

Introduction aux modèles de chimie-transport pour la qualité de l'air Master SGE

Vivien Mallet

INRIA*

CEREA†

vivien.mallet@inria.fr

Janvier 2010

Table des matières

1	Introduction	2
2	Modélisation des processus physiques	4
2.1	Transport de polluants	4
2.1.1	Structure de l'atmosphère	4
2.1.2	Transport par le vent	6
2.1.3	Turbulence	6
2.2	Chimie	7
2.2.1	Composition chimique de l'atmosphère	7
2.2.2	Chimie de l'atmosphère	8
2.3	Autres processus	8
2.3.1	Émissions	8
2.3.2	Dépôt sec	9
2.3.3	Dépôt humide	9
2.4	Mise en équation	9
2.4.1	Transport	9
2.4.2	Transport réactif	10
2.4.3	Conditions aux limites	12
2.4.4	Paramétrisations	12

*Équipe-projet CLIME, commune entre l'INRIA et l'École des Ponts ParisTech

†Laboratoire commun entre l'École des Ponts ParisTech et EDF R&D, université Paris-Est

3	Intégration numérique	13
3.1	Introduction	14
3.2	Discrétisation	14
3.3	Schémas numériques pour le transport	16
3.4	Propriétés des schémas numériques : illustration avec l'advection	18
3.5	Séparation d'opérateurs	20
3.6	Intégration numérique de la chimie	20
3.7	Autres modèles	21
4	Système de modélisation	21
4.1	Introduction	21
4.2	Données	22
4.3	Déroulement d'une simulation	23
4.4	Caractéristiques des modèles de chimie-transport	23
4.4.1	Grande dimension	23
4.4.2	Incertitudes	24
4.5	Notes sur l'utilisation des modèles	24

1 Introduction

MODÈLE : *Système physique, mathématique ou logique représentant les structures essentielles d'une réalité et capable à son niveau d'en expliquer ou d'en reproduire dynamiquement le fonctionnement*
Trésor de la langue française informatisé¹

Les modèles de chimie-transport² sont des implémentations numériques de modèles physiques qui décrivent l'évolution de polluants atmosphériques. Cette évolution est due au *transport* (par le vent) des polluants dans l'atmosphère et aux *réactions chimiques* auxquelles les polluants participent.

En estimant les concentrations de divers polluants, les modèles de chimie-transport permettent notamment de simuler la qualité de l'air. La qualité de l'air renvoie généralement à la pollution chronique de l'air au voisinage du sol, c'est-à-dire à la pollution atmosphérique potentiellement néfaste aux humains ou aux cultures agricoles. La définition étant fluctuante, on peut éventuellement l'étendre à la pollution accidentelle (par exemple, au rejet d'éléments radioactifs suite à un accident nucléaire). La qualité de l'air est décrite objectivement par les concentrations de polluants.

Concernant la qualité de l'air, les modèles de chimie-transport interviennent dans quatre grandes classes d'activité :

1. la *prévision* de la qualité de l'air. Les concentrations de polluants sont prévues quotidiennement sur quelques jours suivant le jour courant. Une prévision est généralement initialisée par la prévision du jour précédent. Des prévisions météorologiques sont fournies par un modèle météorologique, ce qui suffit au modèle de chimie-transport pour générer des prévisions de concentrations de polluants. Un bon exemple d'une

¹<http://atilf.atilf.fr/>

²Parfois désignés par « CTM » pour « chemistry-transport model ».

telle application est la plate-forme de prévision Prév'air³, opérée par l'INERIS⁴, qui propose quotidiennement des simulations sur quatre jours (depuis la veille jusqu'au surlendemain). Par abus de langage, on peut également parler de prévision dans le cas de simulations effectuées sur une période passée. Les simulations en question ne doivent cependant pas faire appel à de l'assimilation de données (voir ci-dessous) puisque cette dernière repose sur des observations inconnues en prévision.

2. la *modélisation inverse*. Il est possible de tirer parti des données d'observation dans le but d'améliorer les champs d'entrée du modèle de chimie-transport. Des méthodes dédiées permettent de corriger les champs d'entrée de sorte à diminuer l'écart entre les concentrations simulées et les observations. Ces méthodes sont des procédures d'assimilation de données. Lorsque les champs d'entrée optimisés par la procédure d'assimilation peuvent être utilisés pour d'autres simulations (reproductibilité), on parle de modélisation inverse. La modélisation inverse est une procédure d'amélioration des simulations d'un modèle de chimie-transport, mais elle peut être une finalité puisqu'elle affine des champs d'entrée (par exemple, des émissions). Si une procédure de modélisation inverse est fiable, elle constitue une voie d'amélioration de données mal connues.
3. le développement de la *modélisation physique*. La modélisation physique, c'est-à-dire la description mathématique des phénomènes physiques, peut bénéficier des simulations des modèles de chimie-transport. Il est parfois impossible de rendre compte en laboratoire de l'ensemble des phénomènes qui interviennent dans l'évolution d'un polluant. Les modèles de chimie-transport permettent de tester et donc de développer des modèles physiques via des expériences numériques comparées aux observations. Ces expériences numériques ont l'avantage de simuler une grande partie de la complexité de l'atmosphère.
4. les *études d'impact*. Lorsque les simulations sont effectuées sur plusieurs années futures, le terme de prévision, qui se réfère à des simulations détaillées et de courte durée, est abandonné au profit du terme impact. Ces études sont en effet centrées sur l'impact de la pollution sur de longues périodes futures et généralement sur l'impact de changements en amont. En particulier, les études d'impact servent souvent à évaluer les conséquences de réductions d'émissions. Elles nécessitent des approximations, du fait de leur coût calcul, et à cause du manque de connaissance des situations futures (conditions météorologiques, niveaux d'émissions). Il faut noter deux points très importants : les conditions de ces simulations sont généralement inédites (par exemple, avec des émissions divisées par deux), et il n'y a pas d'observations pour contraindre les modèles.

Il faut de plus noter la diversité des cas d'application. Les polluants concernés par les simulations peuvent être des traceurs passifs, c'est-à-dire des espèces ne participant pas à des réactions chimiques. Il s'agit des applications parmi les plus simples. On peut par exemple citer la dispersion de radionucléides où seul un terme de décroissance radioactive vient s'ajouter au transport dans l'atmosphère. Les métaux lourds peuvent faire partie de ces applications encore assez simples puisqu'ils sont raisonnablement simulés avec peu d'espèces chimiques et une chimie linéaire. À un niveau de complexité supérieur, on trouve

³<http://www.prevoir.org/>

⁴Institut national de l'environnement industriel et des risques, <http://www.ineris.fr/>

les mécanismes chimiques comme ceux du cycle de l’ozone ou des oxydes d’azote. Les cas les plus complexes concernent les aérosols qui interagissent avec la phase gazeuse, et dont la distribution (en masse) et la composition évoluent selon des processus physiques difficiles à simuler (nucléation, évaporation/condensation, coagulation).

Les applications peuvent concerner des échelles spatiales très différentes, depuis l’échelle dite locale (quelques dizaines de mètres) jusqu’à l’échelle globale. La physique doit être décrite de manière adaptée selon les échelles.

Afin d’introduire aux modèles de chimie-transport, ce document reprend leurs étapes de construction :

Section 2 – la modélisation physique : les processus physiques sont décrits par des modèles mathématiques, souvent simplifiés du fait de changements d’échelle et du défaut de connaissance des processus. Par des explications succinctes, les principaux processus sont introduits dans cette section.

Section 3 – l’intégration numérique : les équations issues de la modélisation physique sont discrétisées et intégrées (en temps) numériquement.

Section 4 – l’insertion dans un système de modélisation : les modèles de chimie-transport s’intègrent dans un système complet gérant notamment le flot des données (météorologiques, concentrations simulées, observations).

2 Modélisation des processus physiques

Pour approfondir ce qui est présenté ci-dessous, les références suivantes sont indiquées :

- R. B. STULL, *An introduction to boundary layer meteorology*, Kluwer Academic Publishers, 1988,
- D. J. JACOB, *Introduction to atmospheric chemistry*, Princeton University Press, 1999,
- J. H. SEINFELD AND S. N. PANDIS, *Atmospheric chemistry and physics : from air pollution to climate change*, Wiley-Interscience, 1998,
- J. R. GARRAT, *The atmospheric boundary layer*, Cambridge University Press, 1992,
- J. R. HOLTON, *An introduction to dynamic meteorology*, Academic Press, fourth ed., 2004.

2.1 Transport de polluants

2.1.1 Structure de l’atmosphère

L’atmosphère est divisée en plusieurs couches définies à partir du profil vertical de température. La figure 1 illustre les quatre premières couches de l’atmosphère :

1. la troposphère entre 0 km et 8–18 km caractérisée par une décroissance de la température avec l’altitude ;
2. la stratosphère, au-dessus de la troposphère, s’étendant jusqu’à environ 50 km et caractérisée par une température croissante avec l’altitude (réchauffement dû l’absorption du rayonnement solaire par la couche d’ozone) ;
3. la mésosphère qui est située entre la stratosphère et 80 km ;

4. la thermosphère qui s'étend jusqu'à environ 500 km.

On appelle tropopause, stratopause et mésopause les limites supérieures respectives de la troposphère, de la stratosphère et de la mésosphère.

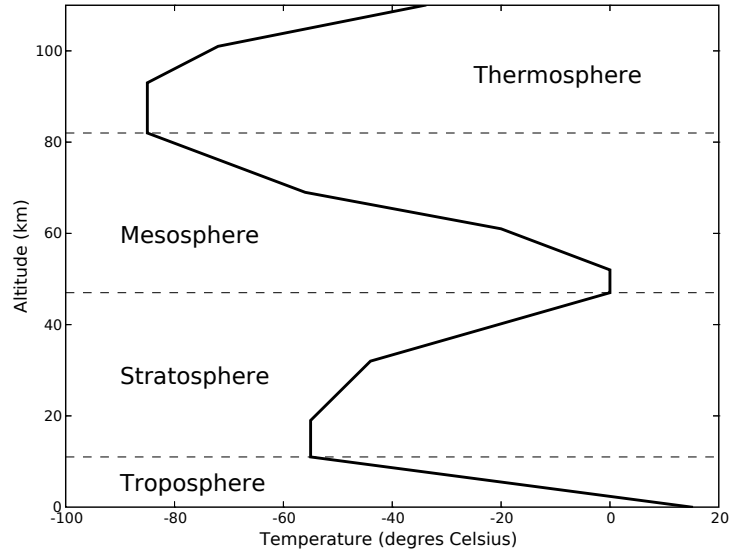


FIG. 1 – Profil vertical typique de température et principales couches de l'atmosphère.

En qualité de l'air, les cibles sont les concentrations de certains polluants uniquement dans les premiers mètres, c'est-à-dire les quantités de polluants ayant un impact potentiel (sur les populations ou les cultures agricoles). Or les transferts entre la stratosphère et la troposphère sont suffisamment lents pour qu'un grand nombre de polluants (en qualité de l'air) ne soient pas directement sensibles aux variations de ces échanges. Ainsi, on se restreint généralement à la troposphère et, en fait, à une partie de celle-ci appelée couche limite atmosphérique.

Ainsi que proposé dans [11], on peut définir la couche limite (atmosphérique – « couche limite » se réfère désormais à « couche limite atmosphérique ») comme la partie de la troposphère qui est influencée en une heure ou moins par des changements au voisinage de la surface terrestre (réchauffement, évaporation, émissions de polluant, etc.). Comme représentée par la figure 2, la couche limite atmosphérique s'étend sur environ un kilomètre. Plus précisément, sa hauteur peut varier entre quelques dizaines de mètres (la nuit) et quelques kilomètres.

Au-dessus de la couche limite se situe la troposphère libre. Les polluants présents dans cette dernière contribuent assez peu aux concentrations observées au sol. La description de cette partie de l'atmosphère a cependant une importance du fait des nuages qui s'y développent. Ces derniers ont un impact sur les concentrations de polluant au sol via leur atténuation du rayonnement solaire (température au sol, réactions photolytiques), la convection qu'ils peuvent engendrer (voir section 2.1.3) et éventuellement les précipitations dont ils sont à l'origine.

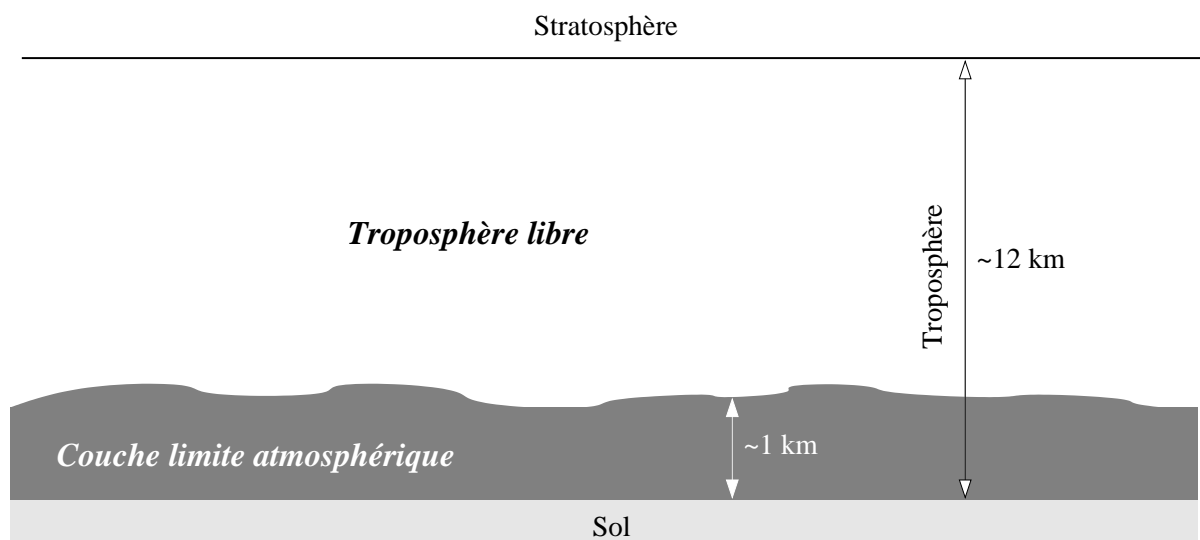


FIG. 2 – Structure de la troposphère.

2.1.2 Transport par le vent

Lorsqu'il s'agit du transport de polluants, on distingue généralement le transport dû à la convection (section 2.1.3) et celui dû aux vents (rigoureusement appelés vents moyens – les déplacements d'air convectifs correspondant aux fluctuations du vent).

Les principales composantes du vent (moyen) sont horizontales. Le vent est d'ailleurs, et de loin, la source essentielle du transport horizontal. Il s'annule au voisinage du sol sous l'effet de la rugosité et augmente avec l'altitude. Dans la couche limite atmosphérique, les vents horizontaux sont typiquement de l'ordre de quelques mètres par seconde ($2\text{--}10\text{ m s}^{-1}$).

Les vents verticaux sont très faibles : ils sont de l'ordre du millimètre ou du centimètre par seconde. Ils sont négligeables par rapport à la turbulence.

2.1.3 Turbulence

On peut représenter les mouvements turbulents par des tourbillons dont l'amplitude peut aller jusqu'à la hauteur de la couche limite. La turbulence naît principalement (par échelle croissante)

1. d'obstacles au sol qui laissent une traînée turbulente,
2. du cisaillement du vent,
3. du réchauffement au sol (dû au rayonnement solaire) qui élève les masses d'air réchauffées au contact du sol,
4. de la convection nuageuse.

À l'échelle de la couche limite et pour de grandes échelles horizontales, la présence d'obstacles n'est pas une source importante de turbulence. Le cisaillement du vent joue un rôle important puisqu'il détermine la hauteur de couche limite la nuit. Le réchauffement au sol est le phénomène principal en journée et il conditionne la hauteur de la couche limite. La convection nuageuse n'apparaît pas systématiquement en présence de nuages.

Lorsqu'elle se produit, elle domine la turbulence et génère un transport vertical important sur de longues distances (jusqu'à quelques kilomètres).

Puisque le vent vertical est très faible, le transport vertical est principalement turbulent. En conséquence, la turbulence définit la hauteur de la couche limite. La figure 3 représente l'évolution temporelle de la couche limite. Le jour, un peu après le lever du soleil, la couche limite dite instable croît pour atteindre son maximum un peu après midi. Cette couche est mélangée sous l'action de la turbulence générée par un réchauffement du sol. Elle peut atteindre 2 à 3 kilomètres. Les polluants y sont dispersés rapidement. Pendant la nuit, le mélange est beaucoup moins efficace, dans une couche limite de quelques centaines de mètres.

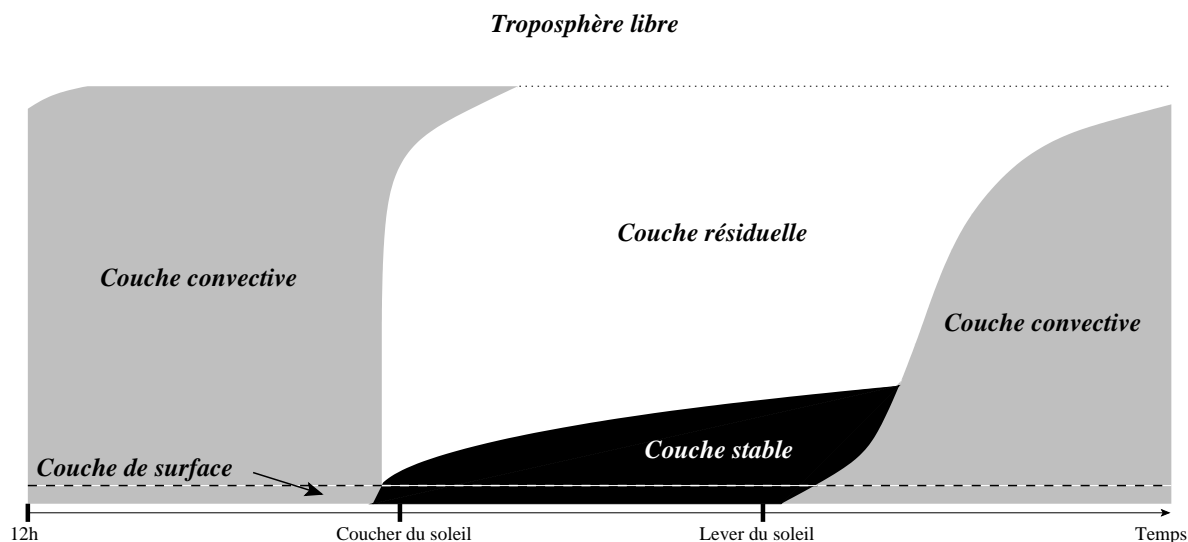


FIG. 3 – Évolution temporelle de la couche limite atmosphérique. Inspiré par [11].

Au-dessus de la couche (nocturne) stable se situe la couche résiduelle. Rigoureusement parlant, elle fait partie de la troposphère libre puisqu'elle n'a pratiquement pas d'échanges avec la couche stable. Sa hauteur est celle de la couche limite du jour précédent. On y trouve des polluants mélangés pendant le jour précédent. Environ trente minutes avant le coucher du soleil, la turbulence due au réchauffement par le sol s'éteint ; les polluants, au-dessus de la couche stable qui se forme, demeurent dans la couche résiduelle.

On définit enfin une couche de surface dans laquelle les flux turbulents varient de moins de 10%. On parle parfois de couche à flux constants. On considère que la hauteur de la couche de surface est environ 10% de celle de la couche limite atmosphérique.

2.2 Chimie

2.2.1 Composition chimique de l'atmosphère

Outre les molécules présentes en quantité importante (N_2 , O_2 et Ar), de nombreuses molécules, appelées espèces chimiques, se trouvent à l'état de trace dans l'atmosphère. Leur concentration varie généralement entre quelques picogrammes et quelques milligrammes par mètre cube.

Les espèces peuvent être en phase gazeuse, liquide ou solide. Dans les deux derniers cas, on parle d'aérosols ou de particules. Les aérosols possèdent des tailles entre quelques nanomètres et plus de 100 μm . Ils peuvent avoir un impact sur le rayonnement solaire en l'absorbant.

À chaque espèce dans l'atmosphère, on peut associer un temps de vie qui dépend de ses réactions chimiques (section 2.2.2) et de ses pertes par dépôt au sol (section 2.3). Certaines espèces instables se combinent très rapidement avec d'autres molécules et ont donc des temps de vie très courts (quelques secondes). D'autres réagissent peu et déposent peu au regard de leur concentrations moyennes, elles résident alors jusqu'à plusieurs années dans l'atmosphère. De telles espèces sont transportées sur de très longues distances (elles parcourent tout l'hémisphère). Elles disposent du temps suffisant pour diffuser jusque dans la stratosphère.

On distingue les espèces primaires qui sont émises dans l'atmosphère des espèces secondaires qui sont uniquement le produit de réactions chimiques (section suivante).

2.2.2 Chimie de l'atmosphère

Si certains polluants sont inertes, de nombreux polluants se transforment ou réagissent entre eux selon des réactions allant de la photolyse à des réactions impliquant plusieurs molécules.

Les réactions photolytiques conduisent à la décomposition d'une molécule sous l'effet du rayonnement solaire. Leurs constantes de réaction (constantes photolytiques) sont directement dépendantes du flux solaire. La photolyse est d'autant moins efficace que le rayonnement solaire parcourt de longues distances dans l'atmosphère. Ainsi il y a une forte dépendance envers l'angle zénithal⁵ et l'altitude dans l'atmosphère. De plus les constantes photolytiques varient fortement avec la période de l'année et la couverture nuageuse. Dans le cas d'une diminution des constantes due à la présence de nuages, on parle d'atténuation nuageuse. Il est à noter que les nuages augmentent les constantes photolytiques au-dessus d'eux puisqu'ils réfléchissent les rayons. Enfin, d'une molécule à l'autre, la sensibilité au rayonnement solaire diffère. En particulier, chaque liaison moléculaire peut uniquement être cassée par certaines longueurs d'onde.

Les autres réactions en phase gazeuse sont plus communes. Elles impliquent plusieurs espèces et leur efficacité dépend des conditions (concentrations, température, pression, humidité).

Les espèces en phase gazeuse peuvent aussi réagir avec les aérosols. Il peut s'agir de réactions de surface lorsqu'elles ont lieu à la surface des particules solides. Certaines réactions se déroulent aussi dans les gouttes d'eau (nuages) avec des espèces qui ont au préalable diffusé dans ces gouttes.

2.3 Autres processus

2.3.1 Émissions

Les polluants primaires sont rejetés dans l'atmosphère par l'industrie, le trafic et les sources naturelles (principalement la biomasse, mais aussi les volcans, les feux de forêt et,

⁵Angle formé entre un rayon incident et la verticale qui se confond avec les rayons au zénith.

pour NO_x, les éclairs lors d'orages). On appelle émissions anthropogéniques les émissions issues de l'activité humaine, et émissions biogéniques celles issues de la biomasse.

Les émissions anthropogéniques constituent une partie importante des émissions et sont principalement localisées dans et autour des grandes villes. Elles peuvent être rejetées au sol (trafic) ou en hauteur (cheminées d'usine). Elles ont généralement une température supérieure à celle de l'air environnant, ce qui les élève un peu dans la couche limite (« surhauteur »). Elles sont plus importantes en journée du fait de l'activité humaine, mais leur niveau n'est pas négligeable la nuit du fait de l'industrie.

Les émissions biogéniques sont présentes partout (même en mer) ; on parle d'émissions diffuses. On considère que ces émissions sont principalement du monoxyde d'azote et quelques COV (isoprène et terpènes). Leur niveau est plus faible que celui des émissions anthropogéniques, mais les COV impliqués sont plus réactifs. Par exemple, leur contribution à l'ozone n'est pas négligeable.

2.3.2 Dépôt sec

On dit que les polluants se déposent au sol lorsqu'ils sont « absorbés » par l'eau, le sol ou la végétation. Ce phénomène constitue un terme de perte élevé. Son intensité dépend des polluants, des conditions météorologiques, de l'éclairement, du lieu (type et densité de végétation), de la saison (état de la végétation). Le dépôt est plus fort en journée et il est accru par l'éclairement. Au-dessus des masses d'eau, il croît avec la solubilité de l'espèce considérée.

2.3.3 Dépôt humide

On qualifie de dépôt humide ou de lessivage la perte due aux transferts de masse avec la phase aqueuse (nuages ou pluies). Les polluants solubles peuvent pénétrer les gouttes de pluie lors de leur chute et sont ainsi précipités au sol. Une autre forme de lessivage se déroule dans les nuages où les polluants solubles ont des échanges (transferts de masse) avec les gouttes d'eau.

2.4 Mise en équation

Dans cette section, on expose les modèles représentant les phénomènes précédemment exposés.

2.4.1 Transport

Le transport peut être modélisé par un terme d'advection :

$$\frac{\partial \tilde{c}}{\partial t} = -\text{div}(\tilde{V}\tilde{c}) \quad (1)$$

où \tilde{c} est un champ tridimensionnel de concentrations (pour un polluant) et \tilde{V} est le vent.

Puisqu'il est impossible de décrire numériquement toutes les échelles, il s'agit maintenant d'écrire l'équation vérifiée par des quantités moyennes. Le vent peut être décomposé en un vent moyen V et des perturbations V' (de moyenne nulle) : $\tilde{V} = V + V'$. Dans la

suite, on appelle abusivement V le vent, abus déjà mentionné dans la section 2.1.2. Le transport dû à la convection (section 2.1.3) est porté par V' .

On décompose \tilde{c} de la même manière : $\tilde{c} = c + c'$. Alors, en moyennant l'équation 1, on obtient

$$\frac{\partial c}{\partial t} = -\text{div}(Vc) - \text{div}(\overline{V'c'}) \quad (2)$$

où $\overline{V'c'}$ est la moyenne de $V'c'$.

Pour fermer cette équation, on peut approcher $\overline{V'c'}$ ainsi :

$$\overline{V'c'} \simeq -K\nabla c \quad (3)$$

où K est une matrice de diffusion turbulente. Cette fermeture est souvent appelée théorie K.

Cependant, l'équation de continuité moyenne s'écrit

$$\frac{\partial \rho}{\partial t} = -\text{div}(\rho V) \quad (4)$$

où ρ est la densité de l'air. On souhaite naturellement que, si $c = \rho$, la concentration c suive la même évolution que la densité ρ du fluide porteur. Or, si on reporte l'équation 3 dans l'équation 2, $c = \rho$ ne redonne pas l'équation de continuité 4. On modifie en conséquence l'approximation de l'équation 3 par

$$\overline{V'c'} \simeq -\rho K \nabla \frac{c}{\rho} \quad (5)$$

où K est la matrice des coefficients de diffusion turbulente (coefficients qu'il convient de déterminer par ailleurs – voir section 2.4.4).

L'équation de transport devient finalement

$$\frac{\partial c}{\partial t} = -\text{div}(Vc) + \text{div}\left(\rho K \nabla \frac{c}{\rho}\right) \quad (6)$$

L'équation 6 inclut un terme d'advection, $\text{div}(Vc)$, et un terme de diffusion, $\text{div}\left(\rho K \nabla \frac{c}{\rho}\right)$. Les figures 4 and 5 illustrent en 1D les phénomènes d'advection et de diffusion respectivement.

2.4.2 Transport réactif

On suppose maintenant que c est un vecteur de champs tridimensionnels de concentrations. À chaque élément c_i de ce vecteur correspond une espèce chimique. Le champ c_i est sujet au transport (équation 6) mais aussi à des réactions chimiques (voir section 2.2). Le champ c_i vérifie une équation de la forme

$$\frac{\partial c_i}{\partial t} = \underbrace{-\text{div}(Vc_i)}_{\text{advection}} + \underbrace{\text{div}\left(\rho K \nabla \frac{c_i}{\rho}\right)}_{\text{diffusion}} + \underbrace{\chi_i(c)}_{\text{chimie}} + S_i - P_i \quad (7)$$

où χ_i est le bilan des productions et pertes par réaction chimique de l'espèce i , S_i représente les sources (émissions) de l'espèce i et P_i représente les pertes par lessivage.

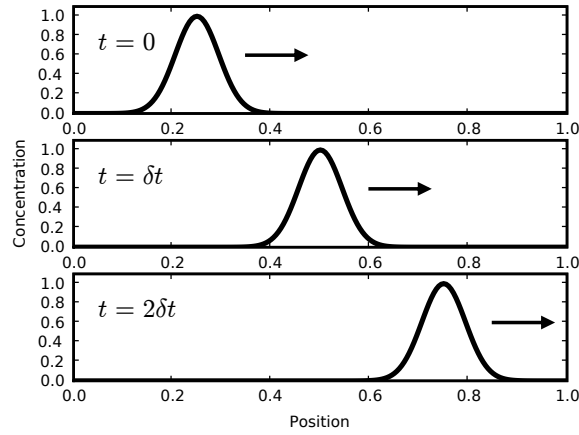


FIG. 4 – Advection (1D) par un champ de vent $u > 0$ homogène et constant. Le champ de concentration c vérifie l'équation $\frac{\partial c}{\partial t} = -u \frac{\partial c}{\partial x}$. Le champ c est représenté aux instants $t = 0$, $t = \delta t$ et $t = 2\delta t$. Le profil est transporté dans le sens du vent, sans que sa forme soit changée : il est simplement translaté d'une distance égale à ut .

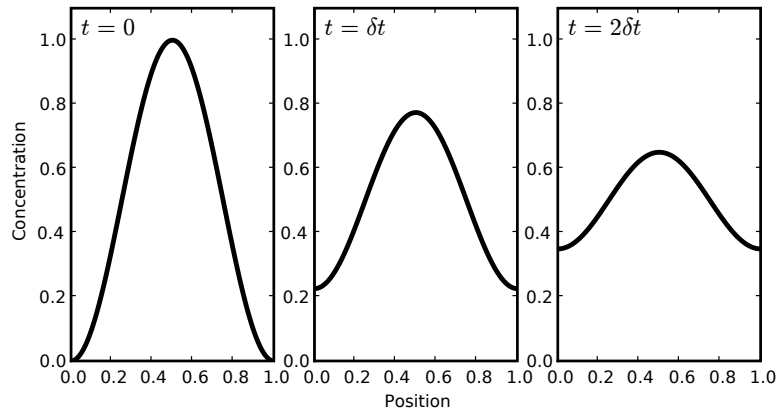


FIG. 5 – Diffusion (1D) avec un coefficient de diffusion constant. Les figures représentent la fonction $c(t, x) = \frac{1}{2} \left(1 + e^{-t} \sin(2\pi x - \frac{\pi}{2}) \right)$ qui vérifie l'équation de diffusion $\frac{\partial c}{\partial t} = \frac{\partial^2 c}{\partial x^2}$ sur $[0, 1]$. Ici, $\delta t = 0.6$.

χ_i est une fonction des concentrations de toutes les espèces (seulement à la position courante). Il faut bien noter que les dépendances ont été omises. Le vent V , la matrice de diffusion K , les sources S_i et les pertes P_i , la densité ρ et bien sûr c_i dépendent de la position et du temps. La fonction χ_i dépend également du temps et de l'espace (via les constantes photolytiques), mais aussi des conditions météorologiques : éclaircissement (pour la photolyse), température, pression et humidité.

L'équation 7, fondamentale en qualité de l'air, est souvent appelée « équation de transport réactif » ou « équation d'advection–diffusion–réaction ».

Exemple de mécanisme chimique Le terme χ_i intervenant dans l'équation 7 s'estime par l'utilisation d'un mécanisme chimique adapté. On présente ici l'exemple de mécanismes adaptés à la chimie de l'ozone.

Le mécanisme comprend un nombre d'espèces fixé. Il peut être plus ou moins détaillé, selon la précision souhaitée et la complexité de la chimie des espèces impliquées. Un mécanisme pour l'ozone comprend quelques dizaines à quelques centaines d'espèces. Ces espèces ne sont pas nécessairement représentatives d'espèces réelles : elles peuvent regrouper les concentrations de plusieurs espèces réelles. Elles sont qualifiées « d'espèces modèles ». Ces espèces interviennent dans les centaines de réactions qui composent généralement un mécanisme chimique.

Deux exemples de mécanismes pertinents pour l'ozone sont RADM2 (« regional acid deposition model », version 2, [10]) et RACM (« regional atmospheric chemistry mechanism », [9]). RADM2 inclut 61 espèces et 157 réactions chimiques. RACM est composé de 237 réactions pour 72 espèces.

RACM inclut 23 réactions photolytiques. Les autres réactions ont des constantes suivant diverses lois, par exemple la loi d'Arrhenius (réactions thermiques).

2.4.3 Conditions aux limites

En terme de flux, les conditions aux limites latérales (faces verticales du domaine, en supposant que le domaine est un parallélépipède rectangle) et au sommet du domaine sont effectives pour des vents entrant et sont de la forme Vc_i (conditions associées à l'advection). Au sol, les seuls flux généralement pris en compte sont ceux liés au dépôt, notés D_i , et ceux liés aux émissions de surface, notés E_i :

$$K\nabla c_i \cdot n = E_i - D_i \quad (8)$$

où n est la normale au sol orientée dans le sens des altitudes croissantes.

2.4.4 Paramétrisations

Pour compléter la description du modèle, plusieurs champs doivent encore être estimés. Certains champs sont fournis par d'autres modèles. En particulier, le vent V est fourni par un modèle météorologique, et les conditions aux limites, latérales ou au sommet du domaine, proviennent de simulations à plus grande échelle (par exemple, à échelle globale pour une simulation continentale). Des précisions sont apportées à la section 4 à propos de l'insertion du modèle dans un système de simulation complet. Le flot des entrées (vents, concentrations aux limites, etc.) y est donc décrit.

D'autres champs doivent être évalués par le modèle lui-même. Par exemple, les coefficients de diffusion de la matrice K (voir équation 7) sont rarement fournis par les modèles météorologiques. Même fournis par le modèle météorologique, ils peuvent être mal adaptés pour le modèle de chimie-transport (résolution insuffisante, adaptation aux cas des polluants). Plusieurs autres variables doivent aussi être estimées par le modèle de chimie-transport : les vitesses de dépôt, les constantes des réactions photolytiques, les émissions biogéniques, etc. Ces champs sont estimés par des *paramétrisations*. Un même champ peut souvent être calculé par plusieurs paramétrisations. Le modélisateur effectue le choix qui lui paraît le plus judicieux pour son application.

Une paramétrisation repose sur des *quantités connues* (ou déjà paramétrées...). Ces quantités supposées connues sont souvent des données météorologiques, mais aussi le type de terrain (pour les vitesses de dépôt), les caractéristiques de certains végétaux (pour les émissions biogéniques), une approximation de la colonne d'ozone (pour les constantes des réactions photolytiques), etc. Une paramétrisation peut contenir des *paramètres à ajuster*.

Exemple de la diffusion verticale Afin de donner un aperçu des paramétrisations, celles permettant le calcul des coefficients de diffusion verticale K_{zz} (élément diagonal de la matrice K selon z) sont un bon exemple. Sans entrer dans les détails, la paramétrisation de Louis [6] s'écrit ainsi en un point d'indice k (l'espace est discrétisé, voir section 3) :

$$K_{z,k} = L_k^2 F(Ri_k) \left[\left(\frac{\Delta_k U}{\Delta_k z} \right)^2 + \left(\frac{\Delta_k V}{\Delta_k z} \right)^2 \right] \quad (9)$$

où L_k est une longueur de mélange (paramétrée), F est une fonction (dite de stabilité), Ri_k est le nombre de Richardson (lui-même paramétré), U et V sont les vents zonal (direction ouest-est) et méridional (direction sud-nord), z est l'altitude, et $\Delta_k X$ symbolise la différence des valeurs du champ X aux niveaux k et $k - 1$ (différences finies, voir section 3). La paramétrisation repose sur les valeurs de quelques champs connus (vent, température pour le nombre de Richardson, etc.) en plusieurs points de l'espace. Les gradients sont évalués par différences finies. Des choix doivent être réalisés, comme la fonction de stabilité, ou le choix de corrections sur le nombre de Richardson.

Une autre paramétrisation est celle de Troen et Mahrt [12] :

$$K_{z,k} = u_* \kappa z_k \Phi_{m,k}^{-1} \left(1 - \frac{z_k}{PBLH} \right)^p \quad (10)$$

où u_* est la vitesse de friction du vent, κ est la constante de Von Kármán, z_k est l'altitude, $PBLH$ est la hauteur de la couche limite atmosphérique, p est un paramètre à choisir et valant généralement 2 ou 3, et $\Phi_{m,k}$ est une valeur elle-même paramétrée. De même que précédemment, cette paramétrisation repose sur des champs météorologiques connus, et sur des choix du modélisateur. D'autres données telles que le type de terrain (urbain, eau, neige, type de culture, type de forêt, etc.) peuvent intervenir.

3 Intégration numérique

Pour approfondir les aspects numériques, notamment ceux qui ne sont que mentionnés dans ce qui suit, voici deux références utiles :

- W. HUNSDORFER AND J. G. VERWER, *Numerical Solution of Time-Dependent Advection-Diffusion-Reaction Equations*, Series in Comput. Math. 33, Springer, 2003,
- B. SPORTISSE AND V. MALLET, *Calcul scientifique pour l'environnement*. Cours de deuxième année à l'ENSTA, 2005 & 2006⁶.

3.1 Introduction

Lorsque tous les champs (fournis, calculés par un autre modèle ou paramétrés) sont disponibles, il reste à intégrer en temps l'équation 7. Il s'agit d'une équation d'évolution aux dérivées partielles (EDP) d'inconnue c_i (champ spatio-temporel de concentration de l'espèce i). Les concentrations à l'instant initial sont supposées connues. Il y a autant d'équations de cette forme qu'il y a d'espèces i . Il faut donc résoudre un système d'équations de la forme de l'équation 7, ces équations étant couplées par le terme de chimie $\chi_i(c)$.

Il est impossible de déterminer une solution analytique à ces équations. L'intégration en temps des concentrations doit se faire numériquement. Les champs sont discrétisés spatialement (et temporellement). Ensuite, des schémas numériques sont mis en œuvre pour l'intégration temporelle.

3.2 Discrétisation

La discrétisation consiste à représenter un champ continu par ses valeurs en des points choisis dans l'espace et le temps. Supposons qu'un champ de concentration $c = c(x, y)$ dépende de deux coordonnées spatiales x et y . Une représentation discrète de c est la matrice $c_{i,j}$ telle que :

$$c_{i,j} = c(x_i, y_j), \quad i \in \llbracket 0, m \rrbracket, j \in \llbracket 0, n \rrbracket \quad (11)$$

avec

$$x_i = x_0 + i\Delta x, \quad y_j = y_0 + j\Delta y \quad (12)$$

où $x_0, y_0, \Delta x, \Delta y, m$ et n sont choisis et définissent les points auxquels c est connu. L'ensemble des points (x_i, y_j) est appelé maillage. La figure 6 illustre la discrétisation d'une fonction $x \mapsto c(x)$, avec un pas spatial Δ (noter que $\Delta = \Delta x$).

Dans un modèle de chimie-transport (eulérien – d'autres formes de modèles sont évoquées plus loin), les champs de concentration sont toujours représentés sous forme discrétisée. Il faut noter qu'un champ continu peut être reconstitué à partir de la forme discrétisée. Pour cela, on procède à une interpolation (linéaire, ou plus sophistiquée) entre les points du maillage. La figure 7 illustre l'approche.

Plus le pas de discrétisation est petit, plus la discrétisation est fine, c'est-à-dire que le champ continu est mieux approché. L'inconvénient de raffiner une discrétisation réside précisément dans l'augmentation du nombre de points et des contraintes informatiques associées. Les modèles de chimie-transport étant *in fine* des codes informatiques calculant les champs discrétisés de concentrations, ils disposent d'une mémoire allouée maximale et d'un temps de calcul limité. Si le nombre de points de la discrétisation est trop élevé, les

⁶Disponible à l'adresse : <http://www.enpc.fr/cerea/fr/cours.html>.

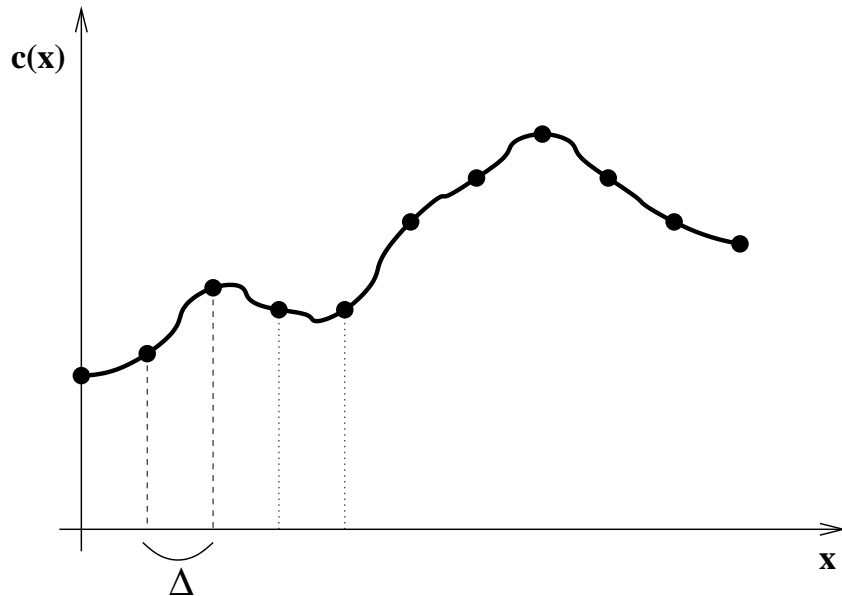


FIG. 6 – Discrétisation d’une fonction $x \mapsto c(x)$ avec un pas de discrétisation valant $\Delta = \Delta x$. La fonction continue c est représentée par le vecteur $(c(0), c(\Delta x), c(2\Delta x), \dots)$, c’est-à-dire par les valeurs représentées par des points sur la figure.

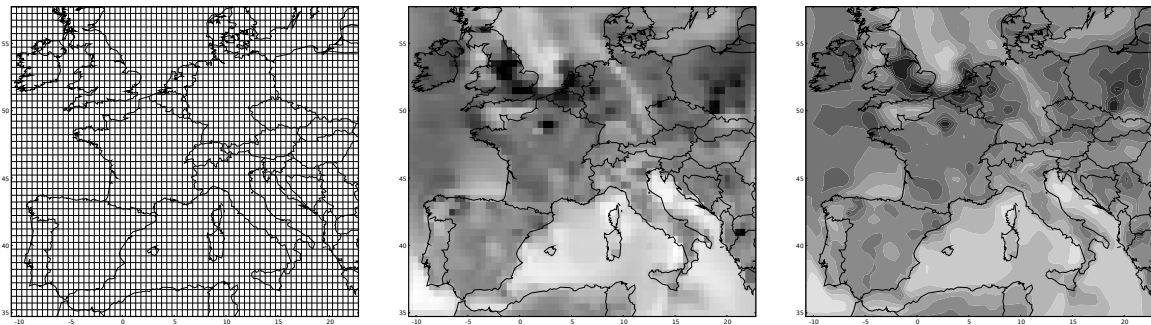


FIG. 7 – À gauche, la discrétisation d’un domaine de simulation est matérialisée par une grille. Un champ de concentration est représenté par sa valeur moyenne dans chaque cellule de la grille. Par exemple, la figure au centre représente un champ d’ozone discrétisé. À droite, ce même champ d’ozone est représenté par des contours. Ces contours sont calculés uniquement sur la base du champ discrétisé de la figure centrale.

valeurs à stocker en mémoire dépassent les capacités des machines ou les calculs à effectuer sont en quantité trop importante pour être réalisés dans des temps raisonnables.

Autres formes de discrétisation Le maillage présenté précédemment, composé par les points (x_i, y_j) , constitue une grille. L'espace (bidimensionnel, ici) peut être discrétisé de manière plus complexe, comme l'illustre la figure 8. Le maillage plus complexe de la figure 8 permet par exemple d'affiner la discrétisation dans certaines zones de l'espace. Dans la suite, on se place dans le cas d'une grille, ce qui simplifie l'expression des discrétisations.

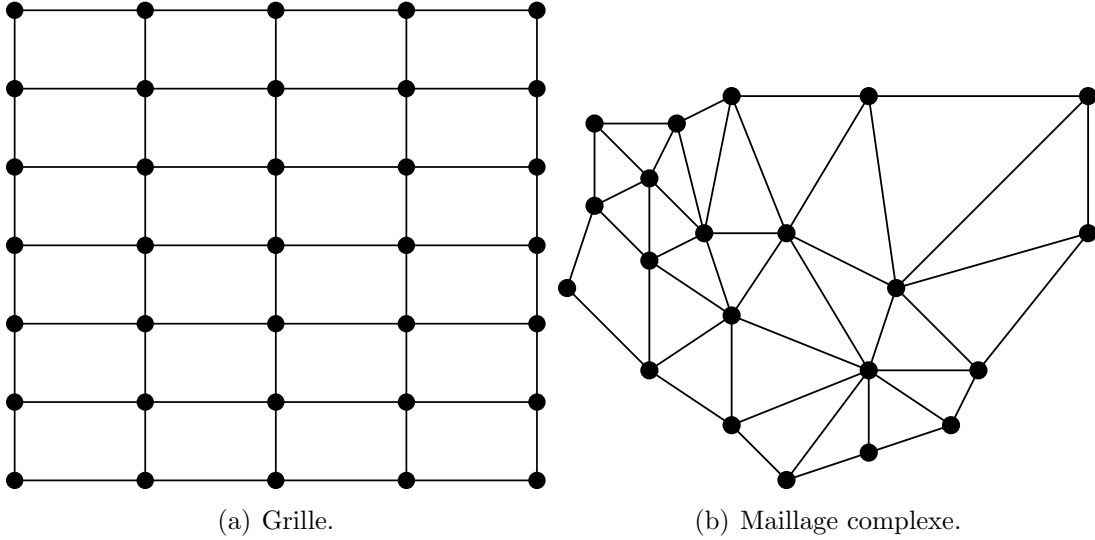


FIG. 8 – Discretisations de l'espace sous forme d'une grille, formée des points $(x_0 + i\Delta x, y_0 + j\Delta y)$, et d'un maillage plus complexe.

3.3 Schémas numériques pour le transport

L'équation 7 peut être discrétisée, c'est-à-dire réécrite pour le champ discrétisé. En particulier, il convient d'exprimer les dérivées partielles. Pour illustrer la démarche, on considère l'équation avec les termes de transport uniquement (advection et diffusion), à vent V et diffusion K homogènes, et en dimension un :

$$\frac{\partial c}{\partial t} = -V \frac{\partial c}{\partial x} + K \frac{\partial^2 c}{\partial x^2} \quad (13)$$

La dérivée partielle et première de c par rapport à x peut se discrétiser ainsi :

$$\frac{\partial c}{\partial x}(x) \simeq \frac{c(x) - c(x - \Delta x)}{\Delta x} \quad (14)$$

où Δx est le pas de discrétisation (comme à la figure 6). Cette approximation peut se justifier par un développement de Taylor :

$$c(x - \Delta x) = c(x) - \Delta x \frac{\partial c}{\partial x}(x) + \mathcal{O}(\Delta x^2) \quad (15)$$

En conséquence

$$\frac{\partial c}{\partial x}(x) = \frac{c(x) - c(x - \Delta x)}{\Delta x} + \mathcal{O}(\Delta x) \quad (16)$$

Il s'agit d'une approximation d'ordre un, puisque l'erreur est en $\mathcal{O}(\Delta x)$.

De la même manière, on peut construire une approximation de la dérivée seconde $\frac{\partial^2 c}{\partial x^2}$, à partir de développements de Taylor :

$$c(x + \Delta x) = c(x) + \Delta x \frac{\partial c}{\partial x}(x) + \frac{\Delta x^2}{2} \frac{\partial^2 c}{\partial x^2}(x) + \frac{\Delta x^3}{6} \frac{\partial^3 c}{\partial x^3}(x) + \mathcal{O}(\Delta x^4) \quad (17)$$

$$c(x - \Delta x) = c(x) - \Delta x \frac{\partial c}{\partial x}(x) + \frac{\Delta x^2}{2} \frac{\partial^2 c}{\partial x^2}(x) - \frac{\Delta x^3}{6} \frac{\partial^3 c}{\partial x^3}(x) + \mathcal{O}(\Delta x^4) \quad (18)$$

En sommant les deux dernières équations :

$$c(x + \Delta x) + c(x - \Delta x) = 2c(x) + \Delta x^2 \frac{\partial^2 c}{\partial x^2}(x) + \mathcal{O}(\Delta x^4) \quad (19)$$

D'où une approximation d'ordre 2 (c'est-à-dire en $\mathcal{O}(\Delta x^2)$) de la dérivée partielle d'ordre 2 par rapport à x :

$$\frac{\partial^2 c}{\partial x^2}(x) = \frac{c(x - \Delta x) - 2c(x) + c(x + \Delta x)}{\Delta x^2} + \mathcal{O}(\Delta x^2) \quad (20)$$

La forme discrétisée s'écrit

$$\frac{\partial^2 c}{\partial x^2}(x_i) \simeq \frac{c_{i-1} - 2c_i + c_{i+1}}{\Delta x^2} \quad (21)$$

Ainsi, les dérivées spatiales introduites dans l'équation 13 peuvent être approchées avec les valeurs connues du champ c , c'est-à-dire avec les valeurs aux points du maillage. La discrétisation est aussi réalisée en temps : de même qu'il est impossible de connaître les concentrations en tous les points de l'espace, il faut choisir des instants auxquels les concentrations sont estimées. On place l'indice temporel en exposant, et on définit :

$$c_i^n = c(t_n, x_i) \quad (22)$$

avec les mêmes notations que précédemment, et avec $t_n = t_0 + n\Delta t$. Le champ c est alors discrétisé à la fois en temps et en espace. La dérivée temporelle $\frac{\partial c}{\partial t}$ est elle aussi discrétisée, de la manière similaire à la dérivée spatiale $\frac{\partial c}{\partial x}$:

$$\frac{\partial c}{\partial t}(t_n, x_i) \simeq \frac{c_i^{n+1} - c_i^n}{\Delta t} \quad (23)$$

En regroupant tous les termes discrétisés, la discrétisation de l'équation 13 s'écrit

$$\frac{c_i^{n+1} - c_i^n}{\Delta t} = -V \frac{c_i^n - c_{i-1}^n}{\Delta x} + K \frac{c_{i-1}^n - 2c_i^n + c_{i+1}^n}{\Delta x^2} \quad (24)$$

L'intégration numérique en temps consiste à calculer c_i^{n+1} (pour $i \in \llbracket 0, N \rrbracket$) à partir des c_i^n , ce qui est direct avec l'équation 24 (généralisée en dimension 2).

En pratique, les conditions initiales c_i^0 sont supposées connues. Il est ensuite aisé d'en déduire toutes les valeurs c_i^n . Ainsi, on dispose d'une approximation de c à tous les instants de la forme $t_0 + n\Delta t$ et en tous les points x_i . Pour estimer c en d'autres instants et en d'autres points, il suffit par exemple de procéder à une interpolation linéaire.

L'équation 24 est un *schéma numérique* pour l'équation 13. Une même équation continue (par exemple, l'équation 13) peut être discrétisée de plusieurs manières, c'est-à-dire que plusieurs schémas numériques existent pour une même équation. Se pose alors le choix des schémas numériques. Les choix sont effectués sur la base des propriétés des schémas numériques.

3.4 Propriétés des schémas numériques : illustration avec l'advection

Dans cette section, la propriété de stabilité est illustrée sur l'équation d'advection en dimension un et avec vent V constant :

$$\frac{\partial c}{\partial t} + V \frac{\partial c}{\partial x} = 0 \quad (25)$$

Sur la base des calculs de la section 3.3, un schéma numérique possible est

$$\frac{c_i^{n+1} - c_i^n}{\Delta t} = -V \frac{c_i^n - c_{i-1}^n}{\Delta x} \quad (26)$$

Il s'agit d'un schéma décentré à gauche pour la partie spatiale (membre de droite). Le schéma temporel est un schéma d'Euler explicite. Le schéma d'Euler implicite s'écrit

$$\frac{c_i^{n+1} - c_i^n}{\Delta t} = -V \frac{c_{i+1}^{n+1} - c_i^{n+1}}{\Delta x} \quad (27)$$

Le schéma est dit implicite car l'approximation de la dérivée spatiale dépend de données inconnues au pas de temps n . Le calcul de c_i^{n+1} ne s'effectue pas de manière directe comme c'est le cas avec un schéma explicite. Il faut résoudre un système linéaire, composé des équations de la forme 27 (pour $i \in \llbracket 0, N \rrbracket$).

La dérivée spatiale peut être approchée par un schéma dit centré :

$$\frac{\partial c}{\partial x}(x_i) \simeq \frac{c_{i+1} - c_{i-1}}{2\Delta x} \quad (28)$$

Il est aisé de montrer que cette approximation est d'ordre 2 (c'est-à-dire que l'erreur est en $\mathcal{O}(\Delta x^2)$, ce qui se montre sur la base de développements de Taylor), donc plus précise que l'approximation décentrée (d'ordre 1) pour des pas Δx assez petits. Avec un schéma d'Euler explicite en temps, le nouveau schéma s'écrit :

$$\frac{c_i^{n+1} - c_i^n}{\Delta t} = -V \frac{c_{i+1}^n - c_{i-1}^n}{2\Delta x} \quad (29)$$

Ce schéma est cependant *instable*. La stabilité d'un schéma est une propriété importante qui est vérifiée si

$$\|c^{n+1}\|_2 \leq \|c^n\|_2 \quad (30)$$

où la norme L^2 est définie par

$$\|c^n\|_2 = \sqrt{\sum_{i=0}^{i=N} c_i^{n2}} \quad (31)$$

On parle de stabilité L^2 . La stabilité assure que les erreurs dues aux approximations numériques restent suffisamment faibles lorsqu'elles sont propagées. Un schéma stable ne permet pas aux erreurs locales, c'est-à-dire les erreurs introduites sur un pas d'intégration, de produire des erreurs globales (accumulation des erreurs sur plusieurs pas d'intégration) élevées. La figure 9 illustre les conséquences d'une instabilité.

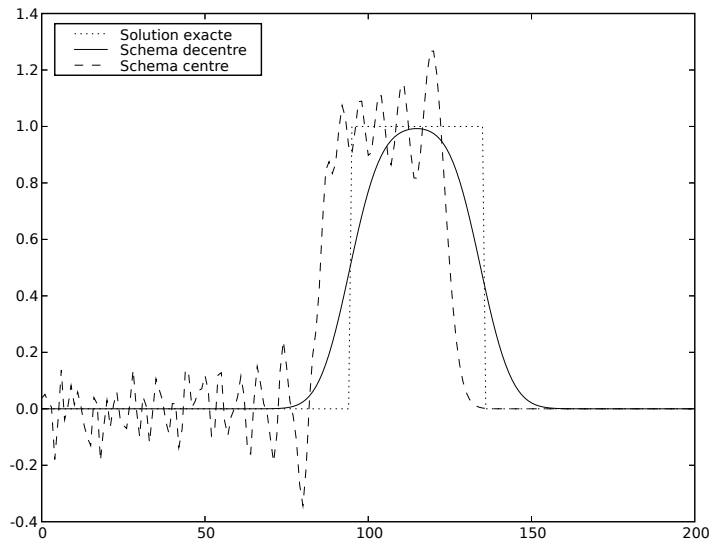


FIG. 9 – Un créneau, pris pour condition initiale, est advecté (équation 25). La solution exacte est un créneau « se déplaçant » dans le sens des abscisses croissantes. La figure représente la solution exacte à un instant donné. Elle représente aussi les solutions approchées données par les schémas décentré (équation 29) et centré (équation 26). Le schéma centré étant instable, il conduit à des oscillations dont l'amplitude va croître avec le temps. Le schéma décentré, d'ordre 1 (voir équation 16), est lui stable. Par contre, il ne reproduit pas précisément le créneau : le schéma est diffusif.

Le schéma décentré est stable si et seulement si

$$\frac{V\Delta t}{\Delta x} \leq 1 \quad (32)$$

Il s'agit de la condition de Courant-Friedrichs-Lewy (condition CFL) qui est une condition de stabilité que de nombreux schémas doivent vérifier. Il faut remarquer qu'affiner la discrétisation (c'est-à-dire diminuer Δx) requiert souvent de diminuer le pas de temps d'intégration (Δt).

La stabilité est une propriété minimale requise pour l'utilisation d'un schéma. Souvent, des propriétés de monotonie sont aussi recherchées : en particulier, il est préférable qu'un

schéma ne crée pas d'extrema locaux. Un autre exemple est la propriété de positivité qui assure que les concentrations resteront positives lors de l'intégration numérique.

L'ordre d'un schéma est une propriété déjà mentionnée. Elle mesure l'erreur introduite sur une itération, erreur dite locale, en fonction de la finesse du maillage. Un schéma d'ordre n est un schéma d'erreur locale en $\mathcal{O}(\Delta x^n)$.

D'autres propriétés plus techniques sont associées aux schémas numériques : consistance, variation totale décroissante, etc. On consultera les références introduites au début de la section 3 pour plus de détails.

3.5 Séparation d'opérateurs

La section 3.3 décrit les schémas dédiés au transport. Ils sont donc pertinents pour intégrer numériquement l'équation 13. L'équation 7 introduit principalement le terme supplémentaire $\chi_i(c)$, rassemblant les termes de production et de consommation issus de la chimie (pour l'espèce i).

Une méthode classique consiste à intégrer de manière découplée le transport et la chimie. On parle de méthode de séparation d'opérateur ou de méthode de « splitting ». À chaque itération (passage du pas de temps n au pas de temps $n + 1$), le transport est d'abord intégré (de n à $n + 1$) et puis la chimie est également intégrée (de n à $n + 1$), mais à partir du résultat de l'intégration du transport. L'algorithme s'écrit ainsi :

- Condition initiale : $c_i^0 = c_0(x_i)$
- Boucle sur les pas de temps (n)
 - Intégration du transport : $\tilde{c}^n = H_t(c^n)$ où H_t est le schéma numérique pour le transport (par exemple, celui donné par l'équation 24) ;
 - Intégration de la chimie : $c^{n+1} = H_\chi(\tilde{c}^n)$ où H_t est le schéma numérique pour la chimie (voir section 3.6).

Il faut noter que le résultat de l'intégration (sur un pas de temps) du transport est utilisé comme condition initiale du pas de chimie. Les deux processus (transport et chimie) sont donc résolus successivement à chaque pas de temps.

La séparation d'opérateur permet d'intégrer le transport et la chimie avec des schémas numériques adaptés sans que le coût des calculs soit rédhibitoire.

3.6 Intégration numérique de la chimie

Lorsqu'une méthode de séparation d'opérateurs est utilisée, la chimie est intégrée de manière indépendante. Sur la base de l'équation 7, on constate que la chimie intervient ainsi :

$$\frac{\partial c_i}{\partial t} = \chi_i(c) \quad (33)$$

où i représente l'indice de l'espèce chimique considérée. Sur le vecteur des concentrations, on obtient

$$\frac{\partial c}{\partial t} = \chi(c) \quad (34)$$

On remarque qu'il s'agit en fait d'une équation aux dérivées ordinaires :

$$\frac{dc}{dt} = \chi(c) \quad (35)$$

Dans cette section, on omet donc la dépendance spatiale de c . Sous forme discrétisée, on note simplement $c^n = c(t_0 + n\Delta t)$.

Un schéma d'intégration pourrait être le schéma d'Euler explicite :

$$\frac{c^{n+1} - c^n}{\Delta t} = \chi(c^n) \quad (36)$$

Cependant, les temps caractéristiques des réactions chimiques pouvant être très courts, le schéma ne peut être stable que pour des pas de temps Δt très petits. La contrainte est trop forte et conduirait à des temps de calcul très élevés si le schéma était utilisé.

Pour garantir la stabilité, il est possible d'utiliser le schéma d'Euler implicite :

$$\frac{c^{n+1} - c^n}{\Delta t} = \chi(c^{n+1}) \quad (37)$$

Ce schéma est pourtant mal adapté du fait de la grande dispersion des temps caractéristiques de la chimie. Du fait de cette dispersion, le système est dit raide. Plusieurs schémas numériques sont adaptés à ces systèmes, comme les méthodes QSSA (« quasi-steady-state approximation ») ou les méthodes de Rosenbrock.

3.7 Autres modèles

Jusqu'ici, la présentation s'est faite sur un modèle discrétisé sur une grille (fixe). Les concentrations sont calculées aux points de la grille. Il s'agit d'un modèle eulérien.

Il existe des modèles qui ne reposent pas sur une grille mais suivent l'évolution de particules, de masses d'air ou de panaches de polluant dans le domaine. Ce sont des modèles dits lagrangiens.

D'autres modèles, dit gaussiens, sont employés à petite échelle (quelques centaines de mètres à quelques kilomètres), principalement pour modéliser la dispersion de polluants issus de sources ponctuelles (par exemple, une cheminée d'usine). Ces modèles sont généralement stationnaires et passifs. Ils supposent que le panache issu d'une source prend une forme gaussienne :

$$c(y, z) = \frac{Q}{2\pi\sigma_y\sigma_z\bar{u}} \exp\left(-\frac{(y - y_s)^2}{2\sigma_y^2}\right) \left[\exp\left(-\frac{(z - z_s)^2}{2\sigma_z^2}\right) + \exp\left(-\frac{(z + z_s)^2}{2\sigma_z^2}\right) \right], \quad (38)$$

où Q est le taux d'émission de la source, \bar{u} est le vent moyen, et σ_y and σ_z sont les extensions du panache dans les directions horizontale (y) et verticale (z) perpendiculaires à l'axe du vent. La source est placée à une hauteur z_s .

4 Système de modélisation

4.1 Introduction

À la section 2, les bases de la modélisation physique ont été présentées. À la section 3, une introduction à la discrétisation et aux schémas numériques fait le lien entre la modélisation physique et les codes (ou algorithmes) informatiques. Ces codes informatiques constituent des modèles numériques. Ils sont insérés dans des systèmes de modélisation afin de mener à bien de nombreuses applications (voir l'introduction).

Un système de modélisation complet repose sur :

1. la modélisation physique des processus ;
2. un modèle numérique ;
3. des données (météorologiques, etc.).

4.2 Données

Une simulation de la qualité de l'air demande de nombreuses données, qui doivent être disponibles avant simulation. Les données requises peuvent varier d'un modèle à l'autre et d'une application à une autre. On peut cependant lister quelques des données communément introduites : les données météorologiques, la description des types de sol et les données par type de terrain, les émissions, les conditions initiales, les conditions aux limites, les constantes des réactions chimiques, des constantes associées aux espèces (constante de Henry, diffusivité).

Les données météorologiques sont essentielles : elles interviennent directement dans l'équation 7 via le vent V . Elles sont ensuite utilisées dans plusieurs paramétrisations (par exemple, dans le calcul des vitesses de dépôt). Elles sont fournies par des modèles météorologiques tel que celui du centre européen de prévision (European Centre for Medium-Range Weather Forecasts, ECMWF, <http://www.ecmwf.int/>) ou des modèles disponibles en ligne comme MM5 (Fifth-Generation NCAR / Penn State Mesoscale Model, <http://www.mmm.ucar.edu/mm5/>) que le modélisateur doit exécuter lui-même. À noter qu'il existe des modèles qui combinent les simulations météorologiques et les processus des modèles de chimie-transport. Un avantage de combiner ces deux types de modèle réside dans la cohérence des champs manipulés (même maillage pour les deux modèles).

Les données de type de terrain identifient les étendues d'eau, les forêts (et leur type), les cultures, les villes. Ceci est par exemple essentiel pour le calcul des vitesses de dépôt qui dépendent bien sûr du type de terrain. Dans le cas des vitesses de dépôt, il faut aussi disposer des caractéristiques physiques des terrains relatives à leur propension à déposer.

Les émissions de polluant sont estimées par des instituts tel EMEP (Co-operative Programme for Monitoring and Evaluation of the Long-range Transmission of Air Pollutants in Europe, <http://www.emep.int/>) pour les émissions européennes (résolution de $50 \text{ km} \times 50 \text{ km}$). Les grandes villes disposent parfois d'un inventaire plus fin (sur Paris : $3 \text{ km} \times 3 \text{ km}$). Les inventaires sont mis à jour régulièrement puisque les principales sources (industrie et trafic) évoluent.

Les conditions initiales et les conditions aux limites (du domaine) sont généralement fournies par un modèle de plus grande échelle. Des conditions « climatologiques », c'est-à-dire typiques, sont parfois utilisées. Dans le cas d'un modèle à aire limitée (sur l'Europe, ou sur un pays), les conditions initiales sont « oubliées » par le modèle au bout de quelques jours : les polluants présents à l'instant initial finissent par sortir du domaine.

De la qualité des données dépend la qualité des résultats du modèle de chimie-transport. Il faut cependant savoir que les données sont jugées comme assez incertaines. À titre indicatif, la plupart des données sont généralement considérées comme fiables à $\pm 30\%$ ou $\pm 50\%$.

4.3 Déroulement d'une simulation

La figure 10 illustre le flot des calculs d'un système de modélisation. L'expression « modèle de chimie-transport » désigne généralement la partie traitement des données et calculs « physiques », et la partie d'intégration numérique.

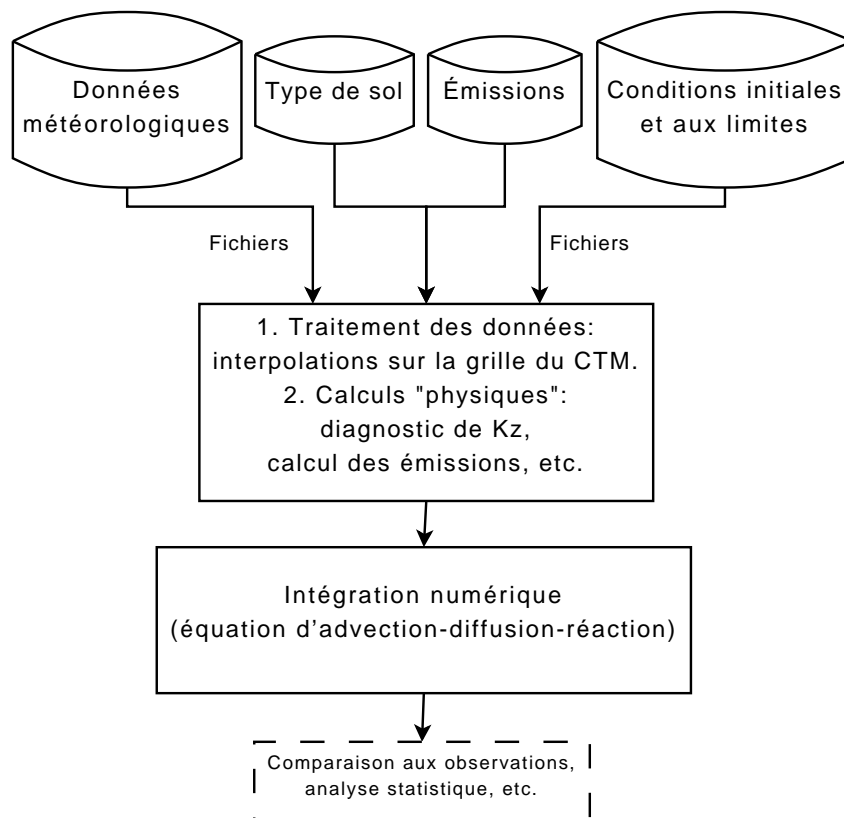


FIG. 10 – Les données fournies sont interpolées sur le maillage du modèle de chimie-transport et servent au diagnostic d'autres champs (par des paramétrisations). L'intégration numérique calcule les concentrations sur une période déterminée (plusieurs jours à plusieurs années). Les champs de concentrations résultant font l'objet de comparaisons aux observations (évaluation de la qualité du modèle) et d'analyses statistiques.

4.4 Caractéristiques des modèles de chimie-transport

On peut identifier deux grandes caractéristiques des modèles de chimie-transport atmosphériques : la grande dimension et les fortes incertitudes.

4.4.1 Grande dimension

Les modèles discrétisés approchent un champ de concentration continu $c(t, x, y, z)$ par une série de valeurs $c(t_n, x_i, y_j, z_k)$, où t_n est un instant et (x_i, y_j, z_k) est un point du maillage. L'ensemble des concentrations estimées à instant donné, soit $\{c(t_n, x_i, y_j, z_k)\}_{i,j,k}$, est appelé *état* du système. Dans le cas à plusieurs espèces, l'état devient $\{c_s(t_n, x_i, y_j, z_k)\}_{s,i,j,k}$ où s est l'indice d'une espèce chimique.

La dimension du modèle est la taille de l'état, c'est-à-dire le nombre de concentrations servant à décrire les champs continus de concentration. La dimension du modèle donne une indication sur le coût des calculs qu'il requiert (schémas numériques). Elle indique aussi la complexité du modèle et la richesse de ses sorties.

Pour des simulations photochimiques, éventuellement avec aérosols, la dimension de l'état varie entre un million et dix millions, ce qui est considérable et témoigne d'une grande complexité. Par exemple, il est courant de discrétiser l'espace par 10 000 mailles (disons, 2 000 mailles horizontalement, avec 5 niveaux verticaux), et d'impliquer une centaine d'espèces chimiques, ce qui conduit à un état de $10\,000 \times 100 = 10^6$ concentrations.

Une conséquence est le coût important en temps calcul de tels modèles. Sur un ordinateur performant (par exemple, Pentium IV cadencé à 3 Ghz), une simulation photochimique gazeuse sur une année physique exige environ 30 heures de calcul. Avec des aérosols, une année physique peut être simulée en 150 heures environ.

4.4.2 Incertitudes

Comme dans beaucoup de systèmes environnementaux, les données utilisées sont très incertaines. Il est utile de distinguer deux types de données :

1. les données brutes (exemple : les vents issus d'un modèle météorologique) ;
2. les champs paramétrés (exemple : coefficient(s) de diffusion verticale dans le tenseur K).

Les valeurs des données brutes sont fortement incertaines : on estime souvent leurs niveaux d'incertitude relative entre 20% et 50% (voir tableau 1). Par exemple, la direction du vent (horizontal) peut être représentée comme une variable aléatoire, de distribution normale, d'écart type de 20° [2]. On considère donc que la direction du vent est connue à $\pm 40^\circ$ avec un niveau de confiance de 95% – ce qui constitue une incertitude faible en comparaison d'autres champs.

Un champ paramétré peut être estimé par plusieurs paramétrisations physiques concurrentes. Ainsi les vitesses de dépôt d'ozone peuvent être calculées par la paramétrisation issue de [13], celle de [15] ou d'autres. En comparant les vitesses issues de plusieurs paramétrisations, on constate une dispersion d'au moins 30% [14].

Ces fortes incertitudes conduisent au développement de méthodes mathématiques pour l'estimation des incertitudes ou pour réduire ces incertitudes. Les travaux portent sur des études de sensibilité (modèles linéaire tangent, modèle adjoint), sur l'assimilation de données (et modélisation inverse) et sur la prévision d'ensemble.

4.5 Notes sur l'utilisation des modèles

Cette section présente de manière très condensée les principales utilisations qui sont faites des modèles.

On suppose qu'on dispose d'un modèle de chimie-transport \mathcal{M} ou de plusieurs modèles \mathcal{M}_i . Un modèle calcule des concentrations de polluants en se fondant sur un jeu de paramètres p (qui contient les conditions initiales, les émissions, les champs météorologiques, etc.) ou sur plusieurs jeux de paramètres p_j . Enfin, on a accès à des observations notées o .

Un modèle peut servir à la prévision où des concentrations c sont calculées sur la base d'un jeu de paramètres : $c = \mathcal{M}(p)$. Lors du développement du modèle, des prévisions c

TAB. 1 – Incertitudes associées à quelques champs d’entrée d’un modèle de chimie-transport à une échelle continentale. Pour chaque champ, l’incertitude d’un paramètre \hat{p} est mesurée avec un intervalle de confiance à 95%. Pour la loi lognormale, cet intervalle est défini par un facteur α tel que \hat{p} soit dans l’intervalle $[\frac{p}{\alpha}, \alpha p]$ avec une probabilité de 95% et où p est la valeur médiane de \hat{p} . Les valeurs sont extraites de [2].

Champ	Loi	Incertitude
Conditions aux limites supérieures d’ozone	lognormale	$\alpha = 1.5$
Conditions aux limites supérieures de NO _x	lognormale	$\alpha = 3$
Conditions aux limites latérales d’ozone	lognormale	$\alpha = 1.5$
Conditions aux limites latérales de NO _x	lognormale	$\alpha = 3$
Points d’émission de NO _x majeurs	lognormale	$\alpha = 1.5$
Vitesse du vent	lognormale	$\alpha = 1.5$
Direction du vent	normale	$\pm 40^\circ$
Température	normale	± 3 K
Diffusion verticale (nuit)	lognormale	$\alpha = 3$
Précipitations	lognormale	$\alpha = 2$
Eau liquide	lognormale	$\alpha = 2$
Émissions biogéniques	lognormale	$\alpha = 2$
Constantes photolytiques	lognormale	$\alpha = 2$

sont comparées aux observations. Le modélisateur tente de modifier le modèle \mathcal{M} ou ses paramètres p afin que c soit aussi cohérent que possible avec les observations o . Il y a alors un aller-retour permanent entre modèle et observations : comparaison aux observations, amélioration du modèle, comparaison aux observations, etc.

Lorsque le modèle est suffisamment développé et fiable, il peut servir à estimer l’impact de changements dans les émissions. On symbolise un changement dans les émissions par une perturbation δp dans les paramètres. Dans ce cas, on espère que la réponse du modèle à la perturbation est représentative de l’impact réel qu’aurait ce changement dans les émissions. On calcule cette réponse ainsi : $\delta c = \mathcal{M}(p + \delta p) - \mathcal{M}(p)$. Ce type d’application peut être utile pour juger de l’efficacité d’une politique de réduction des émissions.

Pour tenir compte des incertitudes, on exploite parfois des ensembles de simulations. Plusieurs modèles sont utilisés, ainsi que plusieurs jeux de paramètres. On calcule alors : $c_{i,j} = \mathcal{M}_i(p_j)$, pour plusieurs couples (i, j) .

Enfin, pour améliorer les prévisions des modèles ou leurs paramètres, on fait appel à l’assimilation de données. On tente d’utiliser l’information contenue dans les observations o :

- soit pour améliorer les prévisions d’un modèle, et générer ce qu’on appelle une analyse c^a (plus proche de la réalité que $c = \mathcal{M}(p)$) ;
- soit pour affiner les paramètres du modèle, en calculant un jeu de paramètres optimisés p^* – on parle de modélisation inverse.

Les différentes activités évoquées dans cette section sont regroupées dans le tableau 2.

Utilisation	Condensé
Prévision	$c = \mathcal{M}(p)$
Développement de modèle	$c = \mathcal{M}(p) \longleftrightarrow o$
Études d'impact	$\delta c = \mathcal{M}(p + \delta p) - \mathcal{M}(p)$
Prévision d'ensemble	$c_{i,j} = \mathcal{M}_i(p_j)$
Assimilation de données	$c = \mathcal{M}(p) \ \& \ o \longrightarrow c^a$
Modélisation inverse	$c = \mathcal{M}(p) \ \& \ o \longrightarrow p^*$

TAB. 2 – Résumé des principales utilisations des modèles de chimie-transport.

Références

- [1] J. R. GARRAT, *The atmospheric boundary layer*, Cambridge University Press, 1992.
- [2] S. R. HANNA, Z. LU, H. C. FREY, N. WHEELER, J. VUKOVICH, S. ARUNACHALAM, M. FERNAU, AND D. A. HANSEN, *Uncertainties in predicted ozone concentrations due to input uncertainties for the UAM-V photochemical grid model applied to the July 1995 OTAG domain*, Atmospheric Environment, 35 (2001), pp. 891–903.
- [3] J. R. HOLTON, *An introduction to dynamic meteorology*, Academic Press, fourth ed., 2004.
- [4] W. HUNSDORFER AND J. G. VERWER, *Numerical Solution of Time-Dependent Advection-Diffusion-Reaction Equations*, Series in Comput. Math. 33, Springer, 2003.
- [5] D. J. JACOB, *Introduction to atmospheric chemistry*, Princeton University Press, 1999.
- [6] J.-F. LOUIS, *A parametric model of vertical eddy fluxes in the atmosphere*, Boundary-Layer Meteorology, 17 (1979), pp. 187–202.
- [7] J. H. SEINFELD AND S. N. PANDIS, *Atmospheric chemistry and physics : from air pollution to climate change*, Wiley-Interscience, 1998.
- [8] B. SPORTISSE AND V. MALLET, *Calcul scientifique pour l'environnement*. Cours de deuxième année à l'ENSTA, 2005 & 2006.
- [9] W. R. STOCKWELL, F. KIRCHNER, M. KUHN, AND S. SEEFELD, *A new mechanism for regional atmospheric chemistry modeling*, Journal of Geophysical Research, 102 (1997), pp. 25,847–25,879.
- [10] W. R. STOCKWELL, P. MIDDLETON, J. S. CHANG, AND X. TANG, *The second generation regional acid deposition model chemical mechanism for regional air quality modeling*, Journal of Geophysical Research, 95 (1990), pp. 16,343–16,367.
- [11] R. B. STULL, *An introduction to boundary layer meteorology*, Kluwer Academic Publishers, 1988.
- [12] I. TROEN AND L. MAHRT, *A simple model of the atmospheric boundary layer; sensitivity to surface evaporation*, Boundary-Layer Meteorology, 37 (1986), pp. 129–148.

- [13] M. L. WESELY, *Parameterization of surface resistances to gaseous dry deposition in regional-scale numerical models*, Atmospheric Environment, 23 (1989), pp. 1,293–1,304.
- [14] M. L. WESELY AND B. B. HICKS, *A review of the current status of knowledge on dry deposition*, Atmospheric Environment, 34 (2000), pp. 2,261–2,282.
- [15] L. ZHANG, J. R. BROOK, AND R. VET, *A revised parameterization for gaseous dry deposition in air-quality models*, Atmospheric Chemistry and Physics, 3 (2003), pp. 2,067–2,082.