_x et de SO_x. Pour les CTM, une décomposition usuelle pour les NO_x est 95% NO, 4.5% NO_2 et 0.5% HONO et pour les SO_x est 99% en SO_2 et 1% en acide sulfurique H_2SO_4. Ces proportions peuvent être modulées en fonction du secteur d'activité.

Il est à noter que ces étapes de conversion chimique doivent être réalisées en dernier, en tout cas après la temporalisation : car la plupart des profils temporels de facteurs sont donnés par secteurs d'activités. Il faut donc les appliquer avant de perdre cette information lors du passage en espèces chimiques du modèle.

Les émissions anthropiques restent aujourd'hui l'inconnue majeure de la modélisation de pollution régionale. Plus le modèle sera à fine résolution, plus cette incertitude pèsera sur les résultats : il faudra décrire au mieux les routes et autoroutes, rue, bâtiments *etc*. De plus, une résolution temporelle croissante nécessitera de connaitre le trafic jusqu'aux limites actuelles ou on ne sait pas prévoir les bouchons d'un jour à l'autre. Pour la prévision opérationnelle, la grande variabilité temporelle de ces sources va longtemps rester un frein car il semble difficile d'envisager de l'assimilation de données de trafic en temps réel sur de grandes régions avec les systèmes de modélisation actuels.

4.3 Les émissions biogéniques

Article open-access de référence: *Guenther et al.* (2006)

Les émissions biogéniques représentent des émissions gazeuses principalement de COVs (isoprène, terpènes, pinène), produites par les forêts, *Simpson et al.* (1999). Pour estimer ces flux d'émissions, il est nécessaire de disposer d'informations sur la végétation et la météorologie. Le flux émis dépend directement de l'espèce chimique émise, de la plante ou arbre, de la température et du rayonnement solaire. Pour ce dernier paramètre, les schémas de calcul des émissions biogéniques définissent le **rayonnement photosynthétique actif** (PAR). On a donc des émissions qui, contrairement aux émissions anthropiques, vont dépendre à la fois du type de surface et de la météorologie.

Paramétrisation du flux

Le processus général est une formation chimique de COVs dans les feuilles, qui sont ensuite diffusés dans l'air depuis la surface de la feuille. Il existe peu de modèles différents pour modéliser ce processus. La plupart des CTMs utilisent le modèle MEGAN (*Model of Emissions of Gases and Aerosols from Nature*), *Guenther et al.* (2006). Ce modèle calcule des flux émis à partir de données de surface (fournies avec le modèle) et de paramètres météorologiques qui doivent être calculés au fur et à mesure de la simulation de chimie-transport. On note aussi le modèle BEIS3, aujourd'hui intégré dans le système de calcul des émissions *Sparse Matrix Operational Kernel Emissions* (SMOKE) pour le modèle CMAQ, *Pierce et al.* (1998). Le flux émis est estimé suivant la relation :

$$ER_i = \epsilon i \times \gamma_i(T, q, PPFD, LAI) \times \rho_i \tag{4.3}$$

avec ER_i ($\mu g.m^{-2}.h^{-1}$) le taux d'émission de l'espèce chimique i, ϵ_i ($\mu g.m^{-2}.h^{-1}$) un facteur d'émissions dans les conditions météorologiques standard de la canopée, γ_i (sans unité) est un facteur de variabilité autour de ces conditions standard, dépendant du type de plante et de la météorologie et ρ_i un facteur prenant en compte le bilan production/perte de l'espèce chimique dans la canopée. le concept de 'canopée standard' correspond à : une température de 303K, une densité de flux photosyntétique (PPFD) de 1500 $\mu mol.m^{-2}.s^{-1}$ au sommet de la canopée, un indice foliaire (*Leaf Area Index*, LAI) de 5 $m^2.m^{-2}$ et une canopée avec 80% de feuillage mature, 10% en croissance et 10% de vieux feuillage. Dans la canopée, le facteur ρ_i est considéré comme égal à 1. Toute la paramétrisation va consister à estimer les facteurs de variabilité autour de l'état moyen.

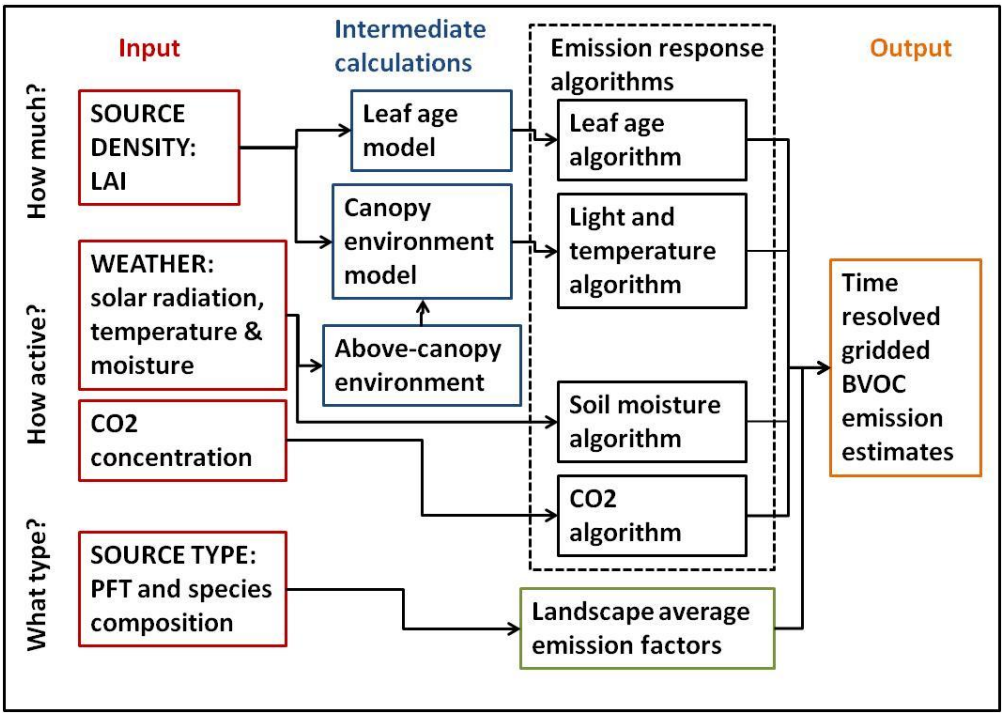


FIGURE 4.6 – *Principe du calcul des émissions biogéniques. Figure de Guenther et al. (2012).*

Le principe général du calcul est présenté sur la Figure 4.6 de *Guenther et al.* (2012). Avec ce principe de calcul le modèle MEGAN permet de calculer le flux émis pour une vingtaine de COVs biogéniques. Le flux calculé est utilisé au premier niveau vertical des modèles : il n'y a pas de considération de profil d'injection dans l'atmosphère comme les émissions anthropiques ou de feux de biomasse. Cependant, une amélioration pourrait être faite en considérant de manière plus réaliste la hauteur de la canopée.

Les bases de données

Pour calculer le terme ϵ_i dans les conditions météorologiques standard, il faut disposer de bases de données renseignant la surface avec des informations spatialisées sur le type de plante. Ces bases sont globales et s'appuient sur l'interprétation de données satellite. Dans le cas du modèle MEGAN, les bases de données

sont founies avec le modèle. Il existe aussi des mesures *in-situ* qui permettent de relier les mesures satellites (qui donnent la variabilité spatiale) avec une valeur de mesure. Par exemple, pour l'estimation du facteur d'émissions de l'isoprene, *Guenther et al.* (2006) ont collecté les résultats de campagne de mesures comme présenté sur la Figure 4.7. On note que même si cela représente de nombreuses campagnes et données, ces contraintes restent rares pour l'ensemble du globe.

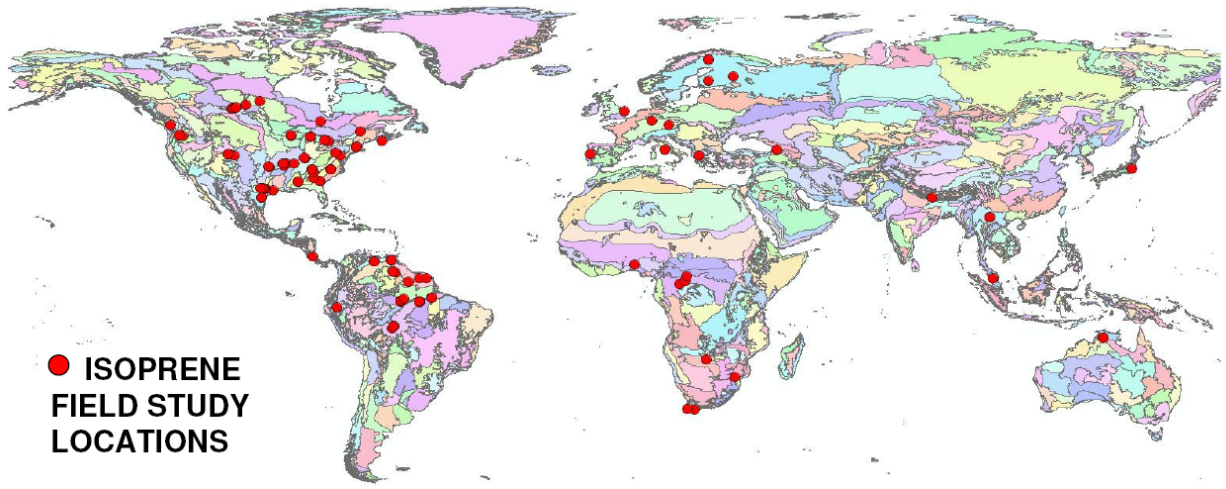


FIGURE 4.7 – *Les mesures utilisées pour estimer les facteurs d'émissions de l'isoprène. Figure de Guenther et al. (2006). Les couleurs correspondent à une classification en éco-régions utilisée dans l'article.*

Pour réduire la quantité de données de contrainte, les plantes sont catégorisées : on définit des *types fonctionnels de plantes* (PFT) en créant des catégories de végétaux ayant le même type de cycle saisonnier, le même type de feuillages ou épineux et donc le même type de quantité de COVs émis. Un exemple de facteur d'émissions pour l'isoprène est présenté sur la Figure 4.8. Ces facteurs sont estimés à fréquence mensuelle afin d'obtenir le facteur saisonnier sur l'évolution des feuilles des arbres et donc leur productivité.

Inter-comparaison et sensibilité

Différentes études inter-comparent des calculs d'émissions biogéniques et quantifient la sensiblité des calculs de concentrations à ces flux. *Emmerson et al.* (2018) comparent des modèles en Australie : MEGAN et le modèle Australien ABCGEM. Leur étude de sensibilité montre la forte dépendance des résultats aux facteurs d'émissions du monoterpene, notamment sa dépendance à l'ensoleillement. *Jiang et al.* (2019) comparent MEGAN et PSI en Europe et montrent que les facteurs liés à la végétation peuvent amener à des facteurs 3 de différence sur le calcul de l'isoprène et monoterpènes. cela a un impact de l'ordre de 10 ppb sur l'ozone mais aussi un impact non néglieable sur la formations d'aérosols organiques secondaires. Des études utilisent le modèle de calcul des émissions biogéniques pour étudier la tendance à long terme de ces émissions. *Sindelarova et al.* (2014) calcule 30 ans de flux sur le globe et montre la variabilité saisonnière mais aussi une variabilité inter-annuelle avec un cycle décennal assez marqué. Cette variabilité est uniquement due à la variabilité météorologique. D'un point de vue incertitude globale, ils compilent de nombreuses études du même type et montrent que l'estimation de masse émise d'isoprène va de 400 à 700 Tg par an.

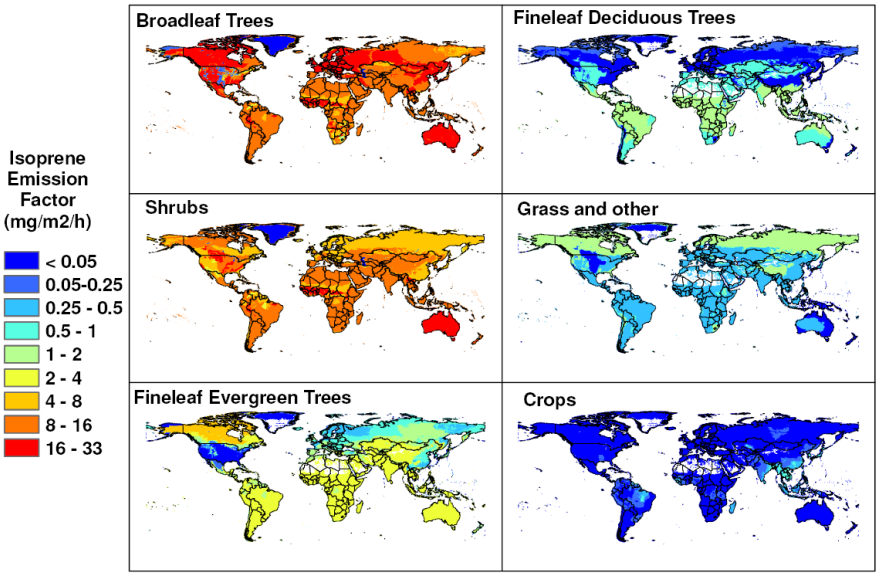


FIGURE 4.8 – *Les émissions globales d'isoprène : les facteurs d'émissions par type de plante émettrice et les flux d'émissions déduits en fonction de la saison. Figure de Guenther et al. (2006).*

Les émissions biogéniques sont responsables de la moitié des concentrations atmosphériques. Pour leur modélisation, le calcul est un mélange de connaissances de la surface et de météorologie. Le satellite permet d'avoir des estimations des données de la surface : les bases de données progressent régulièrement en résolution spatiale et temporelle, et en qualité des valeurs estimées. Le calcul du flux émis en lui-même sera directement dépendant de la météorologie et donc nécessite d'être directement inclus dans le modèle de chimie-transport.

4.4 Les émissions des feux de biomasse

Article open-access de référence: *Reid et al.* (2005a)

Les émissions des feux sont parmi les plus complexes à estimer car cumulent plusieurs problèmes : (i) elles dépendent des activités anthropiques (départ de feux, état de la surface, type de végétation) ou naturelles (les éclairs), mais aussi de la météorologie (propagation du feu), (ii) elles sont difficiles à mesurer (impossible au sol, difficile par satellite), (iii) elles sont très variables en temps et en espace, la notion d'inventaire n'est pas possible. Le calcul des émissions de feux est donc l'un des plus paramétré et donc l'un des plus incertains.

Ces émissions font l'objet d'intenses recherches et c'est l'une des sources qui peut être calculée avec un très grand nombre de modèles différents. Il existe des articles permettant de détailler ces processus comme *Reid et al.* (2005a) pour les propriétés physiques des particules de feux, *Reid et al.* (2005b) pour leurs propriétés optiques. Ces émissions ont un impact important sur la composition atmosphérique. Contrairement aux autres types d'émissions, celles-ci seront très intenses mais très localisées. Au final, et en les comparant aux émissions anthropiques ou biogéniques, leur impact moyen est plus faible, *Rea et al.* (2015). Les aérosols ont aussi un impact sur le bilan radiatif : l'étude de *Brown et al.* (2021) a montré que les aérosols dûs aux feux n'était pas bien représentés pour l'impact radiatif et que la plupart des modèles les considéraient

comme trop absorbants par rapport à la réalité, impactant les résultats d'exercice de modélisation sur le changement climatique.

La combustion de biomasse peut se diviser en deux catégories : (i) la combustion complète va former du CO_2 et H_2O ; (ii) la combustion incomplète va produire de nombreux gaz traces et aérosols en fonction du type de combustible, de la qualité de la combustion et de la composition de l'air ambiant dans certains cas (e.g. moteur à explosion). Dans le cas d'une combustion incomplète, cas de la plupart des feux de biomasse, les composés vont être émis à partir de l'air ambiant et à partir d'éléments présents dans le combustible. La combustion de biomasse va générer des émissions de dioxyde de carbone (CO_2) et monoxyde de carbone (CO), de composés organiques volatils (benzène, formaldéhyde...), de composés organiques semi-volatils et non-volatils (hydrocarbures aromatiques polycycliques, dioxines...), de particules de suie, oxydes de soufre (SO_2 et SO_3) et de composés minéraux halogénés (HCl), mercure (Hg0, $HgCl_2$...). Après émission, la composition du panache va aussi être modifiée, une chimie active étant présente. Cela pourra avoir un impact sur les concentrations et les propriétés optiques des áerosols, donc l'épaisseur optique, *Konovalov et al.* (2017).

Processus d'émissions surfaciques

La modélisation de ce type de feux a des analogies avec les émissions biogéniques : la base de tout calcul est la cartographie à haute résolution du sol et de la végétation sur le globe : il faut aussi connaitre les essences d'arbre, cette fois pour poser des facteurs d'émissions lors de leur combustion. Mais il faut des informations supplémentaires : un modèle de végétation pour connaitre la quantié de biomasse, des données satellites pour savoir ou sont les feux actifs. La modélisation d'un flux d'émissions dû à de la combustion naturelle (*biomass burning*) s'exprime, selon *Heinold et al.* (2011) :

$$M_x = \sum_k \left[M_{biomass,k} \times A_{burn,k} \times EF_{x,k} \times BE_k \right] \tag{4.4}$$

avec x l'espèce chimique émise et k le biome (forêt tropicale, désert etc.). M_x est le flux en mol day^{-1} m^{-2} pour les gaz et en g day^{-1} m^{-2} pour les aérosols. $A_{burn,k}$ est la surface brulée, BE_k l'efficacité de combustion (*Burning Efficiency*) et $EF_{x,k}$ un facteur d'émission (*Emission Factor*). $M_{biomass,k}$ est la charge en combustible disponible (*fuel load*). Il existe aussi une approche basée sur les mesures satellite du *Fire Radiative Power* (FRP), une mesure de l'énergie radiative d'un feu et qui permet de paramétrer la quantité de combustible consumé, *Kaiser et al.* (2012). A ces informations, le flux peut aussi être modulé par les produits satellites de 'feux actifs' qui donnent une anomalie thermique et donc la présence d'un feu à haute résolution temporelle. L'enjeu est donc de calculer l'ensemble de ces termes, à fréquence journalière, puis de les combiner pour estimer le flux. Pour beaucoup de modèles actuels, les surfaces brulées et les feux actifs, $A_{burn,k}$, sont estimés a posteriori avec les données du satellite MODIS, *Giglio et al.* (2006). Le fait de ne disposer de l'information sur la localisation *a posteriori* montre toute la difficulté de la prévision de ces émissions.

Pour calculer ces flux de surface, de nombreux modèles existent. De nombreuses études inter-comparent cette gamme de modèles et quantifient leurs différences : en fonction d'hypothèses de calcul et de paramètres sur la végétation, l'efficacité de combustion ou d'autres, les comparaisons peuvent aller du simple au double. *Turquety et al.* (2014) compare par exemple les modèles GFEDv3, FINNv1, GFASv1 et APIFLAMEv1 sur la région Euro-Méditerranée. *Pan et al.* (2020) compare six bases de données d'émissions de feux à l'échelle globale et montre qu'il y a un facteur 4 entre les différents jeux de données. Ces jeux de données ont des résolutions très variables, de 0.5^o à 1km. A noter que parmi ces modèles, le modèle GFAS de ECMWF, *Kaiser et al.* (2012), assimile les données dans le modèle de chimie-transport et propose donc un produit plus fiable car corrigé par des informations indépendantes. *Pereira et al.* (2016) compare des inventaires

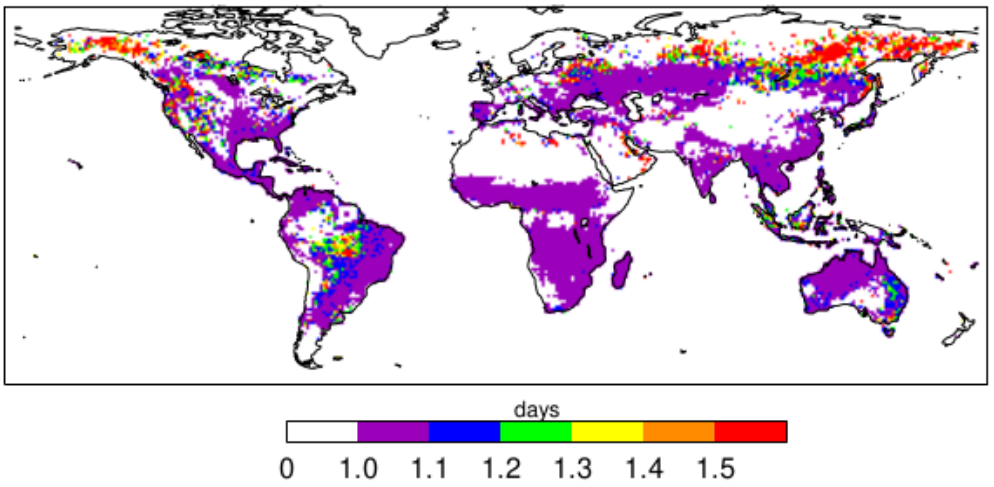


FIGURE 4.9 – *Moyenne sur la période 2001-2004 de la persistence en nombre de jours des feux analysés à partir du produit de feux actifs de Terra MODIS. Figure extraite de Giglio et al. (2006).*

plus régionalement sur le Brésil, avec 3BEM, GFAS et FINN et concluent aussi que si la répartition spatiale des sources est cohérente entre les jeux de données (impact du forçage satellite), les masses émises sont très différentes (hypothèses sur les flux).

La pyroconvection

Si l'estimation du flux émis en surface est difficile, l'injection dans l'atmosphère de ce flux l'est tout autant. Contrairement aux autres émissions, anthropiques et biogéniques, le flux surfacique n'est pas relaché en surface à température ambiante : le produit de feu est émis dans une atmosphère ou la température peut faire plusieurs centaines de degrés. La météorologie est donc complètement perturbée et un processus de pyroconvection se met en place. Le produit du feu de biomasse peut être rapidement injecté à quelques milliers de mètres de la surface, au dessus de la couche limite. Il faut donc développer des paramétrisations spécifiques pour estimer le profil vertical d'injection. L'estimation de ce profil passe par deux étapes distinctes : (i) la hauteur d'injection H_p et (ii) la forme du profil d'injection.

Le calcul de la **hauteur d'injection** est paramétré et de nombreux schémas existent, *Paugam et al.* (2016). Ces schémas peuvent alors être directement comparés aux mesures comme les mesures des instruments sur satellite CALIOP ou le *Multi-angle Imaging SpectroRadiometer* (MISR). Un des schémas les plus utilisés est celui de *Sofiev et al.* (2012). Le calcul de H_p est basé sur l'estimation de la *Convective Available Potential Energy* (CAPE) :

$$H_p = \alpha H_{abl} + \beta \left(\frac{P_f}{P_{f0}}\right)^{\gamma} exp\left(-\frac{\delta N_{FT}^2}{N_0^2}\right) \tag{4.5}$$

avec α=0.24, β=170 m, γ=0.35, δ=0.6, P_{f0}=10^6W et N_0^2=2.4 $\times$ 10^{-4} s^{-2}. La FRP, P_f, est exprimée en W (with 1 W = 1 J s^{-1} = 1 m^2 kg s^{-3}). N_{FT} est la fréquence de Brünt-Vaisala dans la troposhère libre. Une correction emprique a été apportée pour prendre en compte la sous-estimation de la FRP par MODIS dans le cas des "grands feux", *Veira et al.* (2015) :

$$P_f^* = P_f \times \left(\frac{H_p}{H_{deep}} \right)^{\epsilon} \tag{4.6}$$

avec ϵ=0.5 et H_{deep}=1500 m.

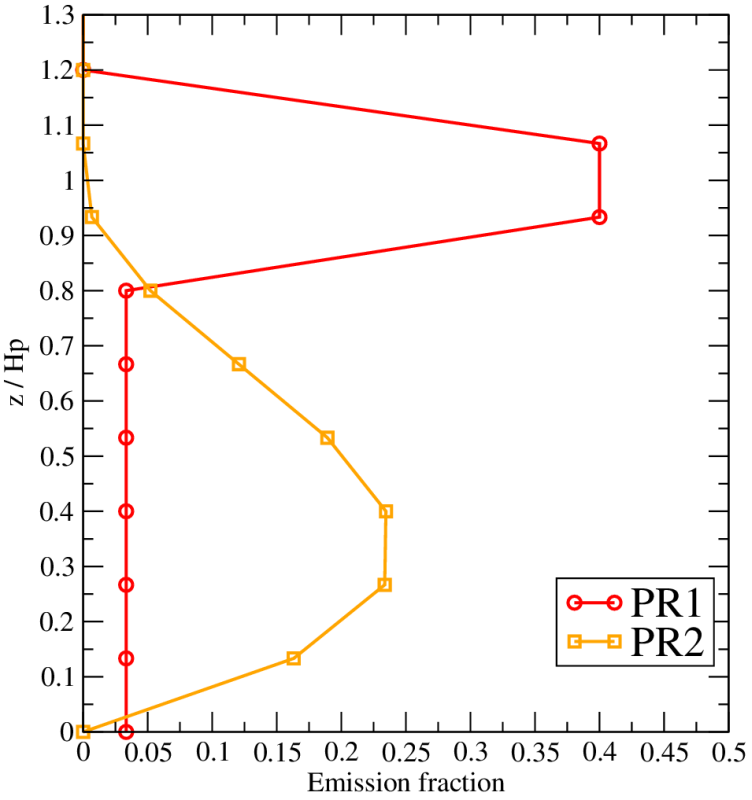


FIGURE 4.10 – *Profils verticaux pour l'injection des produits de feux de biomasse dans la troposphère. Figure extraite de Menut et al. (2018).*

Le calcul de la **forme du profil** est aussi paramétré. Tout comme la hauteur d'injection, ce paramètre est très sensible : en fonction de l'altitude à laquelele on injecte un polluant, son transport peut prendre une direction ou une autre, son dépôt peut être plus ou moins tardif. La plupart des modèles font une injection homogène dans la couche limite ou de la surface à H_p. *Sofiev et al.* (2013b) distribue le flux de manière homogène de $H_p/3$ à H_p. D'autres modèles utilisent des approches plus complexes comme les thermiques, adaptés à la problématique de la pyroconvection, *Freitas et al.* (2007); *Rio et al.* (2010) : une approche couteuse en temps de calcul et finalement peu utilisée. Enfin, d'autres approches considèrent des profils de forme K_z avec un maximum à l'altitude $H_p/2$, *Raffuse et al.* (2012); *Veira et al.* (2015). Ces deux formes sont représentées sur la Figure 4.10 et ont été inter-comparées dans *Menut et al.* (2018).

Les émissions de feux sont complexes à estimer car dépendent de nombreux facteurs non mesurables : quand va être déclenché un feu ? quelles espèces sont émises ? en quelle quantité ? Si en moyenne sur une année, ces émissions ne sont pas la source principale, elles sont violentes et intenses là ou elles sont localisées. Leur prévision à court terme reste aujourd'hui un défi car on ne sait pas correctement calculer à l'échelle régionale la propagation d'un feu ni sa durée. Certains paramètres sont aujourd'hui encore mal pris en compte dans les modèles comme la considération d'une surface brulée d'une année à l'autre, l'impact du feu (de petite échelle) sur la météorologie à l'échelle synoptique, ou encore l'impact radiatif précis d'un panache de produits de feux en altitude.

4.5 Les émissions des aérosols minéraux

Article open-access de référence: *Schepanski* (2018)

Les émissions d'aérosols minéraux représentent une large part de la masse émise d'aérosols sur le globe, *Ravi et al.* (2011). Cette masse reste cependant très incertaine, avec un ordre de grandeur d'écart selon les modèles, *Shao et al.* (2011). Ces aérosols ont un impact sur la santé potentiellement important sur le système respiratoire, *Morman and Plumlee* (2013). Ils ont aussi un impact fort sur le bilan radiatif, *Carslaw et al.* (2010), à la fois à court terme lors du transport de panaches denses et à plus long terme, d'un point de vue climatologique. On distingue les émissions "naturelles" (comme le Sahara et le Sahel en Afrique) et "anthropiques" (les sites industriels ou les routes), *Engelstaedter et al.* (2006). La masse émise la plus importante est "naturelle" mais les émissions "anthropiques" sont plus proches des zones habitées donc à considérer aussi dans un cadre de surveillance de la pollution atmosphérique. Tout comme les émissions dûes aux feux, ces émissions font l'objet de beaucoup de recherches et de nombreux modèles existent. Des articles de revue sont disponibles comme *Ravi et al.* (2011), *Shao et al.* (2011), *Choobari et al.* (2014), *Middleton* (2017).

Les émissions d'aérosols minéraux sont observées quand le sol est aride et que le vent près de la surface est assez fort pour mettre en suspension des particules dans la couche de surface. Ce processus d'émission, nommé érosion éolienne, va donc principalement dépendre du type de surface et de la météorologie. L'observation et les simulations en "wind tunnel" ont pu montrer que l'émission peut être décomposée en deux phases : un flux horizontal (saltation) et un flux vertical (sandblasting ou bombardement). La modélisation de ce processus est délicate car couvre de multiples échelles spatiales : proche de la surface, le processus d'érosion est à seuil et centimétrique. L'injection dans la couche de surface puis le mélange vertical dans la couche limite sont à plus grande échelle, de l'ordre de l'hétérogénéité de la surface. De nombreuses paramétrisations existent pour le calcul de ces flux d'émissions, avec des approches pouvant être très différentes. Mais elles ont toutes comme point commun d'être dépendantes de seuils. Et le concept de seuil est très dépendant de la résolution horizontale quand le processus est modélisé. Toute la difficulté de calcul de ces émissions va donc être liée au fait que l'on traite **un processus sensible et à seuil, très dépendant de la qualité des forçages météorologiques et de la résolution du modèle**. Pour paramétrer ces émissions, trois ingrédients vont être nécessaires : (1) la surface et sa rugosité (présence de végétation, de roches...), (2) la composition du sol (la minéralogie), (3) la météorologie près de la surface avec la turbulence, l'humidité du sol et le module du vent.

Caractérisation de la surface, du sol et de la rugosité

Le type de surface (*landuse*) et le type de sol vont conditionner la possibilité d'avoir une émission ou non. Les modèles utilisent des bases de données régionales ou globales, réalisées à partir de données satellites.

Ce sont les mêmes bases de données qui sont utilisées pour les modèles météorologiques ou les CTM. Parmi les bases de données utilisées, on peut citer pour le landuse : (1) U.S. Geological Survey Landuse (USGS), *Loveland et al.* (2000), avec une résolution de 1km sur le globe et 28 classes de surface (urbain, herbes, taillis, lacs, etc.). (2) GlobCover Land Cover : une carte à 300m de résolution, *Bicheron et al.* (2011). Elle contient 22 classes de type de surface et a été concue à partir du capteur MERIS sur la plate-forme satellite ENVISAT. La Figure 4.11 présente les pourcentages de type de surface pour deux catégories : le milieu urbain et les sols nus de la base de données USGS. La résolution de la grille est ici de 60km.

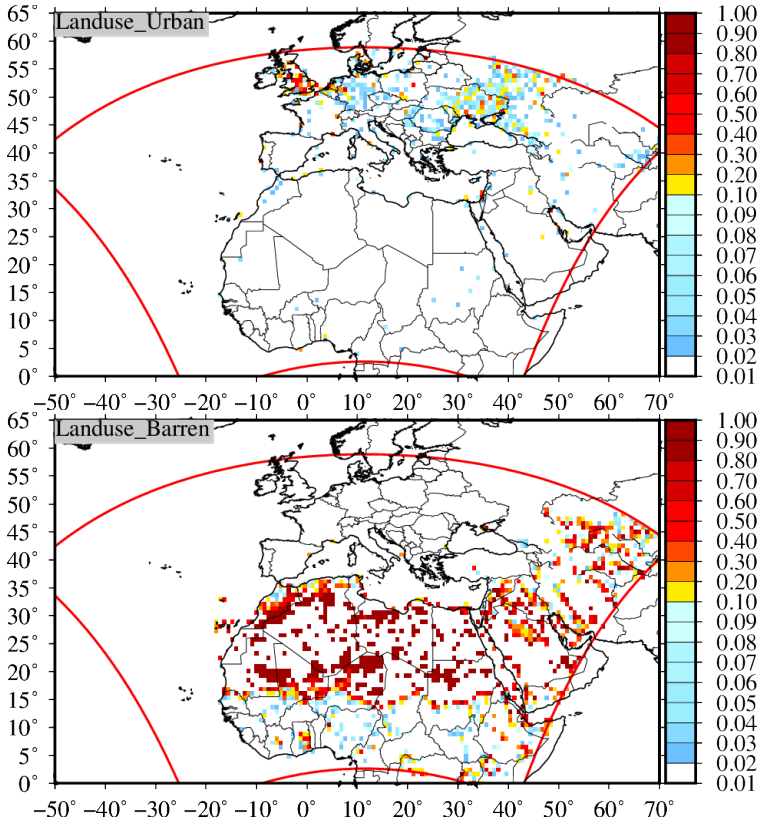


FIGURE 4.11 – *Cartes de l'occupation des surfaces et les fractions (entre 0 et 1) urbaines et de sol nu, réalisées avec la base de données USGS sur un domaine contenant le Nord de l'Afrique et l'Europe.*

Le type de sol nécessite d'être caractérisé pour savoir si le sol est composé plutôt de sable (*sand*), limon (*silt*) ou argile (*clay*). Les aérosols minéraux mis en suspension dans l'air sont principalement composés de sols avec du sable et de l'argile (après sa fragmentation), *Zobler* (1986). Pour le Sahara, une classification en quatre éléments a été proposée par *Chatenet et al.* (1996) avec des diamètres médians des sols tels que : D_p=125 μm pour les alumino-silicates (composés principalement d'argile), D_p=210 μm pour le sable fin (composé de quartz et d'autres minéraux) et D_p=690 μm pour le sable grossier (quartz). Plus récemment, des modélisations ont cherché à raffiner la composition minéralogique des sols comme *Claquin et al.* (1999), *Balkanski et al.* (2007) et *Menut et al.* (2020b). Cela permet d'accèder à la concentration en fer (pour la modélisation biogéochimique), de mieux prendre en compte les propriétés optiques des minéraux, d'avoir un transport avec des particules de densités différentes, et donc un meilleur dépôt. De plus, cela permet une comparaison complémentaire avec des observations de concentrations atmosphériques ou dépôts qui

peuvent être focalisées sur le fer ou le calcium. Pour la caractérisation de ces sols dans le calcul, on peut utiliser des bases de données globales comme la base STATSGO-FAO de USGS à 1km de résolution. Cette base contient 19 types de sols différents, qui sont des combinaisons de sable, limon et argile.

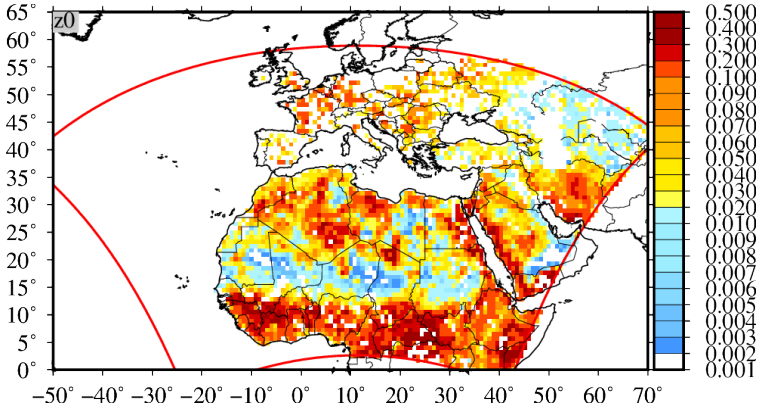


FIGURE 4.12 – *Cartes de la rugosité de saltation z_0 (cm).*

Le calcul des émissions nécessite aussi la caractérisation de la rugosité de saltation, z_0. Cette grandeur caractérise la rugosité à petite échelle spatiale (de l'ordre du cm) et est donc différente de la rugosité "dynamique" telle qu'elle est définie pour les modèles météorologiques. Les bases de données utilisées pour définir ce paramètre sont construites à partir de paramétrisations interprétant des données satellites. C'est le cas, par exemple, de la base de données GARLAP (Global Aeolian Roughness Lengths from ASCAT and PARASOL) développée par *Prigent et al.* (2012). La Figure 4.12 présente un exemple sur le même domaine de simulation. Les valeurs les plus faibles correspondent aux sols les moins rugueux, donc les plus susceptibles d'avoir une émission. La modélisation peut aussi utiliser des cartes d'érodibilité : à partir de données satellites, ces cartes à haute résolution spatiale caractérisent le fait que la surface soit érodable ou non, indépendamment du type de surface. Il faut donc coupler cette information au type de sol pour avoir des caractéristiques correctes pour l'émission, *Beegum et al.* (2016), *Menut et al.* (2013a). Enfin, le caractère saisonnier des émissions est aussi pris en compte en modérant les flux par la variabilité de la végétation.

La prise en compte de la météorologie

Pour le calcul des émissions de minéraux, quatre variables météorologiques sont nécessaires : le module du vent à 10m, U_{10m}, la vitesse de frottement u_*, les précipitations et l'humidité du sol, q_{soil}. Le module du vent est le moteur de l'émission et le choix d'avoir sa valeur à 10m du sol est lié aux paramétrisations initialement construites en fittant des mesures des réseaux. Pour la modélisation, cette variable est donc cruciale et sa précision va conditionner une bonne simulation ou non. Le module du vent étant très variable spatialement, plus la maille du modèle va être grande, plus la valeur moyenne du vent dans la maille sera inadaptée car de moins en moins représentative. Pour contrer ce problème, des modèles utilisent des distributions de vent, comme la distribution de Weibull, *Pryor et al.* (2005), *Menut* (2018) :

$$p(|U|) = \frac{k}{A}\left(\frac{|U|}{A}\right)^{k-1} exp\left[-\left(\frac{|U|}{A}\right)^{k}\right] \tag{4.7}$$

avec k la largeur de la distribution et A un facteur d'échelle, dans notre cas le module du vent. Les

précipitations et l'humidité du sol vont être des variables modératrices du flux. La prise en compte des précipitations permet de considérer les effets de crustation : après une pluie, les grains de sable montrent une plus grande cohésion entre eux que s'ils sont secs depuis longtemps et sont donc moins érodables. Pour prendre en compte cet effet, des modèles, comme le modèle CHIMERE, ajoutent une fonction f_p, qui est un facteur multiplicatif pour modérer le flux calculé. Ce facteur diminue avec les jours qui passent sans pluie, *Menut* (2018). La modélisation peut être simple comme par exemple :

$$f_p = E_{dust} \times \left(1 - exp\left(\frac{-\alpha \times \Delta t_p}{\tau}\right)\right) \tag{4.8}$$

avec α un facteur constant tel que α=6, Δt_p le temps passé depuis la dernière précipitation, τ la période après laquelle le flux reprend à 100% (τ=24h par exemple). L'humidité du sol est aussi un facteur modérateur de l'émission, les grains pouvat aussi être collés entre eux. Une paramétrisation employée dans les modèles pour calculer cette modération est la schéma de *Fecan et al.* (1999). Dans ce cas, ce n'est pas le flux final qui est modéré mais la vitesse de frottement seuil, u_*^T, qui est augmentée. Pour distinguer entre un sol sec et humide, on définit des vitesses de frottement seuil pour chacun des deux cas : u_*^{Td} et u_*^{Tw} (pour *dry* et *wet*). On a la relation :

$$u_*^{Tw} = f(w) \times u_*^{Td} \tag{4.9}$$

Le facteur $f(w)$ est estimé tel que :

$$\begin{cases} f(w) &= 1 & \text{for } w < w' \\ f(w) &= \left[1 + A\,(w - w')^{b'}\right]^{0.5} & \text{for } w > w' \end{cases} \tag{4.10}$$

avec A and b' des constantes à estimer (*Fecan et al.* (1999) propose A=1.21 and b'=0.68.). w (en kg.kg^{-1}) est l'humidié gravimétrique du sol et w' correspond à l'humidité minimum du sol au dela de laquelle la vitesse seuil augmente. La valeur de w' dépend principalement du contenu en argile du sol et on peut estimer sa valeur telle que :

$$w' = 0.0014(\%clay)^2 + 0.17(\%clay) \tag{4.11}$$

Un des paramètres de ce schéma est la vitesse de frottement seuil. Elle intervient dans le calcul des émissions de minéraux car les paramétrisations sont exprimées en vitesse de frottement, u_* (m/s), diagnostiqué à partir de la vitesse du vent à 10m. Différentes paramétrisations existent pour cette vitesse seuil, notée u_*^{Td}. Une des plus employée est celle de *Shao and Lu* (2000), décrite ici. On aura un flux de saltation de minéraux uniquement si $u_* > u_*^T(D_p)$ pour une particule de diamètre médian D_p. On définit tout d'abord la vitesse de frottement seuil 'lisse' u_*^{Ts} telle que :

$$u_*^{Ts}(D_p) = \sqrt{a_n \left(\frac{\rho_p g D_p}{\rho_{air}} + \frac{\gamma}{\rho_{air} D_p}\right)} \tag{4.12}$$

avec les constantes $a_n = 0.0123$ et γ=300 kg m^{-2}. La densité de la particule est prise en moyenne à ρ_p=2.65 10^3 kg m^{-3} et est représentative de la majorité des minéraux émis, le quartz. ρ_{air} est la densité de l'air, ici fixée à ρ_{air}=1.227 kg m^{-3}. g est l'accéleration de la gravité. On a donc u_*^T tel que :

$$u_*^{Td}(D_p) = \frac{u_*^{Ts}(D_p)}{f_{\text{eff}}(z_0, z_{0s})} \tag{4.13}$$

f_{eff} représente l'éfficacite de trainée (*drag efficiency*), une fonction dépendant du z_0 et de z_{0s}, la longueur de rugosité lisse :

$$f_{\text{eff}} = \left[1 - \left(\frac{ln(z_0/z_{0s})}{ln(0.35[(0.1/z_{0s})^{0.8}])}\right)\right] \tag{4.14}$$

Cette fonction permet de prendre en compte que les éléments non érodables (rochers) dissipent une partie de la quantité de mouvement du vent, modérant alors la saltation.

Le calcul des flux d'émissions

A partir de toutes les données précédemment décrites, une grande variété de schémas existe pour calculer les flux émis. Le flux va représenter dans la plupart des modèles, une espèce moyenne de minéral. Même si l'on dispose des informations sur la minéralogie, le calcul est unique, puis le flux est redistribué en fonction du pourcentage des minéraux. Ce n'est pas une approche exacte mais beaucoup plus rapide en temps de calcul : les flux de minéraux étant dépendants du vent, ils sont très variables et doivent donc être calculés dans les modèles de manière *online* et à la plus haute fréquence temporelle possible. On décrit ici trois approches différentes de calcul des flux.

Le schéma de *Marticorena and Bergametti* (1995) utilise l'équation de *White* (1986). L'émission unique est distribuée de manière fixe dans trois modes d'aérosols. L'équation de base du calcul du flux de saltation est :

$$F_h(D_p) = \frac{K\rho_{air}u_*^3}{g}\left(1 - \frac{u_*^T}{u_*}\right)\left(1 + \frac{u_*^T}{u_*}\right)^2 \tag{4.15}$$

avec u_* la vitesse de frottement de "saltation". u_*^T est la vitesse de frottement seuil, dépendante du diamètre des particules D_p et de z_0. On a donc un "flux horizontal" qui va être multiplié par un coefficient pour obtenir le "flux vertical" F_v c'est à dire la grandeur que l'on cherche à déterminer dans le modèle. Le coefficient α tel que $F_v = \alpha F_h$ est constant et dépendant uniquement du type de sol. Cette paramétrisation est donc simple et peu couteuse en temps de calcul.

Le schéma de *Alfaro and Gomes* (2001) utilise aussi le flux de saltation de *White* (1986) mais le flux vertical est calculé à partir de la turbulence, et la distribution en taille en dépend. Cela rend le schéma plus réaliste mais aussi plus long en temps de calcul. le schéma considère que le flux est selon trois modes en taille d'aérosol. D'après *Alfaro et al.* (1998), ces trois modes sont avec d_1=1.5 10^{-6}m, d_2=6.7 10^{-6}m and d_3=14.2 10^{-6}m. L'énergie cinétique de cohésion entre les grains est calculée : plus le vent augmente, plus l'énergie cinétique augmente. Les premiers grains émis sont les plus gros, ayant l'énergie de cohésion la plus faible. Puis, les grains les plus fins. Cette énergie cinétique est calculée telle que :

$$e_c = \rho_p \frac{100\pi}{3} D_p^3 \,(u_*)^2 \tag{4.16}$$

La valeur est comparée aux énergies de cohésion pour chacun des trois modes et le flux vertical de bombardement (*sandblasting*) est alors :

$$F_{v,m,i}(D_p) = \int_{D_p^{min}}^{D_p^{max}} \frac{\pi}{6}\rho_p\,\beta\,\frac{p_i(D_{p,i})d_{m,i}^3}{e_i} dF_h(D_{p,i}) \tag{4.17}$$

avec i=1,N_{class} le nombre d'intervalles de discrétisation de la taille des grains du sol.

Le schéma de *Kok et al.* (2014) calcule directement le flux vertical et la distribution de l'émission n'a qu'une seul mode.

$$F_d = C_d \times f_{bare} \times f_{clay} \times \frac{\rho_a \left(u_*^2 - u_{*t}^2\right)}{u_{*st}} \times \left(\frac{u_*}{u_{*t}}\right)^{C_\alpha \frac{u_{*st} - u_{*st0}}{u_{*st0}}} \tag{4.18}$$

avec f_{bare} et f_{clay} les fractions (0 :1) de sol nu et argileux. On a aussi :

$$u_{*st} = u_{*t} \times \sqrt{\frac{\rho_a}{\rho_{a0}}} \tag{4.19}$$

u_{*st0} représente u_{*st} pour un sol totalement érodable et est choisi tel que u_{*st0}=0.16 m s^{-1}. Le coefficient sans dimension C_α est tel que C_α=2.7. Le coefficient C_d représente l'érodibilité du sol tel que :

$$C_d = C_{d0} \times exp\left(-C_e \frac{u_{*st} - u_{*st0}}{u_{*st0}}\right) \tag{4.20}$$

avec les constantes adimensionnées C_e=2.0 et C_{d0}=4.4 10^{-5}. Le flux vertical est intégré sur toute la distribution en taille et redistribué dans une distribution à un seul mode et fixée.

$$\frac{dV_d}{dlnD_d} = \frac{D_d}{c_v}\left[1 + erf\left(\frac{ln(D_d/D_s)}{\sqrt{2}\, ln\sigma_s}\right)\right] exp\left[-\left(\frac{D_d}{\lambda}\right)^3\right] \tag{4.21}$$

avec V_d le volume normalisé des aérosols minéraux pour chaque diamètre médian D_p, C_v=12.62 μm, σ_s=3.0, D_s=3.4 μm et λ=12.0 μm.

Exemples de flux d'émissions

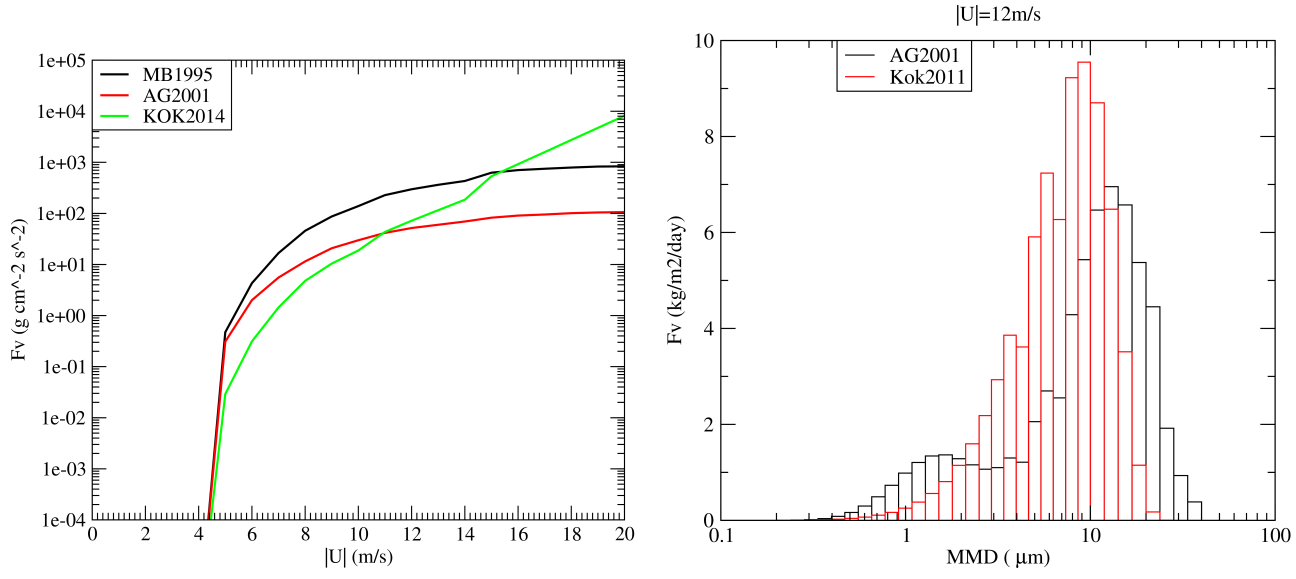


FIGURE 4.13 – *(à gauche) Flux d'émissions d'aérosols minéraux calculé avec trois paramétrisations. (à droite) Comparaison des distributions en taille d'un flux émis pour un vent de 12 m.s^{-1}.*

Différents exemples illustrent la grande variabilité du flux d'émissions calculé en fonction de certains paramètres de forçage ou des paramétrisations. Premier exemple, Figure 4.13(gauche), le flux est présenté

en fonction du module du vent. Il est calculé pour les trois schémas présentés précédemment. Les différences sont importantes et montrent la grande variabilité des résultats à conditions météorologiques et de surface identiques.

Le deuxième exemple, Figure 4.13(droite), présente un flux calculé pour un module du vent de 12 m.s^{-1} et avec les schémas de *Alfaro and Gomes* (2001) et *Kok et al.* (2014). La distribution en taille est choisie assez fine et cela permet de voir les différences entre les flux émis. On note la aussi une différence importante entre les résultats en fonction des paramétrisations, notamment sur la distribution en taille. Cela aura plusieurs impacts : (i) les propriétés optiques des aérosols seront différentes, notamment le calcul de l'épaisseur optique, (ii) le transport à longue distance sera différent, notamment avec la sédimentation (dépendante non-linéairement de la taille de l'aérosol)

Les émissions des aérosols minéraux sont un problème à seuil et de précision des données de surface et de physique à micro-échelle. Toute la difficulté en modélisation est de savoir transposer des calculs de turbulence à l'échelle centimétrique vers des mailles de plusieurs kilomètres. Pour combler cette différence d'échelle spatiale, les paramétrisations devront se développer en continuant à combiner des calculs déterministes et de la variabilité sous-maille, en tenant compte du caractère "à seuil" de ces émissions.

4.6 Les émissions des volcans

Généralités

Les émissions des volcans ne sont pas systématiquement calculées pour des simulations de pollution atmosphérique, comme cela est le cas pour les émissions anthropiques et biogéniques. Le caractère "exceptionnel" de ces émissions fait que les études qui y sont consacrées sont généralement (i) des études climatiques, (ii) des études d'impact sur un cas très particulier. La particularité de ces émissions est que l'injection de gaz et particules peut être très haut en altitude, à la fois dans la troposphère et la stratosphère. Ces émissions sont principalement composées de SO_2 qui pourra être converti sous forme de particules en H_2SO_4, Figure 4.14. L'impact sur le bilan radiatif peut être alors important comme cela a été le cas pendant l'éruption du Pinatubo en 1991, aux Philippines : un refoidissement de l'ordre de -0.6^{o}C a été estimé à cette latitude pendant les trois années qui ont suivi l'éruption.

Les ordres de grandeur de ces émissions volcaniques et de leur impact radiatif sont résumées dans le Tableau 4.2.

Altitude	Flux émis SO_2	Impact radiatif
Couche limite	≈70 Tg/an	-0.2 W/m^2
Troposphère	≈10 Tg/an	-0.3 W/m^2
Tropopause	≈1 Tg/an	-0.5 W/m^2

TABLE 4.2 – *Ordre de grandeur des émissions et de leur impact radiatif.*

Pour une quantité émise 70 fois inférieure aux activités humaines, le volcan peut avoir un impact radiatif deux fois plus important : cela est dû à l'altitude ou réside le panache mais aussi à son temps de résidence dans l'atmosphère. La modélisation des émissions de volcan a de nombreux points communs avec celle des feux de forêt : des gaz et particules sont injectés rapidement dans une colonne d'atmosphère pouvant atteindre la stratosphère, puis être transportés sur de longues distances et de longues périodes.

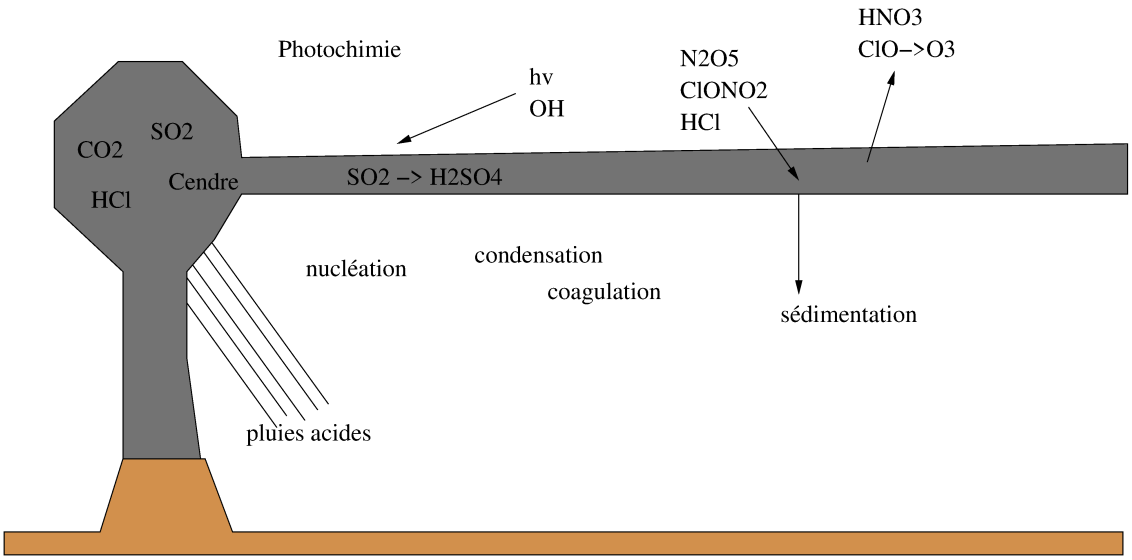


FIGURE 4.14 – *Les émissions volcaniques et la chimie associée dans le panache du volcan.*

Il y a moins d'incertitudes sur les émissions liées aux volcans que pour d'autres processus à modéliser : la source ne se déplace pas, la hauteur d'injection est facilement observable et la composition d'une éruption est relativement bien connue. La seule grande incertitude reste la masse émise et la forme du profil vertical d'injection. De plus récentes études montrent aussi une chimie dans le panache encore mal comprise.

Une éruption récente : le volcan Islandais en 2010

Le cas de l'éruption du volcan Islandais Eyjafjallajökull en Avril 2010 a attiré l'attention en Europe car il a provoqué l'interruption du trafic aérien. La question s'est aussi posée de retombées possibles de gaz et particules et donc d'impact sanitaire sur l'Europe. Cette éruption a fait l'objet de nombreuses études à la fois avec des mesures et de la modélisation.

Les mesures ont été réalisées avec de nombreux moyens différents. On note, par exemple, l'étude de *Sicard et al.* (2012) qui observe le panache au dessus de la péninsule Ibérique à l'aide de mesures lidars et photomètres de stations EARLINET. Il montre que le panache est assez fin (avec une épaisseur inférieure au kilomètre) et principalement concentré à une altitude de 11km. Son épaisseur optique est relativement faible (< 0.1). La composition du panache semble être mixte (cendres et non cendres) et sa concentration au maximum de 200 μg.m^{-3}. *Chazette et al.* (2012) utilise aussi des mesures lidars mais aérportées. Ils idemnifient aussi les principales caractéristiques optiques du panache et montrent que la concentration est comprise entre 140 et 250 μg.m^{-3} pour les minima et 1500 et 2300 μg.m^{-3} pour les maxima en fonction de la localisation du panache. Comme le montre la Figure 4.15, la mesure lidar permet de positionner le panache du volcan et de le différencier des nuages d'eau et glace. *Pappalardo et al.* (2013) complète ces observations lidar avec une analyse de l'ensemble des données du réseau Earlinet au dessus de l'Europe et, ce, pendant toute la période de l'évènement (15 avril - 26 Mai 2010). *Waquet et al.* (2014) analysent des données satellite de POLDER/PARASOL et documentent les propriétés optiques de l'áerosol. Ils montrent que près du volcan, l'aérosol a un rayon de 1.75 μm et un exposant d'Angstrom de 0. Alors que plus loin, dans un panache ayant déjà été transporté, l'aérosol est un mélange de sulfates et poussières volcaniques.

L'Angstrom est alors de 0.8. Ils notent que les particules sont non sphériques.

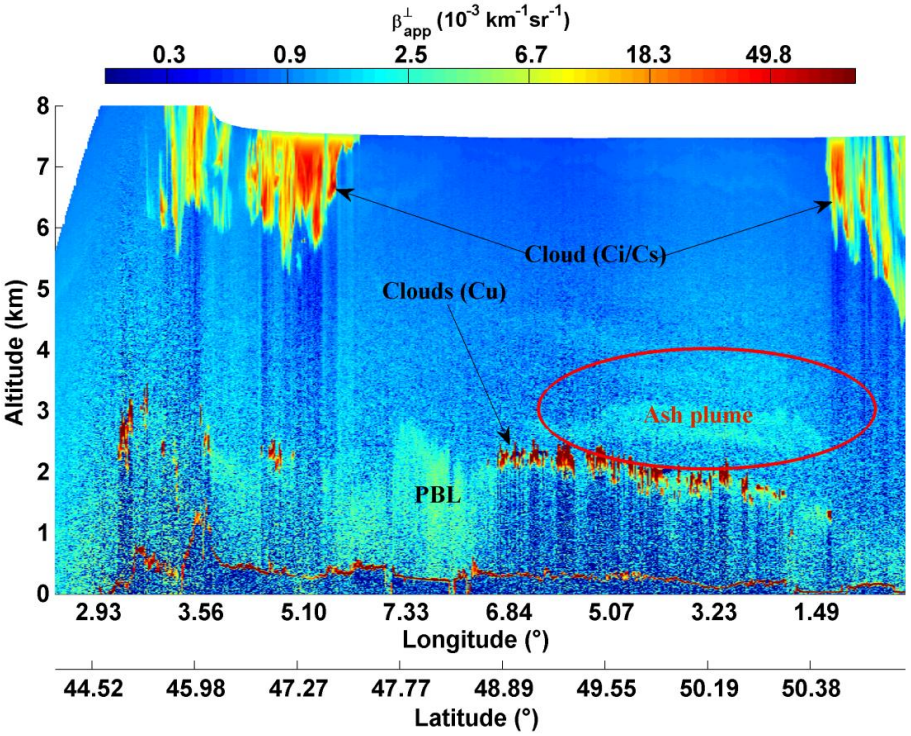


FIGURE 4.15 – *Suivi du panache volcanique au dessus de la France par mesure lidar aéroportée. La figure présente le signal rétrodiffusé β, d'après Chazette et al. (2012).*

Pour compléter les connaissances sur ce panache, des simulations de modèles de chimie-transport ont été réalisées. *Emeis et al.* (2011) simulent quelques jours après l'éruption à l'échelle de l'Allemagne et retrouvent les observations du panache avec le modèle MCCM. Ils montrent que la couche d'aérosols est realtivement fine et sédimente rapidement. En comparaison avec des mesures de surface, ils montrent que le modèle sait aussi reproduire les lieux et le moment ou le panache est intégré à la couche limite et donc ou les particules sont proches de la surface. Le même type d'étude avait été réalisé sur la France dans *Colette et al.* (2011). *Vogel et al.* (2014) réalisent des simulations sur l'Allemagne en utilisant des ensembles pour réduire l'incertitude sur le transport du panache. Ils utilisent la formulation suivante pour le terme source :

$$Q = 100 \times \frac{h}{8500}^{1/0.241} \tag{4.22}$$

avec h le sommet du panache à l'émission. Ce flux est prescrit de manière constante dans le temps. Cete formulation particulièrement simpliste montre le niveau de méconnaissance sur les émissions des volcans en terme de masse émise, étant non mesurable. Enfin, la modélisation peut permettre d'améliorer notre connaissance sur les émissions. A partir de nombreux scénarios et de comparaison aux mesures satellites IASI, *Boichu et al.* (2013) ont montré qu'il était possible de raffiner la temporalité de la période des émissions, le flux émis étant en réalité très changeant d'une heure à l'autre sur l'ensemble de la période. A noter : Les articles cités sur cette éruption sont lisibles dans une section spéciale du journal ACP : https ://acp.copernicus.org/articles/special_issue212.html.

Une éruption ancienne : le Laki en 1783

Un exemple d'illustration d'une étude sur une éruption volcanique majeure est l'étude du Laki en 1783. Il y a évidemment très peu de mesures mais l'éruption a eu un impact climatique majeur, dont les conséquences sur le long terme sont encore étudiées. L'éruption est soupçonnée d'avoir perturbé le climat sur plusieurs années, causant notamment des hivers très rudes suivis de famines, *Thordarson and Self* (2003), et donc ayant accru la mortalité, *Schmidt et al.* (2011). Pour comprendre à quel point cette éruption a pu être importante, des études ont cherché à reproduire l'évènement. L'étude de base est le travail de *Kington* (1988) : à partir de mesures de pression et température en surface en Europe, il a reconstruit des cartes de pression. A partir de ces cartes de pression, des études comme *D'Arrigo et al.* (2011) et *Yiou et al.* (2014) ont cherché à reproduire la météorologie de cette époque en cherchant des analogues. Cela a permis de modéliser l'évènement en utilisant des champs météorologiques globaux (car il a été montré que l'année 2010 était un bon analogue de 1783). A partir de ces simulations météorologiques, il est alors possible de chercher à mieux caractériser la chimie dans le panache, *Stevenson et al.* (2003) et son impact radiatif, *Highwood and Stevenson* (2003).

4.7 Les émissions des éclairs

Article open-access de référence: *Schumann and Huntrieser* (2007)

Les éclairs (ou flashs) sont une source importante de NO_x dans la troposphère. Ce processus est étudié depuis de nombreuses années, principalement à l'échelle mondiale, et les bases de la physique et de la chimie sont présentées dans des articles de synthèse tels que *Schumann and Huntrieser* (2007), *Price* (2013) et *Murray* (2016). On estime que cette source de NO_x représente 10% de tous les NO_x émis dans le monde, avec un maximum aux latitudes équatoriales *Albrecht et al.* (2016). La part relative du NO dans les NO_x est d'environ 75 %-95 % *Price et al.* (1997). Le principe des émissions de NO_x est détaillé dans *DeCaria et al.* (2000). Le NO est produit lorsque l'échauffement dû au flash induit une dissociation thermique de O_2 puis une recombinaison avec le diazote N_2, de manière similaire à ce qui se produit lors des processus de combustion. Le NO est rapidement oxydé pour former du NO_2 et un équilibre est atteint entre NO et NO_2. Dans les modèles, les schémas considèrent un équilibre instantané entre les deux espèces chimiques. L'impact de cette production sur la chimie atmosphérique est détaillé dans *Murray* (2016).

Pour quantifier ces émissions, de nombreux processus doivent être compris puis paramétrés. (i) Tout d'abord, il est nécessaire d'estimer le nombre d'éclairs. Pour cela, un lien entre la météorologie, la zone étudiée et les flashs doit être établi. (ii) Il est important de connaitre le type d'éclair : les émissions dépendront de la nature de l'éclair, Nuage-sol (CG) ou Intra-nuage (IC). (iii) Ensuite, il est nécessaire d'estimer la quantité de NO_x émise par un flash. (iv) Enfin, il est également nécessaire d'estimer la distribution verticale des émissions le long du flash (de la surface au sommet des nuages). Tous ces points sont très incertains et très peu d'observations sont disponibles pour contraindre les calculs, *Kang et al.* (2019b).

Pour le calcul du nombre d'éclairs, plusieurs types de paramétrisations existent, principalement basées sur trois approches. (i) Le schéma "Cloud Top Height" (CTH) de *Price and Rind* (1992), est basé sur une relation linéaire entre la hauteur des nuages et la fréquence des éclairs sur le continent. (ii) Les schémas de "précipitation convective" de *Meijer et al.* (2001), *Allen et al.* (2012), *Kang et al.* (2019a), *Kang et al.* (2020) par exemple avec le modèle communautaire multi-échelle de qualité de l'air (CMAQ) et (iii) le schéma de "flux de glace" de *Finney et al.* (2014). Ces schémas sont utilisés dans de nombreux modèles, avec quelques adaptations et facteurs d'échelle, en fonction des résolutions du modèle, des régions étudiées et des périodes de l'année. L'incertitude est si grande que de nombreuses études sont consacrées à la mise en oeuvre de plusieurs schémas et à leur comparaison entre eux, comme dans *Clark et al.* (2017) et *Gordillo-Vázquez*

et al. (2019). Ces comparaisons concluent rarement à un meilleur schéma, le nombre d'éclairs étant toujours prescrit après des comparaisons avec des observations telles que les observations par satellite de TRMM-LIS et OTD, présentées dans *Beirle et al.* (2010) et *Cecil et al.* (2014). On remarque que ces observations elles-mêmes restent très incertaines, *Marchand et al.* (2019).

L'abondance de NO_x modifie de manière non linéaire les concentrations de O_3 et de HO_x en fonction des régimes chimiques, *Schumann and Huntrieser* (2007) : à proximité des sources d'émission (comme les centres urbains), les NO_x fraichement émis (principalement à cause du NO) peuvent réduire les O_3 par titration ; tandis que les sources d'émission sous le vent, les O_3 peuvent être produits lorsque les NO_x et les COV sont présents avec le rayonnement solaire. Les réactions avec OH induisent une augmentation de NO_x et provoquent un forçage radiatif positif conduisant à un réchauffement via O_3. Les concentrations de NO_x dépendent aussi fortement de leur conversion en acide nitrique (HNO_3) et en nitrate particulaire (NO_3^-) : cela correspond au principal puits de NO_x via les dépôts secs et humides. L'impact des NO_x sur l'ozone va également dépendre de l'altitude des émissions via les régimes chimiques. Comme le souligne *Murray* (2016), la production de NO_x dans la troposphère libre augmentera les concentrations de OH, NO_3^-, H_2O_2 et d'ozone. Une plus grande quantité de NO_3^- atmosphérique augmente également son dépôt. La production d'éclairs a également un impact sur les aérosols, les NO_x étant oxydés avec OH en acide nitrique (HNO_3), puis condensés en nitrate d'ammonium (NH_4NO_3) en présence d'un excès d'ammoniac (NH_3), après neutralisation de l'aérosol de sulfate. L'impact net est une augmentation sous le vent de l'aérosol en raison des taux d'oxydation plus rapides du SO_2 en sulfate et du NO_x en nitrate. Il augmente également la conversion du DMS en SO_2, puis en aérosol de sulfate dans les environnements marins. Concernant le nitrate, les interactions complexes entre la chimie, le climat et la foudre sont décrites dans *Tost* (2017). Ils montrent d'abord que le NO_x des éclairs est une source importante de nitrate dans la haute troposphère. Il a également un impact sur la formation de sulfate en phase gazeuse, puis sur la distribution de taille des aérosols, puis sur les propriétés d'extinction des aérosols et des nuages, puis sur une diminution du rayonnement de courte longueur d'onde. D'autre part, certaines études décrivent l'impact des aérosols sur la production de NO_x par la foudre à travers les effets directs et indirects des aérosols *Wang et al.* (2018).

La fréquence des éclairs

à partir du sommet des nuages

Un schéma parmi les plus populaires pour calculer les émissions dans une colonne atmosphérique est le schéma de *Price and Rind* (1993). Il a été implémenté dans différents modèles comme par *Wong et al.* (2013), *Finney et al.* (2014) et *Menut et al.* (2020a). La condition préalable est d'utiliser un schéma de diagnostic de convection profonde pour évaluer l'occurrence des nuages convectifs. Si des nuages convectifs sont diagnostiqués, leur altitude supérieure est évaluée et directement utilisée dans la paramétrisation pour estimer la localisation et la fréquence des éclairs. Il s'agit de l'approche dite de la hauteur du sommet des nuages (CTH) :

$$\left\{ \begin{array}{rcl} F_c & = & 3.44 \times 10^{-5} \times H^{4.9} \\ F_m & = & 6.40 \times 10^{-4} \times H^{1.73} \end{array} \right. \tag{4.23}$$

avec F_c et F_m les fréquences des éclairs (# mn^{-1} 25 km^{-2}), *Banerjee et al.* (2014), avec c pour continental et m pour maritime. H est le sommet du nuage convectif (en km). Un facteur d'échelle, *Price and Rind* (1994), concu pour tenir compte de la résolution du modèle est appliqué :

$$c_{pr} = 0,97241 \ \ \exp(0,048203 \times \Delta\lambda \times \Delta\Phi) \tag{4.24}$$

où $\Delta\lambda$ et $\Delta\Phi$ sont les dimensions de la cellule en latitude et longitude respectivement, exprimées en degrés. En pratique, sauf pour des résolutions très grossières, ce facteur évolue autour de 0.97 et a en pratique un faible impact sur les résultats, comparé aux incertitudes de tous les autres paramètres. Ces incertitudes sont généralement compensées par des facteurs d'ajustement pour rapprocher le modèle des observations, comme décrit dans *Gordillo-Vázquez et al.* (2019). Ce type de schéma CTH a été largement testé (par exemple, *Wong et al.* (2013)). Par exemple, *Finney et al.* (2014) a utilisé un facteur d'échelle supplémentaire de α=0,05 pour ajuster le nombre d'éclairs après comparaison avec les données satellitaires annuelles mondiales. Pour chaque cellule du modèle, le pourcentage relatif de mer x_{sea} est estimé en utilisant le masque terre-mer de la base de données d'utilisation des terres. Ensuite, la fréquence des éclairs est estimée comme suit

$$F = c_{pr} \times (x_{sea} \times F_m + (1 - x_{sea}) \times F_c) \tag{4.25}$$

avec F le nombre final d'éclairs, divisé par la surface de la cellule pour avoir le nombre par km^2, donc en (# mn^{-1} km^2). Pour chaque éclair, il est nécessaire d'estimer la part relative "dans le nuage" (IC) et "du nuage au sol" (CG). Cette estimation est d'abord basée sur l'estimation de la profondeur de la glace du nuage, H$_{fr}$, proposée par *Price and Rind* (1993) et calculée comme :

$$H_{fr}(km) = -6,64 \times 10^{-5}|L|^2 - 4,73 \times 10^{-3}|L| + 7.34 \tag{4.26}$$

avec L la latitude en degrés. Notez que leur ajustement n'a été fourni que pour l'hémisphère nord. Afin d'avoir une relation symétrique pour les deux hémisphères, la valeur absolue de la latitude est utilisée. H_{fr} est utilisé pour calculer le paramètre β :

$$\beta = 0.021H_{fr}^4 - 0,648H_{fr}^3 + 7.493H_{fr}^2 - 36.54H_{fr} + 63.09 \tag{4.27}$$

p est défini comme la part relative de CG dans le total (IC+CG) et est défini comme $p = 1/(1 + \beta)$. Notons que β est utilisé avec des valeurs limites et doit être $1 < \beta < 50$. Cela correspond à 5.5 km $<$ H$_{fr}$ $<$ 14 km et cela permet d'éviter des valeurs irréalistes.

A partir des précipitations convectives

Meijer et al. (2001) proposent une paramétrisation basée sur les précipitations convectives. Ce schéma est calé à partir de corrélations avec des variables météorologiques calculées par le modèle de ECMWF et comparées à des mesures de la campagne EULINOX en Europe et pendant l'été 1998. Hypothèse pour distinguer les nuages convectifs : tous les nuages dont la base est inférieure à 700 hPa et dont l'épaisseur est inférieure à 5km sont considérés comme convectifs. Leur analyse statistique donne finalement la relation :

$$F_c = 14700 \times CP + 1.7 \tag{4.28}$$

où F_c est le nombre de flash et CP la précipitation convective (en mm ou m selon *Finney et al.* (2014)). Ils considèrent ensuite la valeur constante de l'énergie d'un flash : 10^{16} molecules NO/J. La production de NO se produit pendant la phase de retour du flash du nuage vers le sol. En moyenne, l'énergie déployée est de 6.7 10^8J. *Allen et al.* (2009) utilisent le même principe dans le modèle CMAQ. La production est calculée telle que :

$$LNO_x = k \times LF \times E \times P \tag{4.29}$$

avec : LF la fréquence des flashs, E l'énergie d'un flash, P la production de NO par unité d'énergie, k un facteur de conversion tel que $k = M_w(NO)/Avog$ (M_w la masse moléculaire de l'azote N). Contrairement

à d'autres schémas, cette étude considère que $E_{IC} = E_{CG}$. Ils utilisent la constante P= 500 moles N par flash. Il faut ensuite estimer la fréquence des flashs pour chaque maille du modèle :

$$LF(i,j) = G \times \alpha(i,j) \times (P_{conv} - T_{prec}) \tag{4.30}$$

avec P_{conv} le taux de précipitation convective (mm/h), G et $\alpha(i,j)$ des facteurs d'ajustement (à l'échelle globale et régionale, respectivement), T_{prec} une valeur seuil en deca de laquelle il n'y a pas de flash (valeur inconnue). Si le schéma de *Allen et al.* (2009) est simple sur le principe, il n'y a pas assez d'informations dans l'article pour l'utiliser. Notamment, ils utilisent des données d'observation du réseau mNLDN (monthly National Lightning Detection Network) local aux Etats-Unis pour caler les constantes. Ce schéma est utilisé par *Appel et al.* (2011) dans CMAQ mais l'article manque aussi de précision suffisante pour l'utiliser. *Allen et al.* (2012) reprend son schéma et donne plus de précisions : le seuil est mis à 0, le taux de précipitation convective est considéré uniquement pour une pression inférieure à 450 hPa. Pas d'informations sur les autres constantes d'ajustement, qui sont estimées à partir de mesures sur les US pour des périodes particulières. Les résultats montrent que sans 'local scaling' (ou ajustement sous-maille) utilisant des mesures radar, les résultats uniquement basés sur l'altitude du sommet du nuage convectif sont assez biaisés. Si le schéma de *Meijer et al.* (2001) est simple et utilisable tel quel, celui de *Allen et al.* (2009) et *Allen et al.* (2012) n'est pas assez détaillé dans les articles pour être utilisable.

A partir du flux de glace

Finney et al. (2014) propose une approche basée sur le flux montant (upward) de glace. Leur schéma a été calé à partir de simulations ECMWF. Comme pour le schéma de *Allen and Pickering* (2002), ils considèrent comme dans l'article de *Allen and Pickering* (2002) que le niveau de pression 440 hPa est représentatif des mouvements verticaux dans l'ensemble du nuage. Pour leur schéma, le flux de masse de glace montant, ϕ_{ice} ($kg_{ice}m^{-2}_{cloud}s^{-1}$) est estimé à cette altitude, avec la relation :

$$\phi_{ice} = \frac{q \times \Phi_{mass}}{c} \tag{4.31}$$

avec les variables à 440hPa : q le contenu en eau-glace dans le nuage (*specifc cloud ice water content*), ($kg_{ice}kg^{-1}_{air}$), Φ_{mass} le flux de masse ascendant (*updraught mass flux*), ($kg_{air}m^{-2}_{cell}s^{-1}$), c la fraction nuageuse (*fractional cloud cover*), ($m^2_{cloud}m^{-2}_{cell}$). Le flux ϕ_{ice} prend la valeur zéro quand $c < 0.01m^2_{cloud}m^{-2}_{cell}$. La relation entre le flux en glace et les flashs est établie à partir de données LRMTS (*LIS-OTD low-resolution monthly time series*). Cela permet de faire une régression entre les deux et d'obtenir :

$$\begin{cases} f_l &= 6.58 \times 10^{-7}\ \phi_{ice} \\ f_o &= 9.08 \times 10^{-8}\ \phi_{ice} \end{cases} \tag{4.32}$$

avec f_l et f_o la densité de flashs ($fl.m^{-2}_{cell}s^{-1}$) au dessus de la terre et de l'océan.

Modèles de nuages résolus

Barthe and Barth (2008) proposent un schéma dédié aux nuages résolus *"Cloud Resolving Models"* (CRM) et l'implémentent dans WRF. Ce schéma fait la distinction entre la glace précipitante ou non dans le calcul du taux de flashs :

$$F_{MF} = 1.13 \times 10^{-15} \times f_{np} \times f_p \tag{4.33}$$

avec F_{MF} le taux de flash (fl.min^{-1}) calculé à partir des flux de glace en masse précipitant et non précipitants : f_p (kg m s^{-1}) et non précipitant f_{np} (kg s^{-1}). La constante (1.13) a été déterminée par ajustement avec des données de la campagne STERAO. Toujours à haute résolution, *Gressent et al.* (2016) implémentent un plume-in-grid dand Meso-NH pour mieux prendre en compte la chimie spécifique à une injection massive de NO_x dans la haute troposphère. Ils montrent que cette variabilité sous-maille induit une variation de $\pm$ 20% pour les NO_x et $\pm$ 5% pour l'ozone.

Estimation de la production de NO

Estimation des masses émises

Schumann and Huntrieser (2007) publie une review et montre que les émissions globales annuelles de NO_x par les éclairs vont de 3 à 20 Tg(N) an^{-1}. Il montre aussi qu'un flash typique émet 15 (2-40) $\times$ 10^{25} molecules de NO. Enfin, il montre que la production par les éclairs représente $\approx$ 10% de la production globale dont $\approx$ 4% à la latitude 35^{o}N-60 ^{o}N. *DeCaria et al.* (2000) calcule la production de NO à partir de la taille de l'ćlair, de la pression atmosphérique et de différentes constantes évaluées lors d'éxpériences en laboratoire. Pour relier la fréquence des flashs à une concentration de NO_x, *Price et al.* (1997) proposent :

$$\begin{cases} P(CG) &= 6.7 \times 10^{26} \text{ molecules NO} \\ P(IC) &= 6.7 \times 10^{25} \text{ molecules NO} \end{cases} \tag{4.34}$$

D'après *Mari et al.* (2006), ces valeurs correspondent aux valeurs hautes par rapport aux autres publications sur le sujet. Finalement, le terme de production dans les ascendances est :

$$\frac{\partial NO}{\partial t} = c_{pr} \left(P(IC) \times \frac{\beta\, f_f}{1+\beta} + P(CG) \times \frac{f_f}{1+\beta} \right) \tag{4.35}$$

Barthe and Barth (2008) reprend le schéma de *Wang et al.* (1998) avec :

$$n_{NO}(P) = a + b \times P \tag{4.36}$$

avec n_{NO} le nombre de molécules de NO produites par flash (molecules m^{-1}), P la pression (Pa), $a = 0.34 \times 10^{21}$ et $b = 1.3 \times 10^{21}$. *Barret et al.* (2010) réalise une inter-comparaison de modèles sur la région du projet *"African Monsoon Multidisciplinary Analysis"* (AMMA), *Lebel et al.* (2010). Quatre modèles sont impliqués, utilisant des paramétrisations différentes. Mais, on notera que le coeur de chaque paramétrisation est toujours basé soit sur *Price and Rind* (1992) (Cloud-top-Height) soit sur *Meijer et al.* (2001) (les précipitations convectives). La comparaison de profils d'ozone est faite avec des données MOZAIC. La conclusion est que les modèles reproduisent les observations de manière qualitative et que de grandes différences sont relevées entre modèles.

La part relative entre CG et IC

La production de NO_x diffère de manière importante selon que l'éclair reste dans le nuage (IC) ou va du nuage vers le sol (CG). Une relation polynomiale de *Price and Rind* (1993) reliant l'épaisseur de la couche nuageuse de glace, H_{fr} (km), au ratio entre IC et CG (IC=intra-cloud pour les éclairs dans le nuage et CG=cloud to ground) est utilisée dans plusieurs études dont *Wong et al.* (2013) telle que :

$$\beta(\%) = \frac{CG}{IC+CG} = 0.021 H_{fr}^4 - 0.648 H_{fr}^3 + 7.493 H_{fr}^2 - 36.54 H_{fr} + 63.09 \tag{4.37}$$

avec β un paramètre borné tel que : $1 < \beta < 50$. Cela conduit à l'épaisseur telle qu'elle a été observée : $5.5km < H_{fr} < 14km$. La détermination de l'épaisseur H_{fr} a aussi été estimée à partir de mesures, telle que :

$$H_{fr}(km) = -6.64 \times 10^{-5} L^2 - 4.73 \times 10^{-3} L + 7.34 \tag{4.38}$$

avec L la latitude en degrés. *Finney et al.* (2016) considèrent par contre qu'il n'y a pas de différence entre IC et CG. Selon eux, la relation entre le nombre de flashs et l'émissions de NO_x est donc : (i) Un flash produit 1.2 GJ, (ii) La production de NO est de 12.6 $\times 10^{16}$ NO molecules J^{-1}.

Le profil vertical d'émission

Le profil vertical d'émissions semble être difficile à quantifier mais très sensible sur les résultats, *DeCaria et al.* (2000), car : (i) le temps de vie des NO_x est plus important dans la haute troposphère (HT), (ii) l'efficacité de production de l'ozone est plus grande dans la HT. *DeCaria et al.* (2000) utilisent des distributions à un mode (CG) ou deux modes (IC). *Schumann and Huntrieser* (2007) comparent différentes approches pour la détermination de la forme du profil vertical. La forme la plus employée est le "C-shaped profile" et correspond au profil paramétrisé par *Pickering et al.* (1998) : deux pics, un dans la basse troposphère et un dans la haute troposphère. Mais *Ott et al.* (2010) considèrent que cette forme met trop d'émissions près de la surface et pas assez dans la troposphère : ils proposent un profil vertical avec des valeurs faibles dans la basse troposphère. *Mari et al.* (2006) inclut le calcul de la forme du profil vertical des NO_x dans le schéma de convection profonde de Meso-NH. L'approche est validée à petite échelle spatio-temporelle en comparant les calculs à des mesures avions de la campagne TROCCINOX (Bauru, latitude tropicale, Mars 2004). Dans leur étude, la valeur des NO_x produits reprend *Price and Rind* (1992), mais avec des améliorations des mêmes auteurs.

Intercomparaisons et observations

Inter-comparaisons de paramétrisations

Tost et al. (2007) implémentent différents schémas dans le modèle ECHAM5. Ils concluent qu'aucun des schémas n'est meilleur que l'autre en comparaison avec des observations. Il montre que chaque schéma est composé de tellement de constantes ajustées que l'ensemble rend tous les schémas très incertains. *Finney et al.* (2014) intercompare les différents schémas connus à son nouveau schéma basé sur les flux de glace. Même type d'étude par *Luo et al.* (2017) qui compare les schémas d'émissions ainsi que des profils verticaux. Ils concluent que la paramétrisation la plus robuste reste celle de *Price and Rind* (1992) car elle utilise des variables dynamiques robustes alors que les autres utilisent des résultats de paramétrisations (précipitation convective, updraft mass flux, diagnostics de microphysique) plus incertains.

Estimation de la production de NO_x à partir d'observations

Deux types d'observations sont couramment utilisées :

- Les données de réseau de surface comme le National Lightning Detection Network (NLDN) aux Etats-Unis. Seuls les flashs CG sont détectés
- Les données satellites : il n'y a pas de distinction possible entre IC et CG

Boersma et al. (2005) utilise l'inversion des profils de NO_2 du spectromètre du satellite GOME pour quantifier la production de NO_x corrélée aux éclairs. A partir des mesures, ils confirment les choix de

Price and Rind (1992), ainsi que le maximum local de production au sommet des nuages convectifs. Ils trouvent un ratio 1.6/1 entre la production de nuages convectifs (pour la même valeur de H) entre la terre et la mer. Ils testent deux paramétrisations différentes de calcul de production par les éclairs et comparent les résultats des paramétrisations aux profils de GOME. Ils proposent des coefficients correctifs pour les paramétrisations après comparaison aux observations. Cependant ces coefficients sont très dépendants de la période et de la localisation de l'étude et sont peu généralisables. *Höller et al.* (2009) utilisent des mesures d'un système LINET (lightning detection network) pour quantifier la fréquence des éclairs au Brésil, en Afrique et en Australie. *Beirle et al.* (2010) utilisent des données satellite SCIAMACHY pour quantifier l'efficacité de production de NO_x par éclairs. Ils trouvent que les estimations précédentes sont sur-évaluées par rapport à leurs résultats, principalement car : (i) les articles publiés étudiaient surtout des cas de forte production pour être illustratifs, (ii) la plupart des études étaient faites aux Etats-Unis considérés comme non représentatif au niveau global. *Peterson and Beasley* (2011) étudient l'effet potentiel de la catalyse des NO_x lorsque l'éclair traverse des cristaux de glace. Ils considèrent que prendre en compte ce mécanisme augmenterait la production de NO_x, notamment dans les flashs IC et donc réduirait la différence entre IC et CG. *Kaynak et al.* (2008) utilisent directement les données de la base US National Lightning Detection Network et simule ces éclairs avec MM5 et CMAQ. Cette base de données ne couvre que les Etats-Unis. Les résultats sur deux mois d'été et pour l'ozone montre des différences très faibles pour les simulations avec-sans éclairs. *Miyazaki et al.* (2014) assimilent des données OMI, MLS, MOPITT dans un CTM pour ajuster le flux de NO_x. Ce flux est estimé avec le schéma de *Price and Rind* (1993). Ils trouvent une masse annuelle plus faible que les estimations précédentes, 6.3 TgN yr^{-1}. Ils montrent aussi que le satellite peut améliorer le profil vertical de NO_x émis et que les schémas habituellement utilisé sur-estime l'altitude du pic du profil de 1km en moyenne.

Globalement, le calcul de ces émissions reste très incertain et l'utilisation de données ne peut apporter que des informations très parcellaires. Même si ces émissions ne sont pas en surface, elles restent d'importance pour la compréhension de la chimie atmosphérique et font partie des plus incertaines actuellement. Avec des mesures, on sait à peu près positionner les éclairs (mais pas toujours si les nuages sont très occultants) et l'altitude maximale du nuage. Par contre, on ne sait pas mesurer le flux émis ni la forme du profil vertical.

4.8 Les émissions marines naturelles

Article open-access de référence: *Gantt and Meskhidze* (2013), *Grythe et al.* (2014)

Sels de mer

Les émissions marines sont principalement des émissions de sels de mer. Ce sont des aérosols composés chimiquement de Na et Cl et qui sont arrachés de la surface de l'océan sous l'effet de la friction du vent. Emis en très grande quantité (mais avec une masse globale assez inconnue), ils ont un effet important sur le bilan radiatif terrestre, *Lundgren et al.* (2013). Ils ne sont cependant pas les plus nocifs en terme de santé et de pollution atmosphérique. Par contre, pour toutes les régions cotières, il peuvent être largement advectés au dessus des terres et doivent donc être considérés dans la mod'elisation de la pollution, car entrent dans le bilan de masse des particules, *Im* (2013).

Le processus d'émission par arrachement des sels de mers ("*sea spray aerosols, SSA*") est décrit dans l'article de revue de *Grythe et al.* (2014). Leur taille peut varier avec un diamètre médian en masse (*Mean*

Mass Median Diameter, MMD) de 10 nm à quelques millimètres. Leur temps de résidence dans l'atmosphère peut varier de quelques secondes à quelques jours. Le facteur déterminant de l'émission est le vent près de la surface : provoquant la mise en place de vagues, c'est leur crête ("*spume*") qui va induire l'émission d'aérosols (noté "effet direct"). Un autre phénomène lié à l'éclatement de bulles d'air ("*bubbles*") provoque aussi une émission (noté "effet indirect"). Il a tout d'abord été montré que le flux émis était proportionnel au vent à 10m. Les premiers schémas n'avaient que cette dépendance. Plus récemment il a été montré une dépendance à la température de surface de la mer (SST). Enfin, des schémas plus récents prennent en compte la salinité, celle-ci pouvant influencer la densité des crêtes des vagues ainsi que la composition chimique de l'áerosol émis. Le schéma d'émission le plus employé est probablement celui de *Monahan* (1986), ne dépendant que du vent :

$$\frac{dF}{dr} = \frac{1.373 \times U_{10}^{3.41}}{r^3} \left(1 + 0.057 r^{1.05}\right) 10^{1.19 e^{-B^2}} \tag{4.39}$$

$$\text{avec } B = \frac{0.38 - log(r)}{0.65} \tag{4.40}$$

F est le flux émis en (particles m^{-2} s^{-1} μm^{-1}), r est le rayon de la particule (μm), U_{10} le vent à 10m (m s^{-1}). Le flux est calculé avec quelques limitations : la distribution en taille est fixée et le flux n'est calculé que pour $U_{10} < 30 m s^{-1}$. Comme le note *Grini et al.* (2002), ce processus représente uniquement le mécanisme indirect (*bubbles bursting*). Originellement, ce schéma est prévu uniquement pour des aérosols avec $D_p > 0.8 \mu m$. Pour représenter aussi les particules fines, d'autres schémas ont été proposés par *Martensson et al.* (2003) et *Grythe et al.* (2014). Ces schémas calculent aussi une distribution en taille variable. Le schéma de *Martensson et al.* (2003) est cependant limité pour $D_p < 2.8 \mu m$. Le schéma de *Grythe et al.* (2014) est :

$$\begin{aligned} \frac{dF(D_p, U_{10}, T)}{dD_p} &= T_w . \left[235 . U_{10}^{3.5} exp\left(-0.55 \left[ln\left(\frac{D_p}{0.1} \right) \right]^2 \right) \right. \\ &+ 0.2 U_{10}^{3.5} exp\left(-1.5 \left[ln\left(\frac{D_p}{2} \right) \right]^2 \right) \\ &+ \left. 6.8 U_{10}^{3.0} exp\left(-1.0 \left[ln\left(\frac{D_p}{30} \right) \right]^2 \right) \right] \end{aligned}$$

avec T_w (K) la dépendance en température de la production d'aérosol, pour une température T donnée, telle que :

$$T_w(T) = 0.3 + 0.1\,T - 0.0076\,T^2 + 0.00021\,T^3 \tag{4.41}$$

L'hypothèse de calcul est pour une humidité relative de 80%, signifiant que le rayon humide est deux fois plus important que le rayon sec de l'aérosol. Pour ces schémas d'émissions, le processus est principalement dynamiques et peu de données d'entrée sont nécessaires. La connaissance nécessaire est le masque terre-mer, généralement déjà connu dans le domaine de simulation. Pour les schémas les plus récents, incluant l'influence de la salinité, il est cependant nécessaire d'avoir cette information, soit sous forme de carte soit sous forme d'un couplage avec un modèle d'océan. A partir d'une valeur de flux calculé, il reste à distribuer le nombre d'aérosols en espèces chimiques, *van den Berg et al.* (2000). Selon *Seinfeld and Pandis* (2006), la spéciation chimique est de l'ordre de 30.6% de sodium (Na^+), 55.04% de chlore (*chlorine*) (Cl^-) et 14.4% d'autres composés inorganiques. *Grythe et al.* (2014) détaille plus cette spéciation avec 55% de Cl^-, 31% de Na^+, 8% de SO_4^{2-}, 4% de Mg^{2+}, 1% de Ca^{2+} et 1% de K^+

Le diméthylsulfure

Le sulfure de diméthyle ou diméthylsulfure (DMS) (en anglais *dimethylsulfide*) est une source océanique de dioxyde de soufre atmosphérique, SO_2. Il a un impact sur la formation nuageuse en pouvant jouer le rôle de noyaux de condensation. le flux émis est paramétré en considérant qu'il correspond à une fraction du DMS acqueux présent à la surface des océans. Pour calculer le flux, il est donc nécessaire d'avoir une carte de concentrations de surface, comme celle constituée par *Lana et al.* (2011). Cette carte globale est en moyenne mensuelle et de résolution au degré. La dépendance temporelle et en latitude est liée à la production de DMS acqueux par l'activité planctonique, elle-même dépendante de la température et de l'ensoleillement. Le calcul du flux peut s'exprimer, selon *Zavarsky et al.* (2018) :

$$F = -k.\left(\frac{c_{air}}{H} - c_{water}\right) \tag{4.42}$$

avec k (m s^{-1}) une vitesse de transfert, c_{air} et c_{water} les concentrations de DMS dans l'air (phase gaz) et l'océan (phase liquide). H est la constante de Henry représentant la solubilité du gaz et dépendante de la température de surface de la mer (SST) et de la salinité. Une hypothèse simplificatrice souvent employée est de considérer que la concentration dans l'eau est très supérieure à celle dans l'air, conduisant à :

$$F = k.c_{water} \tag{4.43}$$

Pour calculer la vitesse de transfert k, différents schémas ont été développés comme ceux de *Liss and Merlivat* (1986), *Wanninkhof* (1992) et *Nightingale et al.* (2000). Plus récemment, *Elliott* (2009) a fait un composite des précédents en utilisant les relations de *Kettle and Andreae* (2000), liant le vent et la SST via le calcul du nombre de Schmidt pour le DMS. Une fois que le DMS est émis dans l'atmosphère, il va réagir chimiquement en étant oxydé le jour par le radical OH et la nuit par le radical NO_3 pour produire du SO_2 puis du SO_4^{2-}.

Dans un contexte d'étude de la pollution régionale, les émissions marines naturelles sont un processus du second ordre. Elles prennent une importance relative en concentration près des côtes mais ne sont pas dans les émissions les plus intenses. De plus, leur composition ne présentant pas un risque important pour la santé, elle ne font pas partie des priorités d'étude pour la prévision ou l'analyse de la pollution atmosphérique régionale.

4.9 Le pollen

Article open-access de référence: *Sofiev et al.* (2013a)

Le pollen est un bon exemple de polluant, de type aérosols, encore peu étudié, mais à forte augmentation de sa concentration ces dernières années. D'un point de vue impact sur la santé, il a la particularité d'être facilement identifiable, car provoquant des allergies reconnaissables dès les premiers jours de son émission et transport. La modélisation du pollen reprend les grands principes exposés en chimie-transport mais avec plus de processus à considérer et plus d'incertitudes pour chacun de ces processus. C'est donc actuellement un domaine encore mal connu et un enjeu pour la modélisation de chimie-transport. Les "pollens" sont une famille de grains de natures différentes, les taxons. Actuellement, principalement quatre taxons différents sont modélisés pour leur important pouvoir allergisant : le bouleau (*birch*), l'olivier (*olive*), l'ambroisie (*ragweed*) et l'herbe (*grass*).

La Figure 4.16 illustre les différents processus du cycle de vie du pollen. La première difficulté est relative aux **émissions** : selon le type de pollen, les émissions seront dûes à des plantes près du sol ou à des

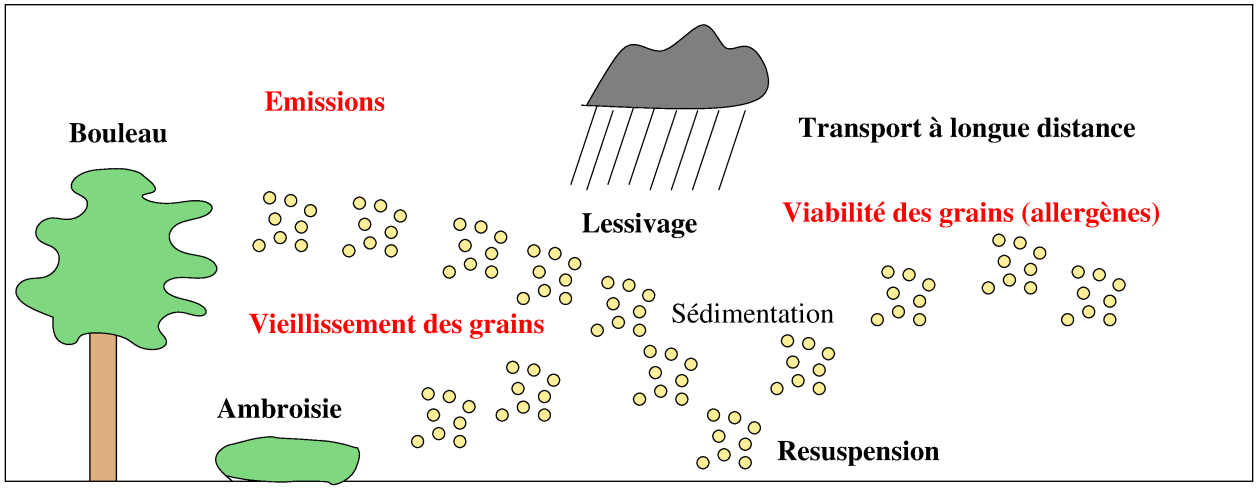


FIGURE 4.16 – *Principe général de la modélisation des pollens.*

arbres. On peut alors avoir une hauteur d'injection des émissions entre 0 et 15m dans le modèle. A chaque pollen, on aura une plante émettrice qui a aussi un cycle de vie différent : la difficulté sera de détecter le début de la pollinisation et sa durée. Le début de la période est souvent à calculer à partir d'un cumul de température sur les mois précédents : contrairement à la pollution, pour bien simuler une saison pollinique, il faut débuter la simulation (le *spin-up*) longtemps à l'avance. Typiquement, pour une saison débutant en Mars d'une année, il faut commencer la simulation en Octobre de l'année précédente. Il faut aussi estimer la quantité de grains qui vont être émis. Pour certains pollens, comme l'ambroisie, la plante émettrice est une plante "vivace" c'est à dire se répandant rapidement d'une saison à l'autre. Il est difficile de réaliser des cadastres d'émissions : il n'y a pas de moyens de télédétection pour recenser les plantes. De plus, les plantes vivaces, en se déplacant et se répandant, rendent chaque cadastre obsolète dès l'année suivante. Le deuxième enjeu est la **modélisation du transport** : contrairement aux aérosols de pollution, les grains de pollen sont plus gros, mais moins dense donc plus léger. Cependant, les hypothèses des modèles de chimie-transport sur l'advection restent à priori valables, *Sofiev et al.* (2006). Lorsque les aérosols sont déposés au sol, le pourcentage de leur possible resuspension est faible. Ce n'est pas le cas pour les pollens : secs et légers, ils peuvent très facilement revenir dans l'atmosphère. Mais cette resuspension va aussi dépendre de leur vieillissement : le grain agé se déssèche, devient plus petit et plus dense et se resuspend donc moins facilement. Le troisième enjeu est le **pouvoir allergisant du pollen**. En fonction du type de plante, le pollen va être plus ou moins allergisant. Cette propriété allergénique va aussi décroitre avec le vieillissement du grain. Enfin, il semblerait que des plantes émettent des grains qui sont allergisants certaines années mais pas d'autres.

Les émissions des grains de pollens sont l'étape la plus difficile pour cette modélisation : elles dépendent de la météorologie mais aussi de la phénologie des plantes. A l'atmosphère, il faut donc ajouter une dimension de modèle de végétation. Des études montrent que les concentrations de CO_2 et O_3 peuvent avoir un impact sur les émissions, *Rogers et al.* (2006), *Darbah et al.* (2008) mais cela n'est pas encore considéré dans les modèles. Pour décrire les fonctions utilisées dans la plupart des modèles, on prend exemple sur la paramétrisation de *Sofiev et al.* (2013a) implémentée dans le modèle SILAM pour les émissions de bouleau et olivier. Pour calculer les émissions, il faut d'abord estimer la date de début et de fin de la saison de pollinisation en fonction du taxon étudié. L'estimation de la date de début de pollinisation est basé sur un

concept de calcul de cumul de température jusqu'à atteindre un seuil : le *heat-sum concept*. Ce cumul, H, démarre au jour 60 de l'année. Pour chaque taxon et chaque maille du modèle, on définit une carte de seuil de cumul, H_{start}, qui va définir le début de la saison. Cette valeur doit être spatialisée car semble variable avec la latitude. Le taux d'émission de pollen, $R(t)$, augmente en fonction du cumul H et du temps t. La fin de la saison des émissions se fait soit en calculant une durée moyenne de période, soit en définissant une quantité à émettre, N_{tot}, représentant le contenu des chatons *catkins*, et en laissant l'émission se faire jusqu'à ce qu'ils soient vides. Enfin, il faut redistribuer cette masse, heure par heure afin de pouvoir estimer le flux surfacique en (grains.m^{-2}.h^{-1}). On notera que l'émission débutera si $H > H_{start}$ mais aussi si la température dépasse une valeur critique prédéfinie $T > T_{co}$ et pour des conditions météorogiques sèches, c'est à dire sans précipitation et à humidité faible. La température T_{co} est définie comme une température de coupure, entre 0 et 3^{o}C et dépendante des études publiées. Pour certains modèles, sont pris en compte aussi des facteurs "accélérant" la date de début comme le module du vent et la turbulence qui arrache mécaniquement les pollens. Finalement, le calcul du flux d'émissions s'exprime :

$$\begin{aligned} E(t,i,j) &= N_{tot}.\phi(i,j).\frac{T-T_{co}}{\Delta H}.f_{wind}(U,w^*).F_{in}\left(\frac{H}{H_{start}}\right) \\ &. \quad F_{out}\left(\frac{R(t)}{N_{tot}}\right).f_{th}(q).f_{th}(P) \end{aligned} \tag{4.44}$$

avec $E(t,i,j)$ le flux émis en (grains m^{-2} h^{-1}) pour une heure donnée et une maille de modèle (i,j), N_{tot} le nombre total de grains émis sur 1 m^2 pendant toute la saison, ϕ(i,j) la fraction de surface des plantes émettrices dans une maille de modèle (i,j), $(T-T_{co})/\Delta H$ l'intensité de l'émission dépendante de la température, F_{in} la fraction du flux émis dépendante de l'avancement au cours de la saison, F_{out} la fraction du flux émis dépendante de ce qui a déjà été émis par rapport au total disponible, f_{wind} une fonction de pondération liée au vent et f_{th} une fonction de pondération liée à l'humidité et les précipitations. Les fonctions f_{wind} et f_{th} ont des valeurs entre 0 et 1. La fonction f_{wind} décrit une augmentation de lémission liée à un vent fort avec :

$$f_{wind} = f_{windmax} - exp\frac{-(U+w_*)}{U_s} \tag{4.45}$$

avec U le module du vent à l'altitude d'émission, w_* la vitesse verticale convective, $f_{windmax}$ représente l'intensité de l'impact du vent (pour le bouleau, $f_{windmax}$=1.5 m s^{-1}) et U_s représente la valeur maximale de vent ayant un impact sur l'émission (pour le bouleau, U_s=5 m s^{-1}). La fonction f_{th} est une fraction limitante de l'émission avec :

$$f_{th} = \begin{cases} 1 & \text{if } x \leqslant x_{min} \\ \dfrac{x_{max}-x}{x_{max}-x_{min}} & \text{if } x_{min} < x << x_{max} \\ 0 & \text{if } x \geqslant x_{max} \end{cases} \tag{4.46}$$

avec : x représente l'humidité relative q (%) ou la précipitation P (mm h^{-1}). Les valeurs utilisées pour définir ces fonctions linéaires sont q_{min}=50%, q_{max}=80%, P_{min}=0 et P_{max}=0.5 mm h^{-1}. Pour le calcul des émissions d'ambroisie, d'autres types de formulations existent comme *Makra et al.* (2004), *Helbig et al.* (2004), *Efstathiou et al.* (2011), *Prank et al.* (2013) ou *Zink et al.* (2013). En prenant exemple sur la paramétrisation de *Efstathiou et al.* (2011), on a :

$$F = a.K_e\frac{P}{LAI.H}u_* \tag{4.47}$$

avec : a =5.10^4 est une constante d'ajustement, K_e est un facteur variable en temps et représentant une fonction limitante dûe à la météorologie, P est la production journalière de grains par m^{-2}, LAI est l'indice foliaire (*Leaf Area Index*) et il est choisi ici comme constant (LAI=3 m^2 m^{-2}) et H est la hauteur de la plante (choisie aussi comme constante avec H=1m.

Ces flux d'émissions restent très incertains. La plupart des modèles actuels ajustent les flux calculés en rejouant des années précédentes ou il y a des observations et en calant les flux à partir des mesures. Mais ce thème de recherche est en grande évolution actuellement, l'impact sur la santé étant assez identifiable, rapide et agressif (allergies et asthme). Des processus physiques restent encore largement inconnus : la resuspension du grain de pollen, son vieillissement et son déssèchement, sa capacité allergène en fonction du temps et du transport. Et, au final, la question du modèle de transport lui-même peut se poser : l'hypothèse utilisée pour les gaz et aérosols en pollution atteint ici ses limites : peut-on considérer que la particule est encore assez petite pour faire l'hypothèse qu'elle se déplace strictement à la vitesse de l'écoulement ?

4.10 En résumé pour les émissions

Les incertitudes d'estimation des émissions sont donc différentes en fonction du temps, de l'espace, du polluant émis. Pour résumer les différentes incertitudes présentées dans ce chapitre :

- Il n'y a pas d'émissions plus incertaines que d'autres. Les émissions sont tellement variables que l'incertitude attachée à un flux va dépendre non seulement de la méthode d'estimation mais aussi de la résolution spatiale et temporelle de la base de données que l'on cherche à calculer.
- La nature des émissions induit des méthodologies différentes d'estimation : les émissions anthropiques seront principalement diagnostiquées à partir de bases de données comptabilisant les sources une à une, alors que les émissions naturelles seront basées sur des paramétrisations, elles-mêmes basées sur des bases de données représentant le sol et la surface.
- Pour calculer des émissions, il faut donc déjà un modèle, avant même d'utiliser un CTM pour calculer les concentrations : on multiplie donc les incertitudes. Sachant que l'on ne peut finalement comparer que des concentrations atmosphériques, il faut garder à l'esprit que les cadastres d'émissions que l'on utilise seront dépendants du modèle d'émission mais aussi du CTM (et de sa résolution) utilisé pour qualifier la pertinence des flux émis.

5 Les dépôts

Les espèces chimiques modélisées peuvent être supprimées du bilan atmosphérique par dépôt sec ou humide. Ces deux processus sont particulièrement importants à représenter mais font l'objet de moins d'études de modélisation que les émissions ou le transport, par exemple.

5.1 Le dépôt sec

Article open-access de référence: *Pleim and Ran* (2011)

La paramétrisation du dépôt sec est une illustration de la nécessité d'avoir les paramètres turbulents dynamiques à disposition. Le principe du dépôt sec est le calcul d'une vitesse de sédimentation, que ce soit pour les gaz ou particules. Pour quantifier ce dépôt, la paramétrisation la plus classique, *Wesely* (1989), reprend l'idée des résistances électriques montées en série. Comme cette vitesse de chute est avant du haut vers le bas, seules les composantes verticales de l'écoulement interviennent dans la paramétrisation. Sur un axe vertical, on peut découper la basse atmosphère en couches verticales superposées, Figure 5.1.

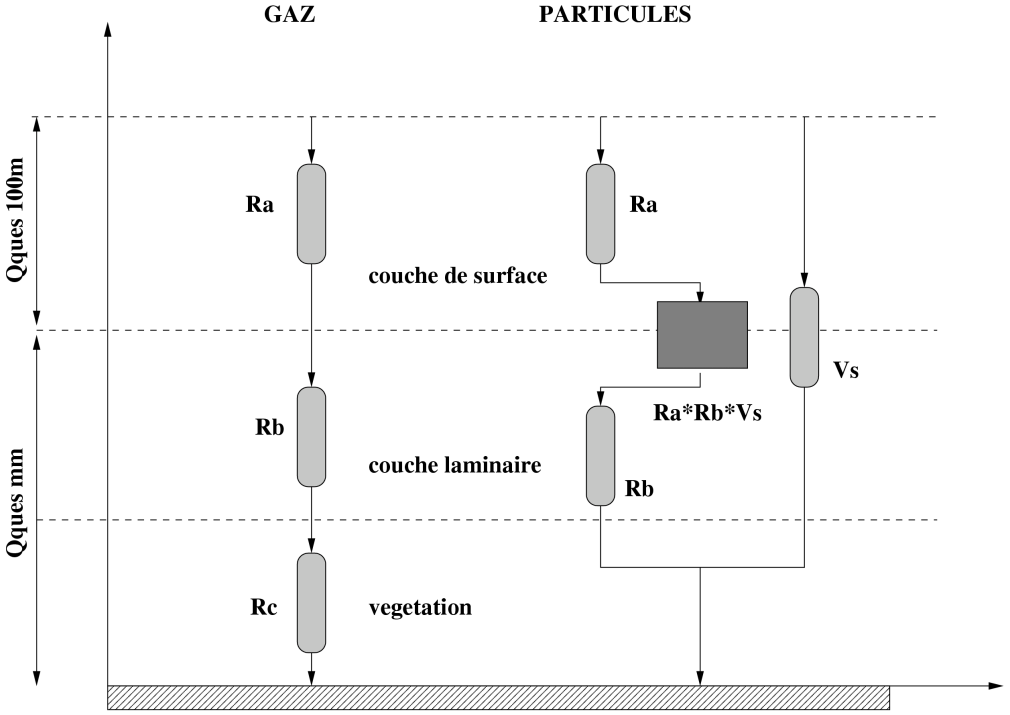


FIGURE 5.1 – *Principe général du schéma de calcul du dépôt sec des gaz et particules.*

A chaque niveau vertical, on peut créer une résistance qui dépend de paramètres relatifs à l'état de l'atmosphère (stabilité ou instabilité), la rugosité de la surface et le type de végétation. Si toutes les résistances

sucessivement rencontrées par une particule sont faibles, la particule chute et se dépose. Si l'une des résistances est forte, alors la particule est stoppée dans sa chute et ne se dépose pas. La contribution de cet effet sur la concentration c d'une particule va donc intervenir uniquement selon la composante verticale z, telle que :

$$\Delta c = \frac{\partial}{\partial z}(v_d.c) \tag{5.1}$$

avec v_d la vitesse de dépôt. Le dépôt d'une espèce (gaz ou aérosol) doit son origine à trois phénomènes différents :

- La diffusion turbulente dans la couche de surface peut ramener cette particule vers le sol, on doit donc connaitre la résistance aérodynamique r_a.
- Une fine couche de surface diffusante, appelée couche laminaire, très mince (de l'ordre de 0,1 cm), mais ayant une importante contribution. On doit donc calculer la résistance de surface r_b. Dans le cas des aérosols, on ajoute la détermination d'une vitesse de sédimentation v_s.
- Pour les gaz, la solubilité de l'espèce chimique dans cette couche laminaire, induisant la détermination de la résistance de transfert dans la canopée r_c.

Pour les espèces gazeuses, la vitesse de dépôt (m.s^{-1}) s'exprimera :

$$v_d = \frac{1}{r_a + r_b + r_c} \tag{5.2}$$

Pour les aérosols, v_d sera selon *Wesely* (1989) :

$$v_d = v_s + \frac{1}{r_a + r_b + r_a r_b v_s} \tag{5.3}$$

et selon une approche alternative proposée par *Zhang et al.* (2001) :

$$v_d = v_s + \frac{1}{r_a + r_s} \tag{5.4}$$

avec r_s la résistance de surface, dépendante de la végétation. Un exemple de calcul de vitesse de dépôt pour les aérosols est présenté Figure 5.2. On peut voir qu'un minimum de vitesse est atteint pour des particules ayant un diamètre de 0.2 μm.

Résistance aérodynamique r_a

Commun aux gaz et particules, la résistance aérodynamique r_a est le reflet de la turbulence près de la surface. Plus la turbulence est forte, moins la particule va sédimenter. Cette résistance va dépendre des paramètres météorologiques comme : la stabilité atmosphérique, via la longueur de Monin-Obukhov L, la vitesse de frottement u_*, la longueur de rugosité dynamique z_{0m} et le module du vent $|U|$:

$$r_a = \frac{1}{C_D |U|} \tag{5.5}$$

avec C_D le coefficient de résistance aérodynamique de transfert de quantité de mouvement, tel que :

$$C_D = \frac{k^2}{\left[ln\left(\frac{z}{z_{0m}}\right) - \Psi_M\left(\frac{z}{L}\right)\right]^2} \tag{5.6}$$

et où Ψ_M est la fonction de stabilité dépendante de la stabilité atmosphérique dans la couche de surface.

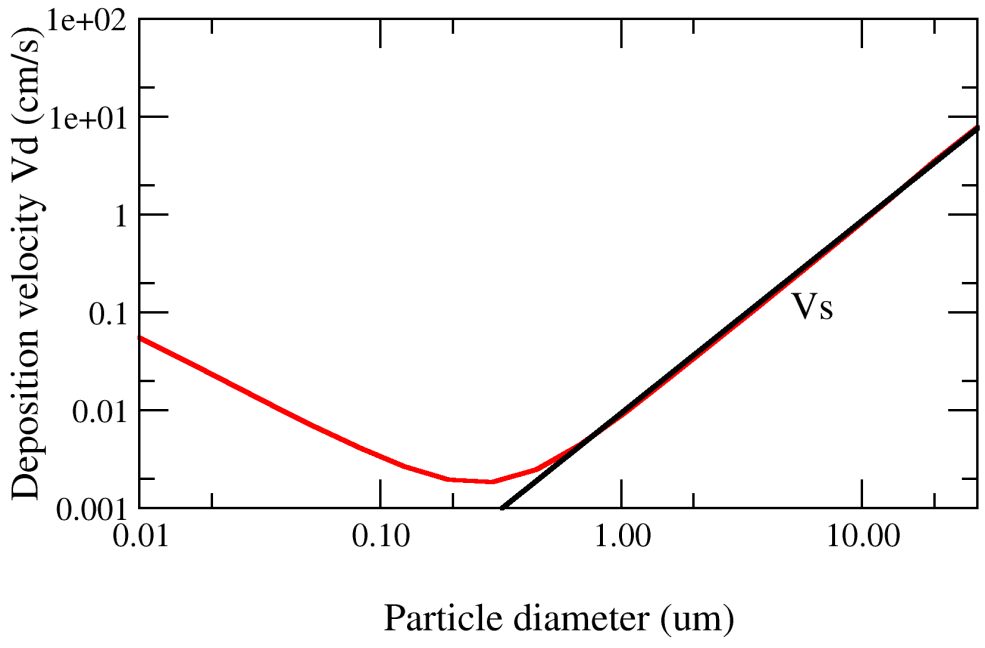


FIGURE 5.2 – *Vitesse de dépôt sec (en rouge) calculée pour les différentes tailles de particules utilisées par le modèle. La vitesse de sédimentation est la partie de la courbe en noir.*

Résistance de surface r_b

La résistance de surface va s'exprimer différemment pour les gaz et les aérosols. Pour les espèces gazeuses, r_b dépend de la vitesse de frottement u_*, de la longueur de rugosité du polluant étudié z_c et la longueur de rugosité dynamique z_{0m}. Cette résistance va être un mélange d'impact de la turbulence et de caractéristique du gaz ou de la particule considérée.

$$r_b = \frac{1}{ku_*} ln \left(\frac{z_{0m}}{z_c} \right) \tag{5.7}$$

Cette relation peut être approximée, selon *Hicks et al.* (1987), telle que :

$$r_b = \frac{2}{ku_*} \left(\frac{S_c}{P_r} \right)^{2/3} \tag{5.8}$$

avec S_c et P_r les nombres de Schmidt et Prandtl turbulents respectivement. Pour un gaz, on a $S_c = \nu_{air}/D_i$ avec ν_{air} la viscosité cinématique de l'air et D_i la diffusivité moléculaire de l'espèce i. On a $\nu_{air} = \mu_{air}/\rho_{air}$ avec μ_{air} (kg.m^{-1}.s^{-1}) la viscosité dynamique de l'air.

$$\mu = \mu_0 \frac{T_0 + C}{T + C} \left(\frac{T}{T_0} \right)^{3/2} \tag{5.9}$$

avec les valeurs de référence pour l'air T_0=291.15 K, C=120 K and μ_0=18.27 10^{-6} Pa.s (i.e. kg.m^{-1}.s^{-1}).

Pour les aérosols, r_b dépend tout d'abord du diamètre de la particule et représente l'effet conjugué de trois résistances différentes : la diffusin Brownienne, l'impaction des particules et l'interception, *Seinfeld and Pandis* (2006), tel que :

$$r_b = \frac{1}{u_* \left(S_c^{-2/3} + 10^{-3/S_t} \right)} \tag{5.10}$$

avec S_t le nombre de Stokes number et S_c le nombre de Schmidt (sans dimension). Pour les aérosols, la diffusivité dans le nombre de Schmidt sera considérée comme une diffusion Brownienne et sera estimée selon la relation de Stokes-Einstein :

$$D_i = \frac{k_B \times T \times C_c}{3 \times \pi \times \mu_{air} \times D_p} \tag{5.11}$$

avec k_B la constante de Boltzmann, $k_B = 1.38065 \times 10^{-23}$ J.K^{-1} (avec 1 J = 1 kg.m^2.s^{-1}). Le nombre de Stokes est calculé :

$$S_t = \frac{v_s \times u_*^2}{g \times \nu_{air}} \tag{5.12}$$

avec v_s la vitesse de sédimentation. Cette vitesse, dite aussi gravitationnelle, est calculée uniquement dans le cas des particules. Elle représente l'effet de la gravité et va agir graduellement sur une particule en suspension. La particule va chuter de plus en plus vite jusqu'a atteindre une vitesse seuil, notée v_s (*terminal settling velocity*). Il a été montré que cette vitesse seuil était très rapidement atteinte : pour des particules de diamètre allant de 0.05 μm à 50 μm, le temps caractéristique s'étend de 4×10^{-8} à 7.7×10^{-3}s, *Seinfeld and Pandis* (2006). Par rapport au temps d'intégration du modèle (≈1h), nous considérerons que v_s est atteinte instantanément et s'exprime :

$$v_s = \frac{1}{18} \frac{D_p^2 \rho_p g C_c}{\mu} \tag{5.13}$$

avec ρ_p la densité de la particule, D_p son diamètre médian (MMD), C_c un coefficient de glissement *(slip correction factor)*, l'accélération gravitationelle, g=9.81 m.s^{-1} et la viscosité cinématique de l'air, $\mu = 1.8 \times 10^{-5}$ kg m^{-1} s^{-1}. Le coefficient C_c s'applique pour compenser un manque lié à la formulation de Stokes, permettant de calculer la force de trainée de l'air sur une particule. Originellement, cette formulation de Stokes s'écrit :

$$F_{drag} = \frac{1}{8} \pi C_D A_p \rho u_\infty^2 \tag{5.14}$$

Les paramètres employés sont : A_p le rapport d'aspect de la particule vis à vis de l'écoulement. Evidemment, dans le cas de particules sphériques, ce terme est constant (mais nous n'aurons pas à le déterminer ici). u_∞ est la vitesse de l'écoulement (ou de la particule dans un milieu fixe) et μ la viscosité cinématique de l'air. Cependant, quand le diamètre de la particule D_p devient du même ordre de grandeur que le libre parcours moyen des particules (λ), la force de trainée est plus faible que lorsque qu'elle est exprimée selon Stokes, équation 5.14. Elle peut donc être réecrite :

$$F_{drag} = \frac{3\pi\mu u_\infty D_p}{C_c} \tag{5.15}$$

avec :

$$C_c = 1 + \frac{2\lambda}{D_p}\left[1.257 + 0.4exp\left(-\frac{1.1D_p}{2\lambda}\right)\right] \tag{5.16}$$

La difficulté d'estimer λ a motivé la mise en place d'expériences permettant de tabuler directement C_c en fonction de D_p (pour une particule sphérique et T=298K). Cette fonction a une asymptote en $C_c = 1$ pour $D_p \rightarrow +\infty$. On notera que cette formulation corrective n'agit pas lorsque la particule a une taille supérieure à 10μm. Par contre, pour une particule de diamètre inférieur à 0.1μm, l'impact de cette correction réduit F_{drag} d'un facteur 3. Il est donc nécessaire d'estimer λ. Le calcul du libre parcours moyen des particules peut aussi être considéré (en première approximation) comme étant égal au libre parcours moyen de l'air. La plupart des modèles utilisent une valeur moyenne $\lambda = 6.6 \times 10^{-6}$ cm. On peut aussi estimer plus précisément la valeur de λ en utilisant la relation suivante, permettant de prendre en compte la dépendance en pression (très sensible) et en température (peu sensible) :

$$\lambda = \frac{2\mu_{\text{air}}}{p\sqrt{\frac{8M_{\text{air}}}{\pi RT}}} \tag{5.17}$$

avec : M_{air} le poids moléculaire de l'air (28.8), T la température (en Kelvin), p la pression en Pa, μ_{air} la viscosité de l'air ($\mu_{\text{air}} = 1.7210^{-4} gcm^{-1}s^{-1}$). Le calcul de λ montre que sa valeur est décroissante avec la pression, allant de 4.10^{-6} cm pour une pression de 2.10^4 Pa à 10^{-6} cm pour une pression de 10^5 Pa.

Résistance de canopée r_c

La résistance de canopée n'est présente que pour les espèces gazeuses puisque représente l'absorption du gaz par la végétation. Elle dépend de nombreux facteurs liés aux échanges entre des plantes et la couche d'air juste au dessus. Une formulation largement utilisée dans les modèles est celle de *Erisman et al.* (1994) et les développements faits dans le modèle EMEP (*Emberson et al.* (2000), *Simpson et al.* (2012)). La formulation utilise différentes résistances et des paramètres chimiques sont nécessaires, *Erisman et al.* (1994). La formulation de *Erisman et al.* (1994) est :

$$r_c = \left[\frac{1}{r_{sto} + r_m} + \frac{1}{r_{inc} + r_{soil}} + \frac{1}{r_{ext}}\right]^{-1} \tag{5.18}$$

avec r_{sto} la résistance stomatale de canopée, r_m la résistance mésophylle, r_{soil} la résistance du sol, r_{inc} la résistance aérodynamique dans la canopée, r_{ext} la résistance des cuticules. En fonction du type de surface, certains raccourcis sont faits dans le calcul si la maille représente des surfaces liquides, r_c=r_{wat} ou des sols nus (roches, sable) r_c=r_{soil} ou des surfaces enneigées : r_c=r_{snow}. Selon le schéma utilisé dans *Simpson et al.* (2003), une distinction est faite entre la résistance de canopée moyenne (*bulk canopy resistance*) R (et sa conductance associée $G_c = 1/R$) et la résistance de surface de la feuille (*unit-leaf-area*) r (et sa conductance $g = 1/r_{sto}$). La conductance de canopée se formule :

$$G_c = LAI \times g_{sto} + G_{ns} \tag{5.19}$$

avec LAI l'indice foliaire (*Leaf Area Index* en $m^2.m^{-2}$), g_{sto} la conductance stomatale, G_{ns} la conductance non-stomatale. L'indice foliaire nécessite des bases de données, sous formes de cartes et pour des périodes, idéalement mensuelles. Cette donnée va représenter la variabilité de la surface pour cette résistance.

Le dépôt sec dépend de l'état de la surface et de la turbulence dans la couche de surface. Ce processus mélange des processus de petite échelle, de l'échelle moléculaire à l'échelle de la feuille pour les gaz. De nombreux processus sont encore mal connus et donc mal représentés dans les modèles : l'influence de la canopée sur la turbulence près du sol, la capacité des sols à ré-émettre un gaz qui venait d'être déposé. Quelques modèles existent mais ils sont encore très complexes, à petite échelle spatiale et donc pas encore utilisés dans les modèles de pollution régionaux. De nombreux développements ainsi que la mise en place de nombreuses mesures dédiées restent encore à faire sur le sujet du dépôt sec.

5.2 Le dépôt humide

Article open-access de référence: *Zhang et al.* (2019)

Le dépôt humide décrit de manière générale tous les processus conduisant à éliminer de l'atmosphère des gaz et aérosols par le biais de processus incluant de l'eau : précipitations, captation dans les nuages, chute de neige, brouillard, *Fowler et al.* (2009). Trois types de puits différents sont considérés, Figure 5.3 : (i) La captation par l'eau nuageuse (*in-cloud scavenging*) qui décrit la capacité d'un gaz ou aérosol à être absorbé ou devenir un noyau de condensation au sein d'un nuage avant une précipitation. (ii) Le lessivage par les précipitations (*below-cloud scavenging*) qui décrit un gaz ou une particule entrainé sous le nuage par des gouttes d'eau précipitantes, (iii) le lessivage dans les ascendances convectives, *Brasseur and Jacob* (2017), *Seinfeld and Pandis* (2006). Dans chacun des cas, ce dépôt est considéré comme un puit terminal. Contrairement aux émissions dont la masse totale est inconnue mais libre, le dépôt ne peut agir que sur les concentrations dans l'air : il est donc limité à ce qui est déjà présent. En modélisation, la pertinence du calcul du dépôt humide va dépendre (i) de la facon dont on modélise l'impact d'une goutte d'eau sur une molécule ou une particule, (ii) en amont, de la capacité du modèle à bien représenter les nuages et les précipitations.

Ce processus est un terme de puit qui s'exprime :

$$\frac{\partial c}{\partial t} = -\lambda c \tag{5.20}$$

avec λ le coefficient de lessivage (*"scavenging coefficient"*) en s^{-1}, *Tsyro* (2002). A priori, c'est un puit réversible, *Seinfeld and Pandis* (2006). Mais en pratique, par simplification, la plupart des modèles le considèrent comme un puit terminal pour les espèces.

Dans les colonnes convectives

Le lessivage dans les colonnes convectives est lié à l'entrainement d'espèces gaz et particules dans les updrafts lors d'évènements de convection profonde, *Mari et al.* (2000), *Yang et al.* (2015). En fonction de l'altitude, le type de lessivage devra prendre en compte les différentes phases possibles entre les nuages chauds (eau liquide) à la base et les nuages froids au sommet (glace).

Dans le nuage

Le lessivage dans le nuage (*in-cloud scavenging* ou *rainout*) a été formalisé, notamment, par *Giorgi* (1986) pour un modèle global de circulation générale. Ce schéma reste une référence très employée dans les modèles. *Guelle et al.* (1998) a pu montrer avec des simulations sur les aérosols minéraux, l'importance de la prise en compte de ce processus. Les gaz et aérosols peuvent être captés par le nuage selon deux processus différents : pour les espèces gazeuses, uniquement les solubles sont considérées car elle se dissolvent

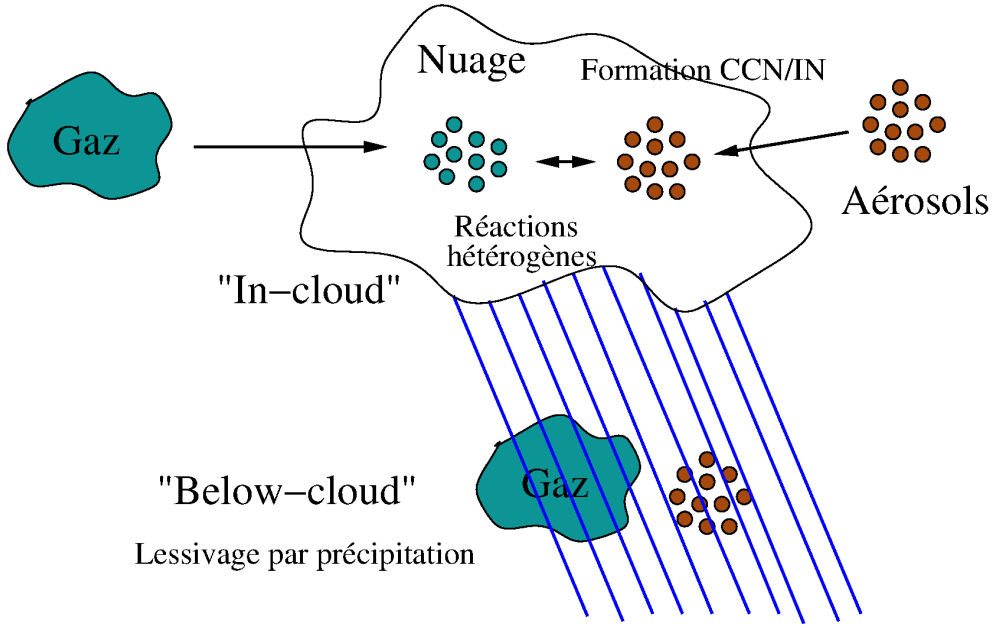


FIGURE 5.3 – *Principe général du schéma de calcul du dépôt humide des gaz et particules.*

rapidement dans l'eau nuageuse. Les aérosols peuvent devenir des noyaux de condensation (CCN ou IN) ou peuvent être captés par des gouttes déjà formées par impaction. L'efficacité ou non du dépôt humide est avant tout très dépendante du contenu en eau liquide du nuage (*Cloud Liquid Water Content*, CLWC).

Le dépôt *in-cloud* est un processus particulièrement important pour les espèces solubles comme HNO_3, NH_3 et SO_2. Ces espèces peuvent être transportées avec le nuage dans l'air intersticiel ou captées par des gouttes nuageuses. Pour HNO_3, c'est un puit irréversible. *Seinfeld and Pandis* (2006) montre que le taux de lessivage est de l'ordre de $\lambda = 0.2s^{-1}$.

Sous le nuage

Il existe de nombreuses paramétrisations du dépôt sous le nuage, *Duhanyan and Roustan* (2011). Le principe général reste le même : il s'agit de modéliser la probabilité qu'a une goutte d'eau précipitante d'impacter une molécule de gaz ou un aérosol pendant sa chute. Pour les aérosols, cette probabilité va changer en fonction de la taille de l'aérosol. Pour illustrer ce type de calcul, on présente ici la paramétrisation de *Loosmore and Cederwall* (2004), simple et très employée dans les modèles pour les aérosols. Le calcul de λ, coefficient de lessivage, s'écrit :

$$\lambda(D_p) = \frac{\pi}{4} D_r^2 V(D_r) E(D_r, D_p) N(D_r) \tag{5.21}$$

Avec D_r le diamètre représentatif des gouttes d'eau et D_p le diamètre de la particule. Sachant que le taux de précipitation J en mm.h^{-1} s'exprime lui aussi en fonction du diamètre des gouttes et de leur nombre, on peut reformuler λ en fonction de J et de la taille des particules D_p tel que :

$$\lambda(D_p) = \frac{3}{2} \frac{E(D_r, D_p)}{D_r} \times J \tag{5.22}$$

Avec $E(D_r, D_p)$ l'efficacité de collision de particules de taille D_p par une goutte de taille D_r :

$$J = \frac{\pi}{6} D_r^3 V_t(D_r) N(D_r) \tag{5.23}$$

Comme l'on considère qu'une particule atteint quasi-instantanément sa vitesse terminale de chute V_t, on assimile la vitesse utilisée dans l'équation 5.23 à V_t. La détermination de D_r est dépendante de J selon *Loosmore and Cederwall* (2004) telle que :

$$D_r = 0.97 J^{0.158} \tag{5.24}$$

conduisant à une variabilité de la taille des gouttes d'eau entre 1 et 2mm. La combinaison de l'équation 5.23 et de l'équation 5.24 permet de réecrire plus simplement l'expression de $\lambda(d_p)$ telle que :

$$\lambda(d_p) = 1.546 E(D_r, d_p) J^{0.842} \tag{5.25}$$

Suivant *Loosmore and Cederwall* (2004), on utilise la relation empirique suivante :

$$V_t = 4854 D_r exp(-195 D_r) \tag{5.26}$$

L'efficacité de collision a été paramétrée par *Slinn* (1983) telle que :

$$\begin{aligned} E &= \frac{4}{ReSc}\left[1 + 0.4 Re^{1/2} Sc^{1/3} + 0.16 Re^{1/2} Sc^{1/2}\right] \\ &+ 4\phi\left[\frac{1}{\omega} + (1 + 2Re^{1/2})\phi\right] \\ &+ \left(\frac{St - S^*}{St - S^* + \frac{2}{3}}\right)^{3/2} \times \left(\frac{\rho_p}{\rho_w}\right)^{1/2} \end{aligned} \tag{5.27}$$

avec les paramètres suivants :

- $Re = D_r V_t \rho_{air} / 2\mu_{air}$ le nombre de Reynolds de la goutte d'eau,
- $Sc = \mu_{air} / \rho_{air} D_r$ le nombre de Schmidt des particules,
- $St = 2\tau(V_t - u_t)/D_r$, le nombre de Stokes des particules, avec τ un temps de relaxation caractéristique,
- $\phi = d_p / D_r$ le rapport des diamètres,
- $\omega = \mu_{water} / \mu_{air}$ le rapport des viscosités entre l'eau et la particule considérée

et avec :

$$S^* = \frac{1.2 + \frac{1}{12} ln(1 + Re)}{1 + ln(1 + Re)} \tag{5.28}$$

Un des termes restant encore à déterminer est τ, en secondes, le temps de relaxation caractéristique de la particule étudiée. Ce temps est celui que l'on a considéré précédemment dans le calcul de v_t permettant de considérer que la particule atteignait très vite sa vitesse de chute maximale. D'après *Seinfeld and Pandis* (2006), on a :

$$\tau = \frac{m_p C_c}{3\pi\mu D_p} \tag{5.29}$$

avec m_p la masse de la particule. Cela donne des valeurs de 4.0 10^{-8}s (pour D_p=0.05 μ m) à 7.7 10^{-3}s (pour D_p=50. μ m).

La prise en compte du lessivage dans le modèle se fait "maille" par "maille" pour chaque colonne atmosphérique. Cela signifie que l'on considère que dans chaque boite, s'il y'a précipitation, alors les aérosols contenus dans cette boite sont supprimés. On ne calcule pas explicitement le fait qu'un aérosol va descendre dans la boite inférieure jusqu'à atteindre la surface en puit terminal : ce processus est très rapide et lessiver chaque boite indépendamment revient au même sur le bilan.

Le problème du dépôt humide reste un problème très ouvert avec une communauté de recherche bien plus petite comparée aux autres processus. Non seulement les incertitudes portent sur le mécanisme en lui-même dans et sous le nuage, mais ces incertitudes portent sur la capacité à modéliser correctement le nuage en lui-même avec le modèle météorologique. A cette incertitude s'ajoute celle sur la position du panache de polluant qui pourrait être lessivé : les gaz et aérosols sont-ils à la bonne altitude ? le nuage aussi ? la précipitation est-elle modélisée au bon moment et au bon endroit ? Combinant météorologie de petite échelle et chimie, ce processus est l'un des plus incertains et des moins étudiés du système de modélisation actuellement.

6 La modélisation de chimie-transport

6.1 Principe des modèles de chimie-transport

Les modèles de chimie-transport, CTM (*Chemistry-Transport Models*) cherchent à représenter l'évolution spatio-temporelle d'espèces chimiques dans l'atmosphère. Le terme "chimie-transport" regroupe deux grands processus : La **chimie** d'une espèce, c'est à dire son évolution dépendante d'autres espèces via des réactions chimiques. Le **transport**, c'est à dire son évolution d'une maille à l'autre, que ce soit par advection, diffusion turbulente ou dépôt (sec ou humide). L'évolution d'une concentration chimique c au sein de l'atmosphère suit la loi de conservation de la masse et s'exprime :

$$\frac{\partial c}{\partial t} + \nabla.(\rho c V) = P - L \tag{6.1}$$

où la dérivée représente la variation temporelle de l'espèce chimique c. $\nabla.(cV)$ est le transport de cette espèce par le vent V, sa variation spatiale ; P et L représentent de manière schématique les termes de source (P=Production) et de puit (L=Loss). Que ce soit directement ou indirectement, la dynamique va intervenir dans le processus étudié. Pour résoudre cette équation de bilan, il faut principalement connaitre les variables météorologiques pour calculer le transport, les flux d'émissions d'espèces chimiques pour disposer d'un terme source, et disposer d'un mécanisme chimique pour calculer les réactions entre espèces et calculer les dépôts. Concrètement, le calcul de ces différentes parties est résumé sur la Figure 6.1. On retrouve la partie "météorologie" évoquée précédemment ainsi que les bases de données nécessaires (la rugosité, le type de surface, les conditions initiales et limites). On trouve aussi les flux d'émissions de ces espèces chimiques, d'origines très différentes et qui dépendent de la météorologie. Finalement, le module de chimie-transport donnera un résultat sous forme de champs 4D (x,y,z,t) de différentes concentrations chimiques. L'équation peut donc s'écrire, *Seinfeld and Pandis* (2006) :

$$\begin{aligned}
& \frac{\partial c}{\partial t} + u_x\frac{\partial c}{\partial x} + u_y\frac{\partial c}{\partial y} + u_z\frac{\partial c}{\partial z} && \text{Incrément en temps} \\
& && +\text{transport} \\
= \; & \frac{\partial}{\partial x}\left(K_x\frac{\partial c}{\partial x}\right) + \frac{\partial}{\partial y}\left(K_y\frac{\partial c}{\partial y}\right) + \frac{\partial}{\partial z}\left(K_z\frac{\partial c}{\partial z}\right) && \text{Diffusion turbulente} \\
+ \; & \chi(c) && \text{Chimie} \\
+ \; & E(c) && \text{Émissions} \\
- \; & D(c) && \text{Dépôts}
\end{aligned}$$

De nombreux modèles de chimie-transport existent et sont utilisés quotidiennement en analyse ou en prévision. Le Tableau 6.1 présente quelques modèles actuellement en activité. Pour la suite de ce chapitre, les explications et exemples seront principalement basés sur le modèle CHIMERE. Mais la majorité de ce qui est présenté est commun à tous ces modèles. La Figure 6.1 a la particularité de présenter un type de CTM particulier : les modèles *off-line* : la dynamique est calculée **avant** la chimie : On utilise alors les fichiers de résultat du modèle météorologique pour "alimenter" le module chimique. Depuis quelques années, il existe aussi les modèles *on-line* : dans ce cas, la dynamique est calculée **en même temps** que la chimie (voir §6.6,

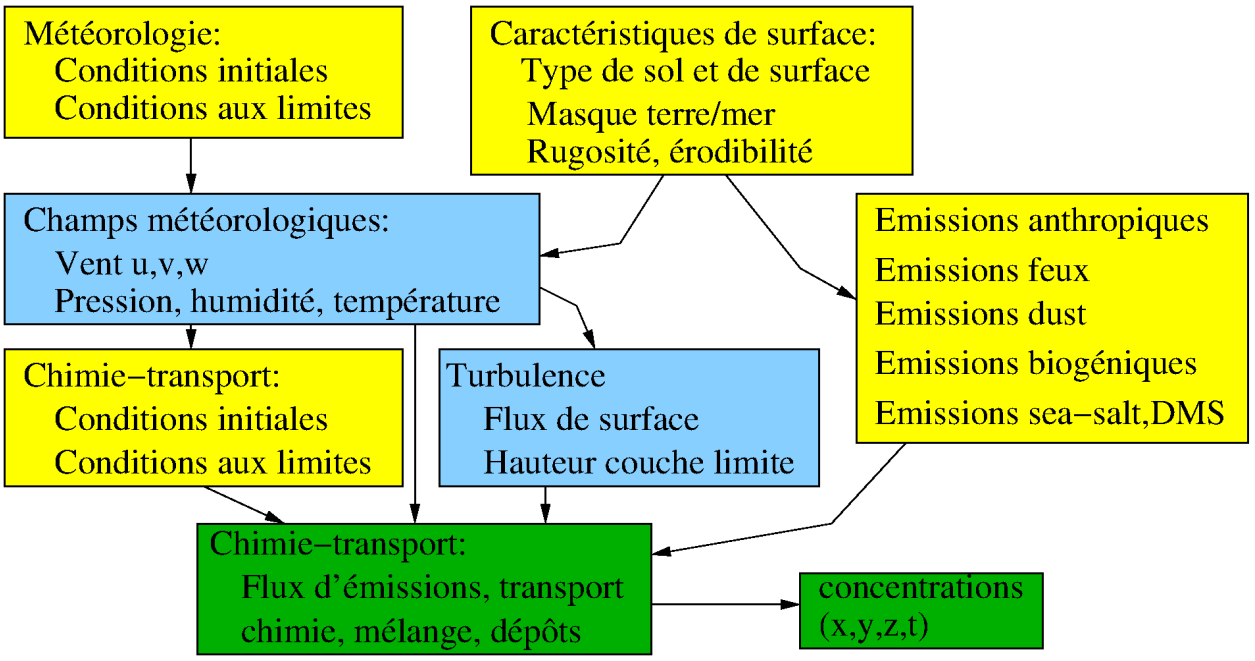


FIGURE 6.1 – *Schéma de principe au sein d'un CTM "offline". Les boîtes jaunes correspondent aux forçages du modèle (conditions initiales, aux limites météorologiques et émissions), les boîtes bleues à la météorologie et la boîte verte au modèle de chimie-transport en lui-même.*

p.114). A chaque pas de temps du modèle, on intègre un complexe système d'équations regroupant à la fois les variables thermodynamiques et les variables chimiques, *Baklanov et al.* (2014). Le cas du modèle *on-line* peut être vu comme une amélioration du modèle *off-line* tout en conservant ses specificités.

Nom	web
CAMX	http ://www.camx.com
CHIMERE	https ://www.lmd.polytechnique.fr/chimere
CMAQ	https ://www.cmascenter.org/cmaq
GEOS-Chem	http ://acmg.seas.harvard.edu/geos
LOTOS-EUROS	http ://www.lotos-euros.nl
MOZART	https ://www2.acom.ucar.edu/gcm/mozart
WRF-chem	https ://ruc.noaa.gov/wrf/wrf-chem

TABLE 6.1 – *Quelques modèles de chimie-transport actuellement utilisés.*

A ce jour, le mode *off-line* est le plus utilisé en prévision mais pas forcément en analyse ou la plupart des modèles sont maintenant *on-line*. Il y a tout d'abord une raison historique sur le fait que le off-line reste dominant : la modélisation de la météorologie n'a rien à voir avec celle de la chimie atmosphérique, les deux communautés scientifiques sont longtemps restées éloignées. D'autres raisons existent : séparer les tâches lors du calcul permet une plus grande souplesse pour les tests et la validation (pourquoi recalculer à chaque fois la météo alors que c'est sur le mécanisme chimique que l'on travaille ?). Cela est aussi valable pour la modélisation d'ensemble si l'on veut faire varier uniquement la chimie-transport. La modélisation *on-line*

est plus difficile à mettre en oeuvre mais est l'approche la plus rigoureuse : la réalité elle-même est *on-line* puisqu'il existe des rétroactions de la chimie sur la météorologie. Que le type de modèle soit *on-line* ou *off-line*, il faut dans tous les cas effectuer les opérations dans l'ordre suivant : (1) Calculer la dynamique, c'est à dire les grandeurs thermodynamiques principales de l'écoulement. Lors de ce calcul, les flux turbulents sont aussi calculés. Si le modèle est *off-line*, il faut donc les conserver pour ensuite calculer la chimie. (2) Construire les émissions : les émissions sont dépendantes de la météorologie (température et vent) et doivent donc être calculées après. Et (3) Calculer les concentrations : c'est le modèle de chimie-transport qui va prendre en compte toutes les contributions de sources et puits.

Variable	prise en compte de la dynamique		Produit	Perte
	Directe u,v,w,T,q	**indirecte** $\mathbf{u_*}$, $\overline{h}$		
Transport	Transport	Mélange/Diffusion	P_{adv}	L_{adv}
Chimie	Taux de réactions	Rayonnement	P_{chim}	L_{chim}
Emissions	Biogéniques	aérosols minéraux	P_{emis}	
Dépôt sec/humide	Précipitations	Vitesse dépôt		L_{dep}

TABLE 6.2 – *Synthèse des termes de production et perte.*

Le Tableau 6.2 résume, pour chaque type de contribution, l'influence de la dynamique et si l'on a des termes à calculer de produits et pertes. On voit tout d'abord que tous les processus que l'on doit calculer dépendent à la fois des variables principales de l'écoulement atmosphérique (u, v, w, T, q, P) et des paramètres turbulents associés (la vitesse de frottement u_*, la hauteur de la couche limite $\overline{h}$, les nuages). On note aussi que pour les termes de produits et pertes, tous les processus ont les deux termes, sauf les émissions qui ne sont qu'une source et les dépôts qui ne sont qu'un puit.

La Figure 6.2 présente une maille typique d'un CTM et tous les processus qui peuvent changer la valeur d'une concentration d'un polluant. Les flux entrants sont principalement le transport (dépendant de la direction du vent) et les émissions. Les flux sortants seront aussi le transport, sur la coté de la maille mais aussi vers le haut de la colonne atmosphérique et le dépôt (sec ou humide). Dans la maille elle-même, les concentrations seront modifiées par la chimie uniquement.

Considérant que l'on a calculé chaque terme contribuant à la modification d'une espèce chimique. Il faut pouvoir mettre en place un système qui va intégrer ces quantités pour toutes les espèces chimiques. Deux méthodes, présentées sur la Figure 6.3, existent pour gérer le système d'équation 6.1. Tout d'abord, la méthode dite *operator-splitting* : la séparation des opérateurs est la méthode la plus employée car permet une gestion découpée de tous les termes. Elle est moins rigoureuse que l'intégration globale : en fonction de l'ordre des opérations effectuées, le résultat peut être différent. Par contre, elle est moins couteuse en temps de calcul que l'intégration globale, car l'intégration sur le pas de temps chimique n'est faite que sur la chimie. La seconde méthode *prodloss* c'est à dire *d'intégration globale des flux* construit la concentration au pas de temps suivant de manière exacte. Le calcul prend cependant plus de temps mais comme le temps de calcul consacré à la chimie dépasse souvent 80% du temps de calcul global de la simulation, intégrer ou non les autres processus au pas de temps chimique ne change pas drastiquement les choses. Rigoureusement, il est donc fortement conseillé d'utiliser les techniques d'intégrations globales des processus. On notera que contrairement à la météorologie, les modèles CTM utilisent souvent deux pas de temps différents : le pas de temps physique et le pas de temps chimique ; la chimie ayant des constantes de temps nettement inférieures à la physique. Si l'on peut raisonnablement utiliser un pas de temps de 5mn pour décrire la convection dans

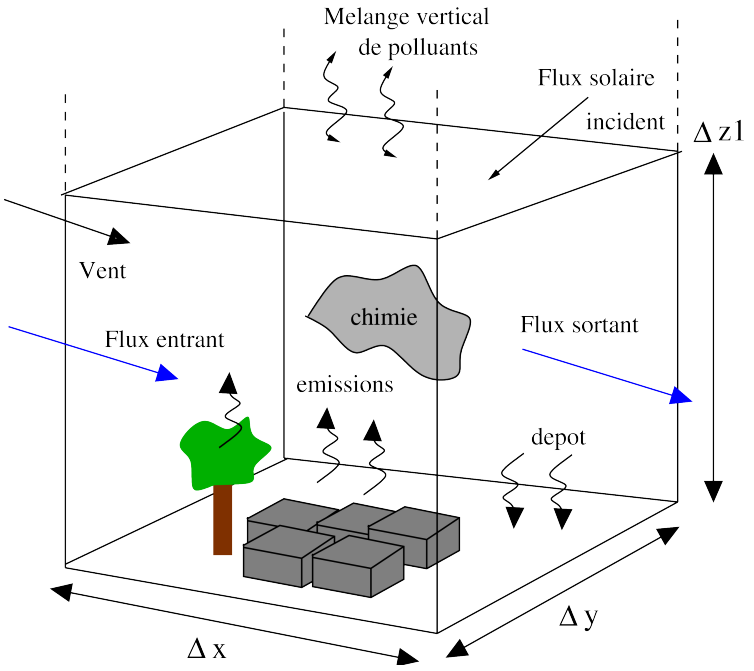


FIGURE 6.2 – *Processus pouvant modifier la valeur d'une concentration chimique dans un CTM.*

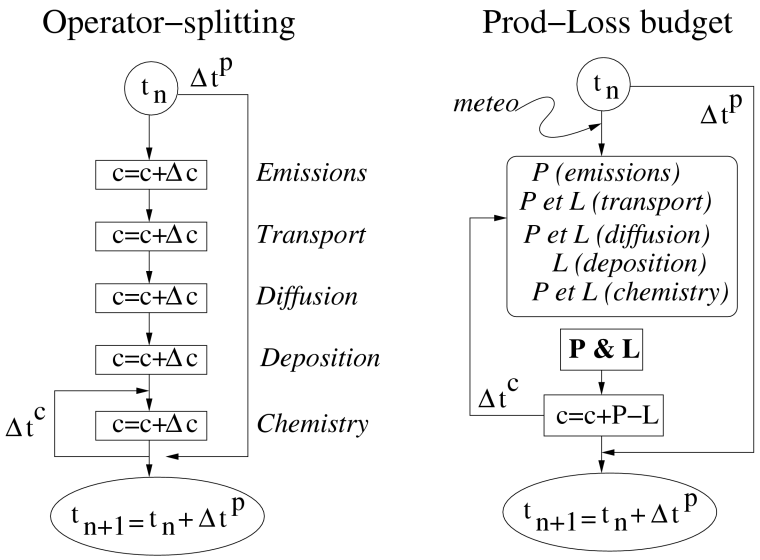


FIGURE 6.3 – *Comparaison de principe entre séparation des opérateurs (operator-splitting) et intégration globale (prodloss).*

la couche limite, cela est impossible pour traiter des réactions chimiques beaucoup plus rapides : le pas de temps chimique ne dépasse jamais 30 secondes : il faut donc découpler les calculs (*prodloss*), ou tous les faire avec Δt=30s au maximum (*operator-splitting*). Chaque approche a ses avantages et inconvénients et

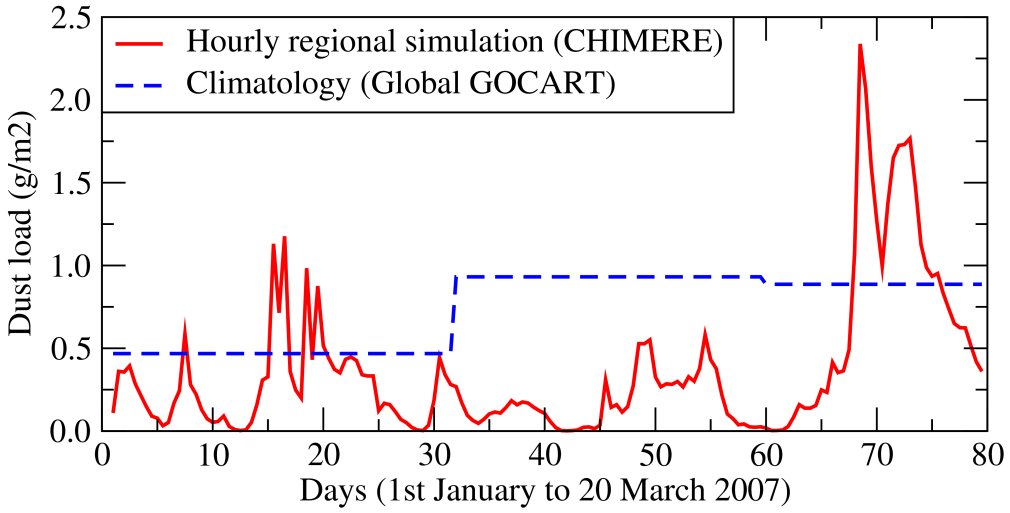


FIGURE 6.4 – *Sensibilité des concentrations d'aérosols minéraux à la fréquence des conditions aux limites.*

les modèles actuels utilisent l'une ou l'autre des méthodes.

6.2 Conditions initiales et aux limites

Que l'on réalise une simulation globale ou régionale, il faut des conditions initiales. Pour une simulation régionale, il faut aussi des conditions aux limites. Il existe différents moyens pour fournir ces informations au modèle que l'on utilise mais il y a aussi quelques principes à respecter. Les conditions initiales sont à préparer pour une seule échéance temporelle, le pas de temps initial. Il faut fournir un champs 3D qui renseigne l'intégralité du domaine de simulation. Ces conditions initiales seront importantes pour donner des valeurs de concentrations de fond au modèle. En effet, hors évènements de pollution, l'atmosphère a toujours des concentrations de gaz et particules non nulles. Il faut donc au minimum commencer une simulation avec des valeurs proches des valeurs moyennes climatologiques. Les conditions aux limites sont aussi particulièrement importantes pour les CTM. On peut forcer la simulation avec des climatologies ou des simulations venant du même modèle sur un domaine plus grand (le *nesting*) : l'important est de pouvoir spécifier l'import de panaches de concentrations importants. Contrairement aux modèles météorologiques, il n'y a pas de notion de forçage dans le domaine au cours de la simulation, le *nudging*. Cela est important en météorologie car il faut avoir un rappel des petites échelles simulées par rapport aux circulations de grande échelle. Mais pour un CTM, le problème est différent par nature : les émissions apportent l'information nécessaire au cours de la simulation et le grand domaine ne contient pas d'information supplémentaire par rapport au petit domaine en dehors des bords.

Pour que les conditions initiales et aux limites soient au mieux, il y a quelques principes à suivre. Tout d'abord il faut disposer de l'information sur le maximum d'espèces chimiques. Il faut au minimum de l'information sur les espèces étudiées et à longue durée de vie : l'ozone pour la pollution, le CO pour les feux, les aérosols minéraux etc. Pour les espèces secondaires, l'idéal est de disposer d'informations aux limites calculées avec le même mécanisme chimique : les concentrations représentent donc strictement la même espèce chimique. Pour les conditions aux limites, il est recommandé d'avoir la plus haute fréquence temporelle de forçage. Idéalement, il faut disposer de champs horaires pour avoir une variabilité réaliste. Un

exemple est présenté sur la Figure 6.4. Contrairement à l'ozone, les concentrations d'aérosols minéraux sont sporadiques en temps et en espace. Les courbes "GOCART" représentent la climatologie mensuelle obtenue avec un modèle global, pouvant forcer le modèle régional CHIMERE. La courbe rouge représente la simulation au même endroit mais avec le modèle régional directement. On peut voir que la très grande variabilité régionale ne peut être reproduite par le modèle global. Dans ce cas, on ne peut donc pas se contenter d'une simulation forcée par une climatologie. Il faut forcément avoir un modèle de grande échelle, prenant en compte explicitement les sources d'aérosols minéraux. Par exemple, pour simuler correctement les particules en Europe à fréquence horaire, il faut faire une simulation forcée par un modèle à plus grand domaine et faisant le calcul des émissions et du transport sur l'Afrique, source globale principale des minéraux. Enfin, il faut que le forçage aux limites produisent des données avec une résolution verticale proche du modèle hôte afin de ne pas diluer l'information sur des panaches denses de gaz et d'aérosols. La Figure 6.5 montre un exemple de comparaison mesures/modèles, ici pour l'épaisseur optique (AOD). Les données du satellite MODIS sont comparées à la simulation correspondante faite avec WRF-CHIMERE, *Menut et al.* (2015b). On peut voir que l'AOD lié aux aérosols minéraux est bien estimé au centre du domaine. Par contre, aux bords du domaine, le modèle ne simule pas des panaches observés : principalement au Nord-Ouest et Nord-Est. Il s'agit de transport de panaches denses, notamment des feux au Canada ayant traversé l'Atlantique et dont les concentrations ne sont pas connues du modèle global utilisé pour les conditions aux limites. Pour mieux simuler cet épisode, il aurait donc fallu faire une première simulation globale de l'évènement et utiliser ces champs horaires comme conditions aux limites du modèle régional.

Le comportement du CTM va être différent du modèle météo. Ici, les conditions initiales sont moins "importantes" en précision que les conditions aux limites. En effet, la pollution étant un problème "aux limites" avec les émissions actives pendant toute la durée de l'étude et le problème étant faiblement non-linéaire, des conditions initiales erronées seront plus rapidement oubliées. Par contre, les conditions aux limites seront importantes : un panache de polluant à longue durée de vie entrant dans le domaine de simulation doit absolument être connu et pris en compte si on veut éviter d'avoir des biais importants dans les résultats.

6.3 Prise en compte du transport

La conservation de la masse

Le transport représente l'advection des concentrations chimiques sous l'effet du vent. Ce terme est à la fois un terme de production et de perte pour les espèces chimiques, maille par maille du modèle. Le transport est calculé sous forme de flux de quantité de mouvement $(\rho u, \rho v, \rho w)$: la prise en compte de la densité de l'air pendant le transport permet de s'assurer de la bonne prise en compte des hétérogénéités de terrain et de la différence de la densité de l'air dans la colonne atmosphérique. On résout donc l'équation pour (ρc) même si on n'écrit uniquement (c) pour simplifier l'écriture. L'équation d'advection, dite *équation de continuité* qui représente la conservation de la masse, est :

$$\frac{\partial c}{\partial t} + u_x \frac{\partial c}{\partial x} + u_y \frac{\partial c}{\partial y} + u_z \frac{\partial c}{\partial z} = 0 \tag{6.2}$$

avec c la concentration chimique que l'on transporte, u_x, u_y et u_z les composantes du vent dans les directions x, y, z. Pour chaque direction n, on peut donc définir le flux de masse $F_n = \rho c u_n$. Le maillage des modèles Eulériens étant (relativement) régulier, il faut donc calculer ces flux sur chaque facette de chaque maille, comme cela est présenté sur la Figure 6.6.

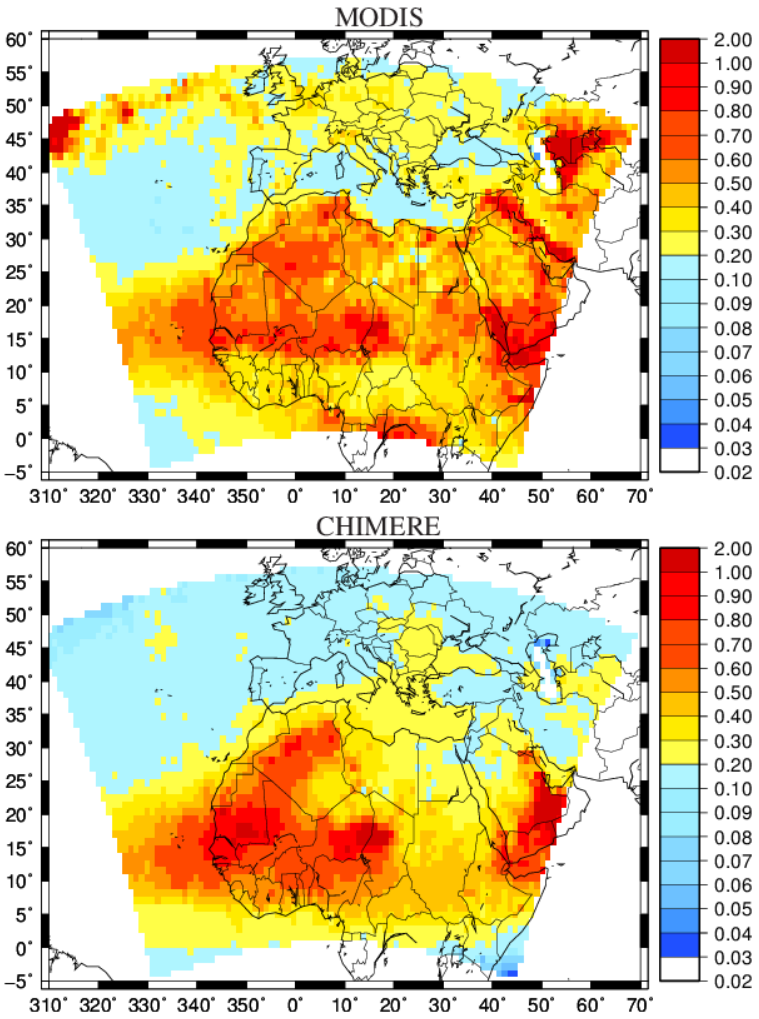


FIGURE 6.5 – *Comparaison entre une épaisseur optique mesurée (Par MODIS) et modélisée (par WRF-CHIMERE), d'après Menut et al. (2015b).*

Le flux horizontal d'advection (u,v)

Si l'on considère l'équation d'advection à une seule dimension, on aura :

$$\frac{\partial c}{\partial t} + u\frac{\partial c}{\partial x} = 0 \tag{6.3}$$

Pour estimer la valeur de la concentration au pas de temps suivant, il faut *discrétiser* cette équation. La discrétisation d'une équation différentielle pour sa résolution revient à "découper" en pas élémentaires les variations de la grandeur en temps et en espace. La discrétisation est par définition le passage d'un ensemble *infini* de points d'une fonction à un ensemble *fini* (discret). Lors de cette "détérioration" de la quantité d'information, le but est de conserver les points représentatifs par rapport à ce que l'on cherche à calculer.

$$\frac{\partial c}{\partial t} = \frac{c_i^{n+1} - c_i^n}{\Delta t};\ \frac{\partial c}{\partial x} = \frac{c_i^n - c_{i-1}^n}{\Delta x} \tag{6.4}$$

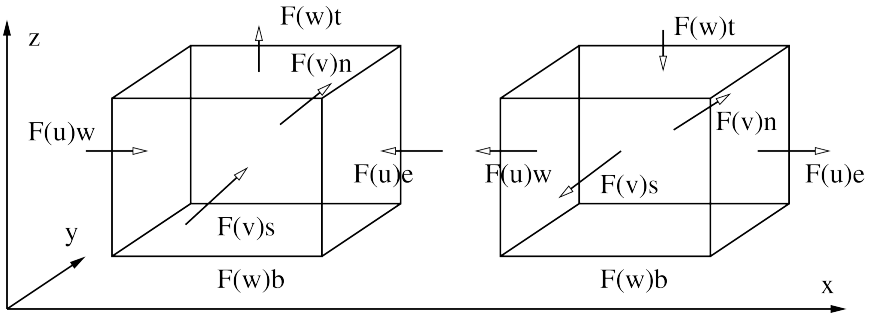


FIGURE 6.6 – *Représentation du traitement des flux sur une maille de modèle. Le bilan des flux entrant et sortant au sein d'une maille permet l'estimation du flux vertical. Ce principe assure la conservation de la masse pour chaque maille. Dans ce cas, on considère une maille de modèle près de la surface : le flux du sol est nul. (a) la majorité des flux amènent de la concentrations dans la maille. On a alors un flux vertical $F(w)t$ positif. (b) la majorité des flux font sortir des concentrations de la maille. On a alors un flux vertical $F(w)t$ négatif.*

avec $t^{n+1} = t^n + \Delta t$ le pas de temps et l'indice i représentant la maille en espace. La distance entre deux mailles est Δx. Finalement, la valeur de la concentration mise à jour pour la maille i et le pas de temps suivant t^{n+1} s'écrit :

$$c_i^{n+1} = c_i^n + u\frac{\Delta t}{\Delta x}\left(c_{i-1}^n - c_i^n\right) \tag{6.5}$$

Ce schéma simple est explicite et au premier ordre. Il est usuellement utilisé et appelé *upwind*, *Courant et al.* (1952). Une autre formulation de ce même schéma est sous forme implicite retardé telle que :

$$c_i^{n+1} = c_i^n + u\frac{\Delta t}{\Delta x}(c_{i-1}^{n+1} - c_i^n) \tag{6.6}$$

Cette écriture est plus robuste mais demande une intégration globale de l'équation, puisque la concentration que l'on cherche à estimer dépend d'elle même au même pas de temps. Il faut alors utiliser des méthodes d'intégration de type Jacobi ou Gauss-Seidel. Dans tous les cas, une équation discrétisée doit respecter certaines contraintes. Il doit y avoir *convergence* de la solution à calculer. Le schéma doit être *stable* c'est à dire que la différence entre la solution exacte et discrétisée ne doit pas croitre avec le nombre de pas d'intégration en temps ou en espace. Pour que la solution soit réaliste, il faut aussi respecter la condition de Courant, Friedrich et Lewi, CFL, (1928) telle que :

$$u\frac{\Delta t}{\Delta x} \leq 1 \tag{6.7}$$

c'est à dire que la concentration transportée ne doit pas parcourir en un pas de temps une distance $u\Delta t$ (m s^{-1} s) plus grande que la taille d'une maille Δx (m). De manière générale, les schémas de transport sont définis par leur caractère implicite ou explicite et leur ordre. Le côté explicite fait que l'on utilise la concentration au pas de temps précédent t pour calculer la concentration au pas de temps suivant $t+\Delta t$. L'algorithme implicite va utiliser la concentration au même pas de temps pour être ré-actualisée et est donc itératif, *Seinfeld and Pandis* (2006). L'ordre d'un schéma est défini par le nombre de mailles utilisées pour le calcul : un schéma d'ordre 1 va utiliser la concentration dans la maille courante uniquement, un schéma d'ordre 2 va utiliser 2

mailles etc. Plus l'ordre sera élevé, plus le temps de calcul sera important. Le schéma *upwind* est reconnu pour être rapide en tant de calcul, stable numériquement mais assez diffusif. Pour le transport d'un panache de polluant, les concentrations vont artificiellement et exagérément se diffuser horizontalement. Pour limiter cette diffusivité numérique, d'autre schémas ont été développés, à des ordres plus élevés. Un schéma très utilisé est le schéma d'ordre 2 de *Van Leer* (1979). Il considère que la concentration dans une maille peut être représentée par une pente linéaire, Δi, entre les deux interfaces. En fonction des valeurs des concentrations dans les mailles $i-1$ à $i+1$, la valeur de la pente va changer telle que :

$$\Delta_i = sign\left(c_{i+1} - c_{i-1}\right) \times \min\left(\frac{c_{i+1} - c_{i-1}}{2\Delta x}, \frac{c_{i+1} - c_i}{\Delta x}, \frac{c_i - c_{i-1}}{\Delta x}\right) \tag{6.8}$$

Ce schéma est reconnu pour sa grande stabilité numérique, son temps de calcul modéré et son caractère beaucoup moins diffusif que *upwind*. Enfin, il existe aussi des schémas beaucoup plus complexes mais couteux en temps de calcul comme le schéma du 3ème ordre PPM (*Parabolic Piecewise method*) de *Colella and Woodward* (1984). Ce type de schéma est recommandé pour les simulations d'analyse sur de courtes périodes, mais se montre trop couteux en temps de calcul pour les modèles faisant des simulations longues ou de la prévision opérationnelle. Ces schémas ont été évalués notamment sur un transport de panache d'aérosols mineraux dans *Vuolo et al.* (2009) : il a été montré que le schéma de *Van Leer* (1979) était un bon compromis entre précision des résultats et temps de calcul.

Le flux vertical d'advection (w)

Dans le cas des modèles *on-line* de type WRF-chem, le maillage est le même pour la dynamique et la chimie. Il n'y a donc pas besoin d'interpolation du champs de vent sur le maillage des concentrations à transporter. Par contre, pour la plupart des modèles *off-line* ou les modèles *on-line* de type CHIMERE, les maillages météorologiques et chimiques sont différents. L'utlisation de la composante verticale du vent w directement interpolée est délicate car l'erreur d'interpolation peut avoir une incidence importante sur le transport. Il est donc préférable de re-diagnostiquer la valeur de w. Cela peut se faire comme indiqué sur la Figure 6.6 : w est calculé après les flux des facettes horizontales afin d'assurer la conservation de la masse. Cependant, des études ont montré que cela pouvait conduire à des valeurs de w irréalistes au sommet de la troposphère.

La diffusivité turbulente

Parmi les termes de 'production' et de 'perte' de la concentration dans une maille donnée, on peut ajouter le terme de diffusion, tel que :

$$\frac{\partial c}{\partial t} = \frac{\partial}{\partial x}\left(K_x \frac{\partial c}{\partial x}\right) + \frac{\partial}{\partial y}\left(K_y \frac{\partial c}{\partial y}\right) + \frac{\partial}{\partial z}\left(K_z \frac{\partial c}{\partial z}\right) \tag{6.9}$$

avec K_i le coefficient de diffusion dans la direction i. On notera que dans la plupart des CTM, la diffusion horizontale est considérée comme faible et déjà représentée par les schémas de transport par nature trop diffusif. Le terme est donc ignoré. On ne cherchera donc qu'à calculer la diffusivité verticale turbulente K_z. L'équation à résoudre se limite donc a :

$$\frac{\partial c}{\partial t} = \frac{\partial}{\partial z}\left(K_z \frac{\partial c}{\partial z}\right) \tag{6.10}$$

Ce terme K_z est particulièrement difficile à paramétrer. Comme ce flux doit être calculé uniquement verticalement, la question se pose de savoir si l'on peut indifféremment utiliser un schéma explicite ou

implicite. Une application numérique simple est la suivante. Si l'on a une valeur de K_z = 100 m^2.s^{-1} et Δx = 5000m, mais Δz = 50m. Sachant que l'on doit respecter le critère de stabilité suivant :

$$\gamma = K_z \frac{\Delta t}{(\Delta x)^2} < \frac{1}{4} \tag{6.11}$$

avec γ appelé le nombre de Fourier, on aura un pas de temps qui devra être Δt <17h horizontalement mais Δt <6.25s verticalement. Le pas de temps sur la verticale rend très difficile des simulations régionales réalistes. Il faut donc utiliser un schéma implicite de type Cranck-Nicholson, *Seinfeld and Pandis* (2006) :

$$c_i^{n+1} = c_i^n + \frac{K\Delta t}{2(\Delta x)^2}\left[\left(c_{i-1}^n + c_{i-1}^{n+1}\right) - 2\left(c_i^{n+1} + c_i^n\right) + \left(c_{i+1}^n + c_i^{n+1}\right)\right] \tag{6.12}$$

Cette approche est dite *locale* car pour une maille donnée, ne sont utilisées que les mailles adjacentes pour diffuser une espèce. Pour actualiser la concentration d'une esp'ece à un niveau i, il faut connaitre la valeur de cette concentration au pas de temps précédent et au niveaux $i-1$, i et $i+1$. Plus récemment, des approches *non-locales* ont été développées dans les modèles météorologiques et de chimie-transport. Cela part de l'hypothèse que dans une couche limite très convective, et pendant un pas de temps caractéristique de quelques minutes, une concentration peut être transportée dans la couche limite directement d'un niveau à l'autre. Dans ce cas, les coefficients de diffusion sont estimés dans une *matrice de transilience* qui n'est plus tri-diagonale (cas 'local') mais pleine.

6.4 La chimie gazeuse

La variation de la valeur de la concentration dûe à la chimie s'écrit :

$$\frac{\partial c}{\partial t} = P - L.c \tag{6.13}$$

avec P l'ensemble des termes sources et L l'ensemble des termes puits lié aux réactions chimiques dans leur ensemble. La formulation spécifique de P et $L.c$ s'explique par le fait que les émissions et la chimie peuvent produire une quantité de c indépendante de ce qui est déjà présent alors que la perte de c ne peut être qu'une fraction de ce qui est disponible. Si l'on discrétise cette relation, on va avoir :

$$c_i^{n+1} = c_i^n + \left(P_i^n - c_i^n L_i^n\right)\Delta t \tag{6.14}$$

On notera que dans le cas d'une intégration de type *prodloss*, les termes P et L regroupent les termes de transformation liés à la chimie mais aussi à tous les autres processus. A la différence des processus étudiés précédemment, les termes de source et puit chimiques pour une concentration donnée dépendent des concentrations d'autres espèces. Cette différence est importante car va rendre nécessaire l'utilisation de méthodes de résolution différentes pour intégrer l'ensemble du mécanisme chimique.

Les réactions chimiques

Des milliers de réactions chimiques interviennent dans l'atmosphère pour des centaines d'espèces différentes. On aura l'oxydation radicalaire en phase gazeuse initiée par le rayonnement solaire, l'oxydation en phase aqueuse au sein de goutelettes nuageuses et la chimie hétérogène à la surface des aérosols. La transformation d'une espèce chimique se fera via une réaction qui est le bilan de formation/rupture de liaisons chimiques différentes. Par exemple, la réaction $[2A + B \rightarrow E + F]$ peut être le bilan de réactions

intermédiaires telles que : $[A + B \rightarrow C]$ puis $[A + C \rightarrow D]$ puis $[D \rightarrow E + F]$. On notera que C et D sont successivement produits et consommés, ils sont définis comme les intermédiaires de la réaction. L'ensemble des réactions détaillées est le **mécanisme réactionnel**. Tout l'enjeu d'une bonne modélisation de cette chimie sera donc de pouvoir calculer avec peu de réactions, la transformation réaliste des espèces d'intérêt. Les mécanismes chimiques utilisés dans les modèles sont des mécanismes réduits : on essaie de se limiter à quelques dizaines d'espèces et de réactions afin d'avoir un système calculable à l'échelle des ordinateurs actuels. Les réactions ont des vitesses différentes et cela induit des priorités sur la cinétique chimique. Par exemple, pour le système suivant :

$$\begin{cases} A + B \rightarrow C & v_1 = k_1 C_A C_B & \text{lente} \\ A + C \rightarrow D & v_2 = k_2 C_A C_C & \text{rapide} \\ D \rightarrow E + F & v_3 = k_3 C_D & \text{rapide} \end{cases}$$

La première réaction est la plus lente : elle sera **cinétiquement déterminante** pour le mécanisme complexe. La réaction résultante sera :

$$2A + B \rightarrow E + F \tag{6.15}$$

avec $v = v_1 \approx k_1 C_A C_B$, ce qui conduit à une vitesse globale lente.

Réaction élémentaire	Molécularité	Vitesse de réaction	k
A $\rightarrow$ produits	unimoléculaire	$v = -\frac{dC_A}{dt} = kC_A$	t^{-1}
A +A$\rightarrow$ produits	bimoléculaire	$v = -\frac{1}{2}\frac{dC_A}{dt} = kC_A^2$	$t^{-1}C^{-1}$
A +B$\rightarrow$ produits	bimoléculaire	$v = -\frac{dC_A}{dt} = -\frac{dC_B}{dt} = kC_A C_B$	$t^{-1}C^{-1}$
A +2B$\rightarrow$ produits	trimoléculaire	$v = -\frac{dC_A}{dt} = -\frac{1}{2}\frac{dC_B}{dt} = kC_A C_B^2$	$t^{-1}C^{-2}$

TABLE 6.3 – *Réactions à plusieurs corps et cinétiques correspondantes.*

Lorsqu'un des réactifs intermédiaires est aussi vite consommé que produit, on peut considérer qu'il est à l'équilibre par rapport au mécanisme complet : l'espèce est à l'état quasi-stationnaire. La cinétique est très dépendante de la température et pour de nombreuses réactions, la vitesse de réaction s'exprime selon la loi d'Arrhénius :

$$k = Ae^{\frac{-E}{RT}} \tag{6.16}$$

avec E l'énergie d'activation (en kJ.mol^{-1}), A (en s^{-1}), et E et A sont des facteurs empiriques. Chaque réaction élémentaire est un évènement chimique unique correspondant à la rupture d'une liaison chimique ou la collision entre deux molécules. Le Tableau 6.3 présente l'expression des différentes cinétiques de réactions en fonction du nombre de molécules dans le système. On notera que la vitesse d'une réaction unimoléculaire ne dépend que de la concentration du réactif A. La vitesse d'une réaction bimoléculaire dépend du produit des concentrations des réactifs A et B. Les réactions trimoléculaires sont rares car la probabilité de la collision simultanée de trois molécules est faible. On aura finalement un système composé de différentes espèces chimiques et chacune pouvant être impliquée dans plusieurs réactions chimiques à cinétique différente.

Les solveurs

Il est donc nécessaire d'intégrer le système d'équation différentiel de l'équation 6.13 avec un solveur permettant de considérer que c'est un système différentiel raide. Système raide car les constantes de temps des différentes équations différentielles pour la chimie ont plusieurs ordres de grandeur d'écart : de quelques millisecondes pour les radicaux à quelques années pour le méthane, par exemple. Pour résoudre numériquement un tel système, des solveurs ont été construits, *Zhang et al.* (2011). Ces solveurs sont complexes et de nombreux existent. Ils doivent respecter quelques règles minimum : (1) la méthode d'intégration doit être numériquement stable quel que soit le pas de temps d'intégration. (2) les concentrations calculées doivent toujours être positives, (3) on doit conserver la masse des différentes espèces.

Parmi les solveurs les plus utilisés, on note QSSA (*Quasi-Steady-State-Approximation*), *Hertel et al.* (1993), et Two-Step, *Verwer* (1994). Le schéma QSSA calcule la concentration au pas de temps suivant tel que :

$$c_i^{n+1} = \frac{P_i^n}{L_i^n} + \left(c_i^n - \frac{P_i^n}{L_i^n}\right) exp\left(-L_i^n \Delta t\right) \tag{6.17}$$

En fonction de la durée de vie de l'espèce $\tau = 1/L$, le calcul est simplifié. Si $\tau < \Delta t/10$, on considère que le temps de vie est court devant le pas de temps et l'on réduit l'expression à :

$$c_i^{n+1} = \frac{P_i^n}{L_i^n} \tag{6.18}$$

Si au contraire, on a $\tau > 100\Delta t$, alors l'espèce est à longue durée de vie devant le pas de temps et on applique un schéma Euler avancé :

$$c_i^{n+1} = c_i^n + \left(P_i^n - L_i^n c_i^n\right) \Delta t \tag{6.19}$$

Dans le cas intermédiaire, la relation complète est utilisée. Ce solveur est rapide en temps de calcul et stable numériquement, mais semble ne pas parfaitement conserver la masse. Une deuxième approche possible est le schéma Two-Step :

$$c_i^{n+1} = \frac{4}{3}c_i^n - \frac{1}{3}c_i^{n-1} + \frac{2}{3}\Delta t\left(P(c_i^{n+1}) - L(c_i^{n+1})c_i^{n+1}\right) \tag{6.20}$$

Cette équation peut se reformuler d'après *Verwer and Simpson* (1995) telle que :

$$c^{n+1} = \left(I + \frac{2}{3}\Delta t L(c^{n+1})\right)^{-1}\left(\frac{4}{3}c^n - \frac{1}{3}c^{n-1} + \frac{2}{3}\Delta t P(c^{n+1})\right). \tag{6.21}$$

Le système obtenu est non-linéaire et implicite car de la forme $c^{n+1} = F(c^{n+1})$. Il peut donc se résoudre avec une méthode d'intégration de Gauss-Seidel. L'avantage de la méthode Two-Step est que les quantités de production et pertes chimiques P et L ne doivent pas forcément être constantes pendant le temps de calcul $(t^{n+1} - t^n)$. La méthode de Gauss-Seidel est une méthode itérative de résolution d'un système linéaire écrit sous forme matricielle.

Les mécanismes chimiques

Les processus présentés précédemment s'appliquent à toutes les espèces chimiques présentes dans la réalité, c'est à dire à des dizaines de milliers d'espèces différentes. Les ressources de calcul des modèles actuels font qu'il est impossible de simuler explicitement ce grand nombre d'espèces. Et dans un cadre

Mécanisme	Modèle	Référence
CBM05	WRF-chem, CMAQ, C-IFS	*Sarwar et al.* (2008)
Melchior	CHIMERE	*Lattuati* (1997)
MOZART	ECHAM, REMO, WRF-chem	*Emmons et al.* (2010)
RADM2	WRF-chem	*Stockwell et al.* (2012)
RACM	COSMO, RegCM-chem, CMAQ, WRF-chem	*Stockwell et al.* (1997)
SAPRC07	CMAQ, CHIMERE	*Carter* (2010)

TABLE 6.4 – *Quelques mécanismes de chimie gazeuse employés dans les modèles de chimie-transport.*

d'analyse ou de prévision de la pollution, l'intérêt serait aussi extrèmement limité d'avoir des informations aussi fines et nombreuses. Les espèces chimiques "vraies" sont donc regroupées en familles d'espèces les représentant : les espèces "modèles". En fonction des mécanismes chimiques utilisés, ce regroupement peut permettre de n'avoir plus que quelques dizaines ou centaines d'espèces à calculer. Certaines espèces d'intérêt restent des espèces vraies comme l'ozone ou les oxydes d'azotes. Les regroupements se font plutôt sur les COVs et ils existent différentes approches de regroupement, *Stockwell et al.* (2012). Pour construire ces mécanismes, il y a trois étapes : (1) collecter des mesures en laboratoire pour le plus grand nombre possible de réactions chimiques, (2) construire un mécanisme le plus explicite possible (des milliers ou millions de réactions) et l'utiliser en 0D pour voir son fonctionnement, (3) A partir de ce mécanisme, choisir des hypothèses simplificatrices afin d'obtenir un mécanisme intégrable dans un modèle de chimie-transport 3D.

Parmi les mécanismes dits "explicites" on note les plus utilisés avec le mécanisme du NCAR Master Mechanism, *Madronich and Calvert* (1990), le Master Chemical Mechanism, *Saunders et al.* (2003) et le modèle GECKO, *Aumont et al.* (2005). A partir de ces mécanismes de référence, des mécanismes plus légers sont définis, comme le présente le Tableau 6.4. L'approche de regroupement la plus connue est nommée *carbon bond* et regroupe les espèces en fonction de leur nombre de carbones, générant ainsi des espèces modèles comme les alkanes, alcènes, aromatiques etc.

La connaissance et la modélisation de la chimie gazeuse ont atteint un bon niveau de maturité. La plupart des modèles de chimie-transport utilisent des modèles éprouvés depuis de nombreuses années. Il reste cependant des voies chimiques peu connues, étudiées en chambre de simulation. Entre ces mises à jour et l'accroissement des ressources de calcul, les mécanismes de chimie gazeuse continuent d'évoluer, même si beaucoup moins que la chimie des aérosols. Il reste important de continuer à travailler sur les "Master Mechanisms" seuls à mêmes de générer ces évolutions de mécanismes simplifiés.

6.5 Les aérosols

La modélisation des aérosols est la partie la plus complexe du modèle CTM, *Seinfeld and Pandis* (2006). De nombreux processus agissent sur de nombreux types d'aérosols (cf. §1.4, p.10). On décrira ici le mode de représentation des aérosols puis les schémas les plus employés pour les processus de transformation.

Distribution en taille

L'aérosol ayant plusieurs tailles possibles, sa représentation doit prendre en compte cette variabilité, comme le montre la Figure 1.10 (p.12). Les modèles utilisent plusieurs représentations possibles : la distribution *bulk*, *modale* ou *en bins*, *Riemer et al.* (2019).

- La représentation *bulk* consiste à n'avoir qu'une concentration en masse par aérosol. Cette forme était utilisée par les premiers modèles, par économie sur le coût de calcul mais n'est plus très utilisée de par son manque de réalisme.
- La représentation *modale* consiste à représenter la concentration d'une espèce sous la forme de plusieurs distributions log-normales. Pour beaucoup de modèles, trois modes sont utilisés, car représentant les tailles les plus mesurées de certains processus. Ces modes sont dits *fine* pour le mode Aitken, *medium* pour le mode d'accumulation et *coarse* pour les aérosols primaires comme les minéraux. L'avantage de cette représentation est que l'on a uniquement trois variables pour représenter un aérosol. L'inconvénient est que l'on fait l'hypothèse que la distribution en taille a forcément la forme de trois distributions.
- La représentation en *bins* consiste à définir des intervalles de classe de taille. Pour chaque *bins*, on utilise le diamètre médian en masse pour caractériser la taille de l'aérosol. L'avantage est que la distribution peut être quelconque, donc peut mieux s'adapter à la réalité. L'inconvénient est qu'il faut un minimum de *bins* pour que la représentation soit réaliste. En pratique, 10 bins minimum sont nécessaires, de 0.01 à 40 μm, pour que le modèle puisse correctement représenter la distribution en taille d'un aérosol.

Selon le processus à représenter, le modèle peut aussi utiliser une **distribution en nombre ou en masse**. La plupart des modèles utilisent une distribution en masse, nécessaire pour calculer correctement les émissions, le transport et le dépôt. Mais pour certains processus chimiques, comme la nucléation, il est préférable d'utiliser la distribution en nombre. La transition se fait de masse à nombre par calcul impliquant directement le diamètre des aérosols et leur densité, mais cela engendre des erreurs numériques. Les modèles les plus récents ont des schémas calculant explicitement la masse et le nombre (donc appliquant les processus comme le transport aux deux populations) : ils restent rares car sont plus couteux en temps de calcul. Mais ils se développent de plus en plus sachant que la connaissance conjointe de la masse et du nombre est importante pour la précision des schémas de microphysique des nuages, *Li et al.* (2008).

Mélange interne ou externe

La représentation numérique des aérosols va passer par le choix d'une représentation en **mélange interne ou externe**, *Riemer et al.* (2019). La représentation en mélange externe est la plus simple : on considère que pour chaque classe de taille, un aérosol donné à une composition chimique unique. Même si ce n'est pas le plus réaliste, cela permet de simplifier le calcul du transport mais aussi des effets radiatifs des aérosols : on peut utiliser un code de Mie pour chaque aérosol indépendamment et considérer que l'impact radiatif est la somme des impacts de tous les aérosols présents dans la maille, *Riemer et al.* (2019). Une autre représentation est le mélange interne : pour chaque classe de taille, un aérosols représente un mélange de composés chimiques. Pour les propriétés optiques, il faut alors calculer un indice de réfraction moyen pour chaque possibilité de composition de chaque aérosol : une approche beaucoup plus couteuse en temps de calcul. Une troisième représentation existe, le *core-shell*. Plus réaliste, elle considère une représentation que l'on retrouve dans l'atmosphère : l'aérosol est composé d'un noyau (*core*), un aérosol primaire, comme du black carbon, organic carbon ou un minéral. Autour de ce noyau, un enrobage (*shell*) est constitué de particules secondaires (sulfates, nitrates, ammonium, SOA, sea-salt) et d'eau. Les propriétés optiques sont alors un mélange des propriétés optiques des consituants, *Péré et al.* (2010). Au delà de la facilité de calcul et de la précision du résultat, le choix de la représentation va avoir un impact sur l'utilisation de l'aérosol calculé : *Riemer et al.* (2019) montrent que le mélange interne ou externe donnera des résultats différents en terme d'activation des aérosols pour le calcul des CCN (*Cloud Condensation Nuclei*) dans les schémas de microphysique des nuages.

Espèce modèle	Origine	Description	Densité ρ_p	primaire /secondaire
PPM	anthropique	Matière primaire	1.50	primaire
DUST	mineral	Minéral	2.65	primaire
EC	anthropique	Carbone élémentaire (BC)	1.50	primaire
POM	anthropique	Matière organique (OC)	1.50	primaire
SALT	biogénique	Sea salts	2.10	primaire
SOA	bio/anth	Aérosols organiques secondaires	1.50	secondaire
SO_4	anthropique	Equiv. Sulfate	1.84	secondaire
NO_3	anthropique	Equiv. Nitrate	1.70	secondaire
NH_4	anthropique	Equiv. Ammonium	1.70	secondaire
WATER	-	Eau	1.00	primaire

TABLE 6.5 – *Propriété des aérosols modélisés. La densité ρ_p est exprimée comme la valeur $\times 10^3$ kg m^{-3}.*

Les modèles d'aérosols

Article open-access de référence: *Semeniuk and Dastoor* (2020)

La dénomination *modèle d'aérosol* désigne le calcul de l'ensemble des processus qui affectent le cycle de formation de l'aérosol : nucléation, condensation, coagulation, *Zhang et al.* (1999). Ce sont des modules complets, souvent développés pour être utilisables en 0D et intégrés dans les codes de chimie-transport. Le traitement de ces aérosols va dépendre de leur nature et on peut distinguer trois familles d'espèces :

- Les aérosols chimiquement inertes (ou considérés comme tels) : les minéraux, le carbone élémentaire (ou "black carbon") et les sels marins (*"sea-salt"*).
- Les aérosols inorganiques : sulfate, nitrate et ammonium
- Les aérosols organiques

Contrairement aux espèces gazeuses (pour lesquelles on modélise quelques dizaines d'espèces modèles), on modélisera beaucoup moins d'espèces pour les aérosols. Chaque aérosol ayant une distribution en taille à discrétiser, le coût de calcul de la modélisation des aérosols peut vite devenir prohibitif. Pour certains modèles comme le modèle CHIMERE, les aérosols modélisés sont présentés dans le Tableau 6.5, *Bessagnet et al.* (2004). Pour d'autres, certaines espèces inorganiques ne sont pas forcément prises en compte comme le modèle IFS de ECMWF, *Bozzo et al.* (2020). Le modèle d'aérosols s'applique uniquement aux espèces actives chimiquement comme les inorganiques et les organiques. Pour les autres espèces, comme les minéraux, on ne traite dans le modèle de chimie-transport que de leur émissions, transport et dépôts.

Un exemple de simulation permettant de calculer les concentrations d'aérosols en fonction de leur composition est présenté sur la Figure 6.7. Pour deux sites différents, en Corse et en France métropolitaine, on distingue le panache d'aérosols minéraux en altitude. Les autres fortes concentrations d'aérosols sont localisées plus près de la source, là ou ils (et leurs précurseurs) ont été émis.

Pour les processus de nucléation et coagulation, des schémas faisant référence sont généralement utilisés dans les modèles. La **nucléation** représente la conversion de la phase gaz vers la phase particulaire. Cela dépend principalement de la pression de vapeur saturante des molécules et le schéma de *Kulmala et al.* (1998) est très utilisé. La difficulté de représentation de ce processus est qu'il représente la formation de particules ultra-fines, très difficiles à mesurer. Pour une espèce donnée, plus la pression de vapeur saturante sera élevée (vis-à-vis de la pression atmosphérique), plus l'espèce sera volatile. Cette évolution est non linéaire et se quantifie avec la relation de Clausius-Clapeyron. La nucléation se fera en fonction du cycle

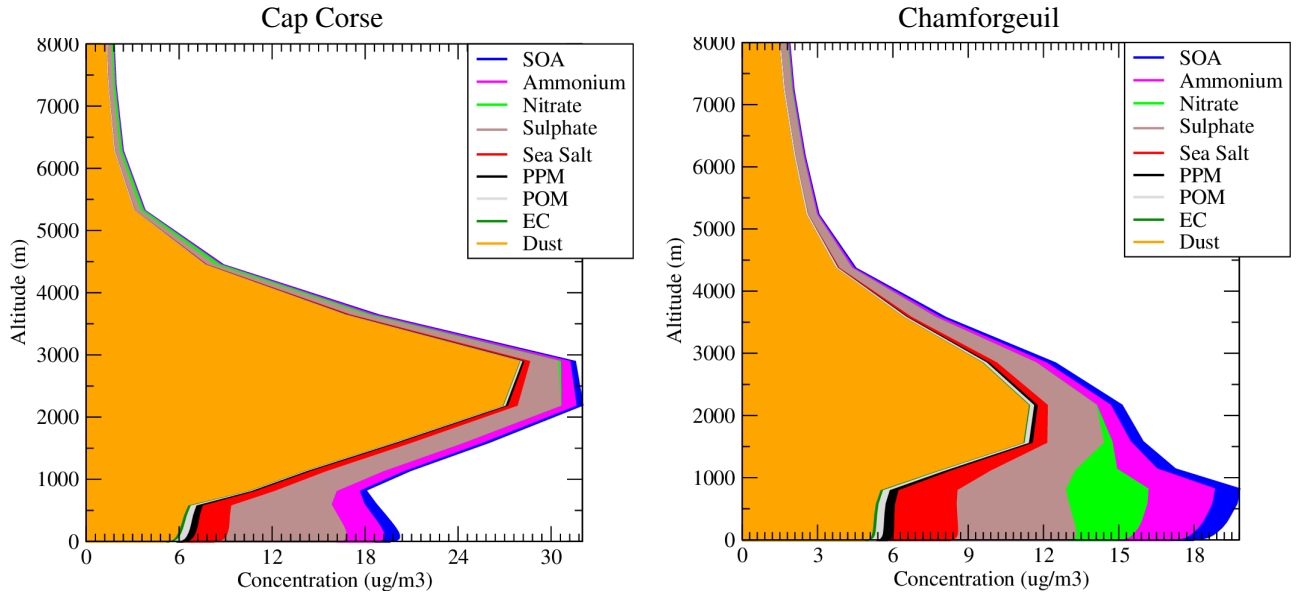


FIGURE 6.7 – *Exemple de modélisation des concentrations d'aérosols en fonction de leur composition. Simulation réalisée avec WRF-CHIMERE, figure extraite de Menut et al. (2015b).*

de Gibbs et ne se réalisera que dans un régime de sur-saturation. Ce processus reste mal connu (et donc mal modélisé) notamment pour son initiation. On définit le rapport de saturation comme $S = P_a/P_a^s$, avec P_a la pression partielle du composé A et P_a^s la pression de vapeur saturante du composé A, en équilibre avec sa phase liquide, à la température T. Pour S < 1, on sera dans un régime de sous-saturation. Si le rayon de la goutte croit, ΔG croit : il n'y aura pas de nucléation possible spontanément. Pour S > 1, on sera en régime de sur-saturation. Dans ce cas, l'évolution de la nucléation se fera en fonction du $r_{critique}$. La **coagulation** est plus fréquente que la nucléation pour la formation d'Aérosols Organiques Secondaires (AOS). Les aérosols s'agrègent entre eux lors d'agitation thermique. C'est actuellement un phénomème mieux compris. La coagulation peut se faire soit par **adsorption** ou **absorption**, ce second processus étant dominant dans le système. Pour le processus de coagulation, on parle d'équilibre gaz/particules. L'absorption se fera suivant différentes lois en fonction du caractère hydrophile ou hydrophobe de la particule, *Pandis et al.* (1993). Pour les particules hydrophiles,, et donc la phase aqueuse, on utilisera la loi de Henry et pour les aérosols hydrophobes, et donc la phase particulaire, la loi de Raoult. Pour la modélisation, il faut définir ces constantes pour chaque espèce modèle d'aérosol. Il faut donc adapter les constantes de réaction au mécanisme spécifique employé. La **condensation** est un processus ou une espèce gazeuse va condenser à la surface d'un aérosol. Elle pourra ensuite être relachée sous forme gazeuse lors de l'évaporation du nuage. C'est un processus d'autant plus rapide que l'aérosol est petit. On cherche à calculer l'équilibre thermodynamique à la surface de l'aérosol. Cet équilibre est généralement calculé indépendamment pour les organiques et inorganiques. Cela permet de faire plus facilement la séparation entre les organiques (plutôt hydrophobe) et les inorganiques (plutôt hydrophile), puisque seuls les hydrophiles seront concernés par ce processus. Mais cela est remis en question car certains SOA sont considérés comme aussi hydrophiles.

Pour les **espèces inorganiques**, espèces semi-volatiles, le modèle ISORROPIA, *Nenes et al.* (1998), est souvent utilisé. Il a été mis à jour en vesion 2, *Fountoukis and Nenes* (2007). D'autres modèles existent comme cela est comparé dans *Zhang et al.* (1999), *Amundson et al.* (2006) et *Semeniuk and Dastoor* (2020).

Modèle	Référence	Utilisé dans
SORGAM	*Schell et al.* (2001)	WRF-chem
UHAERO	*Amundson et al.* (2006)	CMAQ
ISORROPIA 2	*Fountoukis and Nenes* (2007)	WRF-chem, Geos-Chem, Chimere
MOSAIC	*Zaveri et al.* (2008)	WRF-chem
EQSAM	*Metzger et al.* (2012)	Camx

TABLE 6.6 – *Quelques modèles d'équilibre thermodynamique des aérosols inorganiques.*

Modèle	Référence	Utilisé dans
UHAERO-organics	*Amundson et al.* (2007)	0D
SOAP	*Couvidat and Sartelet* (2015)	POLYPHEMUS, CHIMERE
SOAS	*Pye et al.* (2017)	CMAQ5
UNIPAR	*Beardsley and Jang* (2016)	0D
BAT	*Gorkowski et al.* (2019)	0D

TABLE 6.7 – *Quelques modèles de calculs des Aérosols Organiques Secondaires.*

Ces modèles prennent en compte les concentrations des gaz et aérosols, ainsi que l'humidité relative et la température. Les aérosols vont grossir en taille et il est nécessaire de calculer leur diamètre humide. Ce processus va faire évoluer les aérosols de diamètres nanométriques à micrométriques. Les aérosols inorganiques, sulfate (SO_4^{2-}), nitrate (NO_3^-) et ammonium (NH_4^+) sont sous forme liquide et seront formés par ce processus à partir de dioxyde soufre SO_2, de l'acide nitrique HNO_3 et d'ammoniac NH_3. Pour les **espèces organiques**, la modélisation des aérosols organiques secondaires (SOA) est actuellement en pleine progression, *Semeniuk and Dastoor* (2020). La chaine complète de calcul est : (i) Emissions de précurseurs gazeux (biogéniques, anthropiques, feux), (ii) chimie gazeuse, (iii) Nucléation par transition de gaz vers particules, (iv) Chimie des aérosols dont aqueuse, et (v) Physico-chimie des nuages. Une des premières études de modélisation des SOA est assez récente avec *Schell et al.* (2001) et le modèle SORGAM. On peut noter que cette modélisation a d'abord été réalisée à l'échelle globale puis récemment à l'échelle régionale, *Kanakidou et al.* (2005) : les aérosols peuvent être formés dans la troposphère libre de par les basses températures, puis avoir un effet sur le bilan radiatif et la formation nuageuse. Ces aérosols sont formés à partir d'aérosols organiques (VOCs) primaires (POA), majoritairement d'origine biogénique, comme les benzene, toluène, terpènes et isoprène, *Pun and Seigneur* (2007). De par sa petite taille, il est à noter que l'isoprène n'a pas été initialement considéré comme un précurseur possible de SOA, alors qu'il est un des plus abondant, *Li et al.* (2013). Les gaz précurseurs sont tout d'abord oxydés (à partir de OH, O_3 ou NO_3) pour donner des composés organiques semi-volatils (*semi-volatil organic compounds*, notés SVOCs), *Bessagnet et al.* (2009). La modélisation des SOA est sensible à différents paramètres du modèle : (i) la qualité des émissions biogéniques, étant les principaux précurseurs. S'ajoutent aussi, ponctuellement, les émissions de feux, contributeurs importants de OC. (ii) la qualité des champs météorologiques de forçage, notamment la température près de la surface, la conversion gaz particules en étant très dépendante (via la cinétique chimique), (iii) la difficulté de modéliser la nucléation reste un point faible de ces calculs. Quelques modèles actuels de calcul de SOA sont résumés dans le Tableau 6.7.

Mais la plupart de ces modèles ont montré une sous-estimation des SOA calculés dans les modèles de chimie-transport. Cela peut être dû à une sous-estimation des émissions biogéniques de précurseurs. Mais

il a été identifié que cela était aussi dû à la représentation du vieillissement des espèces semi-volatiles gazeuses avant leur conversion en aérosols, *Donahue et al.* (2006), *Robinson et al.* (2007). Pour représenter ce processus (dit de *"ageing"*), les schémas de *Volatility Basis Set* (VBS) ont été ajoutés dans les calculs des SOA. Ils permettent de suivre l'évolution des espèces gazeuses au cours de leur oxydation et de prendre en compte l'évolution de leur volatilité. Pour cela, ils affectent une partie des émissions de POA (en général considéré comme inerte chimiquement et non volatils, *Shrivastava et al.* (2011)) en espèces semi-volatiles, SVOC, et de volatilité intermédiaire, IVOC.

Ces schémas VBS sont couramment employés dans les modèles comme WRF-chem *Shrivastava et al.* (2011), EMEP *Bergström et al.* (2012), EURAD *Li et al.* (2013), CHIMERE *Zhang et al.* (2015), *Cholakian et al.* (2019), CMAQ *Woody et al.* (2016). Récemment, la prise en compte de la fonctionnalisation et de la fragmentation ont été ajoutées dans les schémas VBS et a permis d'accroitre leur réalisme : *Cholakian et al.* (2019) utilise ces deux ajouts dans le modèle CHIMERE. La fonctionnalisation considère indépendamment les POA en fonction de leur cinétique d'oxydation, k_{OH} et se séparent donc en catégories avec les alkenes, alkanes et aromatiques. La fragmentation est prise en compte en fonction des cycles d'oxydation des espèces.

La modélisation du cycle de vie des aérosols est actuellement un des plus grands champs de recherche sur la pollution. De nombreux modèles existent, dans une complexité croissante. La description de tous les processus devient complexe, multipliant aussi les instabilités numériques et les erreurs dans les modèles. Les approches numériques actuelles, comme VBS ou les modèles thermodynamiques, n'ont pas encore la maturité que l'on peut trouver comme pour les paramétrisations de turbulence de surface ou chimie gazeuse, par exemple.

6.6 Le couplage météorologie et chimie

Article open-access de référence: *Zhang* (2008), *Baklanov et al.* (2014)

Les modèles couplés

Les modèles de pollution atmosphérique traitent à la fois de la physique et de la chimie. Il est tout à fait logique de penser que chacun va influencer l'autre, *Grell and Baklanov* (2011). Mais en pratique, la modélisation n'a considéré que l'impact de la physique sur la chimie et pas le contraire pendant longtemps. La rétroaction de la chimie sur la physique est une modélisation assez récente et est dénommée *modélisation on-line*. Le principe est illustré sur la Figure 6.8, à comparer avec la Figure 6.1 (p.98).

Il y a deux méthodes de prise en compte de ces effets dans l'architecture du modèle : (i) les modèles "tout en un" : la chimie est l'un des processus du modèle météorologique. Cela signifie que les calculs sont faits sur la même grille avec des pas de temps qui se recouvrent régulièrement entre physique et chimie. C'est le cas du modèle WRF-chem, *Chapman et al.* (2009), *Berg et al.* (2015). (ii) les modèles avec coupleur. Dans ce cas, le modèle météorologique a été développé indépendamment du modèle CTM. Un troisième modèle va les faire dialoguer. Les modèles peuvent donc aussi être utilisés en *offline*, ne sont pas forcément sur la même grille mais doivent avoir des pas de temps coincidants pour échanger les informations. C'est le cas, par exemple, des modèles WRF-CMAQ, *Wong et al.* (2012), et WRF-CHIMERE, *Briant et al.* (2017), *Tuccella et al.* (2019), *Menut et al.* (2021).

En *online*, les deux modèles (météorologie et chimie-transport) calculent en même temps et échangent des informations au fur et à mesure de l'intégration temporelle. Pour le passage d'informations de la météorologie vers la chimie, on retrouve le principe des modèles offline pour lesquels sont fournis les variables principales de l'écoulement : vent, température, humidité, pression et possiblement des variables secondaires

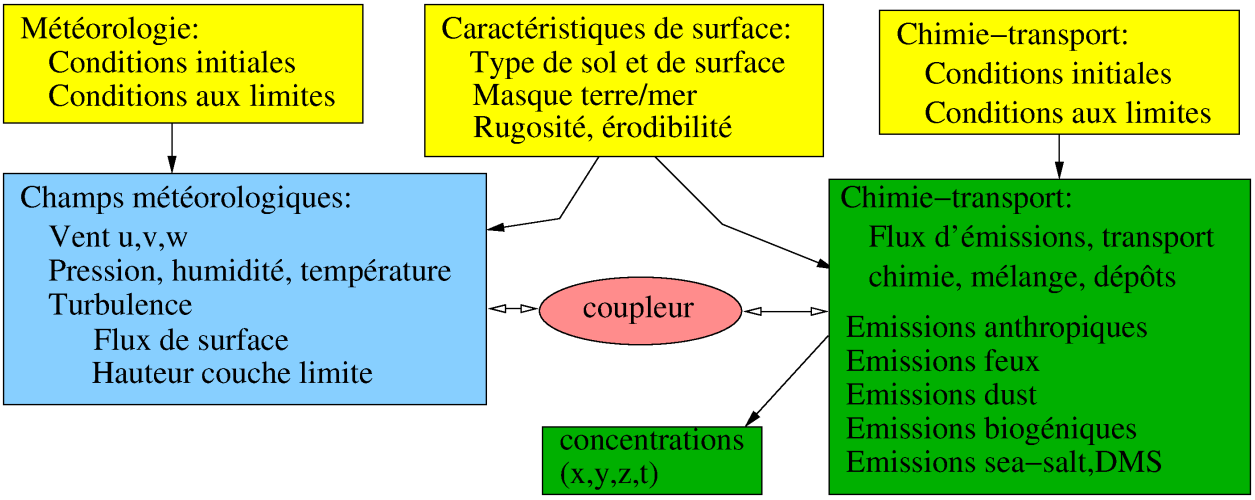


FIGURE 6.8 – *Schéma de principe au sein d'un CTM "online". Les boîtes jaunes correspondent aux forçages du modèle, la boîte bleue à la météorologie et la boîte verte à la chimie-transport.*

ou diagnostiques comme la température à 2m, le vent à 10, les flux turbulents, les précipitations convectives et stratiformes *etc.* Pour le passage d'informations de la chimie vers la météorologie, les gaz et aérosols sont concernés. Les gaz vont agir sur les taux de photolyse, quand les aérosols vont agir sur le bilan radiatif mais aussi sur la formation nuageuse. Les modèles *online* vont calculer les interactions possibles entre aérosols, nuages et rayonnement, *Zhang* (2008), *Baklanov et al.* (2014). Pour cela, on définit deux types d'interactions : les **effets directs** et les **effets indirects**, *Haywood and Boucher* (2000).

Les **effets directs** vont impacter la thermodynamique sous une couche d'aérosols, après que ces aérosols aient absorbé ou réfléchi le rayonnement solaire. Pour prendre en compte ces effets, les modèles CTM calculent et fournissent au modèle météo l'épaisseur optique AOD, l'albédo de simple diffusion (*Single Scattering Albedo*, SSA) et le facteur d'asymétrie des aérosols. Les **effets indirects** vont représenter l'influence des aérosols pour créer des noyaux de condensation liquide (*Cloud Condensation Nuclei*, CCN) ou de glace (*Ice Nuclei*, IN) et donc impacter la formation et le temps de vie des nuages. Un accroissement du nombre de CCN va induire, à quantité d'eau équivalente, des goutelettes plus fines et plus nombreuses, une augmentation de l'albédo du nuage, nommé effet Twomey (ou premier effet indirect). Une augmentation de la charge en CCN va aussi modifier le temps de vie des nuages et les précipitations, c'est l'effet Albrecht (ou second effet indirect), *Andreae and Rosenfeld* (2008). De nombreuses études ont été réalisées ces dernières années pour quantifier l'impact des effets directs et indirects. Le Tableau 6.8 résume les dernières publications décrivant les couplages entre modèles.

Les effets directs

Les grandes étapes de modélisation pour les effets directs concernent le calcul du bilan radiatif. Les flux radiatifs sont calculés à partir de la température, humidité, contenu en eau liquide/glace, fraction nuageuse. Sont aussi considérées les concentrations en gaz et aérosols ayant un impact radiatif. Il faut donc préciser leurs concentrations ainsi que leurs propriétés optiques. Les résultats de ces forçages sont très sensibles à ces choix, notamment selon que l'aérosol est décrit en mélange interne ou externe, *Péré et al.* (2010). Parmi les applications sur les effets directs, on note principalement des études sur les aérosols minéraux, les panaches

Modèle	Référence
COSMO-art	*Vogel et al.* (2009)
WRF-chem	*Chapman et al.* (2009), *Berg et al.* (2015)
WRF-CMAQ	*Wong et al.* (2012), *Yu et al.* (2014)
ICON-ART	*Rieger et al.* (2015)
Enviro-HIRLAM	*Baklanov et al.* (2017)
BRAMS	*Freitas et al.* (2017)
COSMO-MUSCAT	*Dipu et al.* (2017)
WRF-CHIMERE	*Menut et al.* (2021)

TABLE 6.8 – *Articles décrivant les couplages entre modèles pour le calcul des effets directs et indirects.*

de feux de biomasse et, dans une moindre mesure, les émissions anthropiques. Parmi les premières études, *Pérez et al.* (2006) montre sur la région Méditerranée, le gain en précision en tenant compte de l'impact radiatif des minéraux. *Zhao et al.* (2010) étudie l'impact radiatif des aérosol minéraux dans le short-wave et montre la sensibilité des résultats au choix de la distribution en taille des aérosols, pouvant générer jusqu'à 0.5 K d'écart sur les résultats en surface. Le même type d'étude est réalisé par *Woodage and Woodward* (2014) qui montrent que ce choix a un impact sur la simulation de la mousson africaine. *Harikishan et al.* (2015) quantifient ce même impact sur la verticale avec l'aide de données lidar et montrent que l'impact des aérosols minéraux est plus prononcé dans les nuages froids que les nuages chauds. En Asie, *Han et al.* (2013) montrent l'impact radiaitf des aérosols minéraux sur la météorologie et montre que la simulation avec le modèle *online* se rapproche bien mieux des observations que la simulation *offline*. La prise en compte de l'impact des aérosols minéraux augmente la stabilité de la basse atmosphère, donc réduit la vitesse du vent, qui réduit les émissions des aérosols minéraux donc leur concentration, puis leur transport à longue distance. *Baró et al.* (2017) étudient l'effet direct sur la température : ils montrent le gain sur la simulation en prenant en compte cet effet, avec une application d'exemple sur l'Europe. De même *Briant et al.* (2017) montre un impact de l'ordre de 1 K sur l'Afrique de l'Ouest. *Lou et al.* (2017) quantifie l'impact de l'effet direct des aérosols minéraux sur une simulation longue de 150 ans, depuis le début de l'ère industrielle. Il montre un affaiblissement du vent donc des émissions des aérosols minéraux. *Gordon et al.* (2018) étudie l'effet direct des feux de biomasse, à haute résolution spatiale (4 km) et sur l'Atlantique sud. Ils montrent que le panache d'aérosol augmente le nombre de CCN, réduit la hauteur de la couche limite et un refroidissement général sur la région.

Les effets indirects

Les effets indirects sont traités dans le module météorologique de microphysique des nuages, comme par exemple le schéma de *Thompson and Eidhammer* (2014), une paramétrisation développée pour simuler le temps de vie des nuages, l'entrainement au sommet des nuages, la convection profonde, les précipitations et l'évaporation. La connaissance des concentrations en aérosols est nécessaire pour donner l'information sur les CCN, *Abdul-Razzak and Ghan* (2002), et IN, *DeMott et al.* (2010). Il faut alors spécifier à la fois la masse et le nombre pour chaque classe de taille des aérosols. La chimie dans les nuages convectifs est aussi d'importance mais encore peu décrite dans les modèles, *Grell and Freitas* (2014). Les études sur les effets indirects sont généralement notées ARCI pour *Aerosol Radiation Cloud Interactions*. Une des premières est réalisée par *Andreae and Rosenfeld* (2008) qui en présente les grands principes. *Bangert et al.* (2011) étudient les effets indirects avec le modèle COSMO-art et sur l'Europe. Ils montrent que

la prise en compte du relief permet d'affiner les vitesses dans les updrafts pour améliorer le calcul des concentrations en nombre d'aérosols. Avec ces développements, ils montrent qu'il est possible de faire le lien en modélisation entre les modèles à fine échelle (*Cloud Resolving Models*) et les modèles globaux. Leur approche sera ensuite utilisée dans d'autres modèles régionaux. *Forkel et al.* (2012) utilisent le modèle WRF-chem pour faire le lien entre effets indirects et impact sur la qualité de l'air. Ils montrent l'accroissement des précipitations sur l'Atlantique. *Lim et al.* (2013) étudient l'impact de cet effet sur la mousson en développant les interactions dans le couplage des modèles WF-CAM5. Ils montrent une amélioration de la simulation des précipitations et du bilan radiatif par rapport aux observations. *Yu et al.* (2014) implémente les effets indirects dans le coulage WRF-CMAQ et l'appliquent sur les Etats-Unis et comparent les résultats à des données satellites. Ils montrent un gain sur la modélisation des mesures de PM en surface. *Nickovic et al.* (2016) étudient la capacité des minéraux à devenir des noyaux glaciogènes (IN). Avec le modèle WRF-chem, *Archer-Nicholls et al.* (2016) étudient les effets indirects liés aux feux de biomasse au Brésil. Ils montrent que cela génère un net refroidissement en surface, le flux radiaitf étant absorbés par les aérosols. Les aérosols de feux agissant en CCN, le nombre de goutelettes des nuages est augmenté. *Zhou et al.* (2016) étudient un des points les plus sensibles pour le calcul des effets indirects : l'activation des aérosols. Ils développent des interactions ARCI et l'appliquent à des cas de brouillards. Ils montrent un net gain sur leur modélisation de précipitations. *Penner et al.* (2018) développent une nouvelle paramétrisation pour mieux représenter les effets indirects des aérosols anthropiques (les émissions des avions de ligne) sur la formation des cirrus. *Weger et al.* (2018) utilisent le modèle COSMO-MUSCAT pour quantifier l'effet indirect des minéraux sur la formation nuageuse en Europe et montrent que cet effet est responsable de la formation de cirrus. Ils montrent aussi que le choix de la paramérisation des noyaux glaciogènes à partir des aérosols minéraux est très sensible pour les résultats.

Incertitudes et perspectives

Les développements des calculs des effets directs et indirects à l'échelle régionale sont un sujet de recherche très actuel. Mais il y a plusieurs incertitudes et améliorations à apporter.

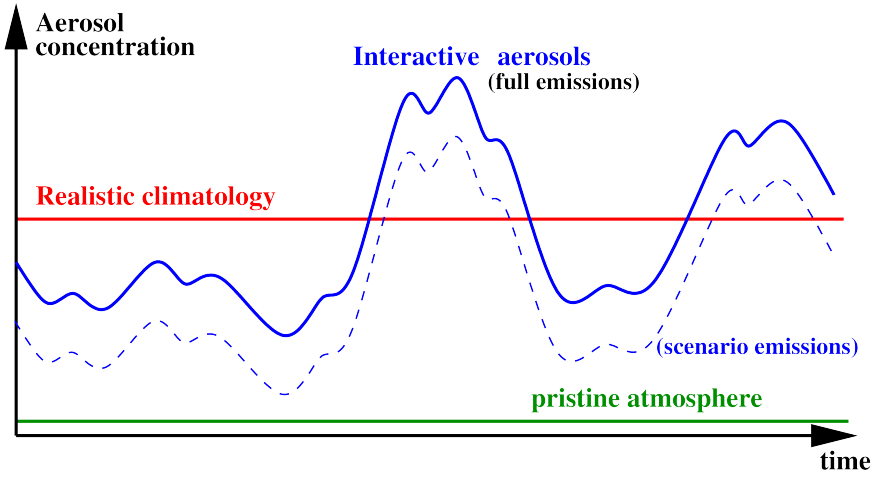


FIGURE 6.9 – *Schéma de principe de simulations avec une atmosphère pristine, ou une climatologie d'aérosols ou un couplage online.*

L'impact de la fréquence du forçage météorologique

Le couplage a aussi été rendu possible grâce à l'augmentation récente des capacités de calcul. On a pu en effet échanger des informations entre météo et chimie à la fréquence de quelques minutes. Alors que les modèles en *offline* utilisés en analyse ou prévision, et pour économiser des ressources, avaient un forçage météo à fréquence horaire au minimum. Les résultats de modélisation ont ainsi bénéficié du gain en information avec la prise en compte des effets directs et indirects. Mais pas uniquement : le passage du forçage météorologique à fréquence sub-horaire a aussi eu un impact important, *Briant et al.* (2017). En effet, par exemple pour la température, en période convective, une bonne description de sa variation va avoir un fort impact sur la photolyse alors que les modèles a forçage horaire interpolait les valeurs entre deux heures. De même pour le précipitations, un raffinement de la série chronologique va drastiquement changer les résultats. Pour tous les paramètres météorologiques à haute variabilité sub-horaire, cette prise en compte a montré un impact important sur les concentrations simulées.

Plus de précision, plus de variabilité donc plus d'erreur

Cependant, l'emploi d'un modèle *online* à la place d'un modèle *offline* est plus réaliste mais n'est pas la garantie d'avoir de meilleurs résultats, notamment en prévision opérationnelle. Car l'ajout d'un lien entre physique et chimie augmente le dialogue entre les processus et donc la possibilité d'une erreur de se propager dans le modèle. Ainsi, une erreur sur les émissions va générer une erreur sur les concentrations. Si on ajoute le *online*, cette erreur va impacter la physique des nuages donc le bilan radiatf, donc la convection, les flux de surface et le transport, et par retour la chimie.

De plus, l'ensemble des paramétrisations ont été développées, et donc souvent calées, avec des modèles *offline*. En passant en *online*, reste-t-on vraiment dans le même espace de solution ? Normalement, la physique qui s'applique à une moyenne (souvent le cas en *offline*) doit s'appliquer à une quantité beaucoup plus variable. Mais beaucoup de processus étant à seuil, il faut probablement vérifier les schémas que l'on utilise quand on fait une transition de *offline* à online.

Des effets uniquement considérés partiellement

La quantification du gain des effets directs/indirects souffre d'un problème de définition : par rapport à quelle simulation comparer une simulation *online* ? En effet, les modèles météorologiques *offline* utilisent des paramétrisations pour lesquelles il est forcément nécessaire d'avoir des informations sur les concentrations en aérosols, Figure 6.9. Ils utilisent alors des climatologies. Aussi précises soient-elles actuellement, elles restent des valeurs moyennes (sur des journées ou des mois) et ne reflètent pas la situation réelle : par exemple, une climatologie moyenne ne sait pas représenter un évènement de poussières minerales ou un feux de biomasse. Pour éviter ce biais lié à la climatologie, on pourrait comparer les simulations *online* à une simulation pristine (sans aérosols). Mais cette dernière serait juste irréaliste : la comparaison n'aurait pas de sens physique. En pratique, il n'est donc pas possible de quantifier l'impact d'une simulation *online* par rapport à une simulation *offline* : mais l'approche *online* étant par définition plus réaliste, elle doit permettre de rapprocher les résultats de simulation des observations.

Des couplages encore à développer

Le pas suivant sur ces couplages est d'ajouter le "compartiment géophysique" de la surface incluant la végétation. Si les modèles globaux utilisés pour les calculs climatiques prennent déjà en compte ces interac-

tions, ce n'est pas encore forcément le cas des modèles régionaux utilisés pour la pollution atmosphérique. Les informations pertinentes seront tout ce qui affecte les flux de surface et l'état des sols.

Utiliser des modèles couplés est la logique à adopter car les modèles *offline* sont pratiques mais pas réalistes. Mais tous les développements faits en *offline* doivent probablement être revus, repensés en *online* : mettre en place des rétroactions multiples dans un modèle augmente sa non linéarité et donc ses possibilités d'erreurs et de divergence.

7 Qualification et optimisation

Ce chapitre présente les différentes approches pour jauger du réalisme d'une simulation par rapport à ce que l'on cherchait à représenter. Cela inclut le calcul de scores statistiques et les représentativités différentes entre mesures et observations. Sont présentées ensuite les différentes méthodes pour évaluer la variabilité du modèle notamment avec des simulations de scénarios et des simulations d'ensemble.

7.1 Qualification des résultats de modélisation

Peut-on qualifier ou valider un modèle ?

Réaliser une simulation doit passer par la mise en place d'une procédure permettant de jauger de sa qualité. Le terme "valider" est souvent employé à tort. Un modèle restant une représentation simplifiée de la réalité, **on ne peut pas valider globalement un modèle**. Cela signifierait qu'à partir d'un jeu de configuration, il est devenu universel et peut donner de bons résultats dans d'autres configurations très différentes. On peut cependant "qualifier" un modèle c'est à dire quantifier s'il se comporte raisonnablement dans le cadre précis que l'on a défini. Pour jauger des qualités d'un modèle, certaines limitations existent : les données utilisées pour qualifier le modèle ne peuvent pas avoir déjà été utilisées pour "caler" le calcul. De plus, une comparaison mesures/modèles ne peut être réalisée qu'en gardant en tête que : (i) Le modèle contient des erreurs : les paramétrisations ou autres hypothèses, (ii) Les données contiennent des erreurs, liées à l'instrument de mesure ou aux algorithmes de traitement des données brutes, (iii) Les deux approches n'ont jamais la même représentativité spatiale et/ou temporelle.

Les résultats sont ils bons ?

Il faut définir ce qu'est un "bon" résultat par rapport à ce que l'on cherche à étudier. En fonction de ce critère subjectif, les résultats de simulation pourront être considérés comme correct et donc utilisés pour l'analyse et l'interprétation de problèmes géophysiques. Un modèle peut s'évaluer de plusieurs manières. Il est tout d'abord possible de comparer des résultats à des solutions analytiques connues. Plus le modèle est complexe, moins cette approche est possible. Pour la pollution, cette approche n'existe pas. On peut aussi comparer le modèle à un autre modèle : on a dans ce cas une première idée des capacités du modèle, de sa variabilité, de sa capacité à simuler des valeurs moyennes ou des extrêmes par rapport aux autres outils numériques équivalents. Cette approche est souvent réalisée lors d'exercices d'inter-comparaisons de modèles. Mais que se passe-t il lorsque les modèles, souvent basés sur les mêmes principes, les mêmes paramétrisations, donnent des résultats proches mais faux ?

La meilleure évaluation du modèle reste sa **confrontation à des mesures** : seule réalité du processus que l'on cherche à reproduire numériquement. Pour réaliser correctement des comparaisons entre modèles et observations, il faut respecter les contraintes suivantes : (i) La valeur simulée obtenue doit être dans la marge d'incertitude de la référence (la mesure), (ii) La valeur simulée obtenue doit avoir la même représentativité que la référence (iii) Cela doit être vrai en chaque point de l'espace et pour toute la durée de la simulation. La confrontation mesures/modèles induit donc un "minimum" de valeurs de comparaison. Cette quantité

reste empirique, mais l'on peut définir quelques grands principes, liés à des considérations statistiques. Les échelles d'espace et de temps étant liées, en fonction de la taille du domaine de simulation et du processus simulé, on peut poser des bornes. Par exemple, pour un modèle global, simulant des variabilité saisonnières, on ne peut pas valider des simulations sur un an : un état du système seulement n'est pas représentatif. Le modèle global étant souvent utilisé pour estimer des variabilité saisonnières, on ne peut considéré la simulation comme correcte que si on a au minimum plusieurs années ou décennies de comparaison. Pour un modèle méso-échelle simulant des champs horaires, la fréquence est liée aux conditions aux limites synoptiques : on ne peut donc pas valider le modèle sur un cycle diurne uniquement. La simulation est considérée comme pertinente si on n'a au minimum plusieurs semaines ou mois calculés.

Statistiques d'évaluation

Différents outils statistiques existent pour évaluer le réalisme d'une simulation, *Wilks* (2006). Ils ont été testés dans un cadre de pollution atmosphérique par exemple dans *Baldridge and Cox* (1986) et *Cox and Tikvart* (1990). On note O_n la n-ième valeur observée de l'échantillon considéré de taille N, S_n la n-ième valeur simulée et $\overline{X_N}$ la **moyenne** de chacune de ces variables telle que :

$$\overline{X_N} = \frac{1}{N}\sum_{i=1}^{N} X_i \tag{7.1}$$

En pratique, on a forcément moins d'observations que de valeurs simulées. La dimension N est donc celle des mesures. Le **biais** est l'écart moyen entre les valeurs simulées et observées. Il indique les erreurs systématiques :

$$biais = \frac{1}{N}\sum_{i=1}^{N}(S_i - O_i) \tag{7.2}$$

L' **erreur quadratique** (*Root Mean Square Error*) donne l'erreur moyenne en valeur absolue :

$$RMSE = \sqrt{\frac{1}{N}\sum_{i=1}^{N}(S_i - O_i)^2} \tag{7.3}$$

La **corrélation** permet de savoir si la variabilité est bien reproduite, indépendamment de l'amplitude :

$$cor = \frac{\frac{1}{N}\sum_{i=1}^{N}(S_i - \overline{S_N}) \times (O_i - \overline{O_N})}{\sqrt{\frac{1}{N}\sum_{i=1}^{N}(S_i - \overline{S_N})^2 \times \frac{1}{N}\sum_{i=1}^{N}(O_i - \overline{O_N})^2}} \tag{7.4}$$

On peut donc utiliser ces indicateurs directement à partir de valeurs mesurées et modélisées. Il faut cependant respecter quelques contraintes, notamment la représentativité de la mesure et de la modélisation : il faut que les deux valeurs comparées aient les mêmes dimensions c'est à dire :

- le même environnement spatial : la représentativité spatiale de la mesure doit être proche de la taille de maille du modèle. Comme cela est rarement le cas, il est recommandé d'interpoler spatialement la valeur du modèle à l'endroit ou a été faite la mesure.

- la même durée : la valeur de la donnée doit être représentative du même pas de temps que le pas de temps du modèle. On note souvent des mesures à plus haute fréquence que la sortie du modèle : une moyenne des mesures permettra de revenir à la même représentativité.
- le même sens géophysique : la variable simulée doit représenter la même chose que ce qui est mesuré. Par exemple, on pourra comparer directement l'ozone mesuré et simulé mais d'autres espèces chimiques modèles (ou des familles comme $PM_{2.5}$) ne pourront pas être directement comparées à une mesure, sans avoir ce que cette mesure contient exactement.

D'autres indicateurs basés sur les minimum et maximum de valeurs diurnes de concentrations peuvent aussi être utilisés, *Chang and Hanna* (2004), étant plus indicatifs de ce que l'on cherche en pollution atmosphérique. De même, il faut considérer qu'il est nécessaire d'utiliser systématiquement plusieurs de ces indicateurs : un seul peut masquer des problèmes de la simulation. A partir de ces indicateurs, des outils numériques intégrés ont été développés. Par exemple, *Appel et al.* (2011) et *Galmarini et al.* (2012) proposent des modules statistiques permettant d'extraire toute l'information disponible dans un modèle. *Thunis et al.* (2012) proposent aussi un outil de calcul mais plus orienté vers les calculs de seuil propres à la législation de la qualité de l'air. Ils proposent par exemple le *"Target diagram"* pour avoir sur la même figure le biais et la RMSE. Ce type de scores est utilisé par exemple par *Simon et al.* (2012) qui synthétise les performances de différents modèles de chimie-transport, utilisant des données et simulations sur plusieurs années. Pour savoir si la différence calculée entre deux simulations est significative, d'autres tests statistiques plus complexes sont utilisés. Par exemple, le test de Mann-Whitney peut être utilisé (aussi appelé *Wilcoxon signed rank test*), *von Storch and Zwiers* (2001). Ce test est non paramétrique, c'est à dire qu'il n'y a pas nécessité que la distribution des différences soit normale. On considère deux simulations $x_{1,N}$ et $x_{2,N}$ de même dimension N. On calcule tout d'abord la différence entre les deux :

$$d_i = x_{2,i} - x_{1,i} \ \ , \text{For i} = 1, ..., \text{N} \tag{7.5}$$

On construit un sous-ensemble N_r en supprimant les valeurs nulles. Le reste est trié en ordre croissant et leur rang R_i est conservé en mémoire. Le test statistique W est calculé :

$$W = \sum_{i=1}^{N_r} (sign(d_i) \times R_i) \tag{7.6}$$

Le score z est estimé $z = W/\sigma_w$ avec, quand $N_r \geq 20$:

$$\sigma_w = \sqrt{\frac{N_r(N_r+1)(2N_r+1)}{6}} \tag{7.7}$$

L'hypothèse de nullité H_0 est rejetée (c'est à dire que les différences sont significatives et non dues au hasard) si $|z| > z_{critical}$. Pour un niveau de significativité de 0.05, on a : $z_{critical} \approx 1.645$. La Figure 7.1 présente une différence entre deux simulations sur l'Afrique de l'Ouest pendant la campagne DACCIWA, *Menut et al.* (2019). On peut voir que là ou la valeur du vent change le plus, cela correspond à une différence significative.

D'autres approches ont été proposées. Par exemple, *Menut et al.* (2017) montrent que l'on peut définir un indicateur statistique, comparant modèle et observations, et qui permet de quantifier si les bons scores obtenus par la simulation sont significatifs. En effet, en fonction du mode de comparaison que l'on fait, on peut avoir de bons scores mais pour de mauvaises raisons. Par exemple, pour l'ozone, avoir un biais faible sur l'ensemble d'une journée (cycle diurne) ou sur une année (cycle saisonnier ou l'ensoleillement et la température sont assez bien calculés par le modèle météorologique) est plus facile à modéliser que

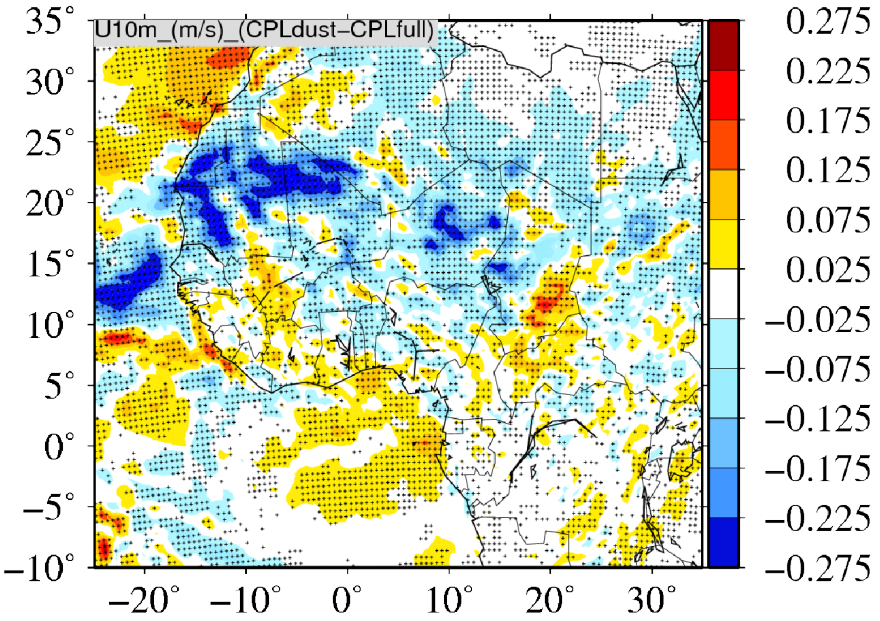


FIGURE 7.1 – *Calcul du test de Wilcoxon sur deux simulations, avec ou sans effet direct des aérosols. La différence est illustrée sur le module du vent à 10m. Les mailles avec un point sont celles avec des différences significatives, Figure adaptée de Menut et al. (2019).*

retrouver correctement la valeur du pic journalier sur plusieurs jours consécutifs. Cela montre que certaines variabilités naturelles peuvent accroire artificiellement une corrélation. Afin d'éviter ces effets "saisonniers" l'indicateur proposé compare une simulation sur une période à des observations de la même période mais sur d'autres années. Si l'année évaluée a des scores significativement meilleurs que les autres, cela prouve que le bon résultat du modèle n'est pas dû à une récurrence d'un phénomène d'une année sur l'autre. *Eder et al.* (2014) développent une approche en "composantes principales" pour évaluer les modèles de qualité de l'air. Cette approche permet de mettre en avant des structures récurrentes de biais du modèle parmi le "bruit" apparent des différences modèle/mesures.

7.2 Les comparaisons aux mesures ou inter-modèles

Comparaisons aux mesures de routines

Les comparaisons aux mesures de routine sont celles comparant des résultats de modélisation à des mesures de stations automatiques, comme les mesures de polluants du réseau EMEP, les sondages météo ou les mesures d'AOD du réseau AERONET. Ces comparaisons permettent d'avoir la pertinence du modèle sur le long terme mais à haute fréquence temporelle. Par des calculs de biais et corrélation, on peut quantifier les capacités du modèle sur un grand nombre de situations différentes. Les mesures de routine étant en général en réseau, avec un format informatique unifié, ce sont les données les plus employées lorsque sont réalisées des études de modélisation, *Solazzo and Galmarini* (2015). On peut noter les programmes de recherches récentes qui évaluent les modèles comme le projet AQMEII (Air Quality Model Evaluation International Initiative), comparant des simulation en Amérique du Nord et en Europe, *Vautard et al.* (2012); *Campbell*

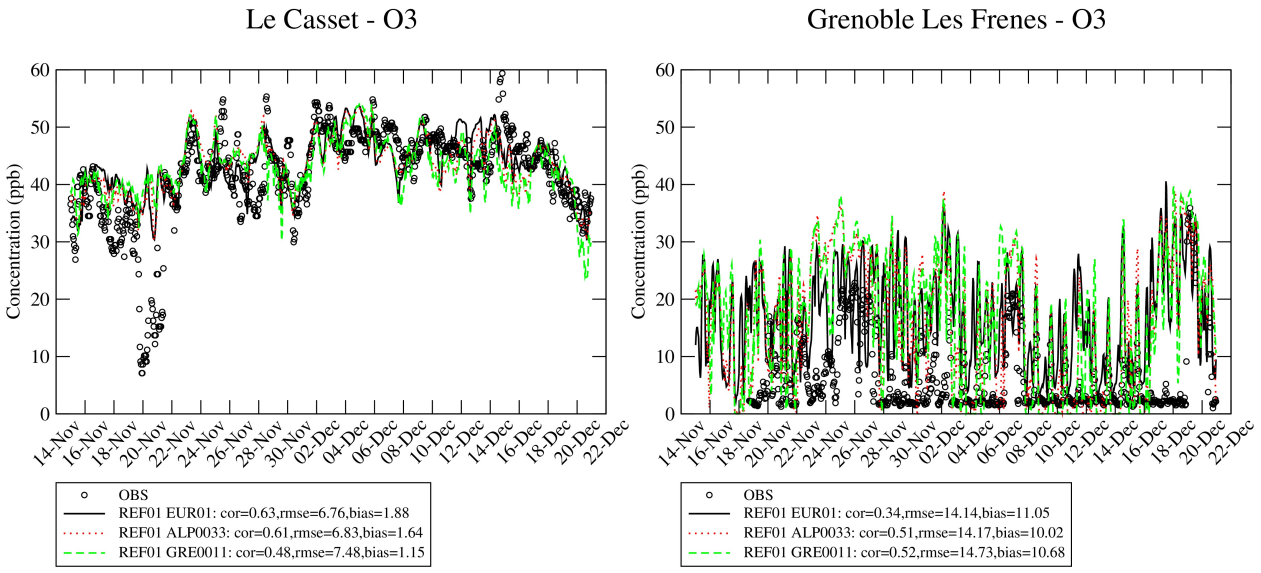


FIGURE 7.2 – *Comparaison entre des concentrations de surface d'ozone mesurées et simulées pour deux sites en montage (Casset et Grenoble). Les données sont issues de Bessagnet et al. (2020)*

et al. (2015), le projet EURODELTA, *Bessagnet et al.* (2016), et le programme EMEP (European Monitoring and Evaluation Programme), pluri-annuel et dans le cadre d'une convention des Nations Unies appelée *Long-range Transboundary Air Pollution*, *Prank et al.* (2016). Un exemple est présenté sur la Figure 7.2 qui présente une comparaison de concentrations d'ozone dans un site montagneux et en utilisant à haute résolution horizontale (ici CHIMERE à 1km), *Bessagnet et al.* (2020). Sur une période de simulation de plus d'un mois, on peut voir que le modèle arrive à reproduire les ordres de grandeur et la variabilité de l'ozone au Casset. A Grenoble, site urbain, les concentrations sont bien reproduites pour certains pics mais d'autres journées sont sur-estimées. Ce problème est typique d'un mélange turbulent diagnostiqué trop fort dans le modèle limitant la titration de l'ozone par les NO_x anthropiques.

Comparaison aux mesures satellites

La Figure 7.3 présente un exemple de comparaison entre des mesures du satellite CALIPSO, embarquant le lidar CALIOP, et le modèle CHIMERE. Pour que la comparaison entre ces deux outils différents soit possible, chacun a été transformé : (i) les données du lidar CALIOP sont interprétées et un code couleur est affecté à chaque type d'aérosol. Cette différentiation se fait à partir de la rétrodiffusion et l'extinction du signal lidar. (ii) le même type de classification est faite avec les résultats du modèle. L'aérosol dominant est alors sélectionné pour être représenté.

Comparaisons aux mesures de campagne

Les campagnes de mesures permettent d'utiliser des instruments de recherche, complémentaires des mesures de routine. On peut alors comparer des variables modélisées que l'on ne trouve pas habituellement dans les mesures. On a aussi accès à des lieux de mesures différents, comme par exemple avec les mesures aéroportées.

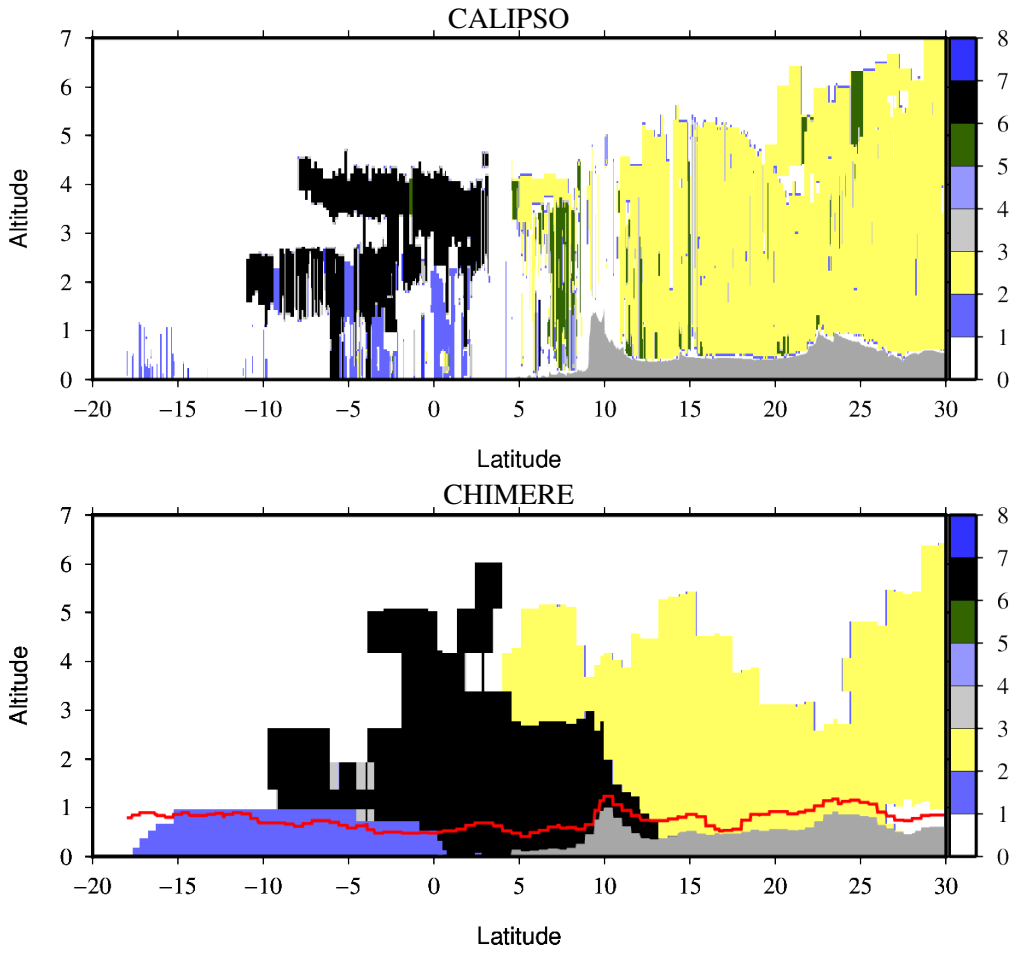


FIGURE 7.3 – *Comparaison entre les mesures CALIOP de types d'aérosols et les résultats du modèle CHIMERE pour le 27 juillet 2014 à 01 :00 UTC. Les données sont issues de Menut et al. (2018). Les codes couleurs correspondent à : (0 :1) invalide, (1 :2) aérosol marin en air propre, (2 :3) aérosol minéral, (3 :4) aérosol de pollution continentale, fumée, (4 :5) air continental propre, (5 :6) poussières anthropique, (6 :7) fumée en altitude, (7 :8) mélange d'aérosols marins et poussières. Dans le cas du modèle, la hauteur de la couche limite est ajoutée en rouge.*

La Figure 7.4 montre un exemple d'études à partir des mesures de la campagne CHARMEX, pendant l'été 2013 sur le pourtour Méditerranéen. Le cadre du haut montre l'altitude de l'avion pendant le vol. La comparaison de l'ozone mesuré/modélisé montre que le modèle a un biais de sur-estimation près de la surface mais moins en altitude vers 4000m. La température est bien simulée et donc n'est pas probablement pas la cause du problème de modélisation de l'ozone. Le vent est relativement mal simulé, mais avec une résolution du modèle de 50km, il est normal de ne pas reproduire correctement ce paramètre très variable. L'ensemble de ces comparaisons permet à la fois de comprendre le phénomène physique tel qu'il a eu lieu mais aussi de quantifier la confiance que l'on peut avoir dans le modèle.

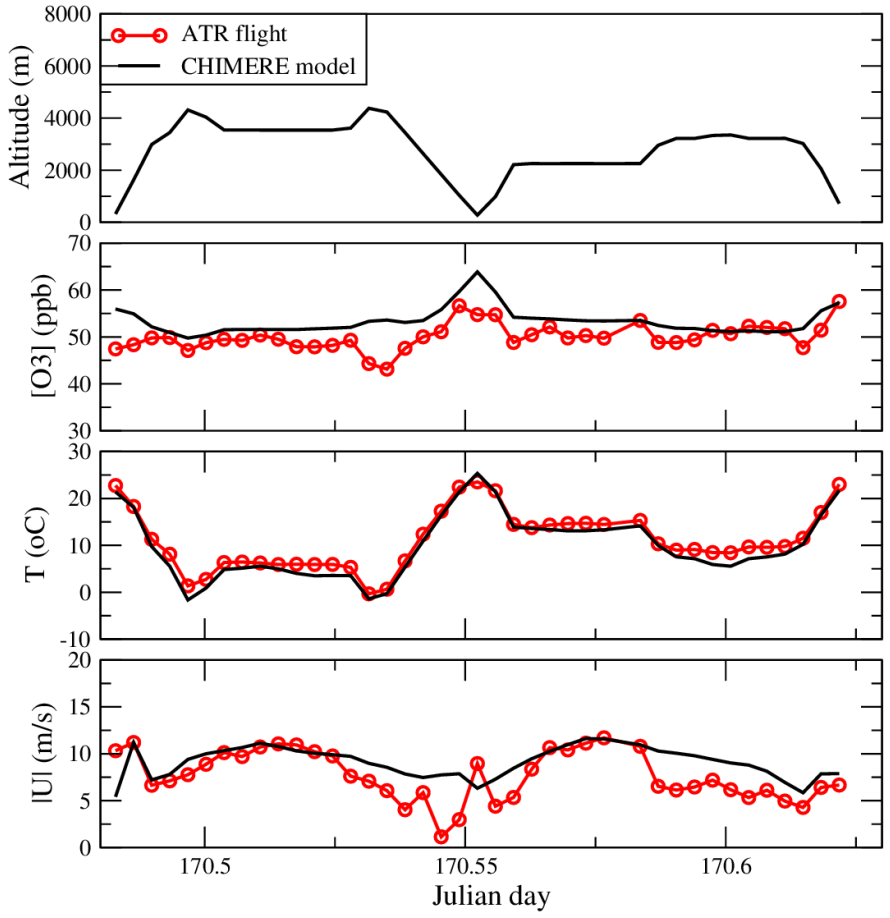


FIGURE 7.4 – Comparaison de données de mesures aéroportées et de l'équivalent en modélisation avec le modèle CHIMERE. Les mesures ont été pour le projet CHARMEX à l'été 2013. D'après *Menut et al.* (2015b).

Comparaisons inter-modèles

De nombreux exercices d'inter-comparaisons de modèles sont régulièrement réalisés. Partant du principe que de nombreux modèles existent pour le calcul de concentrations chimiques, ont les mêmes buts mais pas forcément les mêmes facons de les atteindre, des comparaisons sont intéressantes. En comparant différents modèles, on peut quantifier la variabilité de ce que l'on est capable de modéliser. Les comparaisons inter-modèles entrent aussi dans la thématique "modélisation d'ensemble" comme présenté en §7.6 (p.132).

En fonction du niveau de comparaison entre les modèles, différentes informations vont être obtenues. Ainsi, des exercices d'inter-comparaisons ont été construits avec des philosophies très différentes et donc des résultats très différents. On dénombre deux types d'exercices : (i) les exercices très contraints : on force les modèles avec la même météorologie, les mêmes émissions afin de cerner des différences sur un set de processus très réduit. Cela a pour but de répondre à une question ciblée du type : quel est l'impact du dépôt sec sur les concentrations ? Pour y répondre au mieux, les autres paramètres doivent être le plus proche possible. C'est le cas de l'étude de *Vivanco et al.* (2017). La mise en place de l'exercice a été difficile du fait du besoin de rapprochement des forçages, paramétrisations et résolutions. (ii) une autre approche consiste à

laisser les modèles sans contrainte : chacun fait au mieux. Le but est alors de voir la diversité des modèles, de quantifier l'état de l'art et estimer ce qu'il est possible de faire au mieux. C'est le cas de certains exercices d'ensemble, utilisés en analyse ou prévision.

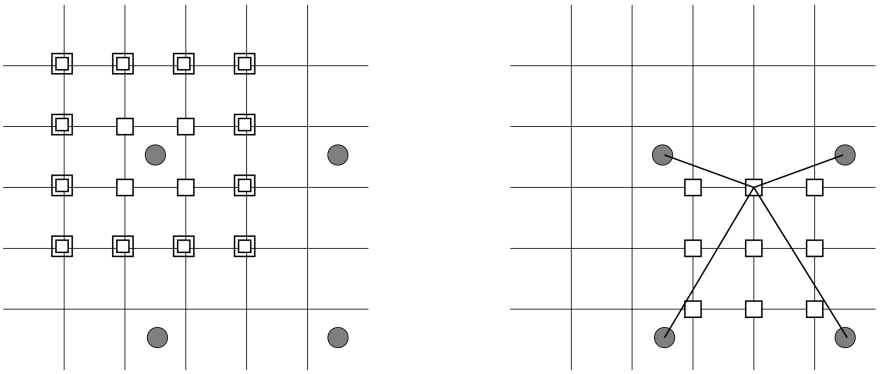


FIGURE 7.5 – *Interpolation et moyenne : le problème du passage d'un maillage à un autre pour intercomparer des modèles. A gauche : la valeur recherchée est moins bien résolue que la donnée d'entrée. On peut utiliser la technique du plus proche voisin ou faire une moyenne des valeurs autour. A droite : la valeur recherchée est mieux résolue : on utilise une interpolation.*

Pour comparer des résultats de modèles, le mieux est d'avoir toutes les sorties sur une grille commune, ce qui est rarement le cas. Mais si les données ne sont pas reprojetées au mieux, les différences entre les modèles pourront être autant dûes à la projection qu'à l'erreur du modèle lui-même. En fonction de la grille d'origine et de la grille commune cible, il va falloir projeter les données selon leurs résolutions. On note Δ_1 la résolution spatiale ou temporelle des champs disponibles et Δ_2 la résolution des champs recherchés. En fonction de leur valeurs respectives, différentes projections vont être appliquées : Si $\Delta_1 >> \Delta_2$ on peut utiliser une interpolation, il y'aura alors création d'information. Au contraire, si $\Delta_1 << \Delta_2$ on peut réaliser une moyenne, il y'aura alors dégradation d'information. Le principe de la moyenne pose peu de problème et permet même d'estimer l'écart-type induit (et donc la variabilité) de la petite échelle à la grande échelle. L'interpolation est l'opération la plus délicate, et, en pratique, la plus souvent rencontrée. La Figure 7.5 présente un exemple pour les deux. Ce cas est simplifié à l'extrême puisque le maillage grossier est déjà centré par rapport au maillage fin. A gauche, le passage du maillage le plus fin (carrés) au plus grossier (cercles grisés) se fait par simple moyenne arithmétique. En fonction du nombre de "carrés" disponibles entre deux "cercles" on effectue la moyenne sur 4 carrés ou 16 carrés. A droite, pour passer du maillage grossier au maillage fin, on utilise une interpolation : ici une interpolation bilinéaire simple et les segments représentent les "poids" que l'on va affecter à chacune des informations du maillage grossier.

Parmi les très nombreuses études d'intercomparaison, on peut citer *Vautard et al.* (2012) qui présente une comparaison des météorologies modèles régionales utilisées dans le cadre du projet AQMEII. Ils montrent la grande variabilité des simulations météorologiques, notamment sur le vent dans les basses couches, un paramètre de grande imporance pour les émissions naturelles (dust, sea salt) et pour la dispersion des émissions près de la surface. *Campbell et al.* (2015) inter-comparent des indicateurs pour évaluer la capacité des modèles à reproduire correctement les régimes chimiques et quantifient que les modèles n'y arrivent pas vraiment. *Schaap et al.* (2015) inter-comparent les résultats de modèles pour quantifer l'impact de la résolution horizontale. Ils montrent logiquement que les sources primaires anthropiques sont particulièrement

sensibles à cette variation de résolution.

Dans tous les cas l'inter-comparaison de modèle permet d'apporter une réponse plus complète qu'une seule simulation. Cela permet de mieux cerner la variabilité d'un processus et son incertitude. L'inter-comparaison des modèles sans contrainte est plus facile à réaliser et probablement plus bénéfique que celle ou les forçages sont imposés : simplement car on n'arrive jamais à tout imposer de manière stricte et donc on ne réussit jamais à conclure sur le fait d'avoir correctement isolé un processus.

7.3 L'adaptation statistique ou "tuning"

Modifications des paramètres d'entrée

L'adaptation du modèle ou ajustement (ou *"tuning"*) consiste à modifier certains paramètres d'entrée du modèle pour se rapprocher des mesures. Il ne s'agit pas encore d'assimilation de données, car il n'y a pas de procédure automatique ou de minimisation dépendante du temps. Il s'agit plutot de "débiaisage" c'est à dire, beaucoup plus simplement, de modifier un paramètre d'entrée pour diminuer le biais sur une variable de sortie en particulier. C'est une approche très employée quand le but n'est pas de représenter au mieux un processus mais uniquement de représenter au mieux son impact sur un autre processus. Cela reste très qualitatif et il n'y a pas d'apport de connaissance physico-chimique dans cette manière de faire. On trouve notamment des applications pour la météorologie, pour les projections climatiques futures ou la prévision opérationnelle de la pollution. Par exemple, *Yang et al.* (2012) modifient des coefficients dans les paramétrisations de précipitations à l'échelle régionale avec le modèle WRF. Ils développent un algorithme de régression et modifient des paramètres clefs du schéma de précipitation. Les résultats montrent un gain sur les scores de vent et température. Dans ce cas, le tuning porte sur des paramètres incertains et ajustés d'une paramétrisation et apparait assez légitime. Le gain peut être dû au fait que la paramétrisation avait été calée pour une utilisation spécifique, une résolution particulière. A une autre résolution, un autre calage est trouvé. Mais en aucun cas, le tuning apporte de l'universalité au modèle : il ne fait que décaler un équilibre pour un cas précis vers un autre équilibre pour un autre cas.

Modifications des résultats

L'adaptation statistique consiste à modifier les résultats d'une simulation afin de se rapprocher des mesures. Dans ce cas, on ne modifie pas le modèle. Sans avoir à chercher les raisons d'un biais, on cherche juste à le corriger. Cela s'applique, par exemple, aux sorties de simulation en prévision : il s'agit alors de corriger chaque jour la prévision de la même manière afin d'augmenter les probabilités d'avoir de bons scores sur les pics de polluants, par exemple. Ce type d'adaptation statistique est appliqué pour le système de prévision PREVAIR, *Honoré et al.* (2008). *Demuzere and van Lipzig* (2010) et *Porter et al.* (2015) proposent des méthodes simples de calculs de différences entre concentrations de modèles et observations pour ajuster les résultats de leur modèle.

7.4 Les scénarios

Le principe des scénarios est de perturber un paramètre d'entrée du modèle pour quantifier l'impact que cela a sur une variable de sortie que l'on cherche. Contrairement au tuning, on considère ici que le modèle, dans sa configuration non perturbée, correspond à la version la plus réaliste. De nombreuses applications

sont possibles en fonction du type de modification faite avant la simulation. On peut, par exemple, estimer l'impact d'une météo future (changement climat global), estimer l'impact des émissions futures (projets de lois) ou estimer l'impact d'un processus (i.e incertitude d'une paramétrisation).

Scénarios de météorologie

Les scénarios en météorologie peuvent être très différents dans leur principe selon que le modèle est régional ou global. Dans le cas des études de pollution atmosphérique, on utilise surtout des modèles régionaux. Le scénario peut alors provenir : (i) du forçage grande échelle, des conditions aux limites, (ii) d'un forçage régional comme les caractéristiques de surface. Dans le cas des études sur le changement climatique, les scénarios sont basés sur des forçages radiatifs. L'étude de *Frei et al.* (2006) compare plusieurs modèles météorologiques pour des scénarios passés et futurs et montrent la variabilité des extrêmes de précipitations. *Menut et al.* (2013b) utilisent des champs météorologiques de scénarios futurs et montrent l'impact dans un contexte de qualité de l'air : l'utilisation d'un modèle de climat comme forçage météorologique change les résultats de pollution via les biais sur le vent et les précipitations.

Scénarios d'émissions

Les scénarios sur les émissions sont les applications les plus courantes. En pollution, les émissions anthropiques restent la source et le levier numéro un possibles. Il est donc logique de voir l'effet de la diminution de cette source contrôlable sur les concentrations de polluants.

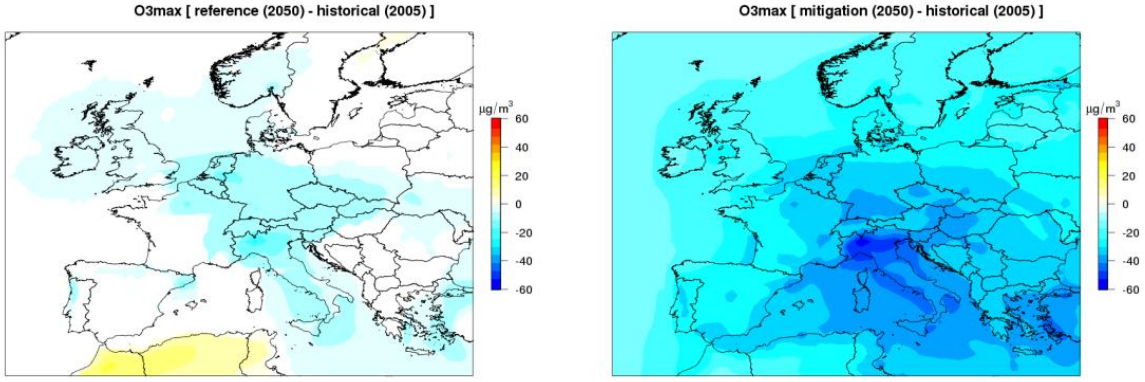


FIGURE 7.6 – *Cartes de différences entre une simulation de référence (climat et émissions actuels) et des scénarios régionaux issus des recommendations de CMIP5. Figure d'après Colette et al. (2013).*

Vautard et al. (2005) étudient l'épisode de la canicule en 2003 et en Europe de l'Ouest avec le modèle CHIMERE. Ils appliquent une réduction de 20% des émissions, correspondantes à un scénario Européen d'urgence. Ils montrent que l'impact le plus fort sur les pics d'ozone reste la diminution des NO_x. *Cofala et al.* (2007) réalisent des scénarios d'émissions avec le modèle RAINS. Ils testent la réponse du modèle à des réductions préconisées pour 2030. Ils montrent que les scénarios prévus ne font baisser que faiblement les concentrations. *Thunis et al.* (2007) présentent des études de scénarios dans le cadre du projet Européen dédié CityDelta. En réalisant des simulations avec différents modèles et différentes résolutions, ils montrent que les scénarios d'émissions doivent être réalisés à la fois à l'échelle régionale et urbaine pour être complets. *De Ridder et al.* (2008) font l'exercice de modifier l'occupation des surfaces dans son modèle régional

en Allemagne. En redistribuant la population urbaine vers la banlieue, il modifie l'emprise spatiale des émissions anthropiques liées au chauffage urbain et au trafic automobile (à nombre d'habitants constant). Ils montrent que le trafic automobilie augmente de 17% avec ce scénario. Cela induit une augmentation des PM_{10} sur toute la région, ainsi qu'une augmentation des concentrations d'ozone dans le panache urbain. *de Meij et al.* (2009) réalisent des scénarios focalisés sur le Nord de l'Italie, la plaine du Pô étant une des régions les plus polluées d'Europe de l'Ouest. Ils réduisent les émissions par secteur d'activité, un par un. Ils montrent que l'impact le plus important est obtenu avec le secteur SNAP7 (trafic routier) : sur les $PM_{2.5}$ et SO_2 en hiver et sur l'ozone en été. *Beekmann and Vautard* (2010) reprennent l'étude de la période de canicule en 2003 et discute de scénarios de réduction d'émissions en terme de variabilité du régime chimique. Ils montrent que ce processus doit être pris en compte région par région pour la meilleure efficacité possible d'une réduction d'émissions. *Colette et al.* (2013) cherchent à discriminer la plus forte influence sur la pollution future de 2050. A l'aide de scénarios d'émissions et météorologiques, ils montrent que la variabilité des émissions reste la première cause de l'augmentation de la pollution future, Figure 7.6. Autre exemple, *Gidden et al.* (2019) utilisent des scénarios socio-économiques CMIP6 d'émissions afin d'estimer l'impact sur les concentrations. C'est une évolution par rapport aux exercices précédents sur le climat qui agissaient principalement sur les gaz à effet de serre et le bilan radiatif. Cette fois, l'étude porte directement sur ce qui est modifiable. La mise au point de ces scénarios va être utilisée dans de nombreuses études d'impact.

Les scénarios d'émissions sont un outil robuste et très employé en modélisation de chimie-transport. Que ce soit sur des cas présents ou sur le climat futur, il est l'outil le plus parlant pour voir l'impact des sources sur la pollution atmosphérique.

Scénarios sur un processus du modèle

Les scénarios sur les paramétrisations sont un autre outil d'évaluation, cette fois sur le réalisme du modèle employé. La précision des études étant rendue incertaine par le fait que le modèle soit un outil très simplifié de la réalité, il est important de réaliser régulièrement des exercices afin d'en quantifier l'incertitude. Ces exercices peuvent se rapprocher des études de sensibilité ou des modélisations d'ensemble sur leur principe. Par exemple, on peut modifier un paramètre du modèle de nombreuses fois pour voir si son impact est linéaire sur les concentrations ou non, *Menut* (2003). La Figure 7.7 montre un exemple de simulation ou deux paramètres sont perturbés en même temps. Pour les deux exemples, la concentration d'ozone à 15h pour une maille du modèle CHIMERE, représentant Paris est présentée. Des dizaines de simulations ont été réalisées en perturbant à chaque fois deux paramètres. A gauche, le module du vent dans la maille de surface et les émissions de COVs. A droite : la température à 2m et les émissions de COVs. Pour chaque paramètre, la perturbation est une multiplication d'un facteur de 0.5 à 1.5 par pas de 0.1. Cela permet de voir, pour les deux cas, que la variabilité du pic d'ozone est quasi-linéaire si les paramètres sont perturbés jusqu'à $\pm 10\%$. Cette information permet de faire des projections sur les concentrations lorsque des petites variations sont observées sur ces paramètres.

7.5 Les études de sensibilité

Les études de sensibilité ont de nombreux points communs avec les études de scénarios. Mais leur champ d'application peut être beaucoup plus large car on ne cherche pas à modifier un paramètre dans la limite d'un changement réaliste (comme un flux d'émission anthropique), mais plutôt autour de l'incertitude du paramètre. Les valeurs de modifications des paramètres peuvent être alors très différentes. Par exemple,

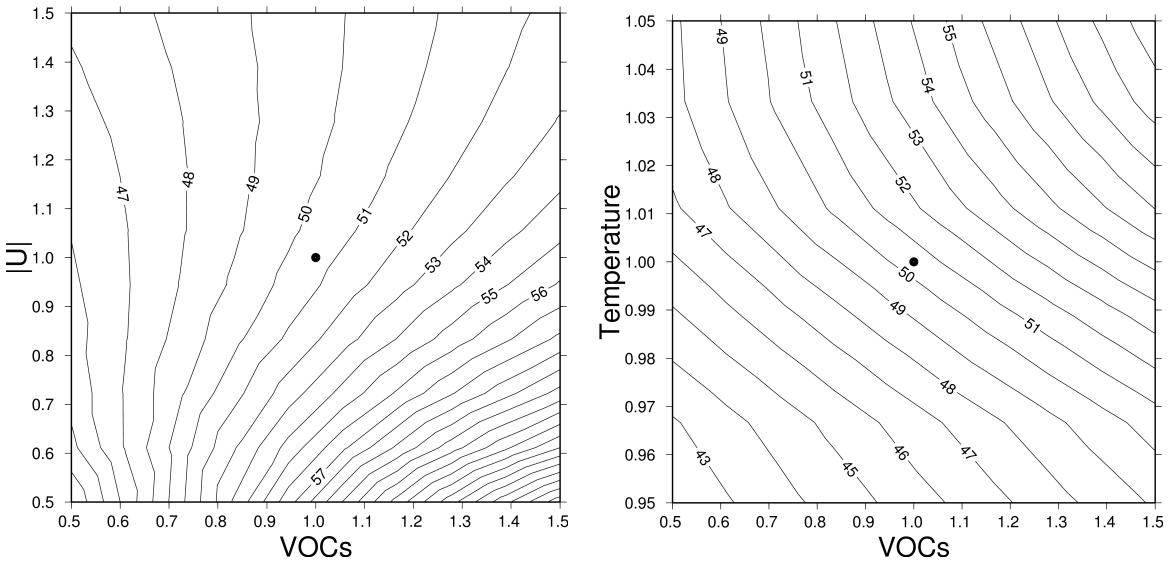


FIGURE 7.7 – *Scénarios pour la simulation du pic d'ozone à 15h sur une maille de modèle régional représentant Paris. A gauche : le module du vent dans la maille de surface et les émissions de COVs. A droite : la température à 2m et les émissions de COVs. Figure adaptée de Menut (2003).*

on peut tester la sensibilité de l'ozone à la température ou à la couverture nuageuse même si on ne peut changer ces variables en réalité.

Sensibilité par modélisation directe

Proche de la modélisation d'ensemble ou de scénario, la sensibilité en modélisation directe permet d'avoir une variabilité d'une variable par rapport à une autre. De nombreuses études ont été réalisées avec cette méthodologie dès les débuts de la modélisation régionale de l'ozone urbain, *Al-Wali and Samson* (1996), *Jang et al.* (1995). Faire ces calculs est toujours important car un modèle évolue et on cherche toujours à savoir à quel paramètre il va être le plus sensible et si cela est réaliste. Pour tester la sensibilité d'un modèle, des méthodologies ont été développées comme le système KKP pour tester les mécanismes chimiques, *Sandu et al.* (2003), le système ADIFOR pour la sensibilité de l'ozone aux paramètres d'un modèle, *He et al.* (2000). *Hakami et al.* (2003) utilisent la méthode *"Decoupled Direct Method"* (DDM) pour calculer des sensibilités : ces méthodes consistent à ajouter des calculs de gradient (l'évolution d'une concentration par rapport à l'évolution d'un paramètre) directement dans le modèle, au fur et à mesure de son intégration spatio-temporelle. *Hakami et al.* (2004) étant la méthode à la sensibilité à plusieurs ordres avec HighDDM. Ils calculent des isopleths de sensibilité de l'ozone aux NO_x et COVs. La sensibilité de polluants à des paramètres comme la météorologie continuent d'être étudiés comme récemment *Shi et al.* (2020) qui quantifie l'impact de la variabilité des paramètres météorologiques sur les concentrations urbaine d'ozone et PM_{10}.

Il est aussi utile de faire des études de sensibilité à l'architecture du modèle : la résolution horizontale et verticale, le pas de temps d'intégration temporelle. En fonction de ces choix, les paramétrisations implantées dans le modèle sont plus ou moins efficaces et adaptées. Cela aura alors un impact direct sur les concentrations simulées. *Valari and Menut* (2008) montre qu'il y a un optimium en résolution horizontale : il est intéressant de raffiner le maillage pour mieux décrire la chimie rapide urbaine. Mais la qualité des résultats va se dégrader à partir d'un certain raffinement (quelques kilomètres), les bases de données de forçage (dont

les émissions anthropiques) n'étant plus assez précises et l'incertitude sur la direction du vent créant des panaches fins mais avec une mauvaise direction de dispersion. Ce type de résultat est confirmé par *Falasca and Curci* (2018) qui teste aussi des schémas urbains.

Les études de sensibilité permettent de quantifier l'impact d'une variable sur une autre, mais pas uniquement : on agrège aussi dans la réponse le cas particulier du modèle utilisé pour faire le calcul, avec ses potentiels biais et variabilités. On n'a donc jamais un résultat purement "physique".

Sensibilité par modélisation adjointe

Les limitations des approches précédentes sont que l'on modifie un seul paramètre pour voir l'effet sur une ou plusieurs espèces. Ensuite, pour avoir une "gamme" de causes, il faut faire une simulation à chaque perturbation ou scénario. La modélisation adjointe permet de contourner ce problème, *Rabier et al.* (1992); *Sandu et al.* (2003). Une description claire du modèle adjoint est présentée dans *Errico* (1997). Cette modélisation est celle employée en assimilation variationnelle (détaillée au chapitre 8.1, p.137). Par définition, le **modèle direct** calcule à chaque pas de temps une nouvelle concentration, dépendante de sa valeur au pas de temps précédent et de tous les processus l'affectant au pas de temps de calcul. Le **modèle adjoint** est le gradient du modèle direct : plus précisement, il permet de calculer la dérivée d'une quantité simulée à tous les paramètres d'entrée. C'est donc un second modèle, différent du premier, mais qui doit reprendre en tout point les paramétrisations et l'architecture de calcul du premier.

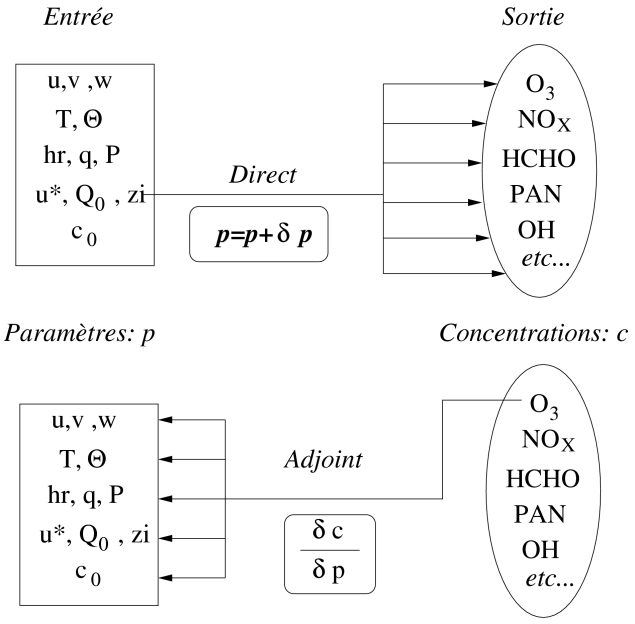


FIGURE 7.8 – *Principe schématique de l'adjoint d'un modèle de chimie-transport.*

Comme le montre la Figure 7.8, le modèle direct considère les paramètres de météorologie, émissions et autres comme des données d'entrée : on calcule via le module de chimie-transport, la concentration chimique (O_3, NO_x et autres) d'un pas de temps au pas de temps suivant. Si l'on veut réaliser une étude de scénario, on peut modifier un ou plusieurs paramètres d'entrée : cette modification va cependant affecter toutes les concentrations en sortie. Au contraire, le modèle adjoint va calculer la dépendance d'une unique espèce en

sortie à tous les paramètres d'entrée. Cela se fait en une seule intégration du modèle (une en mode direct et une en mode adjoint). On est donc capable de quantifier, pour une espèce donnée, quel a été le paramètre le plus important, où, quand et pourquoi. Le modèle adjoint permet donc d'estimer pour une concentration donnée, l'impact de la variation d'un des paramètres. Ce contrôle permet alors de contraindre la trajectoire du modèle dans cet espace des paramètres. Les équations adjointes sont obtenues à partir du modèle linéaire tangent qui est la linéarisation du modèle direct (non-linéaire) autour des variables d'entrée. On définit l'évolution d'un ensemble de variables x :

$$\frac{dx}{dt} = \mathbf{M}(x, p), \tag{7.8}$$

avec x les concentrations, le "vecteur d'état" du modèle, p l'ensemble des paramètres du modèle et $\mathbf{M}$ est le modèle. L'équation discrétisée d'évolution des variables du modèle est $x_{n+1} = M(x_n, p)$. Le modèle adjoint permet de calculer la sensibilité de x_n par rapport à p, ce dernier étant un vecteur représentant tous les paramètres. La sensibilité S de la fonction scalaire $M(x)$ de x à un instant donné t sera le gradient tel que $S = \nabla_p(M(x(t)))$. A chaque instant t, la perturbation de x s'exprimera avec le système suivant :

$$\delta x_{n+1} = \left(\frac{\partial M}{\partial x}(x_n, p)\delta x_n\right) + \left(\frac{\partial M}{\partial p}(x_n, p)\delta p\right). \tag{7.9}$$

On aura le système suivant à résoudre :

$$\begin{cases} \delta^* p_n & = & 0 \\ \delta^* p_{n-1} & = & \delta^* p_n + \left(\dfrac{\partial M}{\partial p}(x_{n-1}, p)\right)^* \delta^* x_n \\ S & = & \delta^* p_0 \end{cases} \tag{7.10}$$

Par exemple, pour estimer la sensibilité (S) du pic d'ozone à 15 :00 UTC au taux de réaction r_1 du mécanisme chimique, on aura la valeur en %/% :

$$S[O_3]_{/r_1} = \frac{\partial [O_3]_{max}}{\partial r_1} . \frac{r_1}{[O_3]_{max}} \tag{7.11}$$

Utilisant un modèle adjoint de CHIMERE, *Schmidt and Martin* (2003) calculent la sensibilité de l'ozone à l'échelle de l'Europe de l'Ouest. Avec le même modèle, *Menut* (2003) fait le même type de calcul sur l'agglomération Parisienne pour l'ozone et le NO_2. D'autres études du même type sont réalisées avec les modèles IMAGES, POLAIR, TM4, DRAIS, *Nester and Panitz* (2006), parmi d'autres. Dans tous les cas, ces études se limitent à la chimie gazeuse, la limitation étant la difficulté de développer un modèle adjoint pour des aérosols, à la fois en écriture et en temps de calcul, mais aussi la difficulté d'adjointiser des processus comme l'équilibre thermodynamique. *Henze et al.* (2007) proposent un adjoint complet, gaz et aérosols, à l'échelle globale avec le modèle GEOS-chem. La Figure 7.9 présente une carte de sensibilité de la masse simulée de nitrates aux émissions de NH_3. Pour le module thermodynamique, *Capps et al.* (2012) proposent l'adjoint du module ISORROPIA, un modèle très employé dans de nombreux modèles de chimie-transport. L'adjoint peut aussi être utilisé pur calculer la sensibilité d'autres paramètres : par exemple, *Karydis et al.* (2012) calculent la sensibilité du nombre de goutelettes d'eau nuageuse aux paramètres de formation des aérosols.

Les études de sensibilité restent indispensables pour évaluer le comportement d'un modèle. L'approche adjointe est plus puissante que l'approche directe mais nécessite de doubler la taille du modèle avec un développement dédié.

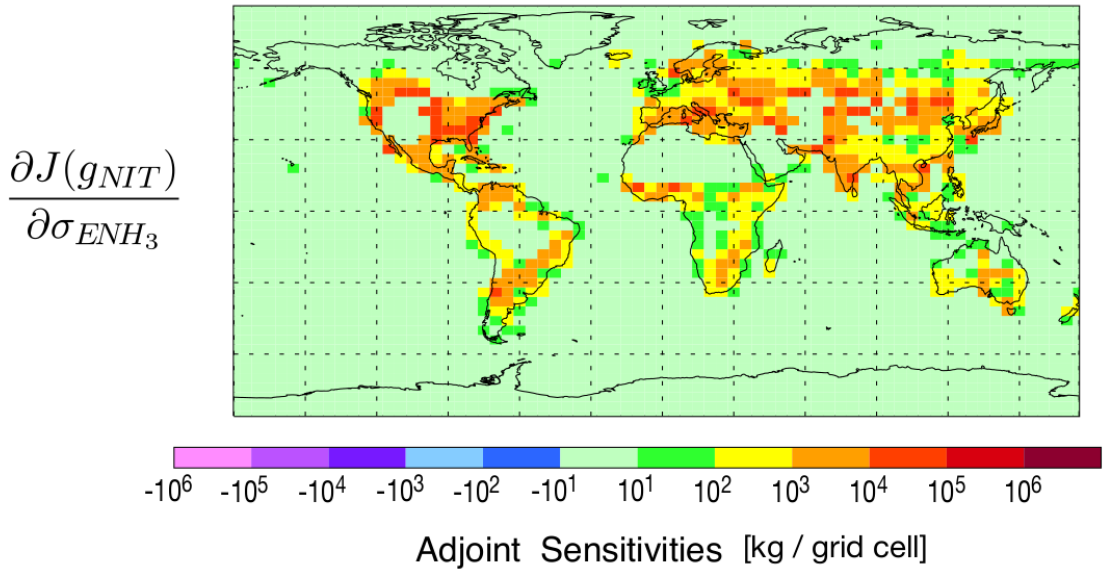


FIGURE 7.9 – *Sensibilité de la production de masse totale de nitrates aux émissions de NH_3, d'après Henze et al. (2007).*

7.6 Les calculs d'ensemble

Le principe de la modélisation d'ensemble est de réaliser plusieurs simulations du même évènement et de comparer les résultats. Chaque simulation est appelée un "membre" de l'ensemble. Il a été montré que la moyenne ou médiane des membres donne statistiquement de meilleurs scores qu'un membre seul, *Delle Monache et al.* (2006). La modélisation d'ensemble est mise en place dans deux contextes : (i) des études d'incertitudes des résultats, (ii) la prévision opérationnelle. Dans ce paragraphe, nous aborderons uniquement les études d'incertitudes, la prévision étant présentée dans le §8.3, p.143.

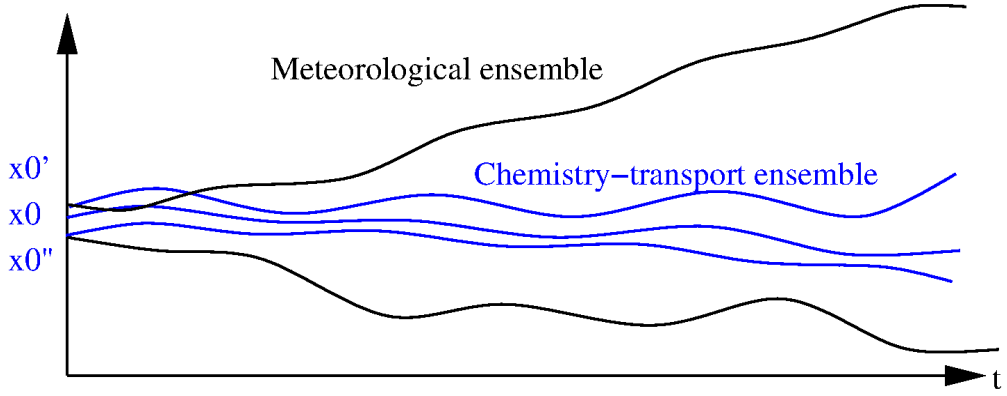


FIGURE 7.10 – *Comparaison de trajectoires modèles entre météorologie et chimie-transport.*

La prévision d'ensemble, comme beaucoup d'utilisations des modèles en géophysique, a d'abord été

mise en place pour la météorologie, puis transposée à la chimie-transport. Pour la météorologie, la formulation des équations la rend chaotique : pour des conditions initiales légèrement différentes, les résultats, c'est à dire la "trajectoire" du modèle peut être très différente, Figure 7.10, *Lorenz* (1963). Pour encadrer les différentes solutions possibles en fonction de l'incertitude de ces conditions initiales, la modélisation d'ensemble a rapidement été mise en place pour la prévision numérique du temps, *Hamill et al.* (2000). Des scores ont été crées comme le "ensemble skill score", *Atger* (1999). *Leutbecher and Palmer* (2008) passe en revue l'historique et les méthodes de calculs d'ensemble.

Les résultats de prévision étant clairement améliorés avec un ensemble, *Dabberdt and Miller* (2000) suggère d'appliquer cette approche à la modélisation de la pollution. *Galmarini et al.* (2004) discute de la pertinence de ce type de résultats pour le processus de prise de décision en montrant que l'analyse d'ensemble et sa variabilité réduisent le manque de fiabilité des résultats. *Pagowski et al.* (2006) met en place une des premières modélisation d'ensemble pour la prévision de l'ozone de surface. Néanmoins, la nature même du problème à résoudre en chimie-transport, rend la modélisation d'ensemble moins efficace que pour la météorologie. Comme l'illustre la Figure 7.10, le modèle météorologique étant très non linéaire et dépendant avant tout de ses conditions initiales, une petite perturbation de ces conditions initiales va drastiquement modifier les résultats. La chimie-transport est plus faiblement non-linéaire et dépend de ses conditions initiales mais surtout de ses conditions aux limites. Même avec une perturbation initiale, le modèle va donc plutôt converger vers un état d'équilibre. Un gain peut être apporter en faisant des ensembles avec le modèle météo forcant le CTM et le CTM lui-même. *Zhang et al.* (2007) montrent ainsi que sur des cas de pollution à l'ozone, le vent est par nature faible. L'incertitude sur le calcul du vent près de la surface devient d'autant plus sensible et incertaine. La modélisation d'ensemble permet de donner une variabilité plus fiable pour la prévision de l'ozone.

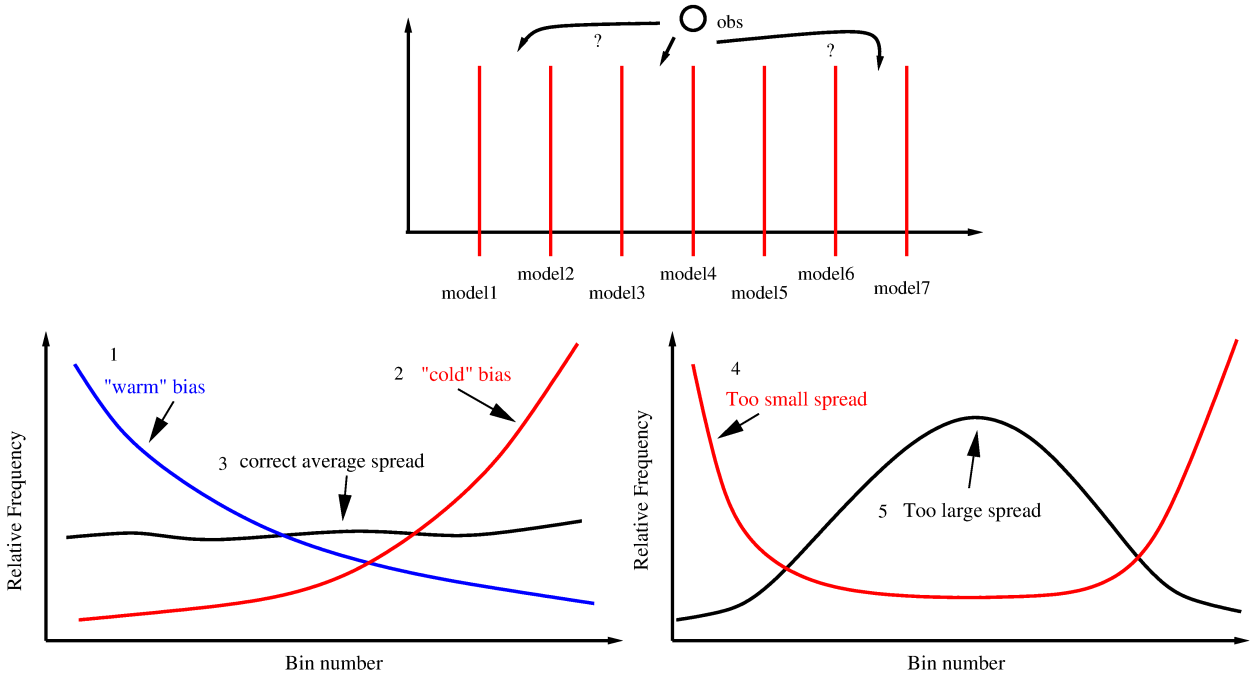


FIGURE 7.11 – *Principe des histogrammes de rang.*

Si comme pour la météorologie, il est clair que plus il y'a de membres de l'ensemble et meilleurs

sont les résultats, le débat reste ouvert sur la facon de construire chaque membre. Deux approches sont possibles. (i) la plus simple consiste à perturber différement un seul modèle, (ii) la plus complexe consiste à utiliser plusieurs modèles sur le même cas. On peut noter des études récentes avec les deux approches : *Van Loon et al.* (2007) et *Schaap et al.* (2007) utilisent sept modèles sur l'Europe de l'Ouest pour réaliser des ensemble pour la chimie gazeuse et les aérosols. Ils montrent que l'approche multi-modèles permet d'accéder à de nouvelles informations, la médiane étant une nouvelle information. Ils montrent avec leurs résultats que la médiane est plus proche des observations que le "meilleur" modèle de l'ensemble. Enfin, la dispersion de l'ensemble est une "mesure" de l'incertitude des simulations. *Vautard et al.* (2009) réalise aussi des simulations sur l'Europe et utilise pour les qualifier les "histogrammes de rang", crées à l'origine pour l'assimilation de données, *Talagrand et al.* (1999). Le principe est présenté sur la Figure 7.11 : on range la mesure en fonction des résultats du modèle mis en ordre croissant dans des "bins". Si tous les résultats se retrouvent dans le bin de gauche, l'ensemble sur-estime systématiquement la mesure, *etc*.

A contrario, *Garaud and Mallet* (2010) utilisent un seul modèle, Polyphemus, pour générer des membres. L'intérêt de l'approche est de pouvoir, avec une seule configuration, générer beaucoup de membres. Mais les résultats sont moins chaotiques qu'avec la simulation multi-modèle. L'ensemble donne une enveloppe donnant la variabilité du modèle autour de la valeur de référence mais reste limité à cette information. *Zyryanov et al.* (2012) réalisent un ensemble multi-modèle, Figure 7.12. *Kioutsioukis and Galmarini* (2014) synthétise les différentes études précédentes et présentent les méthodologies à utiliser pour la modélisation d'ensemble de la pollution. Ils rappellent les différentes métriques statistiques pour analyser au mieux les résultats des simulations d'ensemble.

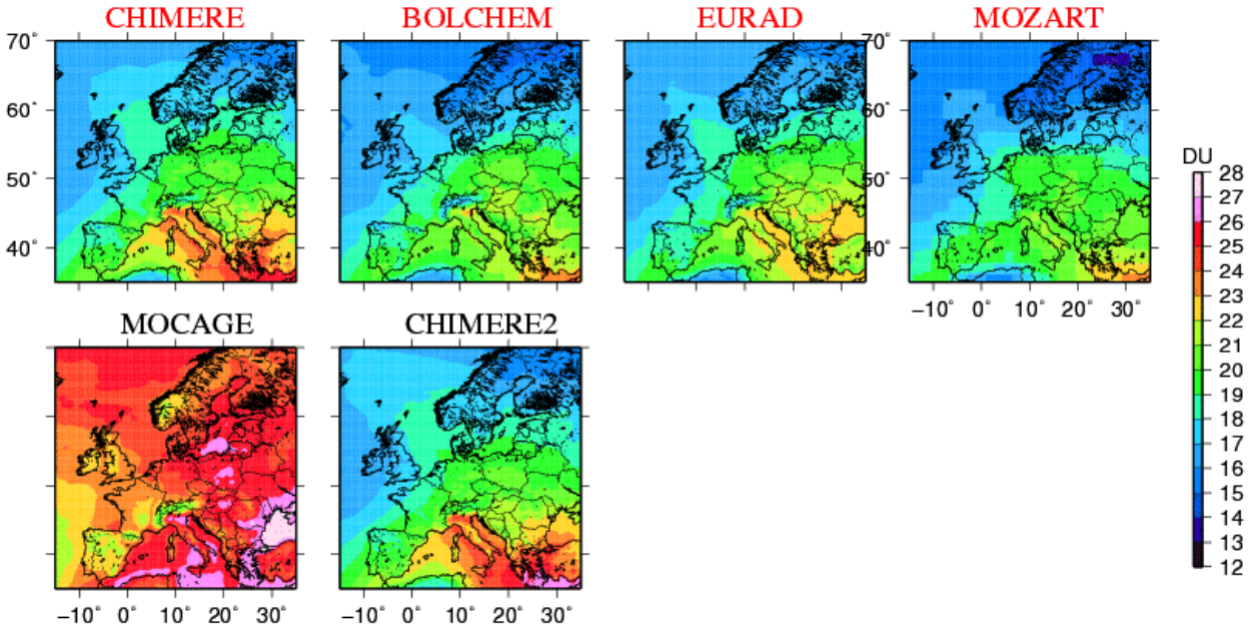


FIGURE 7.12 – *Modélisation multi-modèle. Colonne intégrée d'ozone, d'après Zyryanov et al. (2012).*

La Figure 7.11 montre le principe de classification des simulations faites dans un ensemble, *Talagrand et al.* (1997). Le principe est simple et astucieux. Sur la Figure (haut), pour chaque valeur simulée (une concentration d'une espèce à un moment donné et dans une maille donnée), on peut classer les modèles (model1 à model7) en ordre croissant de valeur. On connait l'observations correspondante et on peut donc la

mettre dans l'intervalle correspondant. En répétant l'opération autant de fois que l'on a des observations, on aura tracé un histogramme de rang. En abscisse, le nombre de bins correspondant aux modèles et en ordonnée, la fréquence relative d'occurence. On a donc une "forme" pour cet histogramme qui permet d'interpréter la qualité de la simulation d'esemble :

1. *"warm bias"* : le biais chaud, par analogie avec une simulation de température, signifie ici que toutes les observations sont inférieures à chaque fois à toutes les valeurs modèles. On a donc un ensemble de modèles qui sur-estime les observations.
2. *"cold bias"* : on a cette fois un modèle qui sous-estime systématiquement les valeurs observées
3. *"correct average spread"* : on a une répartition plate des comparaisons : c'est ce que l'on peut attendre de mieux pour un ensemble.
4. *"too small spread"* : les valeurs observées sont soit inférieures, soit supérieures à l'ensemble des modèles. Cela signifie que cet ensemble utilise des modèles qui donnent tous une réponse équivalente, faisant un ensemble qui n'a pas assez de variabilité.
5. *"too large spread"* : Au contraire, dans ce cas, la variation des observations est plus faible. Les modèles sont trop variables.

7.7 Machine learning

Les plus récents développements en modélisation concernent le *machine learning* et l'intelligence artificielle. Comme pour les scénarios ou les ensembles, il ne s'agit plus de développement du modèle lui-même mais de la meilleure facon de l'utiliser dans un cadre de simulations à long terme ou de projections futures. Ce nouveau champ d'utilisation se rapproche des méthodes dites de réseau de neurones, existantes en géophysique depuis quelques décennies.

Les réseaux de neurones existent depuis les années 70 pour la prévision de la qualité de l'air. Ce sont des outils mathématiques construits pour une prévision locale et en utilisant des observations de surface, *Kolehmainen et al.* (2001), *Russo et al.* (2013). Leur avantage est une très grande rapidité de calcul, un aspect important pour la prévision. Leur inconvénient est qu'ils ne couvrent que l'existant : malgré des apprentissages de plus en plus sophistiqués, le réseau de neurones ne sait reproduire qu'une situation qui est déjà arrivée. Et utilisant principalement des mesures de surface des réseaux, l'outil ne sait généralement pas tenir compte des transports à longue distance de panaches. Limité à l'existant connu, il ne sait pas prévoir des évolutions inter-annuelles sur les émissions non plus (à moins d'avoir un nouvel apprentissage chaque année).

Plus récemment sont apparues les "deep learning techniques" basées sur des résultats de modèles déterministes, *Bessagnet et al.* (2021). Il s'agit dans ce cas de construire un méta-modèle à partir d'un modèle de chimie-transport existant. Une utilisation innovante sera de faire du downscaling de champs de concentrations avec une bonne précision. A partir de l'apprentissage avec une simulation basse résolution puis une haute résolution, il s'agira de faire une prévision en basse résolution (donc déterministe mais rapide). Le modèle de "deep learning" fera alors la projection à haute résolution.

8 Assimilation de données, modélisation inverse et prévision

Ce chapitre décrit les techniques numériques d'assimilation de données et de modélisation inverse. Ces techniques sont employées pour améliorer le résultat ou les forçages d'un modèle en hybridant le modèle avec des mesures. Puis, la prévision est présentée, utilisant de plus en plus souvent les techniques d'assimilation.

8.1 Assimilation de données

Article open-access de référence: *Sandu and Chai* (2011)

Quelle que soit la méthode employée, le but est unique : *tenir compte de mesures pour décrire au mieux l'état de l'atmosphère, via l'utilisation d'un modèle*, *Sandu and Chai* (2011). Cela va permettre de (i) Mieux estimer un paramètre d'entrée d'un modèle, (ii) Réduire l'incertitude des prévisions, (iii) Réaliser des cartes "analysées".

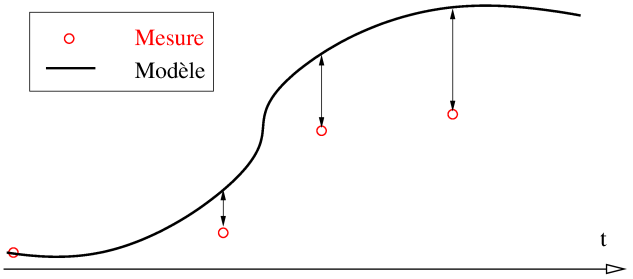


FIGURE 8.1 – *Trajectoire du modèle et valeurs de mesures. Dûe aux erreurs, non-linéarités, et incertitudes du modèle, la différence entre modèle et mesures va croitre avec le temps d'intégration.*

Au cours d'une simulation, les erreurs s'accumulant dans le modèle, la différence entre le modèle et la mesure va toujours croitre, Figure 8.1. L'algorithme d'assimilation cherchant à réduire cette différence, l'assimilation de données est un problème de minimisation. Comme pour d'autres approches de modélisation, l'assimilation de données en géophysique vient de la météorologie, *Talagrand and Courtier* (1987). Puis, les techniques de calcul ont été adaptées aux modèles de chimie-transport,*Bocquet et al.* (2015). On distingue trois grandes familles d'application d'assimilation de données :

1. **L'analyse** : sert à constituer une base de données avec un modèle de la meilleure qualité possible. Par exemple, si l'on veut étudier des tendances sur le long terme, une simulation peut être effectuée sur plusieurs années. L'assimilation de données tout au long de cette simulation permet d'avoir de meilleurs résultats que la première ébauche (*"first guess"*), *Pierce et al.* (2007).
2. **La modélisation inverse** : La minimisation entre le modèle et l'observation au fur et à mesure de la simulation a pour but d'optimiser un paramètre d'entrée du modèle.

3. **La prévision** : N'ayant pas d'informations dans le futur, cette approche a pour but d'optimiser les conditions initiales du modèle, au début de la prévision.

On dénombre deux grandes familles algorithmiques pour l'assimilation : l'assimilation séquentielle et l'assimilation variationnelle, *Talagrand* (1997), Figure 8.2. Ces deux types d'assimilation ont chacune des avantages et inconvénients. En résumé : l'assimilation séquentielle (AS) utilise le modèle direct tel quel et rejoue des simulations en fonction des comparaisons mesures/modèle. L'assimilation variationnelle (AV) va nécéssiter un modèle adjoint. De plus, l'AS va prendre en compte l'erreur modèle, alors que l'AV fait une hypothèse de modèle parfait.

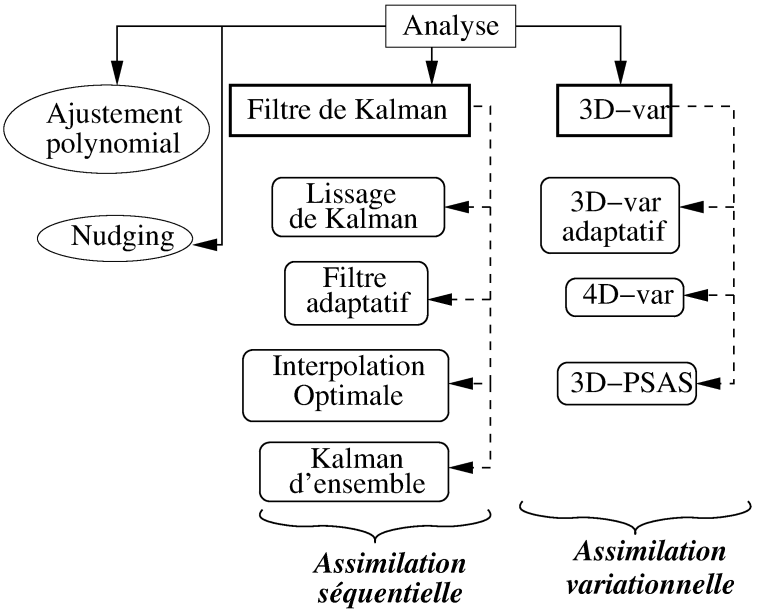


FIGURE 8.2 – *Les différentes familles algorithmiques d'assimilation de donnée.*

Assimilation séquentielle

Le principe de base de l'assimilation séquentielle est la prise en compte d'une observation au moment où celle-ci est disponible, un instant t. L'état prévu du modèle (l'ébauche) est alors corrigée et le nouvel état du modèle (l'analyse) sert pour le calcul à l'instant $t + \delta t$. La réactualisation de l'état du modèle est alors faite autant de fois qu'il y'a de données disponibles. Pour "approcher" au mieux de l'observation, des techniques de filtrage sont utilisées comme le filtre de Kalman étendu (EKF) et l'Interpolation Optimale (IO). l'EKF a comme principal avantage d'être (relativement) facile à mettre en oeuvre et surtout de fournir l'incertitude du résultat analysé à partir des erreurs d'observations et des erreurs modèles. Par contre, et de manière générale pour l'assimilation séquentielle, la propagation de l'information ne pourra se faire que de t à $t + \delta t$, i.e le nouvel état analysé ne peut dépendre que des observations "passées". Cela reste non problématique dans le cas d'une prévision, mais peut le devenir lorsque l'on cherche *a posteriori* à assimiler des données acquises sur toute une période (on veut alors que l'analyse à t soit construite à la fois avec les observations antérieures et postérieures à t). A titre d'exemple, le **principe général du filtre de Kalman** est présenté ici. Son principal avantage est sa capacité à fournir l'incertitude du résultat analysé à partir des erreurs

d'observations et des erreurs modèles. Nous allons dans la suite donner les principales caractéristiques du filtre de Kalman linéaire. On utilise les notations suivantes :

- x^t est la valeur réelle de la variable recherchée
- x^a et x^f sont les vecteurs correspondant de l'analyse (indiqué par a) et de la prévision (indiqué par f, pour 'forecast')
- P^a et P^f correspondent aux covariances des erreurs d'estimation (analyse et prévision, respectivement)
- M correspond au modèle, M^T à la transposée
- η est l'erreur modèle avec une covariance Q
- y^0 correspond au vecteur des observations
- H est l'opérateur d'observation
- K est la matrice de gain de l'analyse
- x^b est la valeur d'ébauche (indiqué par b, pour 'background') utilisée pour l'analyse
- R les erreurs d'observation et I l'identité

La notation $\overline{w}$ dénote une moyenne d'ensemble de w, c'est-à-dire la moyenne à un instant donné de toutes les valeurs possibles de son argument. Entre les instants t_i et t_{i+1}, le modèle étudié est :

$$x^t(t_{i+1}) = M(t_{i+1}, t_i)x^t(t_i) + \eta(t_i) \tag{8.1}$$

La covariance des erreurs η est connue, et est telle que $\overline{\eta_{t_i}\eta_{t_i}^T} = Q(t_i)$. On considère aussi que les erreurs sont non biaisées, c'est-à-dire que $\overline{\eta} = 0$ et $\overline{\epsilon} = 0$. Enfin, on considère qu'il n'y a pas de corrélations croisées entre les erreurs modèle et d'observation, donc que $\overline{\eta\epsilon}$=0. Le filtre de Kalman va définir un ensemble d'équations donnant le chemin optimal d'utilisation des données et du modèle pour estimer 'au mieux' la valeur recherchée. L'algorithme s'écrit alors :

1. Etat prévu : $x^f(t_{i+1}) = M(t_{i+1}, t_i)x^a(t_i)$
2. Covariance d'erreur prévue : $P^f(t_{i+1}) = M(t_{i+1}, t_i)P^a(t_i)M^T(t_{i+1}, t_i) + Q(t_i)$
3. Matrice de gain Kalman : $K_{i+1} = P^f(t_{i+1})H_{i+1}^T \left[H_{i+1}P^f(t_{i+1})H_{i+1}^T + R_{i+1}\right]^{-1}$
4. Etat analysé : $x^a(t_{i+1}) = x^f(t_{i+1}) + K_{i+1}\left[y_{i+1}^0 - H_{i+1}x^f(t_{i+1})\right]$
5. Covariance d'erreur analysée : $P^a(t_{i+1}) = \left[I - K_{i+1}H_{i+1}\right]P^f(t_{i+1})$

L'algorithme consiste donc à calculer les étapes (1) et (2) pour chaque pas de temps du modèle (t_i, t_{i+1}), en y insérant les corrections évaluées avec les relations (4) et (5) lorsque des observations sont disponibles : on utilise alors la relation (3). Ce filtre de Kalman est souvent utilisé sous forme d'ensembles, noté *EnKF*. Plusieurs simulations sont lancées, avec des perturbations initiales et le Kalman est utilisé pour assimiler les données. *Constantinescu et al.* (2007) montrent que cette approche permet de réduire la divergence souvent observée avec l'utilisation du Kalman.

Assimilation variationnelle

Le principe est ici d'ajuster globalement la trajectoire du modèle à toutes les observations disponibles sur la fenêtre temporelle d'assimilation. Dans ce cas, et contrairement à l'approche séquentielle, l'analyse va tenir compte à un instant t des observations antérieures et postérieures, *Elbern et al.* (1997), *Elbern and Schmidt* (1999). Par cette approche, il faut définir une fonction coût J qui représente la "distance" séparant les observations de la solution modélisée telle que :

$$J = \sum_j \alpha_j \left(y_j - y_j^0\right)^2 \tag{8.2}$$

où : y_j^0 représente les observations, y_j les valeurs modèles et α_j des "poids", représentatifs de la précision de l'observation. Comme l'unicité de la solution du modèle est liée aux conditions initiales, ces conditions vont servir de variables de contrôle. La technique employée est alors de minimiser J, en cherchant le minimum de sa dérivée. Déterminer itérativement le minimum de ce gradient d'un paramètre peut devenir très couteux en temps de calcul : il est alors possible de déterminer ce gradient de manière plus rapide en utilisant les équations adjointes du modèle. Les méthodes actuelles de résolution sont appelées 3D-VAR et 4D-VAR (incluant la dimension temporelle).

Applications d'assimilation de données

Le premier type d'application est d'améliorer une simulation pour "combler" spatialement les manques de mesures ou créer des cartes avec moins d'erreur. Cette analyse peut se faire avec n'importe quelle donnée : une variable météorologique, une espèce chimique et n'importe ou dans le domaine d'étude : avec des données de surface ou satellite. Un autre type d'assimilation est de débiaiser une information pour mieux contraindre une espèce chimique : on peut, par exemple, assimiler la température pour améliorer la modélisation de la photochimie pour l'ozone estival. On peut aussi assimiler des aérosols ou directement de l'AOD pour améliorer aussi la photochimie. Les techniques d'assimilation peuvent donc être bénéfiques pour reconstruire des cartes d'une espèce pour elle-même ou pour son impact sur d'autres espèces. L'assimilation la plus efficace à mettre en oeuvre avec le modèle est lorsque l'on utilise pour la minimisation une variable qui respecte les contraintes suivantes :

- Sa représentativité : plus elle est importante, plus l'assimilation d'une variable sera représentative de la taille d'une maille modèle, donc plus elle sera exacte.
- Son temps de vie : plus la variable a une variabilité longue, plus l'assimilation va marquer durablement, et avec moins d'erreur, la trajectoire du modèle.
- Son impact : plus la variable a un impact sur les autres variables, plus le gain de l'assimilation va se propager aux autres qui en dépendent.

Logiquement, les premières études d'assimilation chimique ont porté sur des espèces à longue durée de vie et mesurables directement. Les données satellites offrant une grande couverture spatiale, les études ont donc été tout d'abord menée sur des espèces comme le CO, *Clerbaux et al.* (2001) à l'échelle globale. Au fur et à mesure des années, de plus en plus de satellites ont mis à disposition de plus en plus d'espèces chimiques mesurées, comme l'ozone, le NO_2, HCHO et le SO_2, *Martin* (2008). *Adhikary et al.* (2008) assimile des données d'AOD satellite pour optimiser des cartes de concentrations d'aérosols en Asie : l'AOD étant déjà un diagnostic, ce type d'assimilation ajoute une incertitude au système par rapport à la prise en compte d'une concentration, *Saide et al.* (2014)

En parallèle, des études ont été réalisées sur l'ozone et en utilisant des mesures de surface. *Elbern et al.* (1997) réalise une assimilation variationnelle avec le modèle EURAD sur l'Europe, *Blond et al.* (2003) avec le modèle CHIMERE et une approche d'interpolation optimale sur la région Parisienne, *Hanea et al.* (2004) avec le modèle EUROS et un filtre de Kalman. Pour ces études, l'opérateur d'observations, permettant de "traduire" les observations à assimiler dans l'espace du modèle, devient un enjeu de modélisation, *Stajner et al.* (2004) : mal représenter les observations dans l'espace modèle est une des causes de difficulté de convergence de l'assimilation. Une application a posterori de reconstruction de cartes exactes peut être un enjeu de santé publique comme l'étude de *Zheng et al.* (2007) : l'assimilation de données permet de reconstruire plus exactement le transport du panache d'un accident nucléaire et donc d'affiner l'exposition des populations. *Denby et al.* (2008) assimilent des données de PM_{10} en surface avec le modèle LOTOS-EUROS : pour cela, ils comparent deux méthodes différentes : l'interpolation optimale (OI) et le filtre de

Kalman d'ensemble (EnKF). Ils montrent que pour ce polluant, ils obtiennent de meilleurs résultats avec OI. *Wu et al.* (2008) comparent aussi des approches d'assimilation pour l'ozone de surface. Eux aussi montre que le OI donne les meilleurs résultats pour l'ozone, comparé à EnKF et 4D-VAR pour les conditions initiales. Puis, plus la simulation avance, plus EnKF donne les meilleurs résultats.

Gain de l'assimilation de données en pollution

A partir du moment ou il y a hybridation entre modèle et mesures, l'assimilation est toujours un gain pour réaliser des cartes analysées. Pour la prévision, il est clair que le système étant non-linéaire, toute amélioration des conditions initiales est aussi un gain. On a donc globalement un système bénéfique, au prix de développements algorithmiques importants : tous les modèles directs de météorologie et chimie-transport n'ont pas leur équivalent en modèle adjoint pour tous les processus.

La question qui reste pour la prévision avec assimilation est : *il y a certainement un gain mais pour combien de temps ? en fonction du domaine d'étude, de la résolution, de l'espèce étudiée, pendant combien d'heures la simulation avec assimilation donnera-t-elle de meilleurs résultats que sans ?*

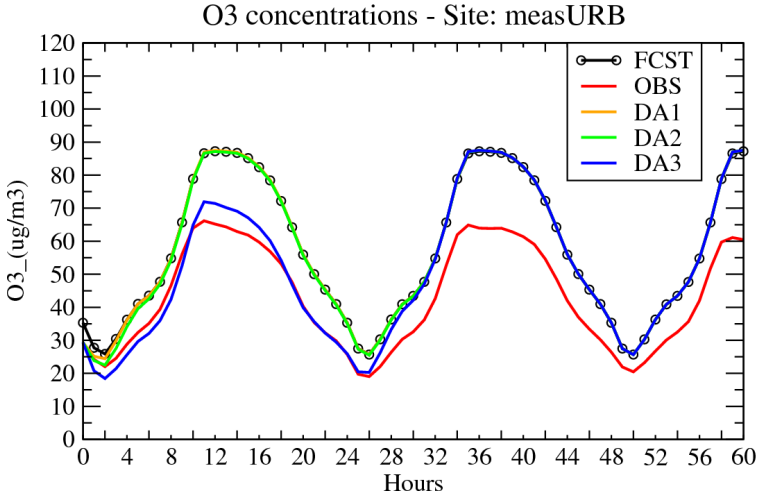


FIGURE 8.3 – *Séries chronologiques de concentrations de surface d'ozone avec différents scénarions d'assimilation de données. Le "forecast" est la prévision sans assimilation. DA1 est l'assimilation de quelques stations de surface uniquement, DA2 de profils verticaux, et DA3 l'assimilation du domaine complet comme s'il était possible d'avoir toute l'atmosphère renseignée pour une espèce. Figure extraite de Menut and Bessagnet (2019).*

Blond and Vautard (2004) utilisent l'OI pour assimiler des données d'ozone de surface pour une prévision. Le gain sur l'erreur est proche des 24h pour un domaine sur la région Parisienne. *Tombette et al.* (2009) utilisent OI pour assimiler des concentrations de PM_{10} sur la France et montrent une nette amélioration des concentrations simulées sur le premier jour d'une prévision. *Vira and Sofiev* (2012) utilise du 4D-VAR pour optimiser les conditions initiales de son modèle de prévision et pour les concentrations de SO_x : l'étude a permis de raffiner la masse émise de l'éruption de l'Etna, le flux volcanique émis restant toujours une incertitude forte sur la modélisation des éruptions, et donc a permis d'améliorer la simulation pour la prévision à court terme. Plus récemment, *Menut and Bessagnet* (2019) utilisent des cas académiques pour quantifier ce gain. Les cas académiques étant un système totalement sous-contrainte, cela permet d'avoir une quanti-

fication précise du gain. Pour l'ozone et le NO_2, ils montrent que le gain maximum est de l'ordre de 60h et 21h respectivement, Figure 8.3. Ce gain est en considérant que le modèle est sans erreur, que les observations sont nombreuses et représentatives : il s'agit donc de la borne maximum de ce que l'on pourra jamais atteindre, quels que soient les modèles et la technique d'assimilation, des mesures disponibles. *Bessagnet et al.* (2019) utilisent la même approche et montre que le gain pour les PM_{10} peut atteindre les 80h, une partie du gain étant que l'assimilation corrige des émissions pour la partie primaire de cette espèce.

L'assimilation de données est un complément de modélisation permettant d'hybrider mesures et modèle. Les non-linéarités en météorologie en font un outil puissant pour créer des analyses à posteriori. La chimie-transport étant moins non-linéaire, il y a aussi un gain mais plus faible. Si le gain pour analyser des situations a posterori est clair, celui pour la prévision est plus faible. Une limite existe par espèces, principalement due au fait que la chimie-transport est un problème de conditions aux limites (les émissions) bien plus que de conditions initiales. Selon les techniques d'assimilation, l'effort de développement de modèles très complexes (comme les adjoints pour le 4D-VAR) n'est pas forcément évident au regard du faible gain sur les résultats. De plus, l'assimilation est juste un "correcteur de trajectoire" de modèle et n'apporte aucune connaissance en physico-chimie.

8.2 La modélisation inverse

La modélisation inverse utilise le même type d'algorithmie que pour l'analyse mais pour une finalité différente : il s'agit d'assimiler des données au fur et à mesure d'une simulation pour optimiser un paramètre de forçage du modèle. Comme pour l'analyse, les premières études ont été réalisées en météorologie puis en chimie-transport, *Enting* (2002). En chimie-transport, elles se focalisent sur l'inversion des émissions d'espèces chimiques, *Reeves et al.* (2004). Elles ont tout d'abord été faites pour des espèces à lente durée de vie, en faisant l'inversion d'une émission d'une espèce par rapport à sa propre concentration, en considérant que le transport était négligeable et pour inverser des émissions naturelles (prévisibles avec la météorologie). On note des inversions globales pour le méthane *Houweling et al.* (1999), le dioxyde de carbone *Bousquet et al.* (1999); *Kaminski and Heimann* (2001); *Gurney et al.* (2005), les composés CFCs *Mahowald et al.* (1997) et le monoxyde de carbone *Bergamaschi et al.* (2000); *Pétron et al.* (2004); *Müller and Stavrakou* (2005). A l'échelle continentale, on note des études sur les oxydes d'azote *Konovalov et al.* (2005). A l'échelle locale, les études sont plus rares. On note beaucoup d'études sur la ville d'Atlanta pour les premières études avec l'inversion de l'isoprène *Chang et al.* (1996), du monoxyde de carbone *Chang et al.* (1997) et des précurseurs de l'ozone tels que les COV et les NO_x, *Mendoza-Dominguez and Russell* (2001). *Mulholland and Seinfeld* (1995) étudient le monoxyde de carbone dans la région de Los Angeles. *Quélo et al.* (2005) ont inversé les émissions de NO_x à Lille (France). Cela montre que lorsque l'espèce mesurée est la même que l'espèce inversée, les incertitudes sont réduites car il n'y a pas la chimie à considérer. De même, plus la résolution du modèle est faible, plus le transport est bien contraint et moins il est une source d'erreur dans l'inversion, *Bousquet et al.* (1999); *Heimann and Kaminski* (1999). L'approche du bilan de masse est alors utilisée, *Enting* (2002). A l'échelle locale, les émissions ne sont pas un processus continu, ni dans l'espace ni dans le temps, rendant l'inversion plus délicate.

Le principe général du calcul de la modélisation inverse pour estimer des sources est explicité sur la Figure 8.4. A partir de forçages d'émissions et de météorologie, la simulation permet tout d'abord d'obtenir une concentration modèle $c_{mod,E}$. Ces concentrations sont différentes des concentrations observées c_{obs}. La modélisation inverse va intégrer successivement le modèle direct et le modèle adjoint. A chaque intégration temporelle, la différence entre le modèle et les observations va être calculée et on va chercher à minimiser la

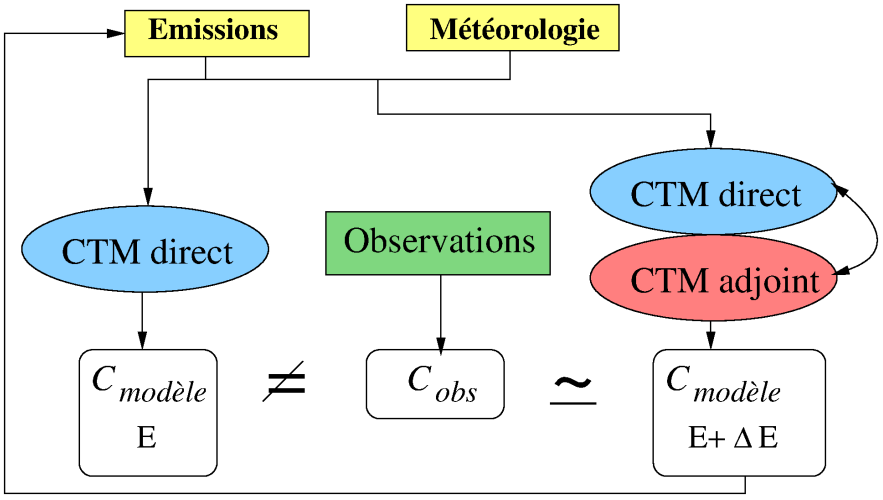


FIGURE 8.4 – *Principe général de la modélisation inverse.*

fonction coût représentant cette différence. Cette minimisation va se faire sur toutes les heures précédentes de la simulation : en changeant les émissions sur de nombreuses heures avant, on optimise la trajectoire du modèle et on obtient une concentrations $c_{mod,E+\Delta E}$ plus proche des observations.

Le cas académique permet de borner les solutions. Pour la modélisation inverse, on peut faire un cas académique pour savoir dès le départ ce que l'on veut retrouver et voir si l'inversion y arrive. Sur la région Parisienne, avec une météorologie et des émissions considérées comme connues, une inversion est réalisée dans *Pison et al.* (2006). Cela montre qu'au maximum 80 à 90% de la source connue peut être retrouvée. Même dans un cas très contraint, cela montre que les incertitudes et non-linéarités étant nombreuses, la solution exacte ne peut pas être forcément trouvée. Appliquer ces méthodes sur des cas réels va donc probablement permettre de se rapprocher de la solution mais pas la déterminer exactement.

L'utilisation de la méthode permet quand même de grandement améliorer les émissions connues ou d'estimer celles inconnuesC'est le cas des rejets massifs de polluants comme l'explosion de la centrale nucléaire de Chernobyl, *Davoine and Bocquet* (2007), l'exercice de rejet de source ETEX, *Krysta et al.* (2008), ou l'accident de Fukushima au Japon, *Saunier et al.* (2013). *Pison et al.* (2007) inversent les émissions anthropiques en région Parisienne et montrent qu'il est nécessaire d'ajouter la variabilité par jour de semaine pour le trafic automobile et que les émissions résidentielles sont probablement sur-estimées dans Paris mais sous-estimées en banlieue. La modélisation inverse peut aussi être utilisée sur le long terme pour réduire l'incertitude sur les tendances. Pour le CH_4, par inter-comparaison de méthodes et modèles, *Bergamaschi et al.* (2018) et *McNorton et al.* (2018) montrent que l'on peut affiner les sources et tendances en Europe, et mieux attribuer l'origine des changements en fonction des secteurs d'activité. Il est aussi possible d'inverser d'autres paramètres comme *Partridge et al.* (2012) qui inversent les paramètres d'un schéma décrivant les interactions nuages-aérosols.

La modélisation inverse est un outil puissant pour mieux estimer les paramètres d'entrée d'un modèle. En pollution atmosphérique, cela permet de mieux contraindre les émissions, un des facteurs clé et des plus incertains. Mais cela nécessite des outils complexes (adjoint, minimiseur) lourds à développer puis à utiliser. Il a été aussi montré que la meilleure solution au problème n'est pas forcément retrouvée. En fait, la minimisation considérant que tous les autres paramètres et le modèle ne sont pas à optimiser, l'ensemble des erreurs et incertitudes sont reportés sur le paramètre inversé. Cela est donc satisfaisant pour un modèle et une configuration donnée. Mais une variable inversée ne conviendra pas forcément pour un autre modèle, une autre résolution ou une autre période étudiée.

8.3 La prévision

Article open-access de référence: *Marécal et al.* (2015)

La prévision reste un des buts majeurs du développement des outils numériques dédiés à l'estimation de champs de concentrations de polluants : si l'on veut prendre des mesures rapidement pour réduire un pic de pollution annoncé quelques jours à l'avance, il faut développer des modèles à la fois précis et stables dans leur comportement, *Menut and Bessagnet* (2010), *Zhang et al.* (2012a). De plus, si la prévision est souvent considérée comme l'aboutissement du développement et de l'utilisation d'un modèle, c'est aussi le meilleur moyen de jauger objectivement des capacités d'un outil au jour le jour. La prévision peut porter sur différentes échelles de temps. Pour la modélisation régionale, elle porte souvent sur quelques jours à l'avance : la principale contrainte étant la pertinence des prévisions météorologiques qui vont guider les prévisions de chimie-transport. La prévision utilise une large variété de modèles, pas uniquement déterministes. Ainsi, des systèmes de détection de pics de pollution sont basés sur des approches statistiques comme les réseaux de neurones, *Robeson and Steyn* (1990). Par exemple, *Lightstone et al.* (2017) comparent le modèle CMAQ à un réseau de neurones sur la ville de New York et trouvent des résultats de même qualité entre le réseau et le CTM. Cependant, cela reste vrai hors "évènement atypique" : si l'on veut que le réseau de neurones le détecte, il faut que l'évènement ait déjà eu lieu et ait donc été appris par le réseau.

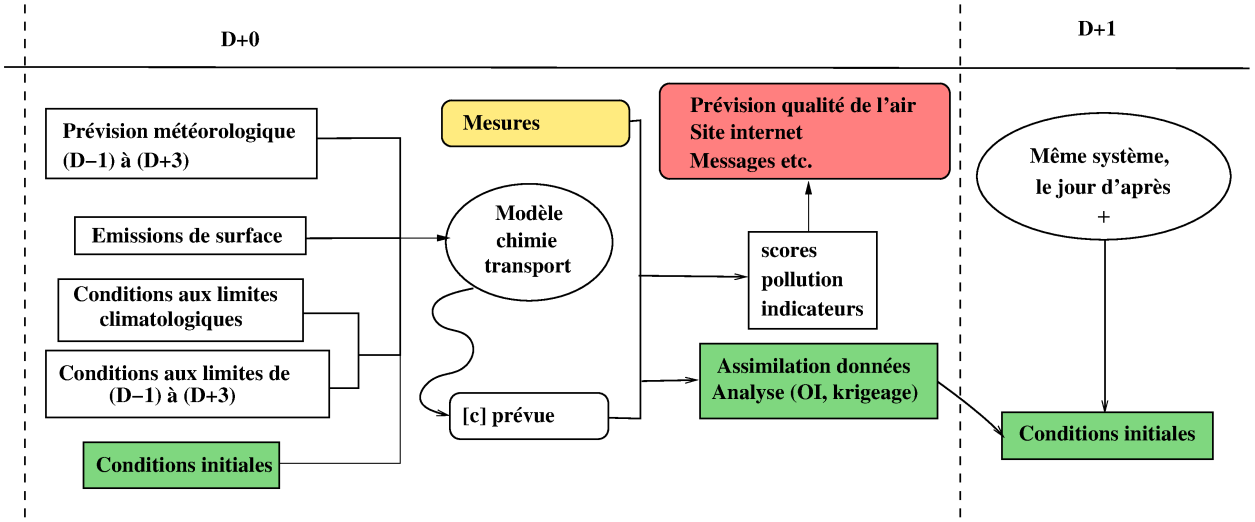


FIGURE 8.5 – *Principe général d'une chaine de prévision de la qualité de l'air.*

La Figure 8.5 montre un diagramme de l'enchainement des opérations de modélisation pour faire une prévision quotidienne. Le principe reprend celui d'une simulation d'analyse classique mais en ajoutant le "chainage". Il faut en effet que les simulations s'enchainent jour après jour et que la simulation du jour (D+1) soit initialisée avec la simulation faite au jour (D). Les forçages nécessaires pour faire une prévision de chimie-transport sur la période de (D-1) à (D+3), par exemple, sont : (i) la météorologie, les émissions et les conditions aux limites régionales pour cette période, (ii) les conditions initiales pour le début de la prévision.

De nombreux systèmes de prévision existent, qu'ils soient expérimentaux (pour des campagnes de mesure ou pour tester des modèles) ou opérationnels. Les systèmes opérationnels sont mis en oeuvre soient par des centres de météorologie, soit par des organismes dédiés comme les associations de surveillance de la qualité de l'air. Les premiers systèmes de prévision opérationels apparaissent au niveau des années 2000, *Vautard et al.* (2001), *Delle Monache and Stull* (2003), *McHenry et al.* (2004). Puis, d'autres systèmes ont été mis en place tel que cela est décrit dans les articles de revue de *Menut and Bessagnet* (2010), *Zhang et al.* (2012a), *Zhang et al.* (2012b). En France, une structuration supplémentaire avec le système de prévision PREVAIR mis en place par l'INERIS et utilisant les modèles CHIMERE (CNRS/INERIS) et MOCAGE (Météo-France), *Honoré et al.* (2008). Pour l'Europe, le consortium de laboratoires de recherche CAMS, *Marécal et al.* (2015), au sein du programme COPERNICUS met en oeuvre une prévision quotidienne sous forme d'ensemble au Centre Européen pour les prévisions météorologiques à moyen terme (*ECMWF*). La météorologie est réalisée par le modèle de prévision IFS, *Morcrette et al.* (2009).

Parmi toutes les incertitudes liées à sa modélisation, se pose la question de *comment améliorer la prévision ?* On retrouve les mêmes contraintes que celles de l'analyse : la qualité des paramétrisations, le nombre de processus représentés dans le modèle, la résolution spatiale et temporelle du modèle, l'impact des conditions initiales et des forçages etc. On y ajoute des contraintes spécifiques : le modèle doit être rapide et faire sa prévision en quelques heures, il doit aussi être numériquement stable car la prévision doit fonctionner tous les jours. L'impact des conditions initiales étant important, différentes techniques sont testées, comme *Blond and Vautard* (2004) qui assimile des données de surface pour fournir des champs d'ozone au plus proche de la réalité en début de simulation. Les techniques d'ensemble sont aussi utilisées : plusieurs prévisions donnent de meilleurs scores que les simulations indépendantes, *Bei et al.* (2010), *Marécal et al.* (2015), *Brasseur et al.* (2019).

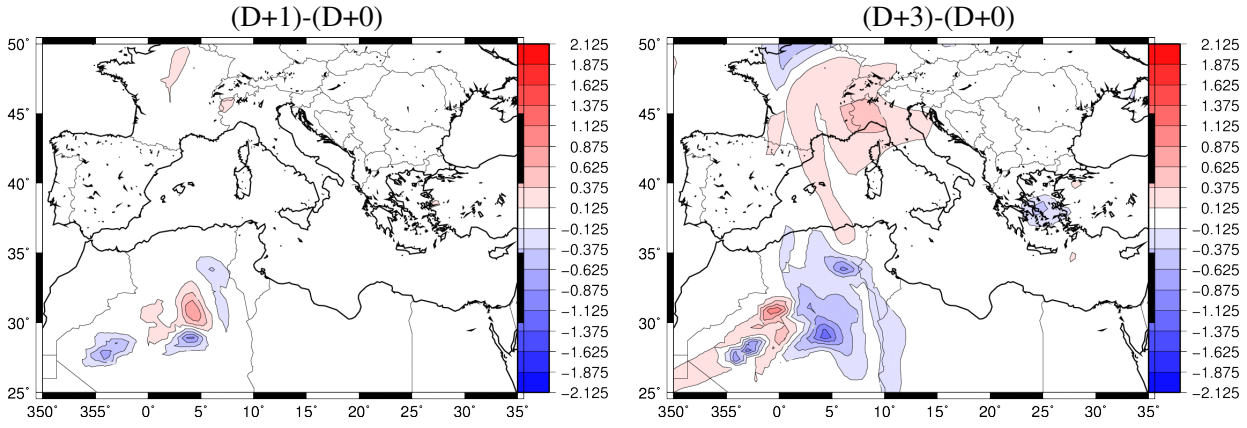


FIGURE 8.6 – *Variabilité de la prévision des PM_{10} ($\mu g\ m^{-3}$) de surface en fonction des échéance. Figure d'après Menut et al. (2015a).*

La prévision peut aussi être un outil de validation d'un modèle. Ainsi, en comparant les prévisions jour après jour, on peut évaluer la dispersion des résultats trouvés en fonction des changements d'initialisation. Par exemple, *Menut et al.* (2015a) montrent l'impact d'une erreur sur le vent sur d'autres processus en dépendant : un petit changement sur le module du vent va changer les émissions de dust et la direction du vent va ensuite changer le transport de ce panache. Puis, le dépôt sera modifié (dépendant de la masse disponible et du vent). Au final, les concentrations de surface des polluants seront différentes entre les échéances de prévision. La comparaison de ces différentes échéances est donc un indicateur de la variabilité du modèle. La Figure 8.6 montre des cartes de différences de concentrations de PM_{10} entre plusieurs simulations : (D+1)-(D+0) et (D+3)-(D+0). On voit nettement que la différence augmente avec l'échéance de prévision, apportant une quantification de l'incertitude de prévision.

La prévision reste un des buts de la modélisation de la composition atmosphérique. Les résultats de la prévision dépendent très fortement des non-linéarités en météorologie et donc de leur forte dépendance aux conditions initiales. Ils dépendent aussi de la qualité du modèle et des paramétrisations qu'il faut sans cesse améliorer. Les moyens de limiter ces incertitudes sont de faire des prévisions d'ensemble, ainsi qu'en initialisant le modèle avec des champs ayant bénéficié d'assimilation de données. Il reste que certains forçages resteront toujours très approximatifs comme la prévisibilité du trafic routier dans une grande ville ou la durée d'un feu de végétation observé par satellite.

9 Les impacts de la pollution atmosphérique

Ce chapitre aborde les impacts de la pollution atmosphérique sur les deux grands thèmes justifiant de son étude : le climat (dont météorologie et végétation) et la santé. Les questions suivantes seront abordées :

1. Les modèles régionaux peuvent-ils apporter une quantification de l'impact de la pollution sur le climat ? du climat sur la pollution ? sur la santé ?
2. Peut-on modéliser régionalement des tendances à long terme ?
3. Quels impacts sont actuellement bien modélisés, quel autres restent à quantifier et quels développements de modèles sont nécessaires ?

9.1 L'impact de la pollution sur le climat

Le changement climatique récent est le fruit d'une pollution atmosphérique excessive depuis le début de la période industrielle. L'impact de la pollution sur le climat est donc évident puisque la pollution est à l'origine de ce changement. Entre pollution et climat, on discute en fait du même phénomène mais à des échelles spatio-temporelles différentes. La pollution atmosphérique est un phénomène à haute fréquence temporelle (de la minute à l'année), avec une extension spatiale souvent locale (une ville) ou régionale. A l'inverse, le climat est un phénomène à basse fréquence temporelle (de l'année au millénaire) et d'une extension globale. Mais dans les deux cas, ces systèmes subissent des actions anthropiques importantes. La quantification de cet impact reste difficile à réaliser et les modèles sont utilisés en appui pour analyser de longues périodes passées et faire des projections futures. D'un point de vue espèces chimiques, la correspondance entre les deux n'est pas directe, les espèces pouvant être différentes, comme le montre le Tableau 9.1. Mais le point commun reste des émissions anthropiques excessives, *Jacobson and Streets* (2009). Pour le climat, l'attention se porte majoritairement sur les gaz à effet de serre : sur le long terme, c'est leur impact radiatif qui va le modifier, avec notamment le CO_2 et le CH_4. Pour la qualité de l'air, on retrouve les polluants faisant l'objet d'un suivi réglementaire, à plus courte durée de vie mais ayant aussi un impact reconnu sur la santé et la végétation.

Principaux gaz à effet de serre	Principaux polluants AQ
Vapeur d'eau (H_2O)	Ozone (O_3)
Dioxyde de carbone (CO_2)	Oxydes d'azote (NO_x)
Méthane (CH_4)	Dioxyde de soufre (SO_2)
Ozone (O_3)	Composés organiques volatils (COVs)
Oxyde nitreux (N_2O)	Hydrocarbures aromatiques polycycliques (HAP)
(Hydro-) Chlorofluorocarbones ((H-)CFC)	Particules $PM_{2.5}$ et PM_{10}
Hexafluorure de soufre (SF_6)	Ammoniac (NH_3), Benzène (C_6H_6)
	Monoxyde de carbone (CO)

TABLE 9.1 – *Comparaison des espèces chimiques dans les systèmes "climat" et "qualité de l'air".*

Même si climat et pollution ne sont pas aux mêmes échelles spatio-temporelles, il existe des comparaisons à des échelles régionales et sur quelques décennies, dans le cadre du thème de **climat régional**. Notamment, la pollution peut impacter rapidement le changement climatique à travers certaines sur-concentrations de gaz et aérosols, *Zhao et al.* (2019). Les gaz, notamment les gaz à effet de serre (CO_2, N_2O, CH_4), vont absorber le rayonnement infrarouge et provoquer un réchauffement de l'atmosphère. L'ozone en altitude va modifier la capacité oxydante de l'atmosphère. Les aérosols ont un forçage radiatif dépendant de leur distribution en taille et donc de leur effet diffusant ou absorbant, *Haywood and Boucher* (2000) : par exemple, pour les minéraux, ils vont avoir un forçage radiatif négatif pour le rayonnement short-wave (solaire) car ils vont diffuser le rayonnement et cela pour la partie fine de l'aérosol (0.1-1 μm). Mais un impact radiatif positif dans le long-wave (infrarouge) en absorbant le rayonnement, et cela pour la partie grossière de l'aérosol (5-100 μm), *Mahowald et al.* (2011). La pollution atmosphérique étant à l'origine du changement climatique, les solutions sont théoriquement évidentes et passent par une réduction des émissions anthropiques, *Turnock et al.* (2018). Mais la mise en pratique est plus difficile : à chaque secteur d'activité réduit, il faut trouver son équivalent non polluant. Et les modélisations de réduction peuvent montrer dans certains cas des effets moins importants qu'espéré, *Leibensperger et al.* (2012).

La modélisation régionale ne pourra pas quantifier correctement l'impact de la pollution sur le climat car les échelles de temps sont très longues : cela implique d'utiliser des modèles globaux ou l'ensemble des circulations atmosphériques peuvent être correctement considérées. Le thème de climat régional se développe cependant beaucoup, simulant quelques décennies mais restant très sensible à la précision des conditions aux limites lorsqu'il s'agit d'étudier des tendances.

9.2 L'impact du climat sur la pollution

Si l'impact de la pollution sur le climat est évident, il existe aussi, à l'inverse, un impact du changement climatique sur la pollution. Ce point nécessite d'être pris en compte si l'on veut faire de la modélisation de la pollution régionale correcte, notamment dès qu'il s'agit de faire des calculs de scénarios ou de tendances sur plusieurs années, *Jacob and Winner* (2009). Pour modéliser ces interactions, la thématique de la "modélisation du climat régional" a commencé à se développer il y a quelques dizaines d'années, *Beniston et al.* (2007), *Giorgi* (2019). Ces CTMs sont conceptuellement différents des CTMs utilisés pour les études de cas et la prévision à court terme : ils ne cherchent pas à quantifier au plus juste une concentration en un lieu donné mais doivent faire des simulations très rapidement et décrire correctement les variabilités et les tendances. Les incertitudes sur ces projections modélisées sont nombreuses et des projets comme PRUDENCE visent à les quantifier, *Déqué et al.* (2007). Ils montrent notamment que pour ces modèles régionaux, le forçage aux limites est primordial, notamment la température. La modélisation d'ensemble reste l'outil le plus adapté pour jauger de la pertinence de ces simulations sur le long terme, *Nikulin et al.* (2011).

L'impact du changement climatique peut se voir sous deux aspects : la météorologie et la végétation. La chimie atmosphérique étant directement dépendante de la météorologie, l'impact du changement climatique est attendu, *Jacob and Winner* (2009). Un accroissement de la température va accroitre l'activité photochimique et donc les concentrations d'ozone, *Meleux et al.* (2007). Par contre, un accroissement attendu de la couverture nuageuse peut limiter cette photochimie. *Fang et al.* (2011) montrent que la baisse des précipitations dans certains scénarios de climat futur, va induire une baisse du dépôt humide et donc un accroissement des concentrations d'aérosols en surface. Augmentation confirmée par *Katragkou et al.* (2011) pour l'ozone en Europe, aussi due à une modification de l'anticyclone de l'Europe de l'Ouest et donc à de plus nombreux épisodes de stagnation.

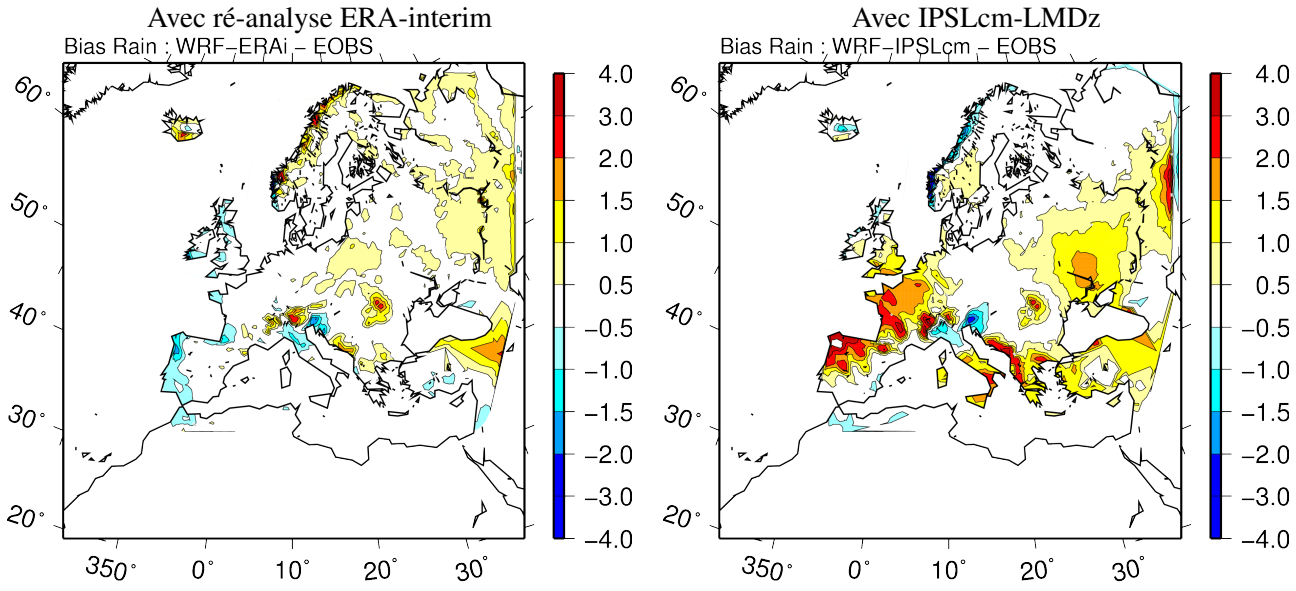


FIGURE 9.1 – *Biais des précipitations de 1989 à 2005 en fonction du forçage météorologique. D'après les données de Menut et al. (2013b)*

Les impacts étant très dépendants de la justesse des scénarios de climat futur, la question se pose de savoir ce que valent ces modélisations climatiques globales. La difficulté est bien sur de ne pas avoir de données de comparaisons. Il faut donc comparer les simulations, faites avec ces outils climatiques, sur des périodes passées et avec des mesures. *Menut et al.* (2013b) comparent des simulations régionales à des simulations climatiques et montrent que des compensations d'erreur des modèles rendent l'interprétation difficile. En été, le modèle climatique va avoir un biais positif sur le rayonnement solaire mais un biais négatif sur le module du vent en surface. Cela induit trop d'épisodes de stagnation et un biais négatif de température. En hiver, si la dynamique ne montre pas de biais systématique, les précipitations sont surestimées, conduisant ensuite à une sous-estimation des aérosols futurs prévus. la Figure 9.1 présente deux cartes de biais calculé sur la pluie en fonction du modèle climatique de forçage. On peut voir que le modèle de climat peut induire un biais beaucoup plus important que le modèle régional habituellement utilisé pour les études de pollution.

Le changement climatique a aussi un impact sur la végétation, qui, de suite, aura un impact sur la pollution atmosphérique. *Wang et al.* (2020) montrent ainsi que la reforestation peut induire localement un climat plus sec et chaud, induisant des concentrations d'ozone plus fortes. Les rétroactions sont complexes mais montrent que, comme pour l'étude de la pollution régionale à court terme, il est nécessaire de prendre en compte un couplage météo-chimie-végétation pour bien considérer tous les processus.

La difficulté de ces études va être le cumul des erreurs dans le temps. Le modèle régional en étant relativement précis, utilise des paramétrisations assez fines et donc assez variables. Ses schémas sont plus sensibles, donc plus incertains, que les schémas robustes des modèles de climat. Si leur utilisation est recommandée pour des simulations courtes (quelques jours à quelques mois), leur utilisation sur des décennies peut faire apparaitre des biais importants, les erreurs se cumulant au fur et à mesure du temps.

9.3 L'impact de la pollution sur la santé

L'impact de la pollution sur la santé est un des buts de la modélisation de la pollution. Mais la modélisation régionale n'apporte qu'une information partielle car l'estimation de cet impact est un champ pluridisciplinaire impliquant des géophysiciens, des sociologues et des épidémiologistes. Pour en savoir plus sur ce sujet, il est recommandé de lire les publications mises à disposition sur le site internet de l'Observatoire Régional de la Santé (ORS), (*https ://www.ors-idf.org/*). L'article de review *Malmqvist et al.* (2018) décrit l'ensemble des programmes récents étudiants ces impacts.

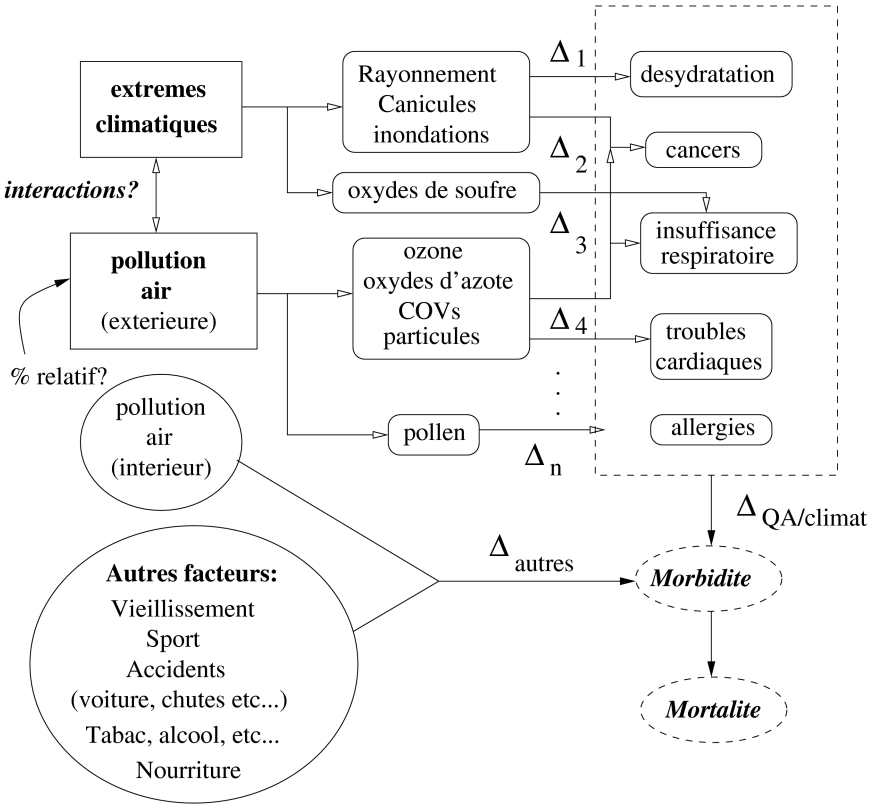


FIGURE 9.2 – *Diagramme résumant les différents liens existants entre des concentrations chimiques de polluants et des maladies.*

La modélisation régionale de la pollution va donc apporter une réponse pour le premier maillon de la chaine des impacts. Cette chaine peut se résumer comme cela est présenté sur la Figure 9.2 :

- Un type de pollution ou de modification de la météorologie : climat, pollution intérieure, extérieure...
- Un type d'impact sur la météorologie : rayonnement, sur-concentration d'une espèce chimique, pollen...
- Un type de problème de santé : cardiaque, cancer, allergie...
- Une incidence sur la morbidité, puis sur la mortalité. Certaines études quantifient aussi le coût économique de cet impact, *Im et al.* (2018a).

Le modèle de pollution apporte uniquement des données sur les concentrations atmosphériques. Les incertitudes sont largement aussi nombreuses ensuite pour les autres quantifications d'impact. Concernant la pollution, on note aussi que l'on ne quantifie cet impact que pour la contribution "extérieure". Il y a

aussi des études sur l'impact de la pollution intérieure mais l'analyse avec les deux en même temps reste marginale. Par exemple, *Brinkman et al.* (2009) fait des mesures de concentrations chimiques et essaye de poser une spéciation pour différencier intérieur/extérieur. En terme d'impact sur la santé, et pour avoir un bilan complet, il faudrait aussi prendre en compte l'alimentation, la qualité de l'eau *etc.* A ce jour, on a donc une vue très partielle de l'impact de la pollution quand on ne prend en compte que la pollution extérieure.

Même si tous les types de pollution peuvent avoir un impact sur la santé, la part anthropique est la plus étudiée car la plus réductible, *Anderson* (2009). Parmi tous les polluants, les particules sont reconnues depuis quelques décennies pour avoir un impact négatif sur la santé, *Kim et al.* (2015). Les PM_{10} extérieurs et urbain ont un effet estimé à 0.8M de décès prématurés par an et ceux associés à la combustion de fuel en intérieur à 2M d'habitants sur le globe. Si l'effet sur la santé reste prioritaire, de nombreuses études tentent de quantifier les coûts/bénéfices des fortes concentrations d'aérosols à la fois sur la santé, la végétation et le climat, *Löndahl et al.* (2010). Le Tableau 9.2 résume quelques effets positifs et négatifs d'une réduction d'aérosols dans l'atmosphère. Il est clair que le changement climatique a une large majorité d'effets négatifs, y compris sur l'abondance des aérosols et l'effet en retour de cette augmentation sur la santé et le climat.

Changement climatique	Effets sur la santé	Effet des aérosols
Température en hausse	↘ Plus allergènes	Plus d'aérosols
	↗ de végétation	↗ Effet refroidissant
	↘ dégradation nourriture	
	↘ amplification maladies/eau	
Inondations	↘ Destruction habitat (décès)	↘ + pluies intenses
	↘ Transport de produits toxiques, maladies	
Sécheresse	↗ Moins de transport de maladies	↘ Moins de précipitations
	↘ Réduction disponibilité eau	
	↘ Réduction végétation	

TABLE 9.2 – *Impact des aérosols en fonction du climat et de la santé. Les symboles ↗ et ↘ dénotent les effets positifs et négatifs, respectivement (d'après Löndahl et al. (2010)).*

Pour simplifier la quantification des impacts, et réussir à corréler les causes à effets, il y a quelques cas particuliers. On peut avoir un évènement de pollution intense permettant d'éliminer toute autre cause possible et habituelle. C'est le cas, par exemple, d'une éruption volcanique, une canicule ou une pollution "hors norme" récurrente (ex. Pékin en Chine). On peut aussi travailler sur des évènements qui causent un problème de santé isolé et caractéristique : par exemple, les pollens et les troubles respiratoires qui y sont associés, une modification de l'indice UV et son impact, *Jégou et al.* (2011).

La contribution de la modélisation régionale va être son insertion dans la construction d'un **modèle de risque**. Cela induit des collaborations entre des géophysiciens et des épidémiologistes. Ce modèle de risque inclut un **modèle d'exposition**. C'est sur cette partie que les recherches se développent actuellement pour la communauté géophysique. Le modèle d'exposition sera l'association d'un modèle de chimie-transport et d'un modèle de population. Pour associer les deux, il faut que le modèle de chimie-transport ait la meilleure résolution spatiale possible, *Gaines Wilson and Zawar-Reza* (2006), *Thompson and Selin* (2012). Un des premiers projets d'étude de cette thématique a été le projet FUMAPEX à Helsinki, *Baklanov et al.* (2007). On note aussi dans les premières études, les travaux sur Athènes, *Kassomenos et al.* (2008), à Valence en Espagne, *Viana et al.* (2008), au Portugal, *Borrego et al.* (2009). Pour éviter une descente en résolution trop couteuse, des techniques de variabilité sous-maille des concentrations chimiques en fonction des secteurs d'activité des émissions anthropiques ont aussi été développées et permis d'alimenter des modèles

d'exposition, *Valari et al.* (2011).

Les études d'impact réalisées pour les périodes présentes sont aussi accompagnées d'études sur les périodes futures. Notamment, le changement climatique est aussi étudié pour savoir si cela modifiera l'impact sur la santé, ainsi que le coût associé en fonction des scénarios, *Colette et al.* (2012), *Brandt et al.* (2013), *Tarín-Carrasco et al.* (2019). En Europe, ils concluent en général que le monbre de pathologies va augmenter d'un facteur deux d'ici à la fin du siècle, augmentant de même le coût de la santé.

Les études d'impact de la pollution sur la santé sont en plein essor. Ces études sont un des buts évidents des études de pollution. Mais leur développement a dû attendre que les modélisations de la pollution atmosphérique aient une maturité minimum pour que les résultats aient un sens. Pour progresser sur le sujet, des ponts entre géophysiciens et épidémiologistes ont été récemment construits. Mais les incertitudes restent très importantes à la fois sur la géophysique, sur l'exposition des populations et sur le risque que cela leur cause. De plus, les types de pollution pouvant affecter la santé humaine ne se limite pas à la pollution extérieure : il faut aussi compter sur la pollution intérieure, l'alimentation, la toxicité de la médication etc. On est donc encore loin d'avoir une quantification correcte de cet impact et les études actuelles chiffrant un nombre de morts ou un coût économique sont encore plus qu'incertaines.

Bibliographie

Abdul-Razzak, H., and S. J. Ghan (2002), A parameterization of aerosol activation 3. sectional representation, *Journal of Geophysical Research : Atmospheres*, *107*(D3), AAC 1–1–AAC 1–6, doi :10.1029/2001JD000483.

Adhikary, B., et al. (2008), A regional scale chemical transport modeling of asian aerosols with data assimilation of aod observations using optimal interpolation technique, *Atmospheric Environment*, *42*(37), 8600–8615, doi :10.1016/j.atmosenv.2008.08.031.

Al-Wali, K., and P. Samson (1996), Preliminary sensitivity analysis of urban airshed model simulations to temporal and spatial availability of boundary layer wind measurements, *Atmospheric Environment*, *30*, 2027–2042.

Albrecht, R. I., S. J. Goodman, D. E. Buechler, R. J. Blakeslee, and H. J. Christian (2016), Where are the lightning hotspots on earth ?, *Bulletin of the American Meteorological Society*, *97*(11), 2051–2068, doi :10.1175/BAMS-D-14-00193.1.

Alfaro, S. C., and L. Gomes (2001), Modeling mineral aerosol production by wind erosion : Emission intensities and aerosol size distribution in source areas, *J Geophys Res*, *106*, 18,075–18,084.

Alfaro, S. C., A. Gaudichet, L. Gomes, and M. Maillé (1998), Mineral aerosol production by wind erosion : aerosol particle sizes and binding energies, *Geophys. Res. Lett*, *25*, 991–994.

Allen, D. J., and K. E. Pickering (2002), Evaluation of lightning flash rate parameterizations for use in a global chemical transport model, *Journal of Geophysical Research : Atmospheres*, *107*(D23), ACH 15–1–ACH 15–21, doi :10.1029/2002JD002066.

Allen, D. J., K. Pickering, R. W. Pinder, , and T. Pierce (2009), Impact of lightning-no emissions on eastern us photochemistry during the summer of 2004 as determined using the cmaq model, in *8th Annual CMAS Conference, Chapel Hill, NC, 19-21 October, 2009*.

Allen, D. J., K. E. Pickering, R. W. Pinder, B. H. Henderson, K. W. Appel, and A. Prados (2012), Impact of lightning-no on eastern united states photochemistry during the summer of 2006 as determined using the cmaq model, *Atmospheric Chemistry and Physics*, *12*(4), 1737–1758, doi :10.5194/acp-12-1737-2012.

Amundson, N. R., A. Caboussat, J. W. He, A. V. Martynenko, V. B. Savarin, J. H. Seinfeld, and K. Y. Yoo (2006), A new inorganic atmospheric aerosol phase equilibrium model (uhaero), *Atmospheric Chemistry and Physics*, *6*(4), 975–992, doi :10.5194/acp-6-975-2006.

Amundson, N. R., A. Caboussat, J. W. He, A. V. Martynenko, C. Landry, C. Tong, and J. H. Seinfeld (2007), A new atmospheric aerosol phase equilibrium model (uhaero) : organic systems, *Atmospheric Chemistry and Physics*, *7*(17), 4675–4698, doi : 10.5194/acp-7-4675-2007.

Anderson, H. (2009), Air pollution and mortality : A history, *Atmospheric Environment*, *43*(1), 142–152, doi : 10.1016/j.atmosenv.2008.09.026, atmospheric Environment - Fifty Years of Endeavour.

Andreae, M., and D. Rosenfeld (2008), Aerosol-cloud-precipitation interactions. Part 1. The nature and sources of cloud-active aerosols, *Earth-Science Reviews*, *89*, 13–41, doi :10.1016/j.earscirev.2008.03.001.

Appel, K. W., K. M. Foley, J. O. Bash, R. W. Pinder, R. L. Dennis, D. J. Allen, and K. Pickering (2011), A multi-resolution assessment of the community multiscale air quality (cmaq) model v4.7 wet deposition estimates for 2002-2006, *Geoscientific Model Development*, *4*(2), 357–371, doi :10.5194/gmd-4-357-2011.

Archer-Nicholls, S., D. Lowe, D. M. Schultz, and G. McFiggans (2016), Aerosol–radiation–cloud interactions in a regional coupled model : the effects of convective parameterisation and resolution, *Atmospheric Chemistry and Physics*, *16*(9), 5573–5594, doi : 10.5194/acp-16-5573-2016.

Atger, F. (1999), The skill of ensemble prediction systems, *Mon. Wea. Rev*, *127*, 1941–1953.

Auger, L., and B. Legras (2007), Chemical segregation by heterogeneous emissions, *Atmospheric Environment*, *41*(11), 2303 – 2318, doi :10.1016/j.atmosenv.2006.11.032.

Aumont, B., S. Szopa, and S. Madronich (2005), Modelling the evolution of organic carbon during its gas-phase tropospheric oxidation : development of an explicit model based on a self generating approach, *Atmospheric Chemistry and Physics*, *5*(9), 2497–2517, doi :10.5194/acp-5-2497-2005.

Baik, J., and H. Chun (1997), A dynamical model for urban heat islands, *Boundary-Layer Meteorology*, *83*, 463–477, doi : 10.1023/A :1000346229951.

Baklanov, A. (2006), Overview of the european project fumapex, *Atmospheric Chemistry and Physics*, *6*(7), 2005–2015, doi : 10.5194/acp-6-2005-2006.

Baklanov, A., P. G. Mestayer, A. Clappier, S. Zilitinkevich, S. Joffre, A. Mahura, and N. W. Nielsen (2008), Towards improving the simulation of meteorological fields in urban areas through updated/advanced surface fluxes description, *Atmospheric Chemistry and Physics*, *8*(3), 523–543, doi :10.5194/acp-8-523-2008.

Baklanov, A., et al. (2007), Integrated systems for forecasting urban meteorology, air pollution and population exposure, *Atmospheric Chemistry and Physics*, *7*(3), 855–874, doi :10.5194/acp-7-855-2007.

Baklanov, A., et al. (2014), Online coupled regional meteorology chemistry models in Europe : current status and prospects, *Atmospheric Chemistry and Physics*, *14*(1), 317–398, doi :10.5194/acp-14-317-2014.

Baklanov, A., et al. (2017), Enviro-HIRLAM online integrated meteorology–chemistry modelling system : strategy, methodology, developments and applications (v7.2), *Geoscientific Model Development*, *10*(8), 2971–2999, doi :10.5194/gmd-10-2971-2017.

Baldauf, M., A. Seifert, J. Förstner, D. Majewski, M. Raschendorfer, , and T. Reinhardt (2011), Operational convective-scale numerical weather prediction with the cosmo model : description and sensitivities, *Mon. Weather Rev.*, *139*, 3887–3905, doi : 10.1175/MWR-D-10-05013.1.

Baldridge, K., and W. Cox (1986), Evaluating air quality model performance, *Environmental Software*, *1*(3), 182 – 187, doi : 10.1016/0266-9838(86)90023-7.

Balkanski, Y., M. Schulz, T. Claquin, and S. Guibert (2007), Reevaluation of mineral aerosol radiative forcings suggests a better agreement with satellite and aeronet data, *Atmospheric Chemistry and Physics*, *7*(1), 81–95, doi :10.5194/acp-7-81-2007.

Banerjee, A., A. T. Archibald, A. C. Maycock, P. Telford, N. L. Abraham, X. Yang, P. Braesicke, and J. A. Pyle (2014), Lightning no_x, a key chemistry-climate interaction : impacts of future climate change and consequences for tropospheric oxidising capacity, *Atmospheric Chemistry and Physics*, *14*(18), 9871–9881, doi :10.5194/acp-14-9871-2014.

Bangert, M., C. Kottmeier, B. Vogel, and H. Vogel (2011), Regional scale effects of the aerosol cloud interaction simulated with an online coupled comprehensive chemistry model, *Atmospheric Chemistry and Physics*, *11*(9), 4411–4423, doi :10.5194/acp-11-4411-2011.

Barlow, J., G. Rooney, S. von Hunerbein, and S. Bradley (2008), Relating urban surface-layer structure to upwind terrain for the salford experiment (salfex), *Boundary-Layer Meteorology*, *127*, 173–191, doi :10.1007/s10546-007-9261-y.

Barlow, J. F. (2014), Progress in observing and modelling the urban boundary layer, *Urban Climate*, *10*, 216 – 240, doi : 10.1016/j.uclim.2014.03.011, iCUC8 : The 8th International Conference on Urban Climate and the 10th Symposium on the Urban Environment.

Baró, R., et al. (2017), Regional effects of atmospheric aerosols on temperature : an evaluation of an ensemble of online coupled models, *Atmospheric Chemistry and Physics*, *17*(15), 9677–9696, doi :10.5194/acp-17-9677-2017.

Barret, B., et al. (2010), Impact of west african monsoon convective transport and lightning no_x production upon the upper tropospheric composition : a multi-model study, *Atmospheric Chemistry and Physics*, *10*(12), 5719–5738, doi :10.5194/acp-10-5719-2010.

Barthe, C., and M. C. Barth (2008), Evaluation of a new lightning-produced no_x parameterization for cloud resolving models and its associated uncertainties, *Atmospheric Chemistry and Physics*, *8*(16), 4691–4710, doi :10.5194/acp-8-4691-2008.

Basart, S., C. Pérez, E. Cuevas, J. M. Baldasano, and G. P. Gobbi (2009), Aerosol characterization in northern africa, northeastern atlantic, mediterranean basin and middle east from direct-sun aeronet observations, *Atmospheric Chemistry and Physics*, *9*(21), 8265–8282, doi :10.5194/acp-9-8265-2009.

Baumgarten, G. (2010), Doppler rayleigh/mie/raman lidar for wind and temperature measurements in the middle atmosphere up to 80 km, *Atmospheric Measurement Techniques*, *3*(6), 1509–1518, doi :10.5194/amt-3-1509-2010.

Beardsley, R. L., and M. Jang (2016), Simulating the soa formation of isoprene from partitioning and aerosol phase reactions in the presence of inorganics, *Atmospheric Chemistry and Physics*, *16*(9), 5993–6009, doi :10.5194/acp-16-5993-2016.

Beegum, S., I.Gherboudj, N.Chaouch, F.Couvidat, L.Menut, and H.Ghedira (2016), Simulating Aerosols over Arabian Peninsula with CHIMERE : Sensitivity to soil, surface parameters and anthropogenic emission inventories, *Atmospheric Environment*, *128*, 185–197, doi :10.1016/j.atmosenv.2016.01.010.

Beekmann, M., and R. Vautard (2010), A modelling study of photochemical regimes over Europe : robustness and variability, *Atmos. Chem. Phys.*, *10*, 10,067–10,084, doi :10.5194/acp-10-10067-2010.

Beekmann, M., et al. (2015), In situ, satellite measurement and model evidence on the dominant regional contribution to fine particulate matter levels in the paris megacity, *Atmospheric Chemistry and Physics*, *15*(16), 9577–9591, doi :10.5194/acp-15-9577-2015.

Bei, N., W. Lei, M. Zavala, and L. T. Molina (2010), Ozone predictabilities due to meteorological uncertainties in the mexico city basin using ensemble forecasts, *Atmospheric Chemistry and Physics*, *10*(13), 6295–6309, doi :10.5194/acp-10-6295-2010.

Beirle, S., H. Huntrieser, and T. Wagner (2010), Direct satellite observation of lightning-produced no_x, *Atmospheric Chemistry and Physics*, *10*(22), 10,965–10,986, doi :10.5194/acp-10-10965-2010.

Benedetti, A., et al. (2018), Status and future of numerical atmospheric aerosol prediction with a focus on data requirements, journal = Atmospheric Chemistry and Physics, *18*(14), 10,615–10,643, doi :10.5194/acp-18-10615-2018.

Beniston, M., et al. (2007), Future extreme events in European climate : an exploration of regional climate model projections, *Climatic Change*, *81*(1), 71–95.

Berg, L. K., M. Shrivastava, R. C. Easter, J. D. Fast, E. G. Chapman, Y. Liu, and R. A. Ferrare (2015), A new wrf-chem treatment for studying regional-scale impacts of cloud processes on aerosol and trace gases in parameterized cumuli, *Geoscientific Model Development*, *8*(2), 409–429, doi :10.5194/gmd-8-409-2015.

Bergamaschi, P., R. Hein, M. Heinmann, and P. Crutzen (2000), Inverse modeling of the global CO cycle : 1. Inversion of CO mixing ratio, *J. Geophys. Res.*, *105*(D2), 1909–1927.

Bergamaschi, P., et al. (2018), Inverse modelling of european ch_4 emissions during 2006–2012 using different inverse models and reassessed atmospheric observations, *Atmospheric Chemistry and Physics*, *18*(2), 901–920, doi :10.5194/acp-18-901-2018.

Bergamo, A., A. M. Tafuro, S. Kinne, F. De Tomasi, and M. R. Perrone (2008), Monthly-averaged anthropogenic aerosol direct radiative forcing over the mediterranean based on aeronet aerosol properties, *Atmospheric Chemistry and Physics*, *8*(23), 6995–7014, doi :10.5194/acp-8-6995-2008.

Bergström, R., H. A. C. Denier van der Gon, A. S. H. Prévôt, K. E. Yttri, and D. Simpson (2012), Modelling of organic aerosols over europe (2002-2007) using a volatility basis set (vbs) framework : application of different assumptions regarding the formation of secondary organic aerosol, *Atmospheric Chemistry and Physics*, *12*(18), 8499–8527, doi :10.5194/acp-12-8499-2012.

Bessagnet, B., A. Hodzic, R. Vautard, M. Beekmann, S. Cheinet, C. Honoré, C. Liousse, and L. Rouil (2004), Aerosol modeling with CHIMERE : preliminary evaluation at the continental scale, *Atmospheric Environment*, *38*, 2803–2817.

Bessagnet, B., L. Menut, F. Couvidat, F. Meleux, G. Siour, and S. Mailler (2019), What Can We Expect from Data Assimilation for Air Quality Forecast ? Part II : Analysis with a semi-real case, *Journal of Atmospheric and Oceanic Technology*, *36*, 1433–1448, doi :10.1175/JTECH-D-18-0117.

Bessagnet, B., L. Menut, R. Lapere, F. Couvidat, J.-L. Jaffrezo, S. Mailler, O. Favez, R. Pennel, and G. Siour (2020), High Resolution Chemistry Transport Modeling with the On-Line CHIMERE-WRF Model over the French Alps-Analysis of a Feedback of Surface Particulate Matter Concentrations on Mountainous Meteorology, *Atmosphere*, *11*(6), doi :10.3390/atmos11060565.

Bessagnet, B., M. Beauchamp, L. Menut, R. Fablet, E. Pisoni, and P. Thunis (2021), Deep learning techniques applied to super-resolution chemistry transport modeling for operational uses, *Environmental Research Communications*, *3*(8), 085,001, doi : 10.1088/2515-7620/ac17f7.

Bessagnet, B., et al. (2009), Regional modeling of carbonaceous aerosols over Europe - Focus on Secondary Organic Aerosols, *Journal of of Atmospheric Chemistry*, *61*, 175–202.

Bessagnet, B., et al. (2016), Presentation of the EURODELTA III intercomparison exercise - evaluation of the chemistry transport models' performance on criteria pollutants and joint analysis with meteorology, *Atmospheric Chemistry and Physics*, *16*(19), 12,667–12,701, doi :10.5194/acp-16-12667-2016.

Bicheron, P., et al. (2011), Geolocation assessment of meris globcover orthorectified products, *IEEE Transactions on geoscience and remote sensing*, *49*(8), 2972–2982, doi :10.1109/TGRS.2011.2122337.

Blond, N., and R. Vautard (2004), Three-dimensional ozone analyses and their use for short-term ozone forecasts, *Journal of Geophysical Research-Atmospheres*, *109*(D17), doi :10.1029/2004JD004515.

Blond, N., L. Bel, and R. Vautard (2003), Three-dimensional ozone data analysis with an air quality model over the paris area, *Journal of Geophysical Research-Atmospheres*, *108*(D23), doi :10.1029/2003JD003679.

Bocquet, M., et al. (2015), Data assimilation in atmospheric chemistry models : current status and future prospects for coupled chemistry meteorology models, *Atmospheric Chemistry and Physics*, *15*(10), 5325–5358, doi :10.5194/acp-15-5325-2015.

Boersma, K. F., H. J. Eskes, E. W. Meijer, and H. M. Kelder (2005), Estimates of lightning no$_x$ production from gome satellite observations, *Atmospheric Chemistry and Physics*, *5*(9), 2311–2331, doi :10.5194/acp-5-2311-2005.

Boichu, M., L. Menut, D. Khvorostyanov, L. Clarisse, C. Clerbaux, S. Turquety, and P.-F. Coheur (2013), Inverting for volcanic SO2 flux at high temporal resolution using spaceborne plume imagery and chemistry-transport modelling : the 2010 Eyjafjallajokull eruption case-study, *Atmospheric Chemistry and Physics*, *13*, 8569–8584, doi :10.5194/acp-13-8569-2013.

Borrego, C., E. Sá, A. Monteiro, J. Ferreira, and A. Miranda (2009), Forecasting human exposure to atmospheric pollutants in portugal - a modelling approach, *Atmospheric Environment*, *43*(36), 5796–5806, doi :10.1016/j.atmosenv.2009.07.049.

Bousquet, P., P. Ciais, P. Peylin, and P. Monfray (1999), Inverse modeling and annual atmospheric CO_2 sources and sinks : 1. Method and control inversion, *Journal of Geophysical Research*, *104*(D21), 26,161–26,178.

Bozzo, A., A. Benedetti, J. Flemming, Z. Kipling, and S. Rémy (2020), An aerosol climatology for global models based on the tropospheric aerosol scheme in the integrated forecasting system of ecmwf, *Geoscientific Model Development*, *13*(3), 1007–1034, doi :10.5194/gmd-13-1007-2020.

Brandt, J., et al. (2013), Contribution from the ten major emission sectors in europe and denmark to the health-cost externalities of air pollution using the eva model system - an integrated modelling approach, *Atmospheric Chemistry and Physics*, *13*(15), 7725–7746, doi :10.5194/acp-13-7725-2013.

Brasseur, G., and D. Jacob (2017), *Modeling of Atmospheric Chemistry*, 1–632 pp., Cambridge University Press.

Brasseur, G. P., et al. (2019), Ensemble forecasts of air quality in eastern china – part 1 : Model description and implementation of the marcopolo–panda prediction system, version 1, *Geoscientific Model Development*, *12*(1), 33–67, doi :10.5194/gmd-12-33-2019.

Briant, R., P. Tuccella, A. Deroubaix, D. Khvorostyanov, L. Menut, S. Mailler, and S. Turquety (2017), Aerosol–radiation interaction modelling using online coupling between the WRF 3.7.1 meteorological model and the CHIMERE 2016 chemistry-transport model, through the OASIS3-MCT coupler, *Geoscientific Model Development*, *10*(2), 927–944, doi :10.5194/gmd-10-927-2017.

Brinkman, G. L., J. B. Milford, J. J. Schauer, M. M. Shafer, and M. P. Hannigan (2009), Source identification of personal exposure to fine particulate matter using organic tracers, *Atmospheric Environment*, *43*(12), 1972–1981, doi : 10.1016/j.atmosenv.2009.01.023.

Brown, H., et al. (2021), Biomass burning aerosols in most climate models are too absorbing, *Nature Communications*, *277*(12), 2041–1723, doi :10.1038/s41467-020-20482-9.

Brutsaert, W. (1998), Land-surface water vapor and sensible heat flux : Spatial variability, homogeneity and measurements scales, *Water Resources Research*, *34*(10), 2433–2442.

Buccolieri, R., and J. Hang (2019), Recent advances in urban ventilation assessment and flow modelling, *Atmosphere*, *10*(3), doi : 10.3390/atmos10030144.

Burman, J., L. Jonsson, and A. Rutgersson (2019), On possibilities to estimate local concentration variations with cfd-les in real urban environments, *Fluid Mech*, *19*, 719–750, doi :10.1007/s10652-018-9650-4.

Calbo, J., W. Pan, M. Webster, R. G. Prinn, and G. J. McRae (1998), Parameterization of urban subgrid scale processes in global atmospheric chemistry models, *Journal of Geophysical Research : Atmospheres*, *103*(D3), 3437–3451, doi :10.1029/97JD02654.

Campbell, P., et al. (2015), A multi-model assessment for the 2006 and 2010 simulations under the Air Quality Model Evaluation International Initiative (AQMEII) phase 2 over North America : Part I. Indicators of the sensitivity of O3 and PM2.5 formation regimes, *Atmospheric Environment*, *115*, 569 – 586, doi :10.1016/j.atmosenv.2014.12.026.

Capps, S. L., D. K. Henze, A. Hakami, A. G. Russell, and A. Nenes (2012), Anisorropia : the adjoint of the aerosol thermodynamic model isorropia, *Atmospheric Chemistry and Physics*, *12*(1), 527–543, doi :10.5194/acp-12-527-2012.

Carslaw, K. S., O. Boucher, D. V. Spracklen, G. W. Mann, J. G. L. Rae, S. Woodward, and M. Kulmala (2010), A review of natural aerosol interactions and feedbacks within the earth system, *Atmospheric Chemistry and Physics*, *10*(4), 1701–1737, doi :10.5194/acp-10-1701-2010.

Carter, W. (2010), Development of the saprc-07 chemical mechanism, *Atmos Environ*, *44*(40), 5324 – 5335, doi : 10.1016/j.atmosenv.2010.01.026.

Cecil, D. J., D. E. Buechler, and R. J. Blakeslee (2014), Gridded lightning climatology from trmm-lis and otd : Dataset description, *Atmospheric Research*, *135-136*, 404 – 414, doi :10.1016/j.atmosres.2012.06.028.

Chang, J., and S. Hanna (2004), Air quality model performance evaluation, *Meteorology and Atmospheric Physics*, *87*, 167–196, doi :10.1007/s00703-003-0070-7.

Chang, M., D. Hartley, and W.-L. Chang (1996), Inverse modeling of biogenic isoprene emissions, *Geophy. Res. Lett.*, *23*(21), 3007.

Chang, M., D. Hartley, C. Cardelino, D. Haas-Laursen, and W. Chang (1997), On using inverse methods for resolving emissions with large spatial inhomogeneities, *J. Geophys. Res.*, *102*(D13), 16,023–16,036.

Chapman, E. G., W. I. Gustafson Jr., R. C. Easter, J. C. Barnard, S. J. Ghan, M. S. Pekour, and J. D. Fast (2009), Coupling aerosol-cloud-radiative processes in the wrf-chem model : Investigating the radiative impact of elevated point sources, *Atmospheric Chemistry and Physics*, *9*(3), 945–964, doi :10.5194/acp-9-945-2009.

Chatenet, B., B. Marticorena, L. Gomes, and G. Bergametti (1996), Assessing the microped size distributions of desert soils erodible by wind, *Sedimentology*, *43*, 901–911.

Chatzidiakou, L., et al. (2019), Characterising low-cost sensors in highly portable platforms to quantify personal exposure in diverse environments, *Atmospheric Measurement Techniques*, *12*(8), 4643–4657, doi :10.5194/amt-12-4643-2019.

Chazette, P., A. Dabas, J. Sanak, M. Lardier, and P. Royer (2012), French airborne lidar measurements for eyjafjallajökull ash plume survey, *Atmospheric Chemistry and Physics*, *12*(15), 7059–7072, doi :10.5194/acp-12-7059-2012.

Cholakian, A., M. Beekmann, I. Coll, G. Ciarelli, and A. Colette (2019), Biogenic secondary organic aerosol sensitivity to organic aerosol simulation schemes in climate projections, *Atmospheric Chemistry and Physics*, *19*(20), 13,209–13,226, doi : 10.5194/acp-19-13209-2019.

Choobari, O. A., P. Zawar-Reza, and A. Sturman (2014), The global distribution of mineral dust and its impacts on the climate system : A review, *Atmospheric Research*, *138*, 152–165, doi :j.atmosres.2013.11.007.

Claquin, T., M. Schulz, and Y. J. Balkanski (1999), Modeling the mineralogy of atmospheric dust sources, *Journal of Geophysical Research : Atmospheres*, *104*(D18), 22,243–22,256, doi :10.1029/1999JD900416.

Clark, S. K., D. S. Ward, and N. M. Mahowald (2017), Parameterization-based uncertainty in future lightning flash density, *Geophysical Research Letters*, *44*(6), 2893–2901, doi :10.1002/2017GL073017.

Clerbaux, C., J. Hadji-Lazaro, D. Hauglustaine, G. Mégie, B. Khattatov, and J.-F. Lamarque (2001), Assimilation of carbon monoxide measured from satellite in a three-dimensional chemistry-transport model, *Journal of Geophysical Research : Atmospheres*, *106*(D14), 15,385–15,394, doi :10.1029/2000JD900682.

Clerbaux, C., et al. (2009), Monitoring of atmospheric composition using the thermal infrared iasi/metop sounder, *Atmospheric Chemistry and Physics*, *9*(16), 6041–6054, doi :10.5194/acp-9-6041-2009.

Cofala, J., M. Amann, Z. Klimont, K. Kupiainen, and L. Höglund-Isaksson (2007), Scenarios of global anthropogenic emissions of air pollutants and methane until 2030, *Atmospheric Environment*, *41*(38), 8486–8499, doi :10.1016/j.atmosenv.2007.07.010.

Colella, P., and P. R. Woodward (1984), The piecewise parabolic method (PPM) for gas-dynamical simulations, *Journal of Computational Physics*, *11*, 38–39.

Colette, A., et al. (2011), Assessing in near real time the impact of the April 2010 Eyjafjallajokull ash plume on air quality, *Atmos Environ*, *45*, 1217–1221.

Colette, A., et al. (2012), Future air quality in europe : a multi-model assessment of projected exposure to ozone, *Atmospheric Chemistry and Physics*, *12*(21), 10,613–10,630, doi :10.5194/acp-12-10613-2012.

Colette, A., et al. (2013), European atmosphere in 2050, a regional air quality and climate perspective under CMIP5 scenarios, *Atmospheric Chemistry and Physics*, *13*, 7451–7471.

Constantinescu, E. M., A. Sandu, T. Chai, and G. R. Carmichael (2007), Ensemble-based chemical data assimilation. I : General approach, *Quarterly Journal of the Royal Meteorological Society*, *133*(626), 1229–1243, doi :10.1002/qj.76.

Courant, R., E. Issacson, and M. Reees (1952), On the solution of nonlinear hyperbolic differential equations by finite differences, *Comm. Pure Appl. Math.*, *5*, 243–255.

Couvidat, F., and K. Sartelet (2015), The secondary organic aerosol processor (soap v1.0) model : a unified model with different ranges of complexity based on the molecular surrogate approach, *Geoscientific Model Development*, *8*(4), 1111–1138, doi : 10.5194/gmd-8-1111-2015.

Cox, W. M., and J. A. Tikvart (1990), A statistical procedure for determining the best performing air quality simulation model, *Atmospheric Environment. Part A. General Topics*, *24*(9), 2387 – 2395, doi :10.1016/0960-1686(90)90331-G.

Crippa, M., E. Solazzo, G. Huang, D. Guizzardi, E. Koffi, M. Muntean, C. Schieberle, R. Friedrich, and G. Janssens-Maenhout (2020), High resolution temporal profiles in the emissions database for global atmospheric research, *Nature - Scientific data*, *7*(121), 17, doi :10.1038/s41597-020-0462-2.

Cros, B., et al. (2004), The escompte program : an overview, *Atmos Res*, *69*, 241–279, doi :10.1016/j.atmosres.2003.05.001.

Dabberdt, W. F., and E. Miller (2000), Uncertainty, ensembles and air quality dispersion modeling : applications and challenges, *Atmos. Environ.*, *34*, 4667–4673.

Darbah, J., M. Kubiske, N. Nelson, E. Oksanen, and E. Vapaavuori (2008), Effects of decadal exposure to interacting elevated co2 and/or o3 on paper birch (betula papyrifera) reproduction, *Environ Pollut*, *155*, 446–452.

D'Arrigo, R., R. Seager, J. Smerdon, and A. LeGrande (2011), The anomalous winter of 1783-1784 : Was the Laki eruption or analog of the 2009-2010 winter to blame ?, *Geophysical Research Letters*, *38*, L05,706, doi :10.1029/2011GL046696.

Davoine, X., and M. Bocquet (2007), Inverse modelling-based reconstruction of the chernobyl source term available for long-range transport, *Atmospheric Chemistry and Physics*, *7*(6), 1549–1564, doi :10.5194/acp-7-1549-2007.

de Meij, A., P. Thunis, B. Bessagnet, and C. Cuvelier (2009), The sensitivity of the chimere model to emissions reduction scenarios on air quality in northern italy, *Atmospheric Environment*, *43*(11), 1897–1907, doi :10.1016/j.atmosenv.2008.12.036.

De Ridder, K., et al. (2008), Simulating the impact of urban sprawl on air quality and population exposure in the german ruhr area. part ii : Development and evaluation of an urban growth scenario, *Atmospheric Environment*, *42*(30), 7070–7077, doi : 10.1016/j.atmosenv.2008.06.044.

Deardoff, J. (1972), Numerical investigation of neutral and unstable planetary boundary layers, *Journal of the Atmospheric Siences*, *29*, 91–115.

DeCaria, A. J., K. E. Pickering, G. L. Stenchikov, J. R. Scala, J. L. Stith, J. E. Dye, B. A. Ridley, and P. Laroche (2000), A cloud-scale model study of lightning-generated nox in an individual thunderstorm during sterao-a, *Journal of Geophysical Research : Atmospheres*, *105*(D9), 11,601–11,616, doi :10.1029/2000JD900033.

Delle Monache, L., and R. B. Stull (2003), An ensemble air quality forecast over western Europe during an ozone episode, *Atmos. Environ.*, *37*, 3469–3474, doi :10.1029/2005JD006311.

Delle Monache, L., X. Deng, Y. Zhou, and R. Stull (2006), Ozone ensemble forecasts : 1. A new ensemble design, *J. Geophys. Res.*, *111*, D05,307, doi :10.1029/2005JD006310.

Delmas, R., G. Mégie, and V. Peuch (2005), *Physique et chimie de l'atmosphère*, 1–640 pp., Ed. Belin.

DeMott, P. J., A. J. Prenni, X. Liu, S. M. Kreidenweis, M. D. Petters, C. H. Twohy, M. S. Richardson, T. Eidhammer, and D. C. Rogers (2010), Predicting global atmospheric ice nuclei distributions and their impacts on climate, *Proceedings of the National Academy of Sciences*, *107*(25), 11,217–11,222, doi :10.1073/pnas.0910818107.

Demuzere, M., and N. P. van Lipzig (2010), A new method to estimate air-quality levels using a synoptic-regression approach. part i : Present-day o3 and pm10 analysis, *Atmospheric Environment*, *44*(10), 1341–1355, doi :10.1016/j.atmosenv.2009.06.029.

Denby, B., M. Schaap, A. Segers, P. Builtjes, and J. Horalek (2008), Comparison of two data assimilation methods for assessing PM10 exceedances on the European scale, *Atmospheric Environment*, *42*(30), 7122 – 7134, doi : 10.1016/j.atmosenv.2008.05.058.

Déqué, M., et al. (2007), An intercomparison of regional climate simulations for europe : assessing uncertainties in model projections, *Climatic Change*, *81*(70), 53, doi :10.1007/s10584-006-9228-x.

Deschamps, P.-Y., F.-M. Breon, M. Leroy, A. Podaire, A. Bricaud, J.-C. Buriez, and G. Seze (1994), The polder mission : instrument characteristics and scientific objectives, *Geoscience and Remote Sensing*, *32*, 598–615.

Dipu, S., J. Quaas, R. Wolke, J. Stoll, A. Mühlbauer, O. Sourdeval, M. Salzmann, B. Heinold, and I. Tegen (2017), Implementation of aerosol–cloud interactions in the regional atmosphere–aerosol model cosmo-muscat(5.0) and evaluation using satellite data, *Geoscientific Model Development*, *10*(6), 2231–2246, doi :10.5194/gmd-10-2231-2017.

Donahue, N., A. Robinson, C. Stanier, and S. N. Pandis (2006), Coupled partitioning, dilution, and chemical aging of semivolatile organics, *Environmental Science and Technology*, *40*(8), 2635–2643, doi :10.1021/es052297c.

Dubovik, O., and A. S. et al (2000), Accuracy assessments of aerosol optical properties retrieved from aerosol robotic network (aeronet) sun and sky radiance measurements, *Journal of Geophysical Research*, *105*, 9791–9806.

Duhanyan, N., and Y. Roustan (2011), Below-cloud scavenging by rain of atmospheric gases and particulates, *Atmospheric Environment*, *45*(39), 7201–7217, doi :10.1016/j.atmosenv.2011.09.002.

Dulac, F., et al. (2013), Overview of the project charmex activities on saharan dust in the mediterranean region, in *7th Int. Workshop on Sand/Duststorms and Associated Dustfall, 2-4 Dec. 2013, Frascati, Italy*.

Dupont, E., L. Menut, B. Carissimo, J. Pelon, and P. Flamant (1999), Comparison between the atmospheric boundary layer in Paris and its rural suburbs during the ECLAP Experiment, *Atmospheric Environment*, *33*, 979–994.

Eder, B., J. Bash, K. Foley, and J. Pleim (2014), Incorporating principal component analysis into air quality model evaluation, *Atmospheric Environment*, *82*, 307–315, doi :10.1016/j.atmosenv.2013.10.015.

Efstathiou, C., S. Isukapalli, and P. Georgopoulos (2011), A mechanistic modeling system for estimating large-scale emissions and transport of pollen and co-allergens, *Atmospheric Environment*, *45*(13), 2260 – 2276, doi :10.1016/j.atmosenv.2010.12.008.

Elbern, H., and H. Schmidt (1999), A four-dimensional variational chemistry data assimilation scheme for Eulerian chemistry transport modeling, *Journal of Geophysical Research*, *104*, 18,583–18,598.

Elbern, H., H. Schmidt, and A. Ebel (1997), Variational data assimilation for tropospheric chemistry modeling, *Journal of Geophysical Research*, *102*, 15,967–15,985.

Elguindi, N., et al. (2020), Intercomparison of magnitudes and trends in anthropogenic surface emissions from bottom-up inventories, top-down estimates, and emission scenarios, *Earth's Future*, *8*(8), e2020EF001,520, doi :10.1029/2020EF001520.

Elliott, S. (2009), Dependence of dms global sea-air flux distribution on transfer velocity and concentration field type, *Journal of Geophysical Research : Biogeosciences*, *114*(G2), doi :10.1029/2008JG000710.

Emberson, L.-D., D. Simpson, J.-P. Tuovinen, M.-R. Ashmore, and H.-M. Cambridge (2000), Towards a model of ozone deposition and stomatal uptake over Europe, *Tech. rep.*, eMEP/MSC-W 2000.

Emeis, S., et al. (2011), Measurement and simulation of the 16/17 april 2010 eyjafjallajökull volcanic ash layer dispersion in the northern alpine region, *Atmospheric Chemistry and Physics*, *11*(6), 2689–2701, doi :10.5194/acp-11-2689-2011.

Emmerson, K. M., M. E. Cope, I. E. Galbally, S. Lee, and P. F. Nelson (2018), Isoprene and monoterpene emissions in south-east australia : comparison of a multi-layer canopy model with megan and with atmospheric observations, *Atmospheric Chemistry and Physics*, *18*(10), 7539–7556, doi :10.5194/acp-18-7539-2018.

Emmons, L. K., et al. (2010), Description and evaluation of the model for ozone and related chemical tracers, version 4 (mozart-4), *Geoscientific Model Development*, *3*(1), 43–67, doi :10.5194/gmd-3-43-2010.

Engelstaedter, S., I. Tegen, and R. Washington (2006), North african dust emissions and transport, *Earth-Science Reviews*, *79*(1), 73 – 100, doi :10.1016/j.earscirev.2006.06.004.

Enting, I. (2002), *Inverse problems in atmospheric constituent transport*, 394 pp., Cambridge University Press.

Erisman, J. W., A. van Pul, and P. Wyers (1994), Parameterization of surface resistance for the quantification of atmospheric deposition of acidifying pollutants and ozone, *Atmospheric Environemnt*, *28*, 2595–2607.

Errico, R. M. (1997), What is an adjoint model ?, *Bulletin of the American Meteorological Society*, *78*(11), 2577 – 2592, doi : 10.1175/1520-0477(1997)078<2577 :WIAAM>2.0.CO ;2.

Falasca, S., and G. Curci (2018), High-resolution air quality modeling : Sensitivity tests to horizontal resolution and urban canopy with wrf-chimere, *Atmospheric Environment*, *187*, 241–254, doi :10.1016/j.atmosenv.2018.05.048.

Fang, Y., A. M. Fiore, L. W. Horowitz, A. Gnanadesikan, I. Held, G. Chen, G. Vecchi, and H. Levy (2011), The impacts of changing transport and precipitation on pollutant distributions in a future climate, *Journal of Geophysical Research : Atmospheres*, *116*(D18), doi :10.1029/2011JD015642.

Fecan, F., B. Marticorena, and G. Bergametti (1999), Parameterization of the increase of aeolian erosion threshold wind friction velocity due to soil moisture for arid and semi-arid areas, *Annals of Geophysics*, *17*, 149–157.

Feng, L., et al. (2020), The generation of gridded emissions data for cmip6, *Geoscientific Model Development*, *13*(2), 461–482, doi :10.5194/gmd-13-461-2020.

Fenger, J. (2009), Air pollution in the last 50 years - from local to global, *Atmospheric Environment*, *43*, 13–22.

Fesquet, C., P. Drobinski, C. Barthlott, and T. Dubos (2009), Impact of terrain heterogeneity on near-surface turbulence structure, *Atmospheric Research*, *94*, 254–269, doi :10.1016/j.atmosres.2009.06.003.

Finn, D., K. L. Clawson, R. G. Carter, J. D. Rich, C. Biltoft, and M. Leach (2010), Analysis of urban atmosphere plume concentration fluctuations, *Boundary-Layer Meteorology*, *136*, 431–456, doi :10.1007/s10546-010-9510-3.

Finney, D. L., R. M. Doherty, O. Wild, H. Huntrieser, H. C. Pumphrey, and A. M. Blyth (2014), Using cloud ice flux to parametrise large-scale lightning, *Atmospheric Chemistry and Physics*, *14*(23), 12,665–12,682, doi :10.5194/acp-14-12665-2014.

Finney, D. L., R. M. Doherty, O. Wild, and N. L. Abraham (2016), The impact of lightning on tropospheric ozone chemistry using a new global lightning parametrisation, *Atmospheric Chemistry and Physics*, *16*(12), 7507–7522, doi :10.5194/acp-16-7507-2016.

Fishbain, B., et al. (2017), An evaluation tool kit of air quality micro-sensing units, *Science of The Total Environment*, *575*, 639 – 648, doi :10.1016/j.scitotenv.2016.09.061.

Flagg, D. D., and P. A. Taylor (2011), Sensitivity of mesoscale model urban boundary layer meteorology to the scale of urban representation, *Atmospheric Chemistry and Physics*, *11*(6), 2951–2972, doi :10.5194/acp-11-2951-2011.

Forkel, R., J. Werhahn, A. B. Hansen, S. McKeen, S. Peckham, G. Grell, and P. Suppan (2012), Effect of aerosol-radiation feedback on regional air quality - A case study with WRF/Chem, *Atmospheric Environment*, *53*, 202 – 211, doi : 10.1016/j.atmosenv.2011.10.009.

Fountoukis, C., and A. Nenes (2007), Isorropia ii : a computationally efficient thermodynamic equilibrium model for k^+-ca^{2+}-mg^{2+}-$nh_4{}^+$-na^+-$so_4{}^{2-}$-$no_3{}^-$-cl^--h_2o aerosols, *Atmospheric Chemistry and Physics*, *7*(17), 4639–4659, doi :10.5194/acp-7-4639-2007.

Fowler, D., et al. (2009), Atmospheric composition change : Ecosystems - atmosphere interactions, *Atmospheric Environment*, *43*(33), 5193–5267, doi :10.1016/j.atmosenv.2009.07.068, aCCENT Synthesis.

Frei, C., R. Schöll, S. Fukutome, J. Schmidli, and P. Vidale (2006), Future change of precipitation extremes in Europe : Intercomparison of scenarios from regional climate models, *J. Geophys. Res.*, *111*, D06,105.

Freitas, S. R., et al. (2007), Including the sub-grid scale plume rise of vegetation fires in low resolution atmospheric transport models, *Atmos. Chem. Phys.*, *7*, 3385– 3398.

Freitas, S. R., et al. (2017), The Brazilian developments on the Regional Atmospheric Modeling System (BRAMS 5.2) : an integrated environmental model tuned for tropical areas, *Geoscientific Model Development*, *10*(1), 189–222, doi :10.5194/gmd-10-189-2017.

Fuzzi, S., et al. (2015), Particulate matter, air quality and climate : lessons learned and future needs, *Atmospheric Chemistry and Physics*, *15*(14), 8217–8299, doi :10.5194/acp-15-8217-2015.

Gaines Wilson, J., and P. Zawar-Reza (2006), Intraurban-scale dispersion modelling of particulate matter concentrations : Applications for exposure estimates in cohort studies, *Atmospheric Environment*, *40*(6), 1053–1063, doi : 10.1016/j.atmosenv.2005.11.026.

Galmarini, S., R. Bianconi, W. Appel, E. Solazzo, S. Mosca, P. Grossi, M. Moran, K. Schere, and S. Rao (2012), {ENSEMBLE} and AMET : Two systems and approaches to a harmonized, simplified and efficient facility for air quality models development and evaluation, *Atmospheric Environment*, *53*, 51 – 59, doi :10.1016/j.atmosenv.2011.08.076.

Galmarini, S., et al. (2004), Ensemble dispersion forecasting-Part I : concept, approach and indicators, *Atmos. Environ.*, *38*, 4607–4617.

Gantt, B., and N. Meskhidze (2013), The physical and chemical characteristics of marine primary organic aerosol : a review, *Atmospheric Chemistry and Physics*, *13*(8), 3979–3996, doi :10.5194/acp-13-3979-2013.

Garaud, D., and V. Mallet (2010), Automatic generation of large ensembles for air quality forecasting using the polyphemus system, *Geoscientific Model Development*, *3*(1), 69–85, doi :10.5194/gmd-3-69-2010.

Garcia-Menendez, F., and M. T. Odman (2011), Adaptive grid use in air quality modeling, *Atmosphere*, *2*(3), 484–509, doi : 10.3390/atmos2030484.

Georgoulias, A. K., R. J. van der A, P. Stammes, K. F. Boersma, and H. J. Eskes (2019), Trends and trend reversal detection in 2 decades of tropospheric no_2 satellite observations, *Atmospheric Chemistry and Physics*, *19*(9), 6269–6294, doi :10.5194/acp-19-6269-2019.

Gidden, M. J., et al. (2019), Global emissions pathways under different socioeconomic scenarios for use in cmip6 : a dataset of harmonized emissions trajectories through the end of the century, *Geoscientific Model Development*, *12*(4), 1443–1475, doi : 10.5194/gmd-12-1443-2019.

Giglio, L., G. R. van der Werf, J. T. Randerson, G. J. Collatz, and P. Kasibhatla (2006), Global estimation of burned area using modis active fire observations, *Atmospheric Chemistry and Physics*, *6*(4), 957–974, doi :10.5194/acp-6-957-2006.

Giorgi, F. (1986), A particle dry deposition scheme for use in tracer transport models', *Journal of Geophysical Research : Atmospheres*, *91*, 9794–9806.

Giorgi, F. (2019), Thirty years of regional climate modeling : Where are we and where are we going next ?, *Journal of Geophysical Research : Atmospheres*, *124*(11), 5696–5723, doi :10.1029/2018JD030094.

Gordillo-Vázquez, F., F. Pérez-Invernón, H. Huntrieser, and A. Smith (2019), Comparison of six lightning parameterizations in cam5 and the impact on global atmospheric chemistry, *Earth and Space Science*, *n/a*(n/a), doi :10.1029/2019EA000873.

Gordon, H., et al. (2018), Large simulated radiative effects of smoke in the south-east atlantic, *Atmospheric Chemistry and Physics*, *18*(20), 15,261–15,289, doi :10.5194/acp-18-15261-2018.

Gorkowski, K., T. C. Preston, and A. Zuend (2019), Relative-humidity-dependent organic aerosol thermodynamics via an efficient reduced-complexity model, *Atmospheric Chemistry and Physics*, *19*(21), 13,383–13,407, doi :10.5194/acp-19-13383-2019.

Granier, C., et al. (2019), The copernicus atmosphere monitoring service global and regional emissions (april 2019 version), *Copernicus Atmosphere Monitoring Service (CAMS) report*, (16), 54, doi :doi :10.24380/d0bn-kx16.

Gratsea, M., et al. (2020), Retrieval and evaluation of tropospheric aerosol extinction profiles using max-doas measurements over athens, greece, *Atmospheric Measurement Techniques Discussions*, *2020*, 1–30, doi :10.5194/amt-2020-100.

Grell, G., and A. Baklanov (2011), Integrated modeling for forecasting weather and air quality : A call for fully coupled approaches, *Atmos Environ*, *45*, 6845–6851.

Grell, G. A., and S. R. Freitas (2014), A scale and aerosol aware stochastic convective parameterization for weather and air quality modeling, *Atmospheric Chemistry and Physics*, *14*(10), 5233–5250, doi :10.5194/acp-14-5233-2014.

Gressent, A., B. Sauvage, D. Cariolle, M. Evans, M. Leriche, C. Mari, and V. Thouret (2016), Modeling lightning-nox chemistry on a sub-grid scale in a global chemical transport model, *Atmospheric Chemistry and Physics*, *16*(9), 5867–5889, doi :10.5194/acp-16-5867-2016.

Grini, A., G. Myhre, J. K. Sundet, and I. S. A. Isaksen (2002), Modeling the annual cycle of sea salt in the global 3d model oslo ctm2 : Concentrations, fluxes, and radiative impact, *Journal of Climate*, *15*(13), 1717–1730, doi :10.1175/1520-0442(2002)015<1717 :MTACOS>2.0.CO ;2.

Grythe, H., J. Ström, R. Krejci, P. Quinn, and A. Stohl (2014), A review of sea-spray aerosol source functions using a large global set of sea salt aerosol concentration measurements, *Atmospheric Chemistry and Physics*, *14*(3), 1277–1297, doi :10.5194/acp-14-1277-2014.

Guelle, W., Y. J. Balkanski, J. E. Dibb, M. Schulz, and F. Dulac (1998), Wet deposition in a global size-dependent aerosol transport model. 2. Influence of the scavenging scheme on Pb vertical profiles, and deposition, *Journal of Geophysical Research : Atmospheres*, *103*(D22), 28,875–28,891.

Guenther, A., T. Karl, P. Harley, C. Wiedinmyer, P. I. Palmer, and C. Geron (2006), Estimates of global terrestrial isoprene emissions using megan (model of emissions of gases and aerosols from nature), *Atmospheric Chemistry and Physics*, *6*(11), 3181–3210, doi :10.5194/acp-6-3181-2006.

Guenther, A. B., X. Jiang, C. L. Heald, T. Sakulyanontvittaya, T. Duhl, L. K. Emmons, and X. Wang (2012), The model of emissions of gases and aerosols from nature version 2.1 (megan2.1) : an extended and updated framework for modeling biogenic emissions, *Geoscientific Model Development*, *5*(6), 1471–1492, doi :10.5194/gmd-5-1471-2012.

Guevara, M., C. Tena, M. Porquet, O. Jorba, and C. Pérez García-Pando (2020), Hermesv3, a stand-alone multi-scale atmospheric emission modelling framework - part 2 : The bottom–up module, *Geoscientific Model Development*, *13*(3), 873–903, doi : 10.5194/gmd-13-873-2020.

Gurney, K., Y.-H. Chen, T. Maki, S. Kawa, A. Andrews, and Z. Zhu (2005), Sensitivity of atmospheric CO_2 inversions to seasonal and interannual variations in fossil fuel emissions, *Journal of Geophysical Research*, *110*, doi :10.1029/2004JD005373.

Hakami, A., M. T. Odman, and A. G. Russell (2003), High-order, direct sensitivity analysis of multidimensional air quality models, *Environmental Science & Technology*, *37*(11), 2442–2452, doi :10.1021/es020677h, pMID : 12831030.

Hakami, A., M. T. Odman, and A. G. Russell (2004), Nonlinearity in atmospheric response : A direct sensitivity analysis approach, *Journal of Geophysical Research : Atmospheres*, *109*(D15), doi :10.1029/2003JD004502.

Hamill, T. M., S. L. Mullen, C. Snyder, Z. Toth, and D. P. Baumhefner (2000), Ensemble Forecasting in the Short to Medium Range : Report from a Workshop, *Bull. Am. Meteorol. Soc.*, *81*, 2653–2664.

Han, Z., J. Li, W. Guo, Z. Xiong, and W. Zhang (2013), A study of dust radiative feedback on dust cycle and meteorology over East Asia by a coupled regional climate-chemistry-aerosol model, *Atmospheric Environment*, *68*(0), 54 – 63, doi : http ://dx.doi.org/10.1016/j.atmosenv.2012.11.032.

Hanea, R. G., G. J. M. Velders, and A. Heemink (2004), Data assimilation of ground-level ozone in europe with a kalman filter and chemistry transport model, *Journal of Geophysical Research : Atmospheres*, *109*(D10), doi :10.1029/2003JD004283.

Harikishan, G., B. Padmakumari, R. Maheskumar, and J. Kulkarni (2015), Radiative effect of dust aerosols on cloud microphysics and meso-scale dynamics during monsoon breaks over Arabian sea, *Atmospheric Environment*, *105*(0), 22 – 31, doi : 10.1016/j.atmosenv.2015.01.037.

Harrison, R. M., et al. (2012), Atmospheric chemistry and physics in the atmosphere of a developed megacity (london) : an overview of the repartee experiment and its conclusions, *Atmospheric Chemistry and Physics*, *12*(6), 3065–3114, doi :10.5194/acp-12-3065-2012.

Haywood, J., and O. Boucher (2000), Estimates of the direct and indirect radiative forcing due to tropospheric aerosols : A review, *Reviews of Geophysics*, *38*, 513–543.

He, S., G. R. Carmichael, A. Sandu, B. Hotchkiss, and V. Damian-Iordache (2000), Application of adifor for air pollution model sensitivity studies, *Environmental modelling and software : with environment data news*, *15*(6), 549 – 557.

Heimann, M., and T. Kaminski (1999), *Inverse modeling approaches to infer surface trace gas fluxes from observed atmospheric mixing ratios*, *Approaches to scaling of trace gas fluxes in ecosystems*, vol. 14, 275-295 pp., Elsevier, Amsterdam.

Heinold, B., et al. (2011), Regional modelling of saharan dust and biomass-burning smoke, *Tellus B : Chemical and Physical Meteorology*, *63*(4), 781–799, doi :10.1111/j.1600-0889.2011.00570.x.

Helbig, N., B. Vogel, H. Vogel, and F. Fiedler (2004), Numerical modelling of pollen dispersion on the regional scale, *Aerobiologia*, *3*, 3–19.

Hennemuth, B., and A. Lammert (2006), Determination of the atmospheric boundary layer height from radiosonde and lidar backscatter, *Boundary-Layer Meteorology*, pp. 181–200.

Henze, D. K., A. Hakami, and J. H. Seinfeld (2007), Development of the adjoint of geos-chem, *Atmospheric Chemistry and Physics*, *7*(9), 2413–2433, doi :10.5194/acp-7-2413-2007.

Hertel, O., R. Berkowicz, J. Christensen, and O. Hov (1993), Test of two numerical schemes for use in atmospheric transport-chemistry models, *Atmospheric Environment*, *27A*(16), 2591–2611, doi :10.1016/0960-1686(93)90032-T, atmospheric Environment.

Hicks, B. B., D. D. Baldocchi, T. P. Meyers, R. P. Hosker Jr., and D. R. Matt (1987), A preliminary multiple resistance routine for deriving dry deposition velocities from measured quantities, *Water, Air, Soil Pollut.*, *36*.

Highwood, E., and D. Stevenson (2003), Atmospheric impact of the 1783-1784 Laki eruption : Part II Climatic effect of sulphate aerosol, *Atmos. Chem. Phys.*, *3*, 1177–1189.

Hoesly, R. M., et al. (2018), Historical (1750–2014) anthropogenic emissions of reactive gases and aerosols from the community emissions data system (ceds), *Geoscientific Model Development*, *11*(1), 369–408, doi :10.5194/gmd-11-369-2018.

Holben, B., et al. (1998), Aeronet : A federated instrument network and data archive for aerosol characterization, *Remote Sensing of Environment*, *66*, 1–16.

Höller, H., H.-D. Betz, K. Schmidt, R. V. Calheiros, P. May, E. Houngninou, and G. Scialom (2009), Lightning characteristics observed by a vlf/lf lightning detection network (linet) in brazil, australia, africa and germany, *Atmospheric Chemistry and Physics*, *9*(20), 7795–7824, doi :10.5194/acp-9-7795-2009.

Holtslag, A., E. Van Meijgaard, and W. De Rooy (1995), A comparison of boundary layer diffusion schemes in unstable conditions over land, *Boundary-Layer Meteorology*, *76*, 69–95.

Hong, S. Y., Y. Noh, and J. Dudhia (2006), A new vertical diffusion package with an explicit treatment of entrainment processes, *Mon Weather Rev*, *134*, 2318–2341, doi :10.1175/MWR3199.1.

Honoré, C., and R. Vautard (2000), Photochemical regimes in urban atmospheres : The influence of dispersion, *Geophys. Res. Letters*, *27*, 1895–1898.

Honoré, C., et al. (2008), Predictability of European air quality : The assessment of three years of operational forecasts and analyses by the PREV'AIR system, *Journal of Geophysical Research*, *113*, D04,301, doi :10.1029/2007JD008761.

Houweling, S., T. Kaminski, F. Dentener, J. Lelieveld, and M. Heinmann (1999), Inverse modeling of methane sources and sinks using the adjoint of a global transport model, *J. Geophys. Res.*, *104*(D21), 26,137–26,160.

Huntrieser, H., et al. (2008), Lightning activity in brazilian thunderstorms during troccinox : implications for no_x production, *Atmospheric Chemistry and Physics*, *8*(4), 921–953, doi :10.5194/acp-8-921-2008.

Im, U. (2013), Impact of sea-salt emissions on the model performance and aerosol chemical composition and deposition in the east mediterranean coastal regions, *Atmospheric Environment*, *75*, 329–340, doi :10.1016/j.atmosenv.2013.04.034.

Im, U., et al. (2018a), Assessment and economic valuation of air pollution impacts on human health over europe and the united states as calculated by a multi-model ensemble in the framework of aqmeii3, *Atmospheric Chemistry and Physics*, *18*(8), 5967–5989, doi :10.5194/acp-18-5967-2018.

Im, U., et al. (2018b), Influence of anthropogenic emissions and boundary conditions on multi-model simulations of major air pollutants over europe and north america in the framework of aqmeii3, *Atmospheric Chemistry and Physics*, *18*(12), 8929–8952, doi :10.5194/acp-18-8929-2018.

Jacob, D. (1999), *Introduction to Atmospheric Chemistry*, 1–274 pp., Princeton University Press, Princeton, New Jersey.

Jacob, D. J., and D. A. Winner (2009), Effect of climate change on air quality, *Atmospheric Environment*, *43*(1), 51–63, doi : 10.1016/j.atmosenv.2008.09.051, atmospheric Environment - Fifty Years of Endeavour.

Jacob, D. J., et al. (2010), The arctic research of the composition of the troposphere from aircraft and satellites (arctas) mission : design, execution, and first results, *Atmospheric Chemistry and Physics*, *10*(11), 5191–5212, doi :10.5194/acp-10-5191-2010.

Jacobson, M. (1999), *Fundamentals of Atmospheric Modeling*, 1–656 pp., Cambridge University Press.

Jacobson, M. Z., and D. G. Streets (2009), Influence of future anthropogenic emissions on climate, natural emissions, and air quality, *Journal of Geophysical Research : Atmospheres*, *114*(D8), doi :10.1029/2008JD011476.

Jang, J.-C., H. Jeffries, D. Byun, and J. Pleim (1995), Sensitivity of ozone to model grid resolution - i. application of high-resolution regional acid deposition model, *Atmospheric Environment*, *29*, 3085–3100.

Jégou, F., et al. (2011), Validity of satellite measurements used for the monitoring of uv radiation risk on health, *Atmospheric Chemistry and Physics*, *11*(24), 13,377–13,394, doi :10.5194/acp-11-13377-2011.

Jiang, J., et al. (2019), Effects of two different biogenic emission models on modelled ozone and aerosol concentrations in europe, *Atmospheric Chemistry and Physics*, *19*(6), 3747–3768, doi :10.5194/acp-19-3747-2019.

Jiménez, P. A., J. Dudhia, J. F. González-Rouco, J. Navarro, J. P. Montávez, and E. Garcia-Bustamante (2012), A revised scheme for the wrf surface layer formulation, *Monthly Weather Review*, *140*(3), 898 – 918, doi :10.1175/MWR-D-11-00056.1.

Kaiser, J. W., et al. (2012), Biomass burning emissions estimated with a global fire assimilation system based on observed fire radiative power, *Biogeosciences*, *9*(1), 527–554, doi :10.5194/bg-9-527-2012.

Kalnay, E., et al. (1996), The NCEP/NCAR 40-year reanalysis project, *Bull. Amer. Meteorol. Soc.*, pp. 437–471, doi :10.1175/1520-0477(1996)077.

Kaminski, T., and M. Heimann (2001), Inverse modeling of atmospheric carbon dioxide fluxes, *Science*, *294*, 259.

Kanakidou, M., et al. (2005), Organic aerosol and global climate modelling : a review, *Atmospheric Chemistry and Physics*, *5*(4), 1053–1123, doi :10.5194/acp-5-1053-2005.

Kang, D., K. M. Foley, R. Mathur, S. J. Roselle, K. E. Pickering, and D. J. Allen (2019a), Simulating lightning no production in cmaqv5.2 : performance evaluations, *Geoscientific Model Development*, *12*(10), 4409–4424, doi :10.5194/gmd-12-4409-2019.

Kang, D., K. E. Pickering, D. J. Allen, K. M. Foley, D. C. Wong, R. Mathur, and S. J. Roselle (2019b), Simulating lightning no production in cmaqv5.2 : evolution of scientific updates, *Geoscientific Model Development*, *12*(7), 3071–3083, doi :10.5194/gmd-12-3071-2019.

Kang, D., R. Mathur, G. Pouliot, R. Gilliam, and D. Wong (2020), Significant ground-level ozone attributed to lightning-induced nitrogen oxides during summertime over the mountain west states, *Nature Climate and Atmospheric Science*, *3*(6), 7, doi : 10.1038/s41612-020-0108-2.

Karydis, V. A., S. L. Capps, A. G. Russell, and A. Nenes (2012), Adjoint sensitivity of global cloud droplet number to aerosol and dynamical parameters, *Atmospheric Chemistry and Physics*, *12*(19), 9041–9055, doi :10.5194/acp-12-9041-2012.

Kassomenos, P., C. Papaloukas, M. Petrakis, and S. Karakitsios (2008), Assessment and prediction of short term hospital admissions : the case of athens, greece, *Atmospheric Environment*, *42*(30), 7078–7086, doi :10.1016/j.atmosenv.2008.06.011.

Katragkou, E., P. Zanis, I. Kioutsioukis, I. Tegoulias, D. Melas, B. C. Kruger, and E. Coppola (2011), Future climate change impacts on summer surface ozone from regional climate-air quality simulations over europe, *Journal of Geophysical Research : Atmospheres*, *116*(D22), doi :10.1029/2011JD015899.

Kaynak, B., Y. Hu, R. V. Martin, A. G. Russell, Y. Choi, and Y. Wang (2008), The effect of lightning no_x production on surface ozone in the continental united states, *Atmospheric Chemistry and Physics*, *8*(17), 5151–5159, doi :10.5194/acp-8-5151-2008.

Kettle, A. J., and M. O. Andreae (2000), Flux of dimethylsulfide from the oceans : A comparison of updated data sets and flux models, *Journal of Geophysical Research : Atmospheres*, *105*(D22), 26,793–26,808, doi :10.1029/2000JD900252.

Kim, K.-H., E. Kabir, and S. Kabir (2015), A review on the human health impact of airborne particulate matter, *Environment International*, *74*, 136–143, doi :10.1016/j.envint.2014.10.005.

Kington, J. (1988), *The weather of the 1780s over Europe*, Cambridge University Press, Cambridge, New York.

Kinne, S., et al. (2003), Monthly averages of aerosol properties : A global comparison among models, satellite data, and aeronet ground data, *Journal of Geophysical Research*, *108*(D20), 4634, doi :doi :10.1029/2001JD001253.

Kioutsioukis, I., and S. Galmarini (2014), De praeceptis ferendis : good practice in multi-model ensembles, *Atmospheric Chemistry and Physics*, *14*(21), 11,791–11,815, doi :10.5194/acp-14-11791-2014.

Klimont, Z., K. Kupiainen, C. Heyes, P. Purohit, J. Cofala, P. Rafaj, J. Borken-Kleefeld, and W. Schöpp (2017), Global anthropogenic emissions of particulate matter including black carbon, *Atmospheric Chemistry and Physics*, *17*(14), 8681–8723, doi : 10.5194/acp-17-8681-2017.

Knippertz, P., et al. (2015), The dacciwa project : Dynamics-aerosol-chemistry-cloud interactions in west africa, *Bulletin of the American Meteorological Society*, *96*(9), 1451–1460, doi :10.1175/BAMS-D-14-00108.1.

Kok, J. F., et al. (2014), An improved dust emission model Ž2013 part 1 : Model description and comparison against measurements, *Atmospheric Chemistry and Physics*, *14*(23), 13,023–13,041, doi :10.5194/acp-14-13023-2014.

Kolehmainen, M., H. Martikainen, and J. Ruuskanen (2001), Neural networks and periodic components used in air quality forecasting, *Atmospheric Environment*, *35*(5), 815–825, doi :10.1016/S1352-2310(00)00385-X.

Konovalov, I., M. Beekmann, A. Richter, and J. Burrows (2005), Inverse modelling of the spatial distribution of NO_x emissions on a continental scale using satellite data, *Atmos. Chem. Phys. Discuss.*, *5*, 12,641–12,695.

Konovalov, I. B., M. Beekmann, J. P. Burrows, and A. Richter (2008), Satellite measurement based estimates of decadal changes in european nitrogen oxides emissions, *Atmospheric Chemistry and Physics*, *8*(10), 2623–2641, doi :10.5194/acp-8-2623-2008.

Konovalov, I. B., M. Beekmann, E. V. Berezin, P. Formenti, and M. O. Andreae (2017), Probing into the aging dynamics of biomass burning aerosol by using satellite measurements of aerosol optical depth and carbon monoxide, *Atmospheric Chemistry and Physics*, *17*(7), 4513–4537, doi :10.5194/acp-17-4513-2017.

Kopacz, M., et al. (2010), Global estimates of CO sources with high resolution by adjoint inversion of multiple satellite datasets (MOPITT, AIRS, SCIAMACHY, TES), *Atmospheric Chemistry and Physics*, *10*(3), 855–876, doi :10.5194/acp-10-855-2010.

Kot, S., and Y. Song (1998), An improvement of the louis scheme for the surface layer in an atmospheric modelling system, *Boundary-Layer Meteorology*, *88*, 239–254, doi :10.1023/A :1001119329423.

Krpo, A., F. Salamanca, A. Martilli, and A. Clappier (2010), On the impact of anthropogenic heat fluxes on the urban boundary layer : A two-dimensional numerical study, *Boundary-Layer Meteorology*, *136*(1), 105–127, doi :10.1007/s10546-010-9491-2.

Krysta, M., M. Bocquet, and J. Brandt (2008), Probing etex-ii data set with inverse modelling, *Atmospheric Chemistry and Physics*, *8*(14), 3963–3971, doi :10.5194/acp-8-3963-2008.

Kulmala, M., L. A., and L. Pirjola (1998), Parameterization for sulfuric acid / water nucleation rates, *Journal of Geophysical Research : Atmospheres*, *103*(No D7), 8301–8307.

Kulmala, M., et al. (2011), General overview : European integrated project on aerosol cloud climate and air quality interactions (eucaari) - integrating aerosol research from nano to global scales, *Atmospheric Chemistry and Physics*, *11*(24), 13,061–13,143, doi :10.5194/acp-11-13061-2011.

Lac, C., et al. (2018), Overview of the meso-nh model version 5.4 and its applications, *Geoscientific Model Development*, *11*(5), 1929–1969, doi :10.5194/gmd-11-1929-2018.

Laj, P., et al. (2009), Measuring atmospheric composition change, *Atmospheric Environment*, *43*(33), 5351 – 5414, doi : 10.1016/j.atmosenv.2009.08.020, {ACCENT} Synthesis.

Lana, A., et al. (2011), An updated climatology of surface dimethlysulfide concentrations and emission fluxes in the global ocean, *Global Biogeochemical Cycles*, *25*(1), doi :10.1029/2010GB003850.

Lattuati, M. (1997), Contribution à l'étude du bilan de l'ozone troposphérique à l'interface de l'Europe et de l'Atlantique Nord : modélisation lagrangienne et mesures en altitude, Phd thesis, Université P.M.Curie, Paris, France.

Lebel, T., et al. (2007), The AMMA field campaigns : Multiscale and multidisciplinary observations in the west african region, *BAMS*.

Lebel, T., et al. (2010), The amma field campaigns : multiscale and multidisciplinary observations in the west african region, *Quarterly Journal of the Royal Meteorological Society*, *136*(S1), 8–33, doi :10.1002/qj.486.

Leibensperger, E. M., et al. (2012), Climatic effects of 1950-2050 changes in us anthropogenic aerosols - part 1 : Aerosol trends and radiative forcing, *Atmospheric Chemistry and Physics*, *12*(7), 3333–3348, doi :10.5194/acp-12-3333-2012.

Lemonsu, A., and V. Masson (2002), Simulation of a summer urban breeze over paris, *Boundary-Layer Meteorology*, *104*, 463–490, doi :10.1023/A :1016509614936.

Lettau, H. (1969), Note on aerodynamic roughness-parameter estimation on the basis of roughness-element description., *J. Appl. Meteor.*, *8*, 828–832, doi :dx.doi.org/10.1175/1520-0450(1969).

Leutbecher, M., and T. N. Palmer (2008), Ensemble forecasting, *J. Comput. Phys.*, *227*(7), 3515–3539, doi : 10.1016/j.jcp.2007.02.014.

Li, G., Y. Wang, and R. Zhang (2008), Implementation of a two-moment bulk microphysics scheme to the wrf model to investigate aerosol-cloud interaction, *Journal of Geophysical Research : Atmospheres*, *113*(D15), doi :10.1029/2007JD009361.

Li, Y. P., H. Elbern, K. D. Lu, E. Friese, A. Kiendler-Scharr, T. F. Mentel, X. S. Wang, A. Wahner, and Y. H. Zhang (2013), Updated aerosol module and its application to simulate secondary organic aerosols during impact campaign may 2008, *Atmospheric Chemistry and Physics*, *13*(13), 6289–6304, doi :10.5194/acp-13-6289-2013.

Lightstone, S. D., F. Moshary, and B. Gross (2017), Comparing cmaq forecasts with a neural network forecast model for pm2.5 in new york, *Atmosphere*, *8*(9), doi :10.3390/atmos8090161.

Lim, K.-S. S., J. Fan, L. R. Leung, P.-L. Ma, B. Singh, C. Zhao, Y. Zhang, G. Zhang, and X. Song (2013), Investigation of aerosol indirect effects using a cumulus microphysics parameterization in a regional climate model, *Journal of Geophysical Research : Atmospheres*, *119*(2), 906–926, doi :10.1002/2013JD020958.

Liss, P. S., and L. Merlivat (1986), *Air-Sea Gas Exchange Rates : Introduction and Synthesis*, pp. 113–127, Springer Netherlands, Dordrecht, doi :10.1007/978-94-009-4738-25.

Löndahl, J., E. Swietlicki, E. Lindgren, and S. Loft (2010), Aerosol exposure versus aerosol cooling of climate : what is the optimal emission reduction strategy for human health ?, *Atmospheric Chemistry and Physics*, *10*(19), 9441–9449, doi :10.5194/acp-10-9441-2010.

Loosmore, G., and R. Cederwall (2004), Precipitation scavenging of atmospheric aerosols for emergency response applications : testing an updated model with new real-time data, *Atmospheric Environemnt*, *38*, 993–1003.

Lorenz, E. N. (1963), Deterministic non-periodic flow, *J. Atmos. Sci.*, *20*, 130–141.

Lou, S., L. M. Russell, Y. Yang, Y. Liu, B. Singh, and S. J. Ghan (2017), Impacts of interactive dust and its direct radiative forcing on interannual variations of temperature and precipitation in winter over east asia, *Journal of Geophysical Research : Atmospheres*, pp. n/a–n/a, doi :10.1002/2017JD027267, 2017JD027267.

Louis, J., M. Tiedke, and J. Geleyn (1982), A short history of the pbl parametrization at ecmwf, in *ECMWF Workshop on Planetary Boundary Layer parametrization*, pp. 59–80, University of Reading.

Loveland, T., B. Reed, J. Brown, D. Ohlen, J. Zhu, L. Yang, and J. Merchant (2000), Development of a global land cover characteristics database and igbp discover from 1-km avhrr data, *International Journal of Remote Sensing*, *21*(6/7), 1303–1330.

Lundgren, K., B. Vogel, H. Vogel, and C. Kottmeier (2013), Direct radiative effects of sea salt for the mediterranean region under conditions of low to moderate wind speeds, *Journal of Geophysical Research : Atmospheres*, *118*(4), 1906–1923, doi : 10.1029/2012JD018629.

Luo, C., Y. Wang, and W. J. Koshak (2017), Development of a self-consistent lightning nox simulation in large-scale 3-d models, *Journal of Geophysical Research : Atmospheres*, pp. n/a–n/a, doi :10.1002/2016JD026225, 2016JD026225.

Madronich, S., and J. G. Calvert (1990), The ncar master mechanism of the gas phase chemistry version 2.0, *NCAR Technical Notes*, *NCAR/TN-333+SRT*.

Mahowald, N., R. Prinn, and P. Rasch (1997), Deducing ccl3 f emissions using an inverse method and chemical transport models with assimilated winds, *Journal of Geophysical Research*, *102*, 28,153–28,168.

Mahowald, N., D. S. Ward, S. Kloster, M. G. Flanner, C. L. Heald, N. G. Heavens, P. G. Hess, J.-F. Lamarque, and P. Y. Chuang (2011), Aerosol impacts on climate and biogeochemistry, *Annual Review of Environment and Resources*, *36*(1), 45–74, doi : 10.1146/annurev-environ-042009-094507.

Mahrt, L., and D. Vickers (2004), Bulk formulation of the surface heat flux, *Boundary-Layer Meteorology*, *110*, 357–379.

Mailler, S., et al. (2017), CHIMERE-2017 : from urban to hemispheric chemistry-transport modeling, *Geoscientific Model Development*, *10*(6), 2397–2423, doi :10.5194/gmd-10-2397-2017.

Makra, L., M. Juhasz, E. Borsos, and R. Beczi (2004), Meteorological variables connected with airborne ragweed pollen in Southern Hungary, *Int. J. Biometeorol.*, *49*, 37–47.

Malmqvist, E., A. Oudin, M. Pascal, and S. Medina (2018), Choices behind numbers : a review of the major air pollution health impact assessments in europe, *Current Environmental Health Reports*, *5*, 34, doi :10.1007/s40572-018-0175-2.

Marchand, M., K. Hilburn, and S. D. Miller (2019), Geostationary lightning mapper and earth networks lightning detection over the contiguous united states and dependence on flash characteristics, *Journal of Geophysical Research : Atmospheres*, *n/a*(n/a), doi :10.1029/2019JD031039.

Marécal, V., et al. (2015), A regional air quality forecasting system over Europe : the MACC-II daily ensemble production, *Geoscientific Model Development*, *8*(9), 2777–2813, doi :10.5194/gmd-8-2777-2015.

Mari, C., D. J. Jacob, and P. Bechtold (2000), Transport and scavenging of soluble gases in a deep convective cloud, *Journal of Geophysical Research : Atmospheres*, *105*(D17), 22,255–22,267, doi :10.1029/2000JD900211.

Mari, C., et al. (2006), Regional lightning no_x sources during the troccinox experiment, *Atmospheric Chemistry and Physics*, *6*(12), 5559–5572, doi :10.5194/acp-6-5559-2006.

Martensson, E. M., E. D. Nilsson, G. de Leeuw, L. H. Cohen, and H.-C. Hansson (2003), Laboratory simulations and parameterization of the primary marine aerosol production, *Journal of Geophysical Research : Atmospheres*, *108*(D9), doi : 10.1029/2002JD002263.

Marticorena, B., and G. Bergametti (1995), Modeling the atmospheric dust cycle : 1 Design of a soil derived dust production scheme, *J. Geophys. Res.*, *100*, 16,415–16,430.

Martilli, A., A. Clappier, and M. Rotach (2002), An urban surface exchange parameterisation for mesoscale models, *Boundary-Layer Meteorology*, *104*, 261–304, doi :10.1023/A :1016099921195.

Martin, R. V. (2008), Satellite remote sensing of surface air quality, *Atmospheric Environment*, *42*(34), 7823–7843, doi : 10.1016/j.atmosenv.2008.07.018.

Masson, V. (2000), A physically-based scheme for the urban energy budget in atmospheric models, *Boundary-Layer Meteorology*, *94*, 357–397, doi :10.1023/A :1002463829265.

McHenry, J. N., W. F. Ryan, N. L. Seaman, C. J. Coats, J. Pudykiewicz, S. Arunachalam, and J. M. Vukovich (2004), A real-time Eulerian photo-chemical model forecast system : Overview and initial ozone forecast performance in the northeast U.S. corridor, *Bull. Am. Meteorol. Soc.*, *85*, 525–548.

McNorton, J., C. Wilson, M. Gloor, R. J. Parker, H. Boesch, W. Feng, R. Hossaini, and M. P. Chipperfield (2018), Attribution of recent increases in atmospheric methane through 3-d inverse modelling, *Atmospheric Chemistry and Physics*, *18*(24), 18,149–18,168, doi :10.5194/acp-18-18149-2018.

McRae, G., W. Goodin, and J. Seinfeld (1982), Development of a second generation mathematical model for urban air pollution : I. model formulation, *Atmospheric Environment*, *16*, 679–696.

Meijer, E., P. van Velthoven, D. Brunner, H. Huntrieser, and H. Kelder (2001), Improvement and evaluation of the parameterisation of nitrogen oxide production by lightning, *Physics and Chemistry of the Earth, Part C : Solar, Terrestrial and Planetary Science*, *26*(8), 577 – 583, doi :10.1016/S1464-1917(01)00050-2.

Meleux, F., F. Solmon, and F. Giorgi (2007), Increase in European summer ozone amounts due to climate change, *Atmos. Environ.*, *41*, 7577–7587.

Mellor, G. L., and T. Yamada (1974), A hierarchy of turbulence closure models for planetary boundary layers, *J. Atmos. Sci.*, *31*, 1791–1806.

Mendoza-Dominguez, A., and A. Russell (2001), Estimation of emission adjustments from the application of four-dimensional data assimilation to photochemical air quality modeling, *Atmos. Environ.*, *35*, 2879–2894.

Menut, L. (2003), Adjoint modelling for atmospheric pollution processes sensitivity at regional scale during the ESQUIF IOP2, *J. Geophys. Res.*, *108*(D17), 8562, doi :10.1029/2002JD002549.

Menut, L. (2018), Modeling of Mineral Dust Emissions with a Weibull Wind Speed Distribution Including Subgrid-Scale Orography Variance, *Journal of Atmospheric and Oceanic Technology*, *35*(6), 1221–1236, doi :10.1175/JTECH-D-17-0173.1.

Menut, L., and B. Bessagnet (2010), Atmospheric composition forecasting in europe, *Annales Geophysicae*, *28*(1), 61–74, doi : 10.5194/angeo-28-61-2010.

Menut, L., and B. Bessagnet (2019), What Can We Expect from Data Assimilation for Air Quality Forecast ? Part I : Quantification with Academic Test Cases, *Journal of Atmospheric and Oceanic Technology*, *36*(2), 269–279, doi :10.1175/JTECH-D-18-0002.1.

Menut, L., C. Flamant, J. Pelon, and P. Flamant (1999), Urban boundary layer height determination from lidar measurements over the Paris area, *Applied Optics*, *38*, 945–954.

Menut, L., A. Goussebaile, B. Bessagnet, D. Khvorostiyanov, and A. Ung (2012), Impact of realistic hourly emissions profiles on modelled air pollutants concentrations, *Atmos Environ*, *49*, 233–244, doi :10.1016/j.atmosenv.2011.11.057.

Menut, L., C. Perez Garcia-Pando, K. Haustein, B. Bessagnet, C. Prigent, and S. Alfaro (2013a), Relative impact of roughness and soil texture on mineral dust emission fluxes modeling, *J Geophys Res*, *118*, 6505–6520, doi :10.1002/jgrd.50313.

Menut, L., O. Tripathi, A. Colette, R. Vautard, E. Flaounas, and B. Bessagnet (2013b), Evaluation of regional climate simulations for air quality modelling purposes, *Climate Dynamics*, *40*, 2515–2533, doi :10.1007/s00382-012-1345-9.

Menut, L., G. Rea, S. Mailler, D. Khvorostyanov, and S. Turquety (2015a), Aerosol forecast over the Mediterranean area during July 2013 (ADRIMED/CHARMEX), *Atmospheric Chemistry and Physics*, *15*(14), 7897–7911, doi :10.5194/acp-15-7897-2015.

Menut, L., G. Siour, S. Mailler, F. Couvidat, and B. Bessagnet (2016), Observations and regional modeling of aerosol optical properties, speciation and size distribution over Northern Africa and western Europe, *Atmospheric Chemistry and Physics*, *16*(20), 12,961–12,982, doi :10.5194/acp-16-12961-2016.

Menut, L., S. Mailler, B. Bessagnet, G. Siour, A. Colette, F. Couvidat, and F. Meleux (2017), An alternative way to evaluate chemistry-transport model variability, *Geoscientific Model Development*, *10*(3), 1199–1208, doi :10.5194/gmd-10-1199-2017.

Menut, L., C. Flamant, S. Turquety, A. Deroubaix, P. Chazette, and R. Meynadier (2018), Impact of biomass burning on pollutant surface concentrations in megacities of the Gulf of Guinea, *Atmospheric Chemistry and Physics*, *18*(4), 2687–2707, doi :10.5194/acp-18-2687-2018.

Menut, L., P. Tuccella, C. Flamant, A. Deroubaix, and M. Gaetani (2019), The role of aerosol–radiation–cloud interactions in linking anthropogenic pollution over southern west Africa and dust emission over the Sahara, *Atmospheric Chemistry and Physics*, *19*(23), 14,657–14,676, doi :10.5194/acp-19-14657-2019.

Menut, L., B. Bessagnet, S. Mailler, R. Pennel, and G. Siour (2020a), Impact of lightning nox emissions on atmospheric composition and meteorology in africa and europe, *Atmosphere*, *11*(10), doi :10.3390/atmos11101128.

Menut, L., G. Siour, B. Bessagnet, F. Couvidat, E. Journet, Y. Balkanski, and K. Desboeufs (2020b), Modelling the mineralogical composition and solubility of mineral dust in the Mediterranean area with CHIMERE 2017r4, *Geoscientific Model Development*, *13*(4), 2051–2071, doi :10.5194/gmd-13-2051-2020.

Menut, L., et al. (2000), Measurements and modelling of atmospheric pollution over the Paris area : an overview of the ESQUIF Project, *Annales Geophysicae*, *18*(11), 1467–1481.

Menut, L., et al. (2015b), Ozone and aerosol tropospheric concentrations variability analyzed using the ADRIMED measurements and the WRF and CHIMERE models, *Atmospheric Chemistry and Physics*, *15*(11), 6159–6182, doi :10.5194/acp-15-6159-2015.

Menut, L., et al. (2021), The chimere v2020r1 online chemistry-transport model, *Geoscientific Model Development*, *14*(11), 6781–6811, doi :10.5194/gmd-14-6781-2021.

Mestayer, P. G., et al. (2005), The urban boundary-layer field campaign in marseille (ubl/clu-escompte) : set-up and first results, *Boundary-Layer Meteorology*, *114*, 315–365, doi :10.1007/s10546-004-9241-4.

Metzger, S., B. Steil, L. Xu, J. E. Penner, and J. Lelieveld (2012), New representation of water activity based on a single solute specific constant to parameterize the hygroscopic growth of aerosols in atmospheric models, *Atmospheric Chemistry and Physics*, *12*(12), 5429–5446, doi :10.5194/acp-12-5429-2012.

Middleton, N. (2017), Desert dust hazards : A global review, *Aeolian Research*, *24*, 53 – 63, doi :10.1016/j.aeolia.2016.12.001.

Milliez, M., and B. Carissimo (2008), Computational fluid dynamical modelling of concentration fluctuations in an idealized urban area, *Boundary-Layer Meteorology*, *127*, 241–259, doi :10.1007/s10546-008-9266-1.

Miyazaki, K., H. J. Eskes, K. Sudo, and C. Zhang (2014), Global lightning no$_x$ production estimated by an assimilation of multiple satellite data sets, *Atmospheric Chemistry and Physics*, *14*(7), 3277–3305, doi :10.5194/acp-14-3277-2014.

Molina, L. T., et al. (2010), An overview of the milagro 2006 campaign : Mexico city emissions and their transport and transformation, *Atmospheric Chemistry and Physics*, *10*(18), 8697–8760, doi :10.5194/acp-10-8697-2010.

Moltchanov, S., I. Levy, Y. Etzion, U. Lerner, D. M. Broday, and B. Fishbain (2015), On the feasibility of measuring urban air pollution by wireless distributed sensor networks, *Science of The Total Environment*, *502*, 537 – 547, doi : 10.1016/j.scitotenv.2014.09.059.

Monahan, E. C. (1986), *In The Role of Air-Sea Exchange in Geochemical Cycling*, chap. The ocean as a source of atmospheric particles, pp. 129–163, Kluwer Academic Publishers, Dordrecht, Holland.

Monks, P., et al. (2009), Atmospheric composition change - global and regional air quality, *Atmospheric Environment*, *43*(33), 5268 – 5350, doi :10.1016/j.atmosenv.2009.08.021.

Monks, P. S., et al. (2015), Tropospheric ozone and its precursors from the urban to the global scale from air quality to short-lived climate forcer, *Atmospheric Chemistry and Physics*, *15*(15), 8889–8973, doi :10.5194/acp-15-8889-2015.

Morcrette, J.-J., et al. (2009), Aerosol analysis and forecast in the european centre for medium-range weather forecasts integrated forecast system : Forward modeling, *Journal of Geophysical Research : Atmospheres*, *114*(D6), doi :10.1029/2008JD011235.

Morille, Y., M. Haeffelin, P. Drobinski, and J. Pelon (2007), Strat : an automated algorithm to retrieve the vertical structure of the atmosphere from single channel lidar data, *Journal of Atmospheric and Oceanic Technology*, pp. 761–775.

Morman, S. A., and G. S. Plumlee (2013), The role of airborne mineral dusts in human disease, *Aeolian Research*, *9*, 203–212, doi :10.1016/j.aeolia.2012.12.001.

Moss, R. H., et al. (2010), The next generation of scenarios for climate change research and assessment, *Nature*, *463*(1476-4687), 756, doi :10.1038/nature08823.

Mulholland, M., and J. Seinfeld (1995), Inverse air pollution modelling of urban-scale carbon monoxide emissions, *Atmos. Environ.*, *29*, 497–516.

Müller, J.-F., and T. Stavrakou (2005), Inversion of CO and NO_x emissions using the adjoint of the IMAGES model, *Atmos. Chem. Phys.*, *5*, 1157–1186.

Murray, L. T. (2016), Lightning nox and impacts on air quality, *Current Pollution Reports*, *2*(2), 115–133, doi :10.1007/s40726-016-0031-7.

Nenes, A., C. Pilinis, and S. Pandis (1998), ISORROPIA : A new thermodynamic model for inorganic multicomponent atmospheric aerosols, *Aquatic Geochem.*, *4*, 123–152.

Nester, K., and H.-J. Panitz (2006), Sensitivity analysis by the adjoint chemistry transport model draisfor an episode in the berlin ozone (berlioz) experiment, *Atmospheric Chemistry and Physics*, *6*(8), 2091–2106, doi :10.5194/acp-6-2091-2006.

Nickovic, S., B. Cvetkovic, F. Madonna, M. Rosoldi, G. Pejanovic, S. Petkovic, and J. Nikolic (2016), Cloud ice caused by atmospheric mineral dust - part 1 : Parameterization of ice nuclei concentration in the nmme-dream model, *Atmospheric Chemistry and Physics*, *16*(17), 11,367–11,378, doi :10.5194/acp-16-11367-2016.

Nightingale, P. D., G. Malin, C. S. Law, A. J. Watson, P. S. Liss, M. I. Liddicoat, J. Boutin, and R. C. Upstill-Goddard (2000), In situ evaluation of air-sea gas exchange parameterizations using novel conservative and volatile tracers, *Global Biogeochemical Cycles*, *14*(1), 373–387, doi :10.1029/1999GB900091.

Nikulin, G., E. Kjellstrom, U. Hansson, C. Jones, G. Strandberg, and A. Ullerstig (2011), Evaluation and future projections of temperature, precipitation and wind extremes over Europe in an ensemble of regional climate simulations, *Tellus*, *63A*, 41–55.

Oke, T. R. (1982), The energetic basis of the urban heat island, *Quarterly Journal of the Royal Meteorological Society*, *108*(455), 1–24, doi :10.1002/qj.49710845502.

Ott, L. E., K. E. Pickering, G. L. Stenchikov, D. J. Allen, A. J. DeCaria, B. Ridley, R.-F. Lin, S. Lang, and W.-K. Tao (2010), Production of lightning nox and its vertical distribution calculated from three-dimensional cloud-scale chemical transport model simulations, *Journal of Geophysical Research : Atmospheres*, *115*(D4), doi :10.1029/2009JD011880.

Pagowski, M., et al. (2006), Application of dynamic linear regression to improve the skill of ensemble-based deterministic ozone forecasts, *Atmos. Environ.*, *40*, 3240–3250.

Pan, X., et al. (2020), Six global biomass burning emission datasets : intercomparison and application in one global aerosol model, *Atmospheric Chemistry and Physics*, *20*(2), 969–994, doi :10.5194/acp-20-969-2020.

Pandis, S., A. Wexler, and J. Seinfeld (1993), Secondary organic aerosol formation and transport -ii. predicting the ambient secondary organic aerosol size distribution, *Atmos. Environ.*, *27A*, 2403–2416.

Pappalardo, G., et al. (2013), Four-dimensional distribution of the 2010 eyjafjallajökull volcanic cloud over europe observed by earlinet, *Atmospheric Chemistry and Physics*, *13*(8), 4429–4450, doi :10.5194/acp-13-4429-2013.

Pappalardo, G., et al. (2014), Earlinet : towards an advanced sustainable european aerosol lidar network, *Atmospheric Measurement Techniques*, *7*(8), 2389–2409, doi :10.5194/amt-7-2389-2014.

Partridge, D. G., J. A. Vrugt, P. Tunved, A. M. L. Ekman, H. Struthers, and A. Sorooshian (2012), Inverse modelling of cloud-aerosol interactions - part 2 : Sensitivity tests on liquid phase clouds using a markov chain monte carlo based simulation approach, *Atmospheric Chemistry and Physics*, *12*(6), 2823–2847, doi :10.5194/acp-12-2823-2012.

Paugam, R., M. Wooster, S. Freitas, and M. Val-Martin (2016), A review of approaches to estimate wildfire plume injection height within large-scale atmospheric chemical transport models, *Atmospheric Chemistry and Physics*, *16*(2), 907–925, doi : 10.5194/acp-16-907-2016.

Paulson, C. A. (1970), The mathematical representation of wind speed and temperature profiles in the unstable atmospheric surface layer, *Journal of Applied Meteorology and Climatology*, *9*(6), 857 – 861, doi :10.1175/1520-0450(1970)009<0857 :TMROWS>2.0.CO ;2.

Penner, J. E., C. Zhou, A. Garnier, and D. L. Mitchell (2018), Anthropogenic aerosol indirect effects in cirrus clouds, *Journal of Geophysical Research : Atmospheres*, *123*(20), 11,652–11,677, doi :10.1029/2018JD029204.

Péré, J., M. Mallet, V. Pont, and B. Bessagnet (2010), Evaluation of an aerosol optical scheme in the chemistry-transport model CHIMERE, *Atmospheric Environment*, *44*, 3688–3699.

Pereira, G., R. Siqueira, N. E. Rosário, K. L. Longo, S. R. Freitas, F. S. Cardozo, J. W. Kaiser, and M. J. Wooster (2016), Assessment of fire emission inventories during the south american biomass burning analysis (sambba) experiment, *Atmospheric Chemistry and Physics*, *16*(11), 6961–6975, doi :10.5194/acp-16-6961-2016.

Pérez, C., S. Nickovic, G. Pejanovic, J. Baldasano, and E. Ozsoy (2006), Interactive dust-radiation modelling : A step to improve weather forecasts, *J Geophys Res*, *111*, D16,206, doi :10.1029/2005JD006717.

Peterson, H. S., and W. H. Beasley (2011), Possible catalytic effects of ice particles on the production of no_x by lightning discharges, *Atmospheric Chemistry and Physics*, *11*(19), 10,259–10,268, doi :10.5194/acp-11-10259-2011.

Pétron, G., C. Granier, B. Khattatov, V. Yudin, J.-F. Lamarque, L. Emmons, J. Gille, and D. Edwards (2004), Monthly CO surface sources inventory based on the 2000-2001 MOPITT satellite data , *Geophys. Res. Lett.*, *31*, doi :10.1029/2004GL020560.

Pichelli, E., R. Ferretti, M. Cacciani, A. M. Siani, V. Ciardini, and T. Di Iorio (2014), The role of urban boundary layer investigated with high-resolution models and ground-based observations in rome area : a step towards understanding parameterization potentialities, *Atmospheric Measurement Techniques*, *7*(1), 315–332, doi :10.5194/amt-7-315-2014.

Pickering, K. E., Y. Wang, W.-K. Tao, C. Price, and J.-F. Müller (1998), Vertical distributions of lightning nox for use in regional and global chemical transport models, *Journal of Geophysical Research : Atmospheres*, *103*(D23), 31,203–31,216, doi : 10.1029/98JD02651.

Pielke, R. (2013), *Mesoscale Meteorological Modeling*, 1–760 pp., Academic Press.

Pierce, R. B., et al. (2007), Chemical data assimilation estimates of continental u.s. ozone and nitrogen budgets during the intercontinental chemical transport experiment - north america, *Journal of Geophysical Research : Atmospheres*, *112*(D12), n/a–n/a, doi :10.1029/2006JD007722, d12S21.

Pierce, T., C. Geron, L. Bender, R. Dennis, G. Tonnesen, and A. Guenther (1998), Influence of increased isoprene emissions on regional ozone modeling, *Journal of Geophysical Research : Atmospheres*, *103*(D19), 25,611–25,629, doi :10.1029/98JD01804.

Piironen, A. K., and E. W. Eloranta (1995), Convective boundary layer mean depths and cloud geometrical properties obtained from volume imaging lidar data, *J. Geophys. Res.*, *100*, 25,569–25,576.

Pison, I., L. Menut, and N.Blond (2006), Inverse modeling of emissions for local photo-oxidant pollution : Testing a new methodology with kriging constraints, *Annales Geophysicae*, *24,*, 1523–1535.

Pison, I., L.Menut, and G.Bergametti (2007), Inverse modeling of surface NOx anthropogenic emissions fluxes in the Paris area during the ESQUIF campaign, *Journal of Geophysical Research, Atmospheres*, *112*, D24,302, doi :10.1029/2007JD008871.

Pleim, J., and L. Ran (2011), Surface flux modeling for air quality applications, *Atmosphere*, *2*(3), 271–302, doi : 10.3390/atmos2030271.

Pleim, J. E. (2007), A combined local and nonlocal closure model for the atmospheric boundary layer. part ii : Application and evaluation in a mesoscale meteorological model, *Journal of Applied Meteorology and Climatology*, *46*(9), 1396 – 1409, doi : 10.1175/JAM2534.1.

Porter, P. S., S. T. Rao, C. Hogrefe, E. Gego, and R. Mathur (2015), Methods for reducing biases and errors in regional photochemical model outputs for use in emission reduction and exposure assessments, *Atmospheric Environment*, *112*, 178 – 188, doi :doi.org/10.1016/j.atmosenv.2015.04.039.

Powers, J. G., et al. (2017), The weather research and forecasting model : Overview, system efforts, and future directions, *Bulletin of the American Meteorological Society*, *98*(8), 1717–1737, doi :10.1175/BAMS-D-15-00308.1.

Prank, M., et al. (2013), An operational model for forecasting ragweed pollen release and dispersion in Europe, *Agricultural and Forest Meteorology*, *182*, 43–53.

Prank, M., et al. (2016), Evaluation of the performance of four chemical transport models in predicting the aerosol chemical composition in europe in 2005, *Atmospheric Chemistry and Physics*, *16*(10), 6041–6070, doi :10.5194/acp-16-6041-2016.

Price, C., and D. Rind (1992), A simple lightning parameterization for calculating global lightning distributions, *J. Geophys. Res.*, *97*, 9919–9933, doi :10.1029/92JD00719.

Price, C., and D. Rind (1993), What determines the cloud-to-ground lightning fraction in thunderstorms ?, *Geophys. Res. Lett.*, *20*, 463–466, doi :10.1029/93GL00226.

Price, C., and D. Rind (1994), Modeling global lightning distributions in a general circulation model, *Monthly Weather Review*, *122*(8), 1930–1939, doi :10.1175/1520-0493(1994)122<1930 :MGLDIA>2.0.CO ;2.

Price, C., J. Penner, and M. Prather (1997), Nox from lightning : 1. global distribution based on lightning physics, *Journal of Geophysical Research : Atmospheres*, *102*(D5), 5929–5941, doi :10.1029/96JD03504.

Price, C. G. (2013), Lightning applications in weather and climate research, *Surveys in Geophysics*, *34*(6), 755–767, doi : 10.1007/s10712-012-9218-7.

Prigent, C., C. Jiménez, and J. Catherinot (2012), Comparison of satellite microwave backscattering (ascat) and visible/near-infrared reflectances (parasol) for the estimation of aeolian aerodynamic roughness length in arid and semi-arid regions, *Atmospheric Measurement Techniques*, *5*(11), 2703–2712, doi :10.5194/amt-5-2703-2012.

Pryor, S. C., J. T. Schoof, and R. J. Barthelmie (2005), Empirical downscaling of wind speed probability distributions, *Journal of Geophysical Research : Atmospheres*, *110*(D19), n/a–n/a, doi :10.1029/2005JD005899, d19109.

Pun, B. K., and C. Seigneur (2007), Investigative modeling of new pathways for secondary organic aerosol formation, *Atmospheric Chemistry and Physics*, *7*(9), 2199–2216, doi :10.5194/acp-7-2199-2007.

Pye, H. O. T., et al. (2017), On the implications of aerosol liquid water and phase separation for organic aerosol mass, *Atmospheric Chemistry and Physics*, *17*(1), 343–369, doi :10.5194/acp-17-343-2017.

Quélo, D., V. Mallet, and B. Sportisse (2005), Inverse modeling of NO_x emissions at regional scale over Northern France. Preliminary investigation of the second-order sensitivity, *J. Geophys. Res.*, *110*, D24,310, doi :10.1029/2005JD006151.

Rabier, F., P. Courtier, and O. Talagrand (1992), An application of adjoint models to sensitivity analysis, *Contributions to atmospheric physics*, *65*, 177–192.

Raffuse, S., K. Craig, N. Larkin, T. Strand, D. Sullivan, N. Wheeler, and R. Solomon (2012), An evaluation of modeled plume injection height with satellite-derived observed plume height, *Atmosphere*, *3*, 103–123, doi :10.3390/atmos3010103.

Ravi, S., et al. (2011), Aeolian processes and the biosphere, *Reviews of Geophysics*, *49*(3), n/a–n/a, doi :10.1029/2010RG000328, rG3001.

Rea, G., S. Turquety, L. Menut, R. Briant, S. Mailler, and G. Siour (2015), Source contributions to 2012 summertime aerosols in the Euro-Mediterranean region, *Atmospheric Chemistry and Physics*, *15*(14), 8013–8036, doi :10.5194/acp-15-8013-2015.

Reeves, D., C.and Cunnold, R. Derwent, E. Dlugodencky, S. Edouard, C. Granier, R. Ménard, P. Novelli, and D. Parrish (2004), *Emissions of atmospheric trace compounds*, chap. Determination of Emissions from Observations of Atmospheric Compounds, Kluwer Academic Publishers.

Reid, J., R. Koppmann, T. Eck, and D. Eleuterio (2005a), A review of biomass burning emissions part ii : intensive physical properties of biomass burning particles, *Atmospheric Chemistry and Physics*, *5*(3), 799–825, doi :10.5194/acp-5-799-2005.

Reid, J. S., T. F. Eck, S. A. Christopher, R. Koppmann, O. Dubovik, D. P. Eleuterio, B. N. Holben, E. A. Reid, and J. Zhang (2005b), A review of biomass burning emissions part iii : intensive optical properties of biomass burning particles, *Atmospheric Chemistry and Physics*, *5*(3), 827–849, doi :10.5194/acp-5-827-2005.

Reis, S., et al. (2015), Integrating modelling and smart sensors for environmental and human health, *Environmental Modelling and Software*, *74*, 238 – 246, doi :10.1016/j.envsoft.2015.06.003.

Rieger, D., et al. (2015), Icon-art 1.0 – a new online-coupled model system from the global to regional scale, *Geoscientific Model Development*, *8*(6), 1659–1676, doi :10.5194/gmd-8-1659-2015.

Riemer, N., A. P. Ault, M. West, R. L. Craig, and J. H. Curtis (2019), Aerosol mixing state : Measurements, modeling, and impacts, *Reviews of Geophysics*, *57*(2), 187–249, doi :10.1029/2018RG000615.

Rio, C., F. Hourdin, and A. Chédin (2010), Numerical simulation of tropospheric injection of biomass burning products by pyrothermal plumes, *Atmos. Chem. Phys.*, *10*, 3463–3478, doi :10.5194/acp-10-3463-2010.

Robeson, S. M., and D. G. Steyn (1990), Evaluation and comparison of statistical forecast models for daily maximum ozone concentrations, *Atmospheric Environment*, *24*, 303–312.

Robinson, A., N. Donahue, M. K. Shrivastava, E. A. Weitkamp, A. M. Sage, A. P. Grieshop, T. E. Lane, J. R. Pierce, and S. N. Pandis (2007), Rethinking Organic Aerosols : Semivolatile Emissions and Photochemical Aging, *Science*, *315*(5816), 1259–1262, doi :10.1126/science.1133061.

Rogers, C., P. Wayne, E. Macklin, M. Muilenberg, and C. Wagner (2006), Interaction of the onset of spring and elevated atmospheric co2 on ragweed (ambrosia artemisiifolia l.) pollen production, *Environ Health Perspect*, *114*, 865–869.

Russo, A., F. Raischel, and P. G. Lind (2013), Air quality prediction using optimal neural networks with stochastic variables, *Atmospheric Environment*, *79*, 822–830, doi :10.1016/j.atmosenv.2013.07.072.

Saide, P. E., J. Kim, C. H. Song, M. Choi, Y. Cheng, and G. R. Carmichael (2014), Assimilation of next generation geostationary aerosol optical depth retrievals to improve air quality simulations, *Geophysical Research Letters*, *41*(24), 9188–9196, doi : 10.1002/2014GL062089.

Sandu, A., and T. Chai (2011), Chemical data assimilation : An overview, *Atmosphere*, *2*(3), 426–463, doi :10.3390/atmos2030426.

Sandu, A., D. Daescu, and G. Carmichael (2003), Direct and adjoint sensitivity analysis of chemical kinetic systems with kpp : Part i-theory and software tools, *Atmospheric Environment*, *37*, 5083–5096.

Sarrat, C., A. Lemonsu, V. Masson, and D. Guedalia (2006), Impact of urban heat island on regional atmospheric pollution, *Atmospheric Environment*, *40*(10), 1743 – 1758, doi :10.1016/j.atmosenv.2005.11.037.

Sarwar, G., D. Luecken, G. Yarwood, G. Z. Whitten, and W. P. L. Carter (2008), Impact of an updated carbon bond mechanism on predictions from the cmaq modeling system : Preliminary assessment, *Journal of Applied Meteorology and Climatology*, *47*(1), 3–14, doi :10.1175/2007JAMC1393.1.

Saunders, S. M., M. E. Jenkin, R. G. Derwent, and M. J. Pilling (2003), Protocol for the development of the master chemical mechanism, mcm v3 (part a) : tropospheric degradation of non-aromatic volatile organic compounds, *Atmospheric Chemistry and Physics*, *3*(1), 161–180, doi :10.5194/acp-3-161-2003.

Saunier, O., A. Mathieu, D. Didier, M. Tombette, D. Quélo, V. Winiarek, and M. Bocquet (2013), An inverse modeling method to assess the source term of the fukushima nuclear power plant accident using gamma dose rate observations, *Atmospheric Chemistry and Physics*, *13*(22), 11,403–11,421, doi :10.5194/acp-13-11403-2013.

Schaap, M., et al. (2007), Evaluation of long-term aerosol simulations from seven air quality models and their ensemble in the eurodelta study, *Atmospheric Environemnt*, *41*, 2083–2097.

Schaap, M., et al. (2015), Performance of european chemistry transport models as function of horizontal resolution, *Atmospheric Environment*, *112*, 90 – 105, doi :10.1016/j.atmosenv.2015.04.003.

Schell, B., I. J. Ackermann, H. Hass, F. S. Binkowski, and A. Ebel (2001), Modeling the formation of secondary organic aerosol within a comprehensive air quality model system, *Journal of Geophysical Research : Atmospheres*, *106*(D22), 28,275–28,293, doi :10.1029/2001JD000384.

Schepanski, K. (2018), Transport of mineral dust and its impact on climate, *Geosciences*, *8*(5), doi :10.3390/geosciences8050151.

Schmidt, A., B. Ostro, K. Carslaw, M. Wilson, T. Throdarson, G. Mann, and A. Simmons (2011), Excess mortality in Europe following a future Laki-style Icelandic eruption, *PNAS*, *108*, 15,710–15,715.

Schmidt, H., and D. Martin (2003), Continental scale adjoint sensitivity of ozone concentrations in the Paris region during the ESQUIF episodes, *Journal of Geophysical Research*, *108*(D17), 4313.

Schumann, U., and H. Huntrieser (2007), The global lightning-induced nitrogen oxides source, *Atmospheric Chemistry and Physics*, *7*(14), 3823–3907, doi :10.5194/acp-7-3823-2007.

Seinfeld, J., and S. Pandis (2006), *Atmospheric Chemistry and Physics : From Air Pollution to Climate Change*, Wiley-Interscience, Hoboken, 2nd edition.

Semeniuk, K., and A. Dastoor (2020), Current state of atmospheric aerosol thermodynamics and mass transfer modeling : A review, *Atmosphere*, *11*(156), doi :10.3390/atmos11020156.

Shao, Y. (2004), Physics and modelling of wind erosion, *Prog. Energy Combust. Sci.*, *30*, 501–543.

Shao, Y., and I. Lu (2000), A simple expression for wind erosion threshold friction velocity, *J. Geophys. Res.*, *105*, 22,437–22,443.

Shao, Y., et al. (2011), Dust cycle : An emerging core theme in earth system science, *Aeolian Research*, *2*(4), 181 – 204, doi : 10.1016/j.aeolia.2011.02.001.

Shi, Z., L. Huang, J. Li, Q. Ying, H. Zhang, and J. Hu (2020), Sensitivity analysis of the surface ozone and fine particulate matter to meteorological parameters in china, *Atmospheric Chemistry and Physics*, *20*(21), 13,455–13,466, doi :10.5194/acp-20-13455-2020.

Shin, H., and S.-Y. Hong (2011), Intercomparison of planetary boundary-layer parametrizations in the wrf model for a single day from cases-99, *Boundary-Layer Meteorology*, *139*(2), 261–281, doi :10.1007/s10546-010-9583-z.

Shrivastava, M., J. Fast, R. Easter, W. I. Gustafson Jr., R. A. Zaveri, J. L. Jimenez, P. Saide, and A. Hodzic (2011), Modeling organic aerosols in a megacity : comparison of simple and complex representations of the volatility basis set approach, *Atmospheric Chemistry and Physics*, *11*(13), 6639–6662, doi :10.5194/acp-11-6639-2011.

Sicard, M., et al. (2012), Monitoring of the eyjafjallajökull volcanic aerosol plume over the iberian peninsula by means of four earlinet lidar stations, *Atmospheric Chemistry and Physics*, *12*(6), 3115–3130, doi :10.5194/acp-12-3115-2012.

Sillman, S. (1999), The relation between ozone, no_x and hydrocarbons in urban and polluted rural environments, *Atmos Environ*, *33*, 1821–1845.

Simon, H., K. Baker, and S. Phillips (2012), Compilation and interpretation of photochemical model performance statistics published between 2006 and 2012, *Atmospheric Environment*, *61*, 124–139, doi :10.1016/j.atmosenv.2012.07.012.

Simpson, D., H. Fagerli, J.-E. Jonson, S. Tsyro, P. Wind, and J.-P. Tuovinen (2003), Transboundary Acidification, Eutrophication and Ground Level Ozone in Europe. Part I : Unified EMEP Model Description, *Tech. rep.*, EMEP/ Status Report 2003.

Simpson, D., et al. (1999), Inventorying emissions from nature in europe, *Journal of Geophysical Research : Atmospheres*, *104*(D7), 8113–8152, doi :10.1029/98JD02747.

Simpson, D., et al. (2012), The emep msc-w chemical transport model - technical description, *Atmospheric Chemistry and Physics*, *12*(16), 7825–7865, doi :10.5194/acp-12-7825-2012.

Sindelarova, K., et al. (2014), Global data set of biogenic voc emissions calculated by the megan model over the last 30 years, *Atmospheric Chemistry and Physics*, *14*(17), 9317–9341, doi :10.5194/acp-14-9317-2014.

Singal, S. P. (1993), Monitoring air pollution related meteorology using SODAR, *Applied Physics B Photophysics and Laser Chemistry*, *57*(1432-0649), 65–82, doi :10.1007/BF00324102.

Sinyuk, A., et al. (2020), The aeronet version 3 aerosol retrieval algorithm, associated uncertainties and comparisons to version 2, *Atmospheric Measurement Techniques*, *13*(6), 3375–3411, doi :10.5194/amt-13-3375-2020.

Skamarock, W. C., J. B. Klemp, M. G. Duda, L. D. Fowler, S.-H. Park, and T. D. Ringler (2012), A multiscale nonhydrostatic atmospheric model using centroidal voronoi tesselations and c-grid staggering, *Monthly Weather Review*, *140*(9), 3090–3105, doi :10.1175/MWR-D-11-00215.1.

Slinn, W. (1983), Precipitation scavenging. division of biomedical environmental research, us department of energy, washington, dc, *Atmospheric Sciences and Power Production 1979*.

Snider, G., et al. (2015), Spartan : a global network to evaluate and enhance satellite-based estimates of ground-level particulate matter for global health applications, *Atmospheric Measurement Techniques*, *8*(1), 505–521, doi :10.5194/amt-8-505-2015.

Sofiev, M., P. Siljamo, H. Ranta, and A. Rantio-Lehtimaki (2006), Towards numerical forecasting of long-range air transport of birch pollen : theoritical considerations and a feasability study, *Int. J. Biometeorol.*, *50*, 392–402, doi :10.1007/s00484-006-0027-x.

Sofiev, M., T. Ermakova, and R. Vankevich (2012), Evaluation of the smoke-injection height from wild-land fires using remote-sensing data, *Atmospheric Chemistry and Physics*, *12*(4), 1995–2006, doi :10.5194/acp-12-1995-2012.

Sofiev, M., P. Siljamo, H. Ranta, T. Linkosalo, S. Jeager, A. Rasmussen, A. Rantio-Lehtimaki, E. Severova, and J. Kukkonen (2013a), A numerical model of birch pollen emission and dispersion in the atmosphere. Description of the emission module., *Int. J. Biometeorol.*, *57*, 45–58, doi :10.1007/s00484-012-0532-z.

Sofiev, M., R. Vankevich, T. Ermakova, and J. Hakkarainen (2013b), Global mapping of maximum emission heights and resulting vertical profiles of wildfire emissions, *Atmospheric Chemistry and Physics*, *13*(14), 7039–7052, doi :10.5194/acp-13-7039-2013.

Solazzo, E., and S. Galmarini (2015), Comparing apples with apples : Using spatially distributed time series of monitoring data for model evaluation, *Atmos Environ*, *112*, 234 – 245, doi :doi.org/10.1016/j.atmosenv.2015.04.037.

Stajner, I., N. Winslow, R. B. Rood, and S. Pawson (2004), Monitoring of observation errors in the assimilation of satellite ozone data, *Journal of Geophysical Research : Atmospheres*, *109*(D6), doi :10.1029/2003JD004118.

Stensrud, D. (2011), *Parameterization schemes : Keys to understanding numerical weather prediction models*, vol. 9780521865401, Cambridge University Press, United Kingdom, doi :10.1017/CBO9780511812590.

Stevenson, D. S., C. E. Johnson, E. J. Highwood, V. Gauci, W. J. Collins, and R. G. Derwent (2003), Atmospheric impact of the 1783-1784 laki eruption : Part i chemistry modelling, *Atmospheric Chemistry and Physics*, *3*(3), 487–507, doi :10.5194/acp-3-487-2003.

Stockwell, W. R., F. Kirchner, M. Kuhn, and S. Seefeld (1997), A new mechanism for regional atmospheric chemistry modeling, *Journal of Geophysical Research : Atmospheres*, *102*(D22), 25,847–25,879, doi :10.1029/97JD00849.

Stockwell, W. R., C. V. Lawson, E. Saunders, and W. S. Goliff (2012), A review of tropospheric atmospheric chemistry and gas-phase chemical mechanisms for air quality modeling, *Atmosphere*, *3*(1), 1–32, doi :10.3390/atmos3010001.

Stull, R. (1988), *an introduction to boundary layer meteorology*, Kluwer Academic Publishers Group.

Talagrand, O. (1997), Assimilation of observations : an introduction, *Journal of the Meteorological Society of Japan*, *75*(1B), 191–209.

Talagrand, O., and P. Courtier (1987), Variational assimilation of meteorological observations with the adjoint vorticity equations, part I - theory, *Quaterly Journal of the Royal Meteorological Society*, *113*, 1311–1328.

Talagrand, O., R. Vautard, and B. Strauss (1997), Evaluation of probabilistic prediction systems, in *Workshop on Predictability, 20-22 October 1997*, pp. 1–26, ECMWF, ECMWF, Shinfield Park, Reading.

Talagrand, O., R. Vautard, and B. Strauss (1999), Evaluation of probabilistic prediction systems, *Proceedings of the ECMWF Workshop on Predicability*, 20–22 October 1997, ECMWF.

Tarín-Carrasco, P., M. Morales-Suárez-Varela, U. Im, J. Brandt, L. Palacios-Peña, and P. Jiménez-Guerrero (2019), Isolating the climate change impacts on air-pollution-related-pathologies over central and southern europe – a modelling approach on cases and costs, *Atmospheric Chemistry and Physics*, *19*(14), 9385–9398, doi :10.5194/acp-19-9385-2019.

Thompson, G., and T. Eidhammer (2014), A study of aerosols impacts on clouds and precipitation development in a large winter cyclone, *J Atmos Sci*, *71*, 3636–3659, doi :10.1175/JAS-D-13-0305.1.

Thompson, T. M., and N. E. Selin (2012), Influence of air quality model resolution on uncertainty associated with health impacts, *Atmospheric Chemistry and Physics*, *12*(20), 9753–9762, doi :10.5194/acp-12-9753-2012.

Thordarson, T., and S. Self (2003), Atmospheric and environmental effects of the 1783-84 Laki eruption : A review and reassessment, *Journal of Geophysical Research*, *108*, 4011, doi :10.1029/2001JD002042.

Thunis, P., A. Pederzoli, and D. Pernigotti (2012), Performance criteria to evaluate air quality modeling applications, *Atmospheric Environment*, *59*, 476 – 482, doi :10.1016/j.atmosenv.2012.05.043.

Thunis, P., et al. (2007), Analysis of model responses to emission-reduction scenarios within the city-delta project, *Atmospheric Environment*, *41*, 208–220.

Tombette, M., V. Mallet, and B. Sportisse (2009), Pm_{10} data assimilation over europe with the optimal interpolation method, *Atmospheric Chemistry and Physics*, *9*(1), 57–70, doi :10.5194/acp-9-57-2009.

Tong, D., et al. (2020), Dynamic projection of anthropogenic emissions in china : methodology and 2015–2050 emission pathways under a range of socio-economic, climate policy, and pollution control scenarios, *Atmospheric Chemistry and Physics*, *20*(9), 5729–5757, doi :10.5194/acp-20-5729-2020.

Tørseth, K., W. Aas, K. Breivik, A. M. Fjæraa, M. Fiebig, A. G. Hjellbrekke, C. Lund Myhre, S. Solberg, and K. E. Yttri (2012), Introduction to the european monitoring and evaluation programme (emep) and observed atmospheric composition change during 1972-2009, *Atmospheric Chemistry and Physics*, *12*(12), 5447–5481, doi :10.5194/acp-12-5447-2012.

Tost, H. (2017), Chemistry–climate interactions of aerosol nitrate from lightning, *Atmospheric Chemistry and Physics*, *17*(2), 1125–1142, doi :10.5194/acp-17-1125-2017.

Tost, H., P. Jöckel, and J. Lelieveld (2007), Lightning and convection parameterisations - uncertainties in global modelling, *Atmospheric Chemistry and Physics*, *7*(17), 4553–4568, doi :10.5194/acp-7-4553-2007.

Troen, I., and L. Mahrt (1986), A simple model of the atmospheric boundary layer : Sensitivity to surface evaporation, *Boundary-Layer Meteorology*, *37*, 129–148.

Tsyro, S. (2002), First estimates of the effect of aerosol dynamics in the calculation of PM10 and PM2.5, *EMEP report*, *4/02*(MSC-W), Norwegian Meteorological Institute, Oslo.

Tuccella, P., L. Menut, R. Briant, A. Deroubaix, D. Khvorostyanov, S. Mailler, G. Siour, and S. Turquety (2019), Implementation of Aerosol-Cloud Interaction within WRF-CHIMERE Online Coupled Model : Evaluation and Investigation of the Indirect Radiative Effect from Anthropogenic Emission Reduction on the Benelux Union, *Atmosphere*, *10*(20), doi :10.3390/atmos10010020.

Tunved, P., and J. Ström (2019), On the seasonal variation in observed size distributions in northern europe and their changes with decreasing anthropogenic emissions in europe : climatology and trend analysis based on 17 years of data from aspvreten, sweden, *Atmospheric Chemistry and Physics*, *19*(23), 14,849–14,873, doi :10.5194/acp-19-14849-2019.

Turnock, S. T., et al. (2018), The impact of future emission policies on tropospheric ozone using a parameterised approach, *Atmospheric Chemistry and Physics*, *18*(12), 8953–8978, doi :10.5194/acp-18-8953-2018.

Turquety, S., L. Menut, B. Bessagnet, A. Anav, N. Viovy, F. Maignan, and M. Wooster (2014), APIFLAME v1.0 : High resolution fire emission model and application to the Euro-Mediterranean region, *Geoscientific Model Development*, *7*, 587–612, doi : 10.5194/gmd-7-587-2014.

Valari, M., and L. Menut (2008), Does increase in air quality models resolution bring surface ozone concentrations closer to reality ?, *Journal of Atmospheric and Oceanic Technology*, doi :10.1175/2008JTECHA1123.1.

Valari, M., E. Chatignoux, and L. Menut (2011), Using a chemistry transport model to account for the spatial variability of exposure-concentrations in epidemiologic air pollution studies, *Journal of the Air and Waste Management Association*, *61*, 164–179.

van den Berg, A., F. Dentener, and J. Lelieveld (2000), Modeling the chemistry of the marine boundary layer : Sulphate formation and the role of sea-salt aerosol particles, *Journal of Geophysical Research : Atmospheres*, *105*(D9), 11,671–11,698, doi :10.1029/1999JD901073.

Van Leer, B. (1979), Towards the ultimate conservative difference scheme. A second order sequel to Godunov's method, *J. Computational Phys.*, *32*, 101–136.

Van Loon, M., et al. (2007), Evaluation of long-term ozone simulations from seven regional air quality models and their ensemble average, *Atmospheric Environemnt*, *41*, 2083–2097.

Vautard, R., M. Beekmann, J. Roux, and D. Gombert (2001), Validation of a hybrid forecasting system for the ozone concentrations over the Paris area, *Atmos. Environ.*, *35*, 2449–2461.

Vautard, R., C. Honoré, M. Beekmann, and L. Rouil (2005), Simulation of ozone during the August 2003 heat wave and emission control scenarios, *Atmospheric Environment*, *39*(16), 2957–2967.

Vautard, R., et al. (2009), Skill and uncertainty of a regional air quality model ensemble, *Atmospheric Environment*, *43*(31), 4822–4832, doi :10.1016/j.atmosenv.2008.09.083.

Vautard, R., et al. (2012), Evaluation of the meteorological forcing used for the Air Quality Model Evaluation International Initiative (AQMEII) air quality simulations, *Atmospheric Environment*, *53*, 15 – 37, doi :doi.org/10.1016/j.atmosenv.2011.10.065.

Veira, A., S. Kloster, S. Wilkenskjeld, and S. Remy (2015), Fire emission heights in the climate system - part 1 : Global plume height patterns simulated by echam6-ham2, *Atmospheric Chemistry and Physics*, *15*(13), 7155–7171, doi :10.5194/acp-15-7155-2015.

Verhoelst, T., et al. (2020), Ground-based validation of the copernicus sentinel-5p tropomi no_2 measurements with the ndacc zsl-doas, max-doas and pandonia global networks, *Atmospheric Measurement Techniques Discussions*, *2020*, 1–40, doi : 10.5194/amt-2020-119.

Verwer, J. (1994), Gauss-Seidel Iteration for Stiff ODES from Chemical Kinetics, *SIAM J. Sci. Comput.*, *15*(5), 1243–1250, doi : 10.1137/0915076.

Verwer, J., and D. Simpson (1995), Explicit methods for stiff odes from atmospheric chemistry, *Applied Numerical Mathematics*, *18*(1), 413 – 430, doi :10.1016/0168-9274(95)00068-6.

Vestreng, V., L. Ntziachristos, A. Semb, S. Reis, I. S. A. Isaksen, and L. Tarrasón (2009), Evolution of no$_x$ emissions in europe with focus on road transport control measures, *Atmospheric Chemistry and Physics*, *9*(4), 1503–1520, doi :10.5194/acp-9-1503-2009.

Viana, M., X. Querol, A. Alastuey, F. Ballester, S. Llop, A. Esplugues, R. Fernandez-Patier, S. Garcia dos Santos, and M. Herce (2008), Characterising exposure to pm aerosols for an epidemiological study, *Atmospheric Environment*, *42*(7), 1552–1568, doi :10.1016/j.atmosenv.2007.10.087.

Vira, J., and M. Sofiev (2012), On variational data assimilation for estimating the model initial conditions and emission fluxes for short-term forecasting of sox concentrations, *Atmospheric Environment*, *46*, 318–328, doi :10.1016/j.atmosenv.2011.09.066.

Vivanco, M., et al. (2017), Joint analysis of deposition fluxes and atmospheric concentrations of inorganic nitrogen and sulphur compounds predicted by six chemistry transport models in the frame of the EURODELTAIII project, *Atmospheric Environment*, *151*, 152 – 175, doi :dx.doi.org/10.1016/j.atmosenv.2016.11.042.

Vivanco, M. G., et al. (2018), Modelled deposition of nitrogen and sulfur in europe estimated by 14 air quality model-systems : Evaluation, effects of changes in emissions and implications for habitat protection, *Atmospheric Chemistry and Physics Discussions*, *2018*, 1–35, doi :10.5194/acp-2018-104.

Vogel, B., H. Vogel, D. Bäumer, M. Bangert, K. Lundgren, R. Rinke, and T. Stanelle (2009), The comprehensive model system cosmo-art : Radiative impact of aerosol on the state of the atmosphere on the regional scale, *Atmospheric Chemistry and Physics*, *9*(22), 8661–8680, doi :10.5194/acp-9-8661-2009.

Vogel, H., J. Förstner, B. Vogel, T. Hanisch, B. Mühr, U. Schättler, and T. Schad (2014), Time-lagged ensemble simulations of the dispersion of the eyjafjallajökull plume over europe with cosmo-art, *Atmospheric Chemistry and Physics*, *14*(15), 7837–7845, doi :10.5194/acp-14-7837-2014.

von Storch, H., and F. Zwiers (2001), *Statistical Analysis in Climate Research*, Cambridge University Press.

Vuolo, M., L. Menut, and H. Chepfer (2009), Impact of transport schemes accuracy on modelled dust concentrations variability, *Journal of Atmospheric and Oceanic Technology*, *26*, 1135–1143, doi :10.1175/2008JTECHA1197.1.

Wang, L., A. P. K. Tai, C.-Y. Tam, M. Sadiq, P. Wang, and K. K. W. Cheung (2020), Impacts of future land use and land cover change on mid-21st-century surface ozone air quality : distinguishing between the biogeophysical and biogeochemical effects, *Atmospheric Chemistry and Physics*, *20*(19), 11,349–11,369, doi :10.5194/acp-20-11349-2020.

Wang, Q., Z. Li, J. Guo, C. Zhao, and M. Cribb (2018), The climate impact of aerosols on the lightning flash rate : is it detectable from long-term measurements ?, *Atmospheric Chemistry and Physics*, *18*(17), 12,797–12,816, doi :10.5194/acp-18-12797-2018.

Wang, Y., A. DeSilva, G. Goldenbaum, and R. Dickerson (1998), Nitric oxide production by simulated lightning : Dependence on current, energy and pressure, *Journal of Geophysical Research : Atmospheres*, *103*(D15), 19,149–19,159, doi :0148-0227/98/98JD-01356.

Wanninkhof, R. (1992), Relationship between wind speed and gas exchange over the ocean, *Journal of Geophysical Research : Oceans*, *97*(C5), 7373–7382, doi :10.1029/92JC00188.

Waquet, F., F. Peers, P. Goloub, F. Ducos, F. Thieuleux, Y. Derimian, J. Riedi, M. Chami, and D. Tanré (2014), Retrieval of the eyjafjallajökull volcanic aerosol optical and microphysical properties from polder/parasol measurements, *Atmospheric Chemistry and Physics*, *14*(4), 1755–1768, doi :10.5194/acp-14-1755-2014.

Weger, M., et al. (2018), The impact of mineral dust on cloud formation during the saharan dust event in april 2014 over europe, *Atmospheric Chemistry and Physics*, *18*(23), 17,545–17,572, doi :10.5194/acp-18-17545-2018.

Weill, A., C. Klapisz, B. Strauss, F. Baudin, C. Jaupart, P. Van Grunderbeeck, and J. P. Goutorbe (1979), Measuring Heat Flux and Structure Functions of Temperature Fluctuations with an Acoustic Doppler Sodar, *Journal of Applied Meteorology*, *19*(2), 199–205, doi :10.1175/1520-0450(1980)019<0199 :MHFASF>2.0.CO ;2.

Wesely, M. (1989), Parameterization of Surface Resistances to Gaseous Dry Deposition in Regional-Scale Numerical Models, *Atmospheric Environment*, *23*(23), 1293–1304.

White, B. R. (1986), Particle dynamics in two-phase flows : Chapter 8 of encyclopedia of fluid mechanics, *Gulf Publishing, Houston, TX, USA*, pp. 239–282.

Wilks, D. (2006), *Statistical methods in the atmospheric sciences*, Elsevier.

Winker, D. M., A. O. M. A. Vaughan, Y. Hu, K. A. Powell, Z. Liu, W. H. Hunt, and S. A. Young (2009), Overview of the calipso mission and caliop data processing algorithms, *Journal of Atmospheric and Oceanic Technology*, *26*(2310-2323).

Wong, D. C., et al. (2012), Wrf-cmaq two-way coupled system with aerosol feedback : software development and preliminary results, *Geoscientific Model Development*, *5*(2), 299–312, doi :10.5194/gmd-5-299-2012.

Wong, J., M. C. Barth, and D. Noone (2013), Evaluating a lightning parameterization based on cloud-top height for mesoscale numerical model simulations, *Geoscientific Model Development*, *6*(2), 429–443, doi :10.5194/gmd-6-429-2013.

Woodage, M. J., and S. Woodward (2014), U.k. higem : Impacts of desert dust radiative forcing in a high-resolution atmospheric gcm, *Journal of Climate*, *27*(15), 5907–5928, doi :10.1175/JCLI-D-13-00556.1.

Woody, M. C., K. R. Baker, P. L. Hayes, J. L. Jimenez, B. Koo, and H. O. T. Pye (2016), Understanding sources of organic aerosol during calnex-2010 using the cmaq-vbs, *Atmospheric Chemistry and Physics*, *16*(6), 4081–4100, doi :10.5194/acp-16-4081-2016.

Wu, L., V. Mallet, M. Bocquet, and B. Sportisse (2008), A comparison study of data assimilation algorithms for ozone forecasts, *Journal of Geophysical Research : Atmospheres*, *113*(D20), doi :10.1029/2008JD009991.

Yang, B., Y. Qian, G. Lin, R. Leung, and Y. Zhang (2012), Some issues in uncertainty quantification and parameter tuning : a case study of convective parameterization scheme in the wrf regional climate model, *Atmospheric Chemistry and Physics*, *12*(5), 2409–2427, doi :10.5194/acp-12-2409-2012.

Yang, Q., et al. (2015), Aerosol transport and wet scavenging in deep convective clouds : A case study and model evaluation using a multiple passive tracer analysis approach, *Journal of Geophysical Research : Atmospheres*, *120*(16), 8448–8468, doi : 10.1002/2015JD023647.

Yiou, P., M. Boichu, R. Vautard, M. Vrac, S. Jourdain, E. Garnier, F. Fluteau, and L. Menut (2014), Ensemble meteorological reconstruction using circulation analogues of 1781-1785, *Climate of the Past*, *10*, 797–809, doi :10.5194/cp-10-797-2014.

Yu, S., R. Mathur, J. Pleim, D. Wong, R. Gilliam, K. Alapaty, C. Zhao, and X. Liu (2014), Aerosol indirect effect on the grid-scale clouds in the two-way coupled wrf-cmaq : model description, development, evaluation and regional analysis, *Atmospheric Chemistry and Physics*, *14*(20), 11,247–11,285, doi :10.5194/acp-14-11247-2014.

Zavarsky, A., L. Goddijn-Murphy, T. Steinhoff, and C. A. Marandino (2018), Bubble-Mediated Gas Transfer and Gas Transfer Suppression of DMS and CO2, *Journal of Geophysical Research : Atmospheres*, *123*(12), 6624–6647, doi :10.1029/2017JD028071.

Zaveri, R. A., R. C. Easter, J. D. Fast, and L. K. Peters (2008), Model for simulating aerosol interactions and chemistry (mosaic), *Journal of Geophysical Research : Atmospheres*, *113*(D13), doi :10.1029/2007JD008782.

Zhang, F., N. Bei, J. W. Nielsen-Gammon, G. Li, R. Zhang, A. Stuart, and A. Aksoy (2007), Impacts of meteorological uncertainties on ozone pollution predictability estimated through meteorological and photochemical ensemble forecasts, *Journal of Geophysical Research : Atmospheres*, *112*(D4), doi :10.1029/2006JD007429.

Zhang, H., J. C. Linford, A. Sandu, and R. Sander (2011), Chemical mechanism solvers in air quality models, *Atmosphere*, *2*(3), 510–532, doi :10.3390/atmos2030510.

Zhang, L., S. Gong, J. Padro, and L. Barrie (2001), A size-segregated particle dry deposition scheme for an atmospheric aerosol module, *Atmospheric Environment*, *35(3)*, 549–560.

Zhang, Q. J., et al. (2015), Formation of secondary organic aerosol in the paris pollution plume and its impact on surrounding regions, *Atmospheric Chemistry and Physics*, *15*(24), 13,973–13,992, doi :10.5194/acp-15-13973-2015.

Zhang, Y. (2008), Online-coupled meteorology and chemistry models : history, current status, and outlook, *Atmospheric Chemistry and Physics*, *8*(11), 2895–2932, doi :10.5194/acp-8-2895-2008.

Zhang, Y., C. Seigneur, J. H. Seinfeld, M. Z. Jacobson, and F. S. Binkowski (1999), Simulation of aerosol dynamics : A comparative review of algorithms used in air quality models, *Aerosol Science and Technology*, *31*(6), 487–514, doi : 10.1080/027868299304039.

Zhang, Y., M. Bocquet, V. Mallet, C. Seigneur, and A. Baklanov (2012a), Real-time air quality forecasting, part i : History, techniques, and current status, *Atmospheric Environment*, *60*, 632–655, doi :10.1016/j.atmosenv.2012.06.031.

Zhang, Y., M. Bocquet, V. Mallet, C. Seigneur, and A. Baklanov (2012b), Real-time air quality forecasting, part ii : State of the science, current research needs, and future prospects, *Atmospheric Environment*, *60*, 656–676, doi : 10.1016/j.atmosenv.2012.02.041.

Zhang, Y., K. M. Foley, D. B. Schwede, J. O. Bash, J. P. Pinto, and R. L. Dennis (2019), A measurement-model fusion approach for improved wet deposition maps and trends, *Journal of Geophysical Research : Atmospheres*, *124*(7), 4237–4251, doi :https ://doi.org/10.1029/2018JD029051.

Zhao, A., M. A. Bollasina, M. Crippa, and D. S. Stevenson (2019), Significant climate impacts of aerosol changes driven by growth in energy use and advances in emission control technology, *Atmospheric Chemistry and Physics*, *19*(23), 14,517–14,533, doi : 10.5194/acp-19-14517-2019.

Zhao, C., X. Liu, L. R. Leung, B. Johnson, S. A. McFarlane, W. I. Gustafson Jr., J. D. Fast, and R. Easter (2010), The spatial distribution of mineral dust and its shortwave radiative forcing over North Africa : modeling sensitivities to dust emissions and aerosol size treatments, *Atmospheric Chemistry and Physics*, *10*(18), 8821–8838, doi :10.5194/acp-10-8821-2010.

Zheng, B., et al. (2018), Trends in china's anthropogenic emissions since 2010 as the consequence of clean air actions, *Atmospheric Chemistry and Physics*, *18*(19), 14,095–14,111, doi :10.5194/acp-18-14095-2018.

Zheng, D., J. Leung, B. Lee, and H. Lam (2007), Data assimilation in the atmospheric dispersion model for nuclear accident assessments, *Atmospheric Environment*, *41*(11), 2438–2446, doi :10.1016/j.atmosenv.2006.05.076.

Zheng, J., J. Zhu, Z. Wang, F. Fang, C. C. Pain, and J. Xiang (2015), Towards a new multiscale air quality transport model using the fully unstructured anisotropic adaptive mesh technology of fluidity (version 4.1.9), *Geoscientific Model Development*, *8*(10), 3421–3440, doi :10.5194/gmd-8-3421-2015.

Zhou, C., X. Zhang, S. Gong, Y. Wang, and M. Xue (2016), Improving aerosol interaction with clouds and precipitation in a regional chemical weather modeling system, *Atmospheric Chemistry and Physics*, *16*(1), 145–160, doi :10.5194/acp-16-145-2016.

Zink, K., A. Pauling, M. Rotach, H. Vogel, P. Kaufmann, and B. Clot (2013), EMPOL1.0 : a new parameterization of pollen emission in numerical weather prediction models, *Geosci. Model. Dev.*, *6*, 1961–1975, doi :10.5194/gmdd-6-1961-2013.

Zobler, L. (1986), A world soil file for global climate modeling, *NASA Tech. Memo. 87802*, p. 33.

Zyryanov, D., et al. (2012), 3-d evaluation of tropospheric ozone simulations by an ensemble of regional chemistry transport model, *Atmospheric Chemistry and Physics*, *12*(7), 3219–3240, doi :10.5194/acp-12-3219-2012.