

UNIVERSITÉ DU QUÉBEC À MONTRÉAL

INTERCOMPARAISON
DE TROIS MODÈLES CANADIENS DE QUALITÉ DE L' AIR
À L'ÉCHELLE RÉGIONALE

MÉMOIRE
PRÉSENTÉ
COMME EXIGENCE PARTIELLE
DE LA MAÎTRISE EN SCIENCES DE L' ATMOSPHERE

PAR
DAVID DÉGARDIN

AOÛT 2007

UNIVERSITÉ DU QUÉBEC À MONTRÉAL
Service des bibliothèques

Avertissement

La diffusion de ce mémoire se fait dans le respect des droits de son auteur, qui a signé le formulaire *Autorisation de reproduire et de diffuser un travail de recherche de cycles supérieurs* (SDU-522 – Rév.01-2006). Cette autorisation stipule que «conformément à l'article 11 du Règlement no 8 des études de cycles supérieurs, [l'auteur] concède à l'Université du Québec à Montréal une licence non exclusive d'utilisation et de publication de la totalité ou d'une partie importante de [son] travail de recherche pour des fins pédagogiques et non commerciales. Plus précisément, [l'auteur] autorise l'Université du Québec à Montréal à reproduire, diffuser, prêter, distribuer ou vendre des copies de [son] travail de recherche à des fins non commerciales sur quelque support que ce soit, y compris l'Internet. Cette licence et cette autorisation n'entraînent pas une renonciation de [la] part [de l'auteur] à [ses] droits moraux ni à [ses] droits de propriété intellectuelle. Sauf entente contraire, [l'auteur] conserve la liberté de diffuser et de commercialiser ou non ce travail dont [il] possède un exemplaire.»

TABLE DES MATIÈRES

LISTE DES FIGURESiv
LISTE DES TABLEAUXxi
LISTE DES ABRÉVIATIONSxii
RÉSUMÉxiii
INTRODUCTION1
CHAPITRE 1	
DESCRIPTION SIMPLIFIÉE DES PROCESSUS CHIMIQUES LIÉS À	
L'ÉVOLUTION DE L'OZONE4
1.1 La formation de l'ozone stratosphérique5
1.2 La formation de l'ozone troposphérique6
1.2.1 La source6
1.2.2 Le radical hydroxyle7
1.2.3 Les hydrocarbures8
1.3 Les réactions de terminaison13
1.4 L'influence de la météorologie sur l'ozone troposphérique14
CHAPITRE 2	
MÉTHODOLOGIE17
2.1 Description des modèles utilisés17
2.1.1 CHRONOS17
2.1.2 AURAMS19
2.1.3 GEM-AQ20
2.2 Revue des évaluations existantes des trois modèles22
2.2.1 CHRONOS22
2.2.2 AURAMS24
2.2.3 GEM-AQ25

2.3	Caractérisation de l'expérience	26
2.3.1	Définition de l'expérience	26
2.3.2	Sélection des secteurs d'évaluation	28

CHAPITRE 3

ÉTUDE D'INTERCOMPARAISON	38	
3.1	Réalisations avec le modèle GEM – AQ	38
3.2	Analyse de la distribution des écarts par classe de pollution	39
3.2.1	Regard sur la répartition des niveaux horaires	39
3.2.2	Distribution sur l'ensemble du domaine	40
3.3	Analyse de l'évolution temporelle des maximums horaires	42
3.3.1	Nord-est du continent	43
3.3.2	Centre du continent	44
3.3.3	Atlantique sud	45
3.3.4	Atlantique nord	46
3.3.5	Péninsule floridienne	47
3.4	Analyse des profils moyens journaliers de secteur	52
3.4.1	Nord-est du continent	53
3.4.2	Centre du continent	54
3.4.3	Atlantique sud	55
3.4.4	Atlantique nord	56
3.4.5	Péninsule floridienne	56
3.4.6	Caractérisation des écarts entre les niveaux simulés et observés	57
3.4.7	Caractérisation des taux de production/consommation	62
3.5	Analyse du diagramme de Taylor	67
3.5.1	Performances Générales.....	69
3.5.2	Performances par secteur	70
3.6	Analyses spatiales	72
3.6.1	Répartition spatiale de la différence entre les moyennes observées et simulées	73

3.6.2	Répartition spatiale des coefficients de corrélation	75
3.6.3	Répartition spatiale du rapport des écart-types	77
3.7	Discussion sur les conclusions des analyses	79
CHAPITRE 4		
ANALYSE DE SENSIBILITÉ AUX ÉMISSIONS DE SURFACE		86
4.1	Mise en contexte	86
4.2	Présentation des modifications	87
4.3	Analyses des simulations de AURAMS V1 et AURAMS V2	89
4.3.1	Regard sur la répartition des niveaux horaires	89
4.3.2	Analyse de la distribution des écarts par classe de pollution	90
4.3.3	Analyse de l'évolution temporelle des maximums horaires	92
4.3.4	Analyse des profils moyens journaliers de secteur (PMJS)	94
4.3.5	Caractérisation des taux de production/consommation moyens	97
4.4	Analyse des simulations des trois versions d'AURAMS par rapport aux observations	100
4.4.1	Analyse du diagramme de Taylor	100
4.4.2	Répartition spatiale de la différence entre les moyennes observées et simulées	102
4.4.3	Répartition spatiale des coefficients de corrélation	103
4.4.4	Répartition spatiale du rapport des écart-types	105
CONCLUSION		107
BIBLIOGRAPHIE		112

LISTE DES FIGURES

Figure 1 : Domaine de simulation couvert par CHRONOS.	18
Figure 2 : Domaine de simulation couvert par AURAMS	20
Figure 3 : Domaine de simulation couvert par GEM-AQ.	21
Figure 4 : Carte représentant les secteurs retenus par l'analyse successive des composantes principales.	30
Figure 5 : Découpage du domaine d'étude pour une valeur seuil de 0.5 – 9 secteurs.	31
Figure 6 : Découpage du domaine d'étude pour une valeur seuil de 0.65 – 41 secteurs.	31
Figure 7 : Découpage du domaine d'étude pour une valeur seuil de 0.80 – 190 secteurs.	32
Figure 8 : Évolution du nombre de secteurs significatifs et du taux de recouvrement selon le coefficient de corrélation choisi comme valeur seuil.	33
Figure 9 : Répartition géographique des secteurs représentatifs obtenus pour une valeur seuil de 0,57.	34
Figure 10 : Répartition géographique des secteurs représentatifs obtenus pour une valeur seuil de 0,59.	34
Figure 11 : Répartition géographique des secteurs représentatifs obtenus pour une valeur seuil de 0,60.	35
Figure 12 : Répartition géographique des secteurs représentatifs obtenus pour une valeur seuil de 0,61.	35
Figure 13 : Répartition géographique des secteurs représentatifs obtenus pour une valeur seuil de 0,62.	36
Figure 14 : Répartition géographique des secteurs représentatifs obtenus pour une valeur seuil de 0,55.	36

Figure 15 : Répartition géographique des secteurs représentatifs obtenus pour une valeur seuil de 0,56.	36
Figure 16 : Distribution des écarts de pollution sur l'ensemble du domaine produit par AURAMS	41
Figure 17 : Distribution des écarts de pollution sur l'ensemble du domaine produit par CHRONOS	42
Figure 18 : Évolution temporelle de la moyenne, sur le secteur nord-est du continent, des rapports de mélanges horaires maximum observés et simulés	44
Figure 19 : Évolution temporelle de la moyenne, sur le secteur du centre du continent, des rapports de mélanges horaires maximum observés et simulés.	45
Figure 20 : Évolution temporelle de la moyenne, sur le secteur de l'atlantique sud, des rapports de mélanges horaires maximum observés et simulés.	45
Figure 21 : Évolution temporelle de la moyenne, sur le secteur de l'atlantique nord, des rapports de mélanges horaires maximum observés et simulés.	48
Figure 22 : Évolution temporelle de la moyenne, sur le secteur de la Floride, des rapports de mélanges horaires maximum observés et simulés.	48
Figure 23 : Climatologie des vents pour le mois d'août à Tampa.	48
Figure 24 : Répartition des sites de mesure sur la péninsule floridienne (points rouges).	48
Figure 25 : Évolutions temporelles des MaxH du point de grille (51;9) d'AURAMS évalué par rapport aux 4 sites de référence qui lui sont attribués.	49
Figure 26 : Évolutions temporelles des MaxH du point de grille (52;7) d'AURAMS évalué par rapport aux 4 sites de référence qui lui sont attribués.	49
Figure 27 : Évolution temporelle de la moyenne, sur le secteur de la Floride, des rapports de mélanges horaires maximum observés et simulés par AURAMS. La moyenne à été calculé à partir des niveaux maximums moyens d'ozone de chaque cellule.	51

Figure 28 : Profils moyens journaliers calculés sur le secteur nord-est du continent (PMJS) à partir des rapports de mélange observés et simulés. Les typologies rurale, suburbaine et urbaine sont prises en compte.	54
Figure 29 : PMJS du centre du continent à partir des rapports de mélange observés et simulés. Les typologies rurale, suburbaine et urbaine sont prises en compte.	55
Figure 30 : PMJS de l'atlantique sud à partir des rapports de mélange observés et simulés. Les typologies rurale, suburbaine et urbaine sont prises en compte.	55
Figure 31 : PMJS de l'atlantique nord à partir des rapports de mélange observés et simulés. Les typologies rurale, suburbaine et urbaine sont prises en compte.	56
Figure 32 : PMJS de la Floride à partir des rapports de mélange observés et simulés. Les typologies rurale, suburbaine et urbaine sont prises en compte.	56
Figure 33 : PMJS des écarts absolus entre les niveaux d'ozone simulés par rapport à ceux observés pour le secteur du nord-est du continent. Les interruptions dans les profils sont causées par l'absence de données observées.	58
Figure 34 : PMJS des écarts relatifs entre les niveaux d'ozone simulés par rapport à ceux observés pour le secteur du nord-est du continent. Les interruptions dans les profils sont causées par l'absence de données observées.	59
Figure 35 : PMJS des écarts absolus entre les niveaux d'ozone simulés par rapport à ceux observés pour le secteur du centre du continent.	60
Figure 36 : PMJS des écarts relatifs entre les niveaux d'ozone simulés par rapport à ceux observés pour le secteur du centre du continent.	60
Figure 37 : PMJS des écarts absolus entre les niveaux d'ozone simulés par rapport à ceux observés pour le secteur de l'atlantique sud.	61

Figure 38 : PMJS des écarts relatifs entre les niveaux d’ozone simulés par rapport à ceux observé pour le secteur de l’atlantique sud.	61
Figure 39 : PMJS des écarts absolus entre les niveaux d’ozone simulés par rapport à ceux observés pour le secteur de l’atlantique nord.	61
Figure 40 : PMJS des écarts relatifs entre les niveaux d’ozone simulés par rapport à ceux observé pour le secteur de l’atlantique nord.	61
Figure 41 : PMJS des écarts absolus entre les niveaux d’ozone simulés par rapport à ceux observés pour le secteur de la Floride.	62
Figure 42 : PMJS des écarts relatifs entre les niveaux d’ozone simulés par rapport à ceux observé pour le secteur de la Floride.	62
Figure 43 : PMJS du taux de production/consommation d’ozone simulés et observé sur le secteur nord-est du continent.	64
Figure 44 : PMJS du taux de production/consommation d’ozone simulés et observé sur le secteur du centre du continent.	65
Figure 45 : PMJS du taux de production/consommation d’ozone simulés et observé sur le secteur Atlantique sud.	65
Figure 46 : PMJS du taux de production/consommation d’ozone simulés et observé sur le secteur Atlantique nord.	66
Figure 47 : PMJS du taux de production/consommation d’ozone simulés et observé sur le secteur de la Floride.	66
Figure 48 : Diagramme de Taylor regroupant les secteurs d'analyse. Les performances par secteur d’AURAMS sont en rouge et celles de CHRONOS sont en bleu.	72
Figure 49 : Répartition spatiale de la différence entre les moyennes des niveaux horaires d'ozone simulés par CHRONOS et observés.	74
Figure 50 : Répartition spatiale de la différence entre les moyennes des niveaux horaires d'ozone simulés par AURAMS et observés.	74
Figure 51 : Répartition spatiale du coefficient de corrélation entre les évolutions temporelles des niveaux horaires d'ozone simulés par CHRONOS et observés à chaque site de mesure.	76

Figure 52 : Répartition spatiale du coefficient de corrélation entre les évolutions temporelles des niveaux horaires d'ozone simulés par AURAMS et observés sur chaque site de mesure.	76
Figure 53 : Répartition spatiale du rapport des écart-types des niveaux horaires d'ozone simulés par CHRONOS et observés.	78
Figure 54 : Répartition spatiale du rapport des écart-types des niveaux horaires d'ozone simulés par AURAMS et observés.	78
Figure 55 : Répartition des émissions d'isoprène ($\mu\text{g}/\text{m}^2/\text{hr}$) sur le continent nord américain, pour une température standard de 30°C et une insolation standard, obtenue à partir de BEIS2.	88
Figure 56 : Répartition des émissions d'isoprène ($\mu\text{g}/\text{m}^2/\text{hr}$) sur le continent nord américain, pour une température standard de 30°C et une insolation standard, obtenue à partir de BEIS3.	88
Figure 57 : Répartition sur le continent nord américain des émissions de NO ($\mu\text{g}/\text{m}^2/\text{hr}$), à partir du sol, obtenue à partir de BEIS2.	88
Figure 58 : Répartition sur le continent nord américain des émissions de NO ($\mu\text{g}/\text{m}^2/\text{hr}$), à partir du sol, obtenue à partir de BEIS3.	88
Figure 59 : Distribution des écarts de pollution sur l'ensemble du domaine produit par AURAMS V1.	91
Figure 60 : Distribution des écarts de pollution sur l'ensemble du domaine produit par AURAMS V2.	91
Figure 61 : Évolution temporelle de la moyenne, sur le secteur nord-est du continent, des rapports de mélanges horaires maximums simulés par les trois versions d'AURAMS.	93
Figure 62 : Évolution temporelle de la moyenne, sur le secteur centre du continent, des rapports de mélanges horaires maximums simulés par les trois versions d'AURAMS.	93
Figure 63 : Évolution temporelle de la moyenne, sur le secteur de l'atlantique sud, des rapports de mélanges horaires maximums simulés par les trois versions d'AURAMS.	93

Figure 64 : Évolution temporelle de la moyenne, sur le secteur de l’atlantique nord, des rapports de mélanges horaires maximums simulés par les trois versions d’AURAMS.	94
Figure 65 : Évolution temporelle de la moyenne, sur le secteur de la Floride, des rapports de mélanges horaires maximums simulés par les trois versions d’AURAMS.	94
Figure 66 : Profils moyens journaliers calculés sur le secteur nord-est du continent (PMJS) à partir des rapports de mélange simulés par les trois versions D’AURAMS.	95
Figure 67 : PMJS du centre du continent à partir des rapports de mélange simulés par les trois versions d’AURAMS.	96
Figure 68 : PMJS de l’atlantique sud à partir des rapports de mélange simulés par les trois versions d’AURAMS.	96
Figure 69 : PMJS de l’atlantique nord à partir des rapports de mélange simulés par les trois versions d’AURAMS.	96
Figure 70 : PMJS de la Floride à partir des rapports de mélange simulés par les trois versions d’AURAMS.	96
Figure 71 : PMJS du taux de production/consommation d’ozone simulés par les trois versions d’AURAMS sur le secteur nord-est du continent.	98
Figure 72 : PMJS du taux de production/consommation d’ozone simulés par les trois versions d’AURAMS sur le secteur du centre du continent.	99
Figure 73 : PMJS du taux de production/consommation d’ozone simulés par les trois versions d’AURAMS sur l’atlantique sud.	99
Figure 74 : PMJS du taux de production/consommation d’ozone simulés par les trois versions d’AURAMS sur l’atlantique nord.	99
Figure 75 : PMJS du taux de production/consommation d’ozone simulés par les trois versions d’AURAMS sur la Floride.	99
Figure 76 : Diagramme de Taylor regroupant les secteurs d'analyse. Les performances par secteur d’AURAMS sont en rouge, d’AURAMS V1 en vert et d’AURAMS V2 en orange.	101

Figure 77 : Répartition spatiale de la différence entre les moyennes des niveaux horaires d'ozone simulées par AURAMS V1 et observées.	103
Figure 78 : Répartition spatiale de la différence entre les moyennes des niveaux horaires d'ozone simulées par AURAMS V2 et observées.	103
Figure 79 : Répartition spatiale du coefficient de corrélation entre les évolutions temporelles des niveaux horaires d'ozone simulées par AURAMS V1 et observées sur chaque site de mesure.	104
Figure 80 : Répartition spatiale du coefficient de corrélation entre les évolutions temporelles des niveaux horaires d'ozone simulées par AURAMS V2 et observées sur chaque site de mesure.	104
Figure 81 : Répartition spatiale du rapport des écart-types des niveaux horaires d'ozone simulées par AURAMS V1 et observées.	106
Figure 82 : Répartition spatiale du rapport des écart-types des niveaux horaires d'ozone simulées par AURAMS V2 et observée.	106

LISTE DES TABLEAUX

Tableau 1 : Moyennes et écart-types des niveaux d’ozone observées et simulées du 15 juin au 15 août 1995.	24
Tableau 2 : Répartition des rapports de mélange horaires (c en ppb) observés et simulés par CHRONOS et AURAMS.	40
Tableau 3 : Performances générales des deux modèles.	69
Tableau 4 : Distribution des différences entre les moyennes simulée et observée sur chaque site.	73
Tableau 5 : Répartition des coefficients de corrélation calculés pour chaque site de mesure.	75
Tableau 6 : Distribution des rapports des écart-types calculés pour chaque site de mesure.	77
Tableau 7 : Résumé des émissions d’oxydes d’azote (NO _x) et des composés organiques volatiles relevées par les autorités canadiennes et américaines pour les deux périodes de référence 1995/96 et 2000/2001.	89
Tableau 8 : Répartition des rapports de mélange horaires (c en ppb) simulés par les trois versions d’AURAMS.	90
Tableau 9 : Distribution des différences entre les moyennes simulée et observée sur chaque site.	102
Tableau 10 : Distribution des rapports des écart-types calculés pour chaque site de mesure.	104
Tableau 11: Distribution des rapports des écart-types calculés pour chaque site de mesure.	105

LISTE DES ABRÉVIATIONS

ADOM	Acid Deposition Oxidants Model
AURAMS	A Unified Regional Air quality Modelling System
BEIS	Biogenic Emissions Inventory System
BELD	Biogenic Emissions Land-use Database
CMC	Centre Météorologique Canadien
CAM	Canadian Aerosols Module
CEPS	Canadian Emission Processing System
CHRONOS	Canadian Hemispheric and Regional Ozone and NO _x System
EC	Environnement Canada
GEM	Global Environmental Multi-scale
GEM-AQ	Global Environmental Multi-scale – Air Quality
GLOBEIS	GLOBAL Biosphere Emissions and Interactions System
NARSTO	North American Research Strategy for Tropospheric Ozone
ppb	partie par billion (partie par milliard)
SMC	Service Météorologique du Canada

RÉSUMÉ

CHRONOS, AURAMS et GEM-AQ sont trois modèles de simulation de la qualité de l'air à l'échelle régionale développés et utilisés par différentes institutions canadiennes. Ils reproduisent, avec différents degrés de complexité, les interactions physico-chimiques présentes dans l'atmosphère. Bien que CHRONOS et AURAMS aient déjà prouvé leurs capacités à reproduire des épisodes intenses de pollution, les évaluations réalisées ne permettent pas une comparaison directe de leurs performances respectives. GEM-AQ, quant à lui, est en phase d'évaluation par ses concepteurs. Les objectifs de ce projet consistaient à réaliser la première intercomparaison de ces trois modèles sur une période commune et sur un même domaine d'évaluation, puis de caractériser les écarts pour identifier leurs origines. À l'aide d'analyses appropriées, nous avons comparé les niveaux d'ozone simulés, du 6 juillet au 31 août 2004, par les modèles avec 607 sites de mesure des réseaux de surveillance de la qualité de l'air canadiens et américains. Les sites de mesure sélectionnés ont été répartis selon cinq secteurs qui couvrent la moitié est de l'Amérique du nord et qui caractérisent des régimes météorologiques différents.

Nous avons rencontré des difficultés avec GEM-AQ pour effectuer les simulations qui n'ont pas pu être résolues par manque de temps. Nous avons donc limité l'intercomparaison à deux modèles. Nous avons montré que CHRONOS et AURAMS reproduisaient la variation des niveaux horaires d'ozone observés, avec des coefficients de corrélation moyens respectifs de 0.71 et 0.66. Cependant, les deux modèles ont surestimé leurs amplitudes sur l'ensemble du domaine hormis sur la péninsule floridienne où celles-ci ont été similaires. Les surestimations sur les niveaux horaires ont été de 30 à 50% en moyenne pour CHRONOS alors que celles d'AURAMS ont rarement excédées 20%.

Nous avons constaté que les écarts évoluaient selon un cycle nyctémère plus influencé par les données d'émissions, notamment celles qui décrivent les émissions biogéniques, que par les paramétrages qui décrivent les processus photochimiques. Par ailleurs, les différences entre les moyennes d'ozone observées et simulées ont également présenté une caractéristique spatiale : Les différences les plus importantes ont été retrouvées sur un secteur commun aux deux modèles. Celui-ci recouvre l'essentiel de la chaîne des Appalaches et son versant occidental. Cette particularité soulignerait l'influence de la définition géographique des émissions sur la simulation des niveaux d'ozone. Nous avons également observé que l'évolution de la couche de mélange simulée par le modèle météorologique GEM pourrait être à l'origine d'une surestimation notable des niveaux d'ozone en fin d'après-midi. Finalement, nous avons identifié les influences que peuvent avoir la couverture et la résolution d'une grille sur les niveaux d'ozone simulés. Ainsi, les moins bonnes performances d'AURAMS ont été retrouvées au voisinage de sa limite ouest et dans les régions où les effets locaux peuvent fortement influencer le comportement des polluants troposphériques. Dans ce contexte, nous avons montré la pertinence potentielle d'une évaluation de modèle qui reposerait sur la comparaison du niveau d'ozone simulé dans une cellule par rapport à la moyenne des niveaux observés par les stations présentes dans cette cellule.

Pour caractériser l'influence des émissions sur la simulation des niveaux d'ozone, nous avons réalisé une étude de sensibilité d'AURAMS où nous avons successivement modifié les émissions biogéniques puis anthropiques. Cette étude nous a permis d'associer les émissions biogéniques à la surestimation des niveaux d'ozone simulés; Nous avons également observé que les derniers inventaires d'émission canadien et américain ont réajusté à la baisse les émissions d'oxydes d'azote associés au trafic matinal.

Mots clés : *évaluation de modèle, CHRONOS, AURAMS intercomparaison, ozone, caractérisation des écarts.*

INTRODUCTION

La pollution atmosphérique est une problématique planétaire qui s'attaque depuis plusieurs siècles à la qualité de vie des espèces humaines, animales et végétales. La révolution industrielle, puis la consommation croissante de l'énergie fossile de ces dernières décennies ont graduellement mais rapidement amplifié le phénomène. Les pays industrialisés et ceux en voie de développement subissent une dégradation de la qualité de l'air à laquelle est soumise leurs populations, ainsi qu'une détérioration de leurs patrimoines environnementaux et architecturaux. Plusieurs d'entre eux financent des programmes de recherche pour étudier, comprendre et simuler les processus physico-chimiques qui régissent l'évolution des concentrations des espèces chimiques présentes dans l'atmosphère et, in fine, pour prévoir la qualité de l'air ainsi que pour disposer d'un outil d'aide à la prise de décision sur les politiques à mener ultérieurement.

Au Canada, plusieurs institutions publiques et privées utilisent des modèles de qualité de l'air dont certains sont élaborés et développés par des centres de recherche canadiens. Trois de ces modèles canadiens sont couramment utilisés sur l'ensemble du continent nord-américain et sont conçus pour représenter l'évolution de plusieurs espèces chimiques en tenant compte des processus qui apparaissent à l'échelle régionale : **CHRONOS** (Canadian Hemispheric and Regional Ozone and NO_x System - *Pudykiewicz, 1997*) est, depuis 1999, le modèle opérationnel de prévision de la qualité de l'air du Service Météorologique du Canada (SMC). Celui-ci est quotidiennement utilisé pour produire des prévisions numériques de qualité de l'air et sert à l'émission d'avis public de pollution photochimique sur l'ensemble du pays. **AURAMS** (A Unified Regional Air quality Modelling System – *Moran et al., 1998*) est le modèle de recherche de AQRD (Air Quality Research Division) d'Environnement Canada (EC). Bien que le cœur de ce modèle soit le même que celui de CHRONOS, il a été adapté et actualisé pour développer et reproduire les processus liés à l'évolution temporelle des aérosols et leurs interactions avec les espèces chimiques en phase gazeuse. **GEM-AQ** (Global Environmental Multi-scale – Air Quality – *O'Neill et al., 2006*) est un modèle universitaire conçu par l'université York de Toronto à partir du modèle de prévision

météorologique opérationnel canadien GEM (*Côté et al., 1998a, 1998b*). GEM-AQ est développé par le regroupement de centres universitaires de recherche MAQNet (Multiscale Air Quality modelling NETwork). Sa particularité, aux regards des deux modèles précédents, réside dans l'approche choisie qui permet de simuler l'évolution des polluants atmosphériques en même temps que l'évolution des paramètres météorologiques (mode « on-line »).

Ces trois modèles ont fait l'objet d'évaluations par rapport aux observations (respectivement : *Sirois et al., 1999 - Makar et al., 2003, Bouchet et al., 2003 – Struzewska, 2005*). Cependant les résultats de ces études ne sont pas directement comparables et ne nous permettent pas de caractériser leurs performances respectives et d'évaluer, par rapport à CHRONOS, les modifications faites dans AURAMS, ou le choix du mode on-line proposé par GEM-AQ.

Avec ce mémoire nous proposons une première évaluation par rapport à une référence commune de ces trois modèles canadiens afin de comparer les performances de leurs simulations des niveaux d'ozone. Nous caractérisons ensuite les origines possibles des écarts entre les sorties des modèles et la référence qui est constituée d'observations horaires des niveaux d'ozone. Pour réaliser cette étude, nous avons utilisé les sorties des simulations opérationnelles de CHRONOS qui ont été effectuées quotidiennement sur une période de 8 semaines au cours de l'été 2004. Nous souhaitons simuler la même période avec les deux autres modèles car il s'agit de la période de l'année la plus favorable aux épisodes de pollution par l'ozone.

Avant de présenter la méthode de travail et les résultats de celle-ci, il nous semble nécessaire d'inclure un résumé sur les réactions chimiques mises en jeu dans la production de l'ozone troposphérique car la chimie atmosphérique est un cours rarement disponible au département des sciences de l'atmosphère de l'UQÀM. Ainsi, le premier chapitre décrit succinctement les réactions qui régissent l'évolution de l'ozone dans la stratosphère et la troposphère, puis établit les liens entre la météorologie et les niveaux d'ozone observables dans la troposphère.

Le deuxième chapitre présente une description de CHRONOS, AURAMS et GEM-AQ ainsi qu'une revue des évaluations qui ont été effectuées. Dans ce chapitre, nous présentons également les grandes lignes de la méthodologie du projet et proposons une méthode de sectorisation du domaine d'étude qui nous a permis de diminuer la charge de travail et

d'évaluer le comportement moyen des modèles sur les 5 secteurs qui composent le domaine d'évaluation.

Des analyses originales ont été effectuées sur les niveaux d'ozone simulés en surface comparativement à ceux observés, sur un domaine commun qui couvre la partie orientale de l'Amérique du nord. Les descriptions et les résultats obtenus de la répartition des écarts entre les niveaux simulés et observés par classe de pollution, des évolutions temporelles des moyennes spatiales des niveaux maximum horaires, des moyennes spatiales des profils moyens journaliers, de la répartition spatiale de certains paramètres statistiques et du diagramme de Taylor sont présentés dans le troisième chapitre.

Nous avons effectué deux simulations supplémentaires avec AURAMS sur la même période mais en modifiant les émissions biogéniques dans la première simulation et, à la fois, les émissions biogéniques et les émissions anthropiques dans la deuxième. Ces nouvelles simulations nous permis de réaliser une étude de sensibilité par rapport à une modification des données d'entrée. Les performances de ces nouvelles simulations comparativement à celles obtenues par la simulation originale sont présentées au chapitre 4.

CHAPITRE 1

DESCRIPTION SIMPLIFIÉE DES PROCESSUS CHIMIQUES LIÉS À L'ÉVOLUTION DE L'OZONE

L'atmosphère terrestre est composée principalement de molécules d'azote (N_2 ; ~78%) et d'oxygène (O_2 ; ~21%). Le pourcentage restant regroupe les gaz nobles tels que l'argon, le néon et l'hélium, ainsi que des gaz mineurs comme le dioxyde de carbone (CO_2), la vapeur d'eau (H_2O) et l'ozone (O_3). Bien que les concentrations de ces derniers soient très faibles, ils participent régulièrement aux processus physiques et chimiques présents dans l'atmosphère. Leurs influences sur la transmission de la radiation solaire et terrestre à travers les couches atmosphériques les lient aux processus physiques du climat. Ils déterminent également la capacité oxydante de l'atmosphère. Celle-ci définit la durée de vie des gaz provenant des émissions biogéniques et anthropiques. Les caractéristiques oxydantes de l'atmosphère terrestre sont régies par des fragments moléculaires très réactifs, appelés radicaux libres. Le radical hydroxyle ($HO\bullet$) est le composé le plus réactif dans la chimie troposphérique et il réagit avec presque toutes les espèces chimiques présentes en quantité minoritaire dans l'atmosphère. L'ozone est un acteur important car en plus d'être un oxydant puissant, il participe à la formation du radical $HO\bullet$.

Historiquement, l'ozone a été pressenti puis mis en évidence au milieu du 19^{ème} siècle par C.F. Schönbein, et c'est à la fin de ce même siècle que l'ozone a été répertorié comme un constituant naturel de l'atmosphère. Dans le premier tiers du 20^{ème} siècle, des mesures validèrent le profil vertical de la concentration d'ozone et prouvèrent que la quasi-totalité de ce gaz résidait dans la stratosphère. Jusqu'en 1930, la communauté scientifique, résultats à la main, appuyait l'idée d'un parcours de l'ozone, dont l'unique source est la stratosphère et, le principal puits est la surface de la Terre. C'est au milieu des années 1940, que la production d'ozone dans la troposphère fût mise en évidence.

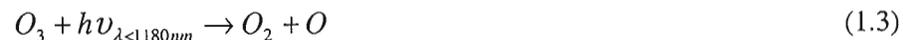
1.1 La formation de l'ozone stratosphérique

Dans les basses couches de la stratosphère (à environ 27 km d'altitude), la concentration d'ozone est maintenue selon un équilibre dynamique entre la décomposition et la formation de l'oxygène moléculaire présent à ces altitudes. La production d'ozone résulte de la photolyse, pour des longueurs d'onde inférieures à 242 nm, des molécules d'oxygène en atomes d'oxygènes excités. Ces derniers entrent en collision avec une molécule d'O₂ ou N₂ (notée M) qui absorbent l'énergie excédentaire. Revenu à son état d'énergie fondamentale, l'atome d'oxygène réagit avec une molécule d'O₂ pour former une molécule d'ozone. Les équations correspondantes sont présentées par (1.1) et (1.2).



Trois processus conduisent, à des taux de réactions différents, à la destruction de l'ozone stratosphérique:

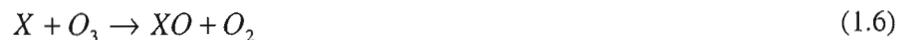
1) la photolyse de l'ozone par l'absorption du rayonnement solaire, dont les longueurs d'ondes sont inférieures à 1180 nm, présente un temps caractéristique de réaction de l'ordre de 20 minutes :



2) la collision entre une molécule d'ozone et un atome d'oxygène :



3) la dégradation catalytique de l'ozone en oxygène moléculaire :



Où le catalyseur X désigne le chlore (Cl•), le monoxyde d'azote (NO), le radical HO•, l'hydrogène (H•) ou le Brome (Br•). La présence de ces catalyseurs a été mise en évidence

dans la stratosphère dans les années 70. L'oxygène atomique présent dans la partie gauche de l'équation (1.7) provient du premier processus de destruction de l'ozone (eq. : 1.3).

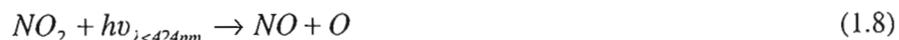
C'est dans cette couche de la stratosphère que l'on observe les concentrations maximales d'ozone. Les rapports de mélange sont de l'ordre de 10 à 100 ppmv (partie par million en volume). Celle-ci constitue la médiateur couche d'ozone qui protège toutes formes de vie à la surface de la planète, des rayons Ultra Violets (UV) de très courtes longueurs d'onde.

Des intrusions d'ozone stratosphérique dans la troposphère peuvent se produire en présence d'évènements météorologiques de grande envergure qui perforent temporairement la tropopause. Dans l'hémisphère nord, ces intrusions ont lieu principalement au printemps (*Holton et al., 1995*) ce qui limite drastiquement la contribution de l'ozone stratosphérique aux concentrations d'ozone troposphérique observées lors des épisodes estivaux de smog sur les continents nord-américains et européens. Cependant, des intrusions ont été observées dans des cas d'orages estivaux particulièrement violents et elles sont suspectées être plus fréquentes en milieu alpin qu'en plaine (*Stohl et al., 2000*).

1.2 La formation de l'ozone troposphérique

1.2.1 La source

L'ozone troposphérique résulte essentiellement de la photolyse du dioxyde d'azote (NO_2), par les radiations solaires dont les longueurs d'onde sont inférieures à 424 nm.



L'oxygène atomique percute une molécule inerte M qui absorbe l'énergie excédentaire de l'atome d'oxygène, puis réagit avec une molécule d'oxygène pour former une molécule d'ozone :



Aussitôt formée, la molécule d'ozone réagit avec une molécule de monoxyde d'azote pour reformer une molécule de dioxyde d'azote :



Ainsi, en dehors de l'influence de toute autre espèce chimique, il existe un équilibre dynamique entre le monoxyde d'azote, le dioxyde d'azote et l'ozone. En milieu rural, où les émissions anthropiques d'oxydes d'azote sont faibles, le rapport de mélange moyen d'ozone est de l'ordre de 30 ppbv (partie par milliard en volume). Ce jeu d'équations résulte en un cycle nyctémère. Ainsi, l'absence du rayonnement solaire conduit à la consommation de l' O_3 , selon l'équation (1.10), tant que le NO est disponible, alors que la présence du soleil favorise la production d' O_3 . En revanche, seul, cet équilibre dynamique ne permet pas d'expliquer les rapports de mélange horaires supérieurs à 100 ppbv tels qu'observés lors des épisodes estivaux de smog, au voisinage des grandes métropoles de l'hémisphère nord.

Il est important de rappeler que dans la troposphère, la photolyse du dioxyde d'azote peut être considérée comme l'unique source de génération d'ozone. Il est donc nécessaire de considérer d'autres réactions chimiques qui produisent du dioxyde d'azote sans consommer l'ozone présent dans la troposphère. En introduction à ce chapitre, l'ozone a été présenté comme un puissant oxydant mais aussi comme un constituant important pour la génération du radical $HO\bullet$. Cette espèce chimique est la clef de voûte de toute la chimie troposphérique.

1.2.2 Le radical hydroxyle

À la surface de la Terre, la photolyse de l'ozone par le rayonnement solaire produit, selon la longueur d'onde, deux types de molécules. Par l'équation (1.3), pour des longueurs d'onde inférieure à 1180 nm, la photolyse de l'ozone, dont le temps caractéristique de réaction dans la troposphère est de plusieurs jours, produit une molécule d'oxygène et un atome d'oxygène disponible pour la formation d' O_2 ou d' O_3 selon les équations respectives (1.4) et (1.9). Pour des longueurs d'onde comprises entre 300 et 320 nm, la photolyse de l'ozone génère une molécule d'oxygène et un atome d'oxygène à l'état excité:



Cet atome d'oxygène revient à son état d'énergie fondamentale en interagissant, par collision, avec une molécule voisine qui absorbera l'énergie supplémentaire. Cette collision est suivie

par un cycle de régénération de l'ozone par l'intermédiaire de l'équation (1.9). Cependant, la présence de vapeur d'eau dans la troposphère permet, par collision avec l'atome d'oxygène à l'état excité, de produire deux radicaux HO• :



Des radicaux HO• peuvent être aussi formés par réaction de radicaux hydroperoxydes (HO₂•). Pour des conditions de ciel clair, de températures élevées et en présence de NO, les radicaux HO₂• réagissent pour former du NO₂ et des radicaux HO• :



En milieu urbain, l'acide nitreux (HONO) et l'acide nitrique (HNO₃) peuvent également générer des radicaux HO• par photolyse. Ces acides, dont les concentrations maximales sont nocturnes, sont rapidement décomposés, en début de journée essentiellement, par les radiations solaires respectivement inférieures à 400 et 350 nm :



Les quatre processus de production de radicaux HO• suivent un cycle journalier où les concentrations de radicaux HO• sont maximums en journée et minimum dans le courant de la nuit.

1.2.3 Les hydrocarbures

En dehors des constituants majeurs de l'atmosphère (N₂, O₂, CO₂ et H₂O), le radical HO• réagit avec la plupart des espèces chimiques atmosphériques. C'est le cas en particulier des molécules qui contiennent un atome de carbone, tels que le monoxyde de carbone (CO), le formaldéhyde (HCHO) et les autres aldéhydes qui possèdent plusieurs atomes de carbones, le méthane (CH₄) ainsi que les hydrocarbures non méthaniques (HCNM).

Pour faciliter la compréhension générale, les cycles de transformation ne seront pas présentés dans leurs totalités, seules les équations des étapes significatives seront données. Les cycles complets sont décrits en annexe.

- En présence d'oxygène moléculaire, le CO et le radical HO• initient une chaîne de réaction qui ultimement produit du CO₂, du NO₂ et régénère des radicaux HO•. Ces derniers peuvent initier d'autres cycles d'oxydation du CO en CO₂ jusqu'à ce qu'une des molécules soit retirée par une des réactions de terminaison décrites dans le paragraphe §1.3. Le rendement de ce cycle est particulièrement efficace pour des températures ambiantes supérieures à 25°C.
- Dans les premières couches de l'atmosphère, HCHO peut subir deux types de réaction; soit une photolyse par les rayons solaires compris entre 301 et 356 nm, soit une combinaison avec un radical HO•. Les deux réactions activent des cycles de transformation chimique produisant des molécules de CO et de radicaux HO₂•. Le CO peut s'oxyder en CO₂ selon le cycle décrit précédemment et les radicaux HO₂• peuvent, en présence de NO, générer une molécule de NO₂ et un radical HO• conformément à l'équation (1.13). Ce cycle se poursuit tant et aussi longtemps qu'il reste du HCHO et tant que le rayonnement solaire est présent.
- Dans la troposphère, le CH₄ réagit avec le radical HO• pour produire une molécule H₂O ainsi qu'un radical méthyl peroxy (CH₃O₂•). CH₃O₂• réagit préférentiellement avec le NO, le radical HO₂• et dans une moindre mesure avec le NO₂.
 - En présence de NO, le radical CH₃O₂• réagit pour produire en fin de cycle du NO₂, du HCHO et un radical HO₂•.
 - Le radical CH₃O₂• réagit avec le radical HO₂•, conduisant ainsi à la formation d'une molécule de méthyl hydroperoxyde (CH₃OOH). Celle-ci peut régénérer des radicaux HO•, HO₂• et méthoxy (CH₃O•) et de HCHO. Les réactions correspondantes sont décrites par les équations (1.15) à (1.18).



- La molécule de CH_3OOH peut être également retirée de l'atmosphère par les processus de déposition sèche ou humide (cf.: §1.3).
- Le $CH_3O_2\bullet$ et le NO_2 se combinent, conformément à l'équation (1.32), pour former une molécule de nitrate de méthyle peroxy (CH_3OONO_2). La particularité de cette molécule réside dans sa durée de vie qui dépend des conditions de température et de pression de l'environnement dans laquelle elle se trouve. Dans les conditions de laboratoire, la durée de vie du CH_3OONO_2 , est de l'ordre d'une seconde alors que pour des conditions représentatives de la haute troposphère, sa durée de vie est de l'ordre de deux jours. La décomposition de ce produit conduit à la régénération des réactifs qui sont à l'origine de sa production. Cette particularité amène à considérer sa capacité en tant que réservoir temporaire de NO_2 et de radicaux $CH_3O_2\bullet$ dans les hautes couches de la troposphère.

Les cycles de transformation des trois molécules décrits précédemment constituent le cycle de décomposition complète du CH_4 en CO_2 , en passant par le stade du $HCHO$ puis celui du CO . Ces cycles mettent également en évidence l'implication des ces molécules dans l'accroissement potentiel du réservoir naturel de NO_2 disponible à la photodissociation.

Les interactions des radicaux $HO\bullet$ avec le CO , le $HCHO$ et le CH_4 se produisent sur l'ensemble de la planète, mais plus particulièrement sur les continents. Leurs effets sont plus notables dans les régions de faible densité de population que dans les secteurs densément peuplés. En milieu urbain, les activités humaines et la consommation d'énergie fossile émettent, en plus de ces trois espèces, de grandes quantités d'hydrocarbures non méthaniques et d'aldéhydes. Ces derniers sont moins stables et plus réactifs avec $HO\bullet$ que les molécules mono carbonées car ils disposent d'un plus grand nombre de liaison C-H susceptibles de

perdre leur atome d'hydrogène. Ainsi en zone urbaine, la contribution en hydrocarbures des émissions biogéniques pour produire du NO_2 est minimisée au profit des émissions anthropiques d'hydrocarbures.

Dans les équations qui vont suivre, R définit un regroupement organique du type $\text{C}_n\text{H}_{2n+1}$ et R' un regroupement organique du type C_nH_{2n} ou l'indice n caractérise le nombre d'atome de carbone dans le regroupement.

Dans l'atmosphère, les hydrocarbures non méthaniques réagissent avec les radicaux $\text{HO}\bullet$ pour former, en fin de chaîne de réaction, des radicaux alkylpéroxy ($\text{RO}_2\bullet$).



Pour les régions continentales qui sont influencées par les émissions anthropiques, les radicaux $\text{RO}_2\bullet$ réagissent essentiellement avec le NO pour produire du NO_2 et un radical alkoxy $\text{RO}\bullet$:



À leurs tours, les radicaux $\text{RO}\bullet$ s'oxydent dans l'atmosphère en un aldéhyde accompagnée d'un radical $\text{HO}_2\bullet$:



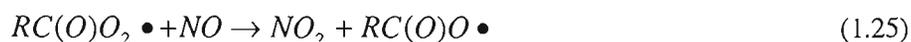
Pour des conditions météorologiques qui permettent un ciel clair et des températures élevées, les radicaux $\text{HO}_2\bullet$ peuvent réagir avec le NO présent selon l'équation (1.13). Ce qui complète un cycle de régénération du dioxyde d'azote et permet de débiter un second cycle en régénérant un radical $\text{HO}\bullet$. L'arrivée du crépuscule entraîne la fin du cycle et engage les réactions de terminaisons (cf. : §1.3).

Les aldéhydes présents initialement (RCHO) et ceux produits dans le cycle précédent (initialement notés $\text{R}'\text{CHO}$), réagissent avec les radicaux $\text{HO}\bullet$ pour produire des radicaux

acyle ($RC\bullet O$). Ceux-ci s'oxydent rapidement pour former des radicaux acyl peroxy ($RC(O)O_2\bullet$):



- Ce radical acyl peroxy réagit avec le monoxyde d'azote pour compléter un cycle de formation de NO_2 supplémentaire et générer, selon l'équation (1.25) un radical acyloxy ($RC(O)O\bullet$):

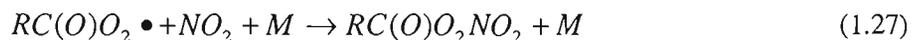


Dans l'atmosphère, les radicaux $RC(O)O\bullet$ se réduisent en radical $RO_2\bullet$ et génèrent du CO_2 :



Le radical $RO_2\bullet$ généré peut intégrer le cycle de formation du dioxyde d'azote à partir de l'équation (1.21).

- Les radicaux $RC(O)O_2\bullet$, produit par (1.24), réagissent également avec le dioxyde d'azote pour former des molécules appartenant à la famille des PANs ($RC(O)O_2NO_2$):



Ces espèces chimiques sont peu solubles dans l'eau et inertes au rayonnement pour toutes les longueurs d'onde supérieures à 290 nm. Ainsi, le lessivage de l'atmosphère par les pluies et la photodissociation ne permettent pas l'épuration de l'atmosphère de ces espèces. Le principal mécanisme de destruction de ces espèces chimiques est la décomposition thermique (1.28). Celle-ci régénère les réactifs de la réaction (1.27).



À l'instar du nitrate de méthyle peroxyde (CH_3OONO_2) présenté précédemment, les PANs peuvent être considérés comme des réservoirs, temporaires et mobiles, de dioxyde d'azote.

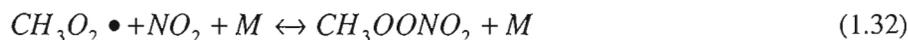
1.3 Les réactions de terminaison

L'oxydation du CO en CO_2 est moins efficace dès que le processus de photodissociation du NO_2 (1.8) s'arrête avec la diminution du rayonnement solaire. Ainsi après le crépuscule ou sous une couverture nuageuse importante, le NO_2 et le NO réagissent avec le radicale $\text{HO}\bullet$ pour former respectivement de l'acide nitrique (HNO_3) et de l'acide nitreux:



Les acides nitrique et nitreux sont solubles, ils peuvent donc être retirés de l'atmosphère par les processus de déposition humide ou sèche.

En milieu urbain, les principales chaînes de terminaison de l'oxydation du méthane sont la formation de HNO_3 (1.29) et de CH_3OONO_2 :



En milieu rural, où les niveaux d'oxydes d'azote sont très faibles, les radicaux $\text{HO}_2\bullet$ et $\text{CH}_3\text{O}_2\bullet$ produisent du peroxyde d'hydrogène (H_2O_2) et du CH_3OOH .



Le H_2O_2 et le CH_3OOH sont solubles dans l'eau, ils peuvent ainsi être retirés de l'atmosphère par lessivage.

La principale chaîne de terminaison des aldéhydes et des hydrocarbures non méthaniques est la production de HNO_3 (1.29), de H_2O_2 (1.33) et comme l'indique les équations (1.35) et (1.36) d'hydropéroxydes (ROOH) et de nitrates organiques (RONO_2):



Ces deux réactions permettent de soustraire ces radicaux libres de l'atmosphère, par déposition, et donc de réduire le taux de production d'O₃.

L'ozone est un gaz naturellement présent dans l'atmosphère et joue un rôle important dans les qualités oxydantes de celle-ci. Dans la troposphère, les concentrations d'ozone dépendent d'un équilibre dynamique impliquant les oxydes d'azote et le rayonnement solaire. Cet équilibre est localement influencé, d'une part, par la présence d'hydrocarbures en surface qui sont émis soit naturellement soit par l'activité humaine et d'autre part, par des conditions météorologiques qui modifient l'ensoleillement ou les conditions dispersives de l'atmosphère.

1.4 L'influence de la météorologie sur l'ozone troposphérique

La majorité des épisodes de pollution atmosphériques est associée à des systèmes anticycloniques qui se déplacent lentement. *Logan (1989)* a montré qu'en Amérique du Nord, les épisodes de pollution intense sont généralement associés à des anticyclones quasi stationnaires qui traversent le centre et l'est du continent d'ouest en est. Ceux-ci favorisent de fortes concentrations d'ozone pour plusieurs raisons:

1. Les systèmes anticycloniques sont caractérisés par de vastes régions de subsidence de l'air sur presque toute la hauteur de la troposphère. L'air subsidant se réchauffe adiabatiquement et contribue ainsi à la stabilisation de la troposphère et à l'inhibition des processus de mélange convectif.
2. La subsidence de l'air associée aux anticyclones crée également une inversion marquée dans le profil de température qui normalement décroît avec l'augmentation de l'altitude. Cette inversion de température agit comme un couvercle qui empêche tout mélange entre l'air plus froid en surface et l'air plus chaud en altitude. Ce processus maintient donc les polluants et favorise leur accumulation dans les premières couches de la troposphère.
3. Les vents dans les systèmes de haute pression sont généralement faibles voir nuls. Ceux-ci contribuent à l'accumulation des polluants dans la couche limite atmosphérique.

4. L'absence de nuages et les températures de surface élevées dans les anticyclones contribuent à l'optimisation de la production photochimique d'ozone.

Les épisodes estivaux de pollution par l'ozone les plus intenses qui ont été observés sur l'est de l'Amérique du Nord et sur l'Europe, se sont produits aux alentours du solstice d'été lors du développement de systèmes anticycloniques (RTI, 1975, Decker et al., 1976). C'est à cette période de l'année que, dans l'hémisphère nord, la durée d'insolation est la plus longue, les rayons solaires les plus perpendiculaires à la surface de la Terre et où les températures de l'air deviennent suffisamment élevées ($>25^{\circ}\text{C}$). À mesure que la masse d'air, caractéristique de l'anticyclone et présente dans les premières épaisseurs de la couche limite, se déplace lentement au-dessus des zones urbaines, elle favorise l'accumulation des émissions de surface et contribue à l'augmentation de la concentration des polluants. Lors du lent déplacement de cette masse d'air, associé à l'anticyclone, la production d'ozone a alors lieu à des taux particulièrement efficaces.

Les épisodes de smog hivernal sont observés pour des conditions synoptiques similaires. Nous pouvons cependant ajouter la présence du refroidissement radiatif nocturne résultant de la présence d'un système anticyclonique qui conduit à une inversion de température marquée sur les premières couches de la troposphère. Cette stabilisation à la surface de l'atmosphère favorise plus encore l'accumulation des émissions de polluants. Toutefois, le rayonnement solaire est nettement moins efficace en hiver à cause d'une épaisseur optique plus importante et d'une période d'insolation plus courte. Cette particularité réduit l'efficacité des réactions photochimiques et confère au smog hivernal des caractéristiques chimiques sensiblement différentes de celles des smogs d'été. Les épisodes de smog hivernal sont caractérisés par de fortes concentrations en NO_2 , en hydrocarbures, en CO et en dioxyde de soufre (SO_2).

Les nuages influencent également les concentrations d'ozone par différents processus. Zhu et al., (2001) les regroupe en trois catégories :

1. L'atténuation ou la réflexion du rayonnement solaire incident qui influence la photochimie qui s'opère dans la troposphère.
2. L'élimination de l'ozone et de ses précurseurs par lessivage, et

3. La réduction des concentrations de ces mêmes gaz dissous dans l'eau liquide présente dans les nuages et transformés par des réactions chimiques en phase aqueuse.

La nature des nuages influence également les concentrations d'ozone et les processus de mélange dans la basse atmosphère depuis la couche limite atmosphérique jusque dans les moyennes et hautes couches de la troposphère. *Ching et al. (1988)* décrit un processus connu sous le nom de cloud venting selon lequel les gaz et aérosols sont transportés depuis la basse troposphère jusque dans les couches nuageuses. L'efficacité de ce transport vertical, à pomper les polluants présents dans la couche limite, dépend de la taille et du type de nuage (*Cotton et al., 1995*).

Les épisodes de pollution sont généralement abrégés par le passage d'un front froid, associé à un système dépressionnaire, où la présence de vents soutenus favorise les conditions de dispersion et apporte une masse d'air généralement plus fraîche et plus propre sur la région.

Les conditions météorologiques jouent un rôle important dans l'établissement des situations favorables à la production, l'accumulation et l'interruption des épisodes de pollution par l'ozone. Les conditions de températures élevées, de ciel clair et de vents faibles qui sont associées aux anticyclones, favorisent la production et l'accumulation de l'ozone. Les nuages jouent également un rôle important dans la redistribution verticale de l'ozone et de ses précurseurs; ils sont également en mesure d'influencer les concentrations des polluants en surface en modulant les réactions photochimiques, en lessivant l'atmosphère qui est sous la base des nuages ou en absorbant et transformant l'ozone et ses précurseurs selon des réactions chimiques en phase aqueuse. Les épisodes de pollution par l'ozone finissent par le passage d'un front froid où les conditions dispersives sont optimales et est suivi d'une masse d'air plus fraîche et moins polluée.

CHAPITRE 2

MÉTHODOLOGIE

2.1 Description des modèles utilisés

2.1.1 CHRONOS

CHRONOS est le modèle opérationnel de prévision de la qualité de l'air du Service Météorologique du Canada (SMC). Celui-ci fournit, depuis 2001, une prévision quotidienne des concentrations d'ozone aux échelles nationale et provinciales. C'est un modèle régional, de haute résolution et à aire limitée. Il simule l'évolution de 42 espèces chimiques et de 4 types d'aérosols sur les premiers kilomètres de la troposphère. CHRONOS appartient à la catégorie des modèles dit découplés (ou off line) où les champs physiques et dynamiques qui caractérisent l'atmosphère sont initialement calculés par un modèle de prévision météorologique. Par la suite, ces champs alimentent le modèle de qualité de l'air en fournissant l'évolution des conditions météorologiques qui influencent la production des émissions biogéniques et les processus photochimiques. Le noyau central de CHRONOS a été développé à partir de la formulation semi-lagrangienne du modèle de chimie et de transport (CTM) proposé par *Pudykiewicz (1997)*. Le CTM utilise les mécanismes en phase gazeuse d'ADOM II (Acid Deposition Oxidants Model v2) qui décrivent la chimie oxydante atmosphérique (*Atkinson, 1990; Atkinson et al., 1992*) et où la vitesse de déposition est basée sur les formulations de *Wesley and Hicks (1977)* et de *McKeen et al. (1991)*. CHRONOS est piloté par le modèle opérationnel de prévision météorologique canadien GEM (*Coté et al., 1998a, 1998b*). Dans la version que nous avons utilisée, les champs d'émissions anthropiques qui sont utilisés en données d'entrée ont été générés avec le système CEPS (Canadian Emission Processing System - *Scholtz et al., 1999*). Les inventaires d'émissions anthropiques canadien et américain, initialement représentatifs des années 1990 et 1991 respectivement, ont été projetés aux niveaux de 1995 et 1996. Les émissions biogéniques sont calculées, à chaque pas de temps de la simulation, à partir d'une version adaptée de BEIS2 (Biogenic

2.1.2 AURAMS

AURAMS est un modèle régional (Moran *et al.*, 1998; Makar *et al.*, 2003; Bouchet *et al.*, 2003) qui a été développé par le service météorologique du Canada (SMC) afin de répondre aux besoins en recherche et en gestion de la qualité de l'air (Morneau et Pentcheva, 2004). Comme CHRONOS, AURAMS est un modèle régional, à haute résolution et à aire limitée, qui simule, en mode découplé (off line), l'évolution de nombreuses espèces chimiques et d'aérosols dans toute l'atmosphère. Cet outil de recherche simule, plus en détail que CHRONOS, l'évolution de la taille et de la composition des particules en suspension dans l'atmosphère. AURAMS est constitué de 3 éléments principaux:

Le modèle GEM fournit les données météorologiques nécessaires aux simulations.

Un processeur d'émission, dans ce cas-ci : CEPS (Scholtz *et al.*, 1999) convertit les données d'émissions brutes en données d'entrée formatées, représentant les principales catégories d'émission (sources ponctuelles majeures et mineures, sources surfaciques représentatives des émissions mobiles et non mobiles dont les biogéniques). Les données des émissions anthropiques brutes ont été assemblées à partir des inventaires d'émissions canadiens et américains réajustés à 1995/96. Les données d'émissions biogéniques sont obtenues à partir de BEIS 2 mais utilisent la base de données d'utilisation des sols définie dans BEIS 1. Ces champs contiennent également les émissions primaires des particules $PM_{2.5}$ et PM_{10} .

Finalement, le modèle de chimie et de transport qui est le cœur du simulateur, reprend le schéma d'advection semi-lagrangienne et non-oscillatoire développé par Pudykiewicz (1997) avec des processus additionnels qui représentent les aérosols de façon détaillée. Les mécanismes d'ADOM II (Lurmann *et al.*, 1986) ont été complétés par un paramétrage de la formation des aérosols organiques secondaires (Odum *et al.*, 1996) et d'un module décrivant les réactions hétérogènes (Nenes *et al.*, 1998). Les mécanismes du module canadien des aérosols CAM (Gong *et al.*, 2003) qui simulent la dynamique des particules de plusieurs espèces particulières ont été ajoutés. Les processus de dépositions des aérosols et des gaz ont été réactualisés (Zhang *et al.*, 2001; Zhang *et al.*, 2002) afin de produire des vitesses de déposition plus réalistes, qui corroborent les observations les plus récentes et sur 15 catégories d'utilisation des sols.

Le domaine de la version d'AURAMS utilisée couvre l'est de l'Amérique du Nord (figure 2), selon une grille polaire stéréographique constituée de 85 points de grille en abscisse et 105 en ordonnée. La résolution horizontale est constante et de 42 km, à 60° de latitude nord. L'atmosphère, depuis la surface terrestre jusqu'à une altitude de l'ordre de 30 km, est découpée en 29 niveaux Gal - Chen qui, à la surface de la planète, suivent la topographie.

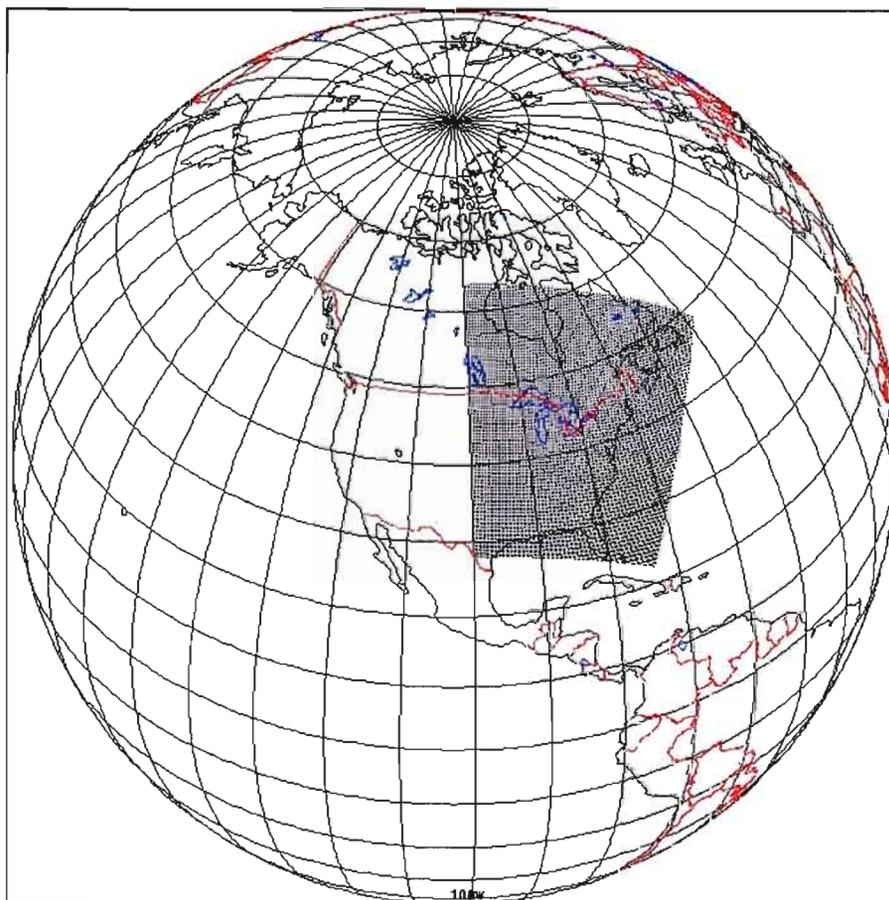


Figure 2 : Domaine de simulation couvert par AURAMS.

2.1.3 GEM-AQ

Techniquement, GEM-AQ propose une méthode de simulation différente aux deux autres modèles. Celle-ci utilise une approche dite couplée (ou online) de la simulation de la qualité

de l'air. Cette méthode permet de calculer simultanément les champs dynamiques, physiques et chimiques qui caractérisent l'état de l'atmosphère. Les calculs sont effectués sur une grille qui couvre l'ensemble de la planète et dont une aire déterminée est à haute résolution, avec un espacement entre les points de grille constant. Comme le montre la figure 3, le reste de la grille est de résolution variable.

L'Université York a implémenté les mécanismes photochimiques d'ADOM II et de CAM dans la partie physique du modèle météorologique GEM. Le déplacement des espèces chimiques est calculé par les processus de transport et d'advection du modèle de prévision, sur la grille commune aux schémas d'advection, de convection et de diffusion qui sont utilisés pour décrire les champs météorologiques.

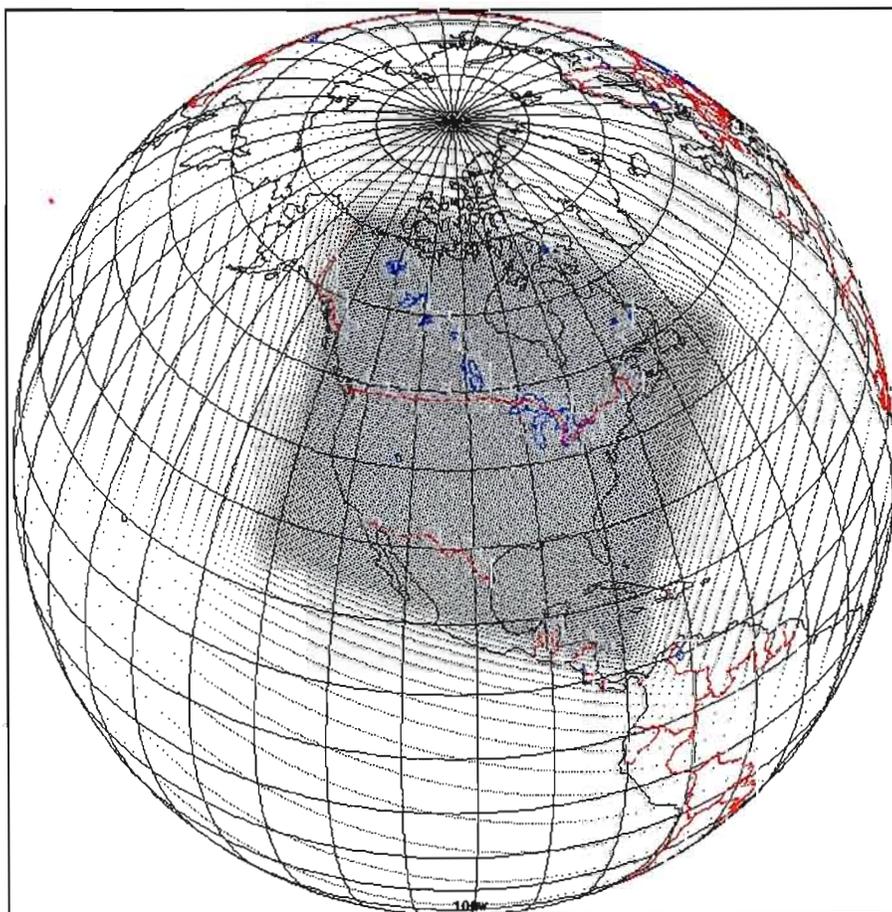


Figure 3 : Domaine de simulation couvert par GEM-AQ.

Dans le cadre de ce projet, les simulations réalisées avec GEM-AQ utilisent les mêmes émissions anthropiques que CHRONOS et AURAMS. Les émissions biogéniques sont déterminées, en temps réel, à partir du modèle GLOBEIS (GLObal Biosphere Emissions and Interactions System – www.globeis.com). La grille globale à résolution variable que nous avons développée dans ce projet, reproduit l'ensemble de l'atmosphère qui couvre la planète, sur 28 niveaux verticaux hybrides à l'aide de 176 points en abscisse et 177 points en ordonnée. Une portion de cette grille, a une résolution constante de l'ordre de 42 km et couvre l'amérique du nord à l'aide de 133 points en abscisse et 132 points en ordonnées.

Ces descriptions nous ont montré que les trois modèles partagent deux éléments communs particulièrement importants : le modèle météorologique GEM et l'essentiel des mécanismes en phase gazeuse de chimie atmosphérique d'ADOM II. CHRONOS et AURAMS utilisent les mêmes schémas de transport et d'advection. AURAMS partage avec GEM-AQ les mécanismes du module canadien des aérosols CAM. Les émissions anthropiques sont également communes aux trois modèles bien que adaptées aux grilles de chaque modèle. Nous retenons également que, outre le mode de fonctionnement, les principales différences résident dans la géométrie de la grille (couverture et résolution), la représentation les émissions biogéniques et le nombre de polluants gazeux ou particulaires simulés.

2.2 Revue des évaluations existantes des trois modèles

2.2.1 CHRONOS

L'évaluation présentée par *Pudykiewicz (1997)*, repose sur une simulation avec le CTM qui est devenu le cœur de CHRONOS d'un épisode régional de pollution photochimique estival. Celui-ci a sévit sur le secteur nord-est de l'Amérique du Nord du 1^{er} au 6 août 1988. Cette évaluation préliminaire repose essentiellement sur des traitements statistiques classiques. Dans le cadre de cet exercice, les coefficients de corrélation entre les niveaux horaires simulés et observés sont présentés pour 11 sites de référence sur les 70 utilisés. 10 sites ont des coefficients de corrélation compris entre 0.65 et 0.90. Selon les informations disponibles, le CTM a tendance à surestimer les niveaux moyens d'ozone de plus de 10% par rapport aux observations sur près de 80% des stations présentées et de sous-estimer les écart-types de

plus de 10% sur 6 des 11 stations présentées. Il semble cependant que les performances opérationnelles du modèle sont équivalentes voir meilleures que celles obtenues par des modèles contemporains (*MacDonald et al., 1993*) qui partagent l'utilisation des mécanismes d'ADOM II. Les limitations du modèle qui ont été observées, sont attribuées aux paramétrages de sous échelles qui décrivent les processus de mélange verticaux et les processus de déposition. Des limitations sont également évoquées quant à la stratégie d'échantillonnage des données qui consiste à prendre la cellule dont le centre est le plus proche du site de mesure.

Sirois et al. (1999), dont l'objectif initial consiste à appliquer de nouvelles techniques d'analyse et d'évaluer leurs potentiels, présente une évaluation de CHRONOS dans sa version finale. Elle compare l'évolution des concentrations d'ozone observées et simulées entre le 15 juin au 16 août 1995. Les moyennes horaires simulées ont été comparées aux observations provenant de la base de données NARSTO-NE (North American Research Strategy for Tropospheric Ozone – North East). Les rapports de mélange obtenus aux points de grille les plus proches des 322 sites de mesure de référence ont fait l'objet d'une première comparaison en utilisant les opérateurs statistiques les plus simples. Une distribution des coefficients de corrélation calculés montre que 90% des sites ont un coefficient de corrélation supérieur à 0.53 et 50% de cette sélection ont un coefficient de corrélation supérieur à 0.72 et la meilleure corrélation est de 0.85. En présentant les répartitions spatiales des concentrations moyennes et des écart-types sur la période, cette évaluation suggère, sans en expliquer l'origine, une influence de la topographie (chaîne des Appalaches) qui dégrade les performances du modèle. 48 de ces sites de référence ont été sélectionnés pour présenter leurs moyennes et leurs écart-types calculés sur les données observées et simulées (cf. : Tableau 1). Ces 48 sites ont fait l'objet d'une comparaison raffinée à l'aide d'opérateurs statistiques plus élaborés. Ces analyses ont permis de caractériser la signature temporelle des différences entre les données observées et simulées. Elles avaient été précédemment suggérées par une étude succincte sur les séries temporelles. Cependant, ces analyses complémentaires n'ont pas permis d'identifier les processus qui sont à l'origine de ces différences.

Tableau 1 : Moyennes et écart-types des niveaux d'ozone observées et simulées du 15 juin au 15 août 1995.
(Extrait de *Sirois et al. - 1999*).

Table 1. Observed and Simulated Means and Standard Deviations for the Period June 15, 1995, to August 15, 1995							
Site Identification	Province/State	Elevation, m	Observations Missing, %	Mean, ppb		Standard Deviation, ppb	
				Observation	Simulation	Observation	Simulation
EGB	Ontario	253	3.1	31.8	20.5	14.7	14.0
KEJ	Nova Scotia	127	3.6	25.8	23.8	11.9	11.9
ABT147	Connecticut	209	6.1	44.0	40.7	21.4	23.2
090013007	Connecticut	3	5.1	40.2	42.1	25.4	27.1
100031003	Delaware	65	1.7	39.2	41.8	26.5	27.7
CDZ571	Kentucky	615	12.3	46.3	45.3	17.7	17.0
CKT136	Kentucky	455	4.9	51.1	45.1	16.4	13.8
MCK131	Kentucky	353	7.5	50.8	45.0	17.3	16.4
210910012	Kentucky	122	5.2	39.6	43.5	23.6	21.6
250010002	Massachusetts	40	0.4	44.1	30.2	21.6	16.5
250174003	Massachusetts	23	2.6	33.0	37.9	23.9	25.0
BEL116	Maryland	46	7.6	36.2	43.9	29.0	27.8
ASH135	Maine	235	5.2	33.5	25.6	13.4	13.2
HOW132	Maine	69	4.6	32.3	30.3	16.8	13.0
371191005	North Carolina	195	2.7	33.8	45.9	25.1	23.0
370610002	North Carolina	34	11.8	23.1	33.4	15.1	16.8
370690001	North Carolina	135	5.7	34.0	38.1	19.5	17.4
COW137	North Carolina	686	5.6	25.0	46.8	16.8	9.9
PNF126	North Carolina	1219	5.2	47.9	45.3	13.2	13.3
CND125	North Carolina	198	7.1	37.3	45.0	17.7	14.1
WST109	New Hampshire	258	4.4	31.6	37.3	15.4	14.0
WSP144	New Jersey	58	5.8	43.2	41.5	27.7	27.6
CTH110	New York	515	6.4	48.8	46.3	14.6	17.3
360551004	New York	130	4.4	34.5	47.4	22.1	18.7
360430005	New York	523	5.3	28.8	38.3	19.0	15.5
360270007	New York	248	1.0	37.1	44.6	22.9	19.3
LYK123	Ohio	303	4.0	44.1	48.7	19.0	17.4
390350034	Ohio	210	4.4	36.9	50.5	20.9	21.8
OXF122	Ohio	284	6.2	44.8	45.4	20.6	23.3
DCP114	Ohio	265	9.1	44.6	46.9	20.6	23.1
QAK572	Ohio	372	7.8	54.5	49.5	19.7	18.6
390870011	Ohio	195	5.8	31.7	46.7	26.5	18.2
KEF112	Pennsylvania	622	5.5	42.6	44.0	17.4	17.5
MKG113	Pennsylvania	384	7.1	44.1	48.0	20.4	20.6
PSU106	Pennsylvania	378	4.8	43.0	46.9	21.6	18.4
ARE128	Pennsylvania	269	7.5	50.3	48.1	21.6	20.2
420791101	Pennsylvania	172	1.8	38.1	46.7	24.9	21.5
420030067	Pennsylvania	354	1.7	43.9	49.3	22.2	24.0
LRL117	Pennsylvania	615	7.5	37.7	48.7	24.1	17.6
VPI120	Virginia	920	13.7	51.9	45.3	14.6	15.5
510890006	Virginia	327	1.0	34.8	41.7	18.9	17.0
SHN118	Virginia	1073	17.1	55.5	42.0	14.5	18.1
510410004	Virginia	77	1.4	30.2	40.6	22.5	25.7
518000005	Virginia	20	1.2	32.9	35.7	20.4	19.5
511970002	Virginia	2740	1.6	33.9	45.1	22.5	11.7
LYE145	Vermont	730	18.5	50.3	40.1	16.2	16.5
CDR119	West Virginia	234	5.4	30.2	47.1	21.2	14.3
PAR107	West Virginia	510	4.6	38.6	49.1	20.6	17.2

2.2.2 AURAMS

Le modèle a été évalué sur plusieurs parties du continent nord-américain. Une première évaluation d'AURAMS a été réalisée à partir de deux épisodes de pollution particulaires, l'un estival et l'autre hivernal, qui ont été observés sur un domaine identique à celui présenté dans ce projet. Compte tenu des concentrations d'ozone qui ont été observées lors de l'épisode

estival, celui-ci a été sélectionné par le comité NARSTO comme épisode de référence pour une intercomparaison de modèles photochimiques. Lors de cet épisode, les concentrations journalières de particules fines ($PM_{2.5}$) ont atteint et dépassé le seuil réglementaire canadien de $30 \mu\text{g}/\text{m}^3$ aux États Unis et au Canada. Cependant les données de particules relatives à cet épisode n'avaient pas encore été employées dans le cadre d'une évaluation de modèle. La période hivernale correspond à un important épisode de pollution particulaire où les concentrations journalières de $PM_{2.5}$, observées au Vermont et au Québec, ont dépassé la valeur définie par les standards pancanadiens sur plusieurs jours consécutifs. À partir de valeurs moyennes et de leurs distributions géographiques, *Bouchet et al. (2003)* ont mis en évidence la tendance d'AURAMS à surestimer les niveaux maximums de $PM_{2.5}$ en été alors que ceux d'hiver sont similaires aux observations réalisées.

Une deuxième évaluation a été réalisée par *Makar et al., (2003)* pour étudier les processus qui mènent à la formation de particules atmosphériques. Le domaine de simulation couvrait une grande partie de l'ouest canadien et le nord-ouest des USA. Les données d'évaluation qui ont été utilisées, provenaient de la campagne de mesure intensive Pacific2001. Cette évaluation a conclu à partir d'analyses conventionnelles, qu'AURAMS avait la capacité de reproduire les caractéristiques de grandes échelles de production d'aérosols. Néanmoins, les formulations de production de certaines espèces particulières seraient à améliorer.

2.2.3 GEM-AQ

L'évaluation documentée de GEM-AQ (*O'Neill et al., 2006*) repose sur une étude de son habileté à reproduire les panaches de fumée associés aux feux de forêt qui ont sévi au nord du Québec en 2002. En inhibant son module de chimie et à l'aide d'une analyse peu conventionnelle, reposant sur les trois composantes qui constituent l'erreur quadratique moyenne, cette évaluation souligne d'une part, les capacités du modèle à saisir correctement le coefficient d'Angström d'aérosol α , qui est une propriété optique des aérosols dépendant de leurs tailles ou de leurs types ; Cet article attribue d'autre part les modestes performances du modèle à reproduire l'épaisseur optique à une sous estimation des émissions ainsi qu'à la nature des outils statistiques d'analyse utilisés.

GEM-AQ a également participé (*J. Struzewska, 2005*) à l'exercice d'intercomparaison européen ESCOMPTE (*Cros et al., 2004*), mais en tant que modèle pilote (météorologique et chimique) du modèle à aire limitée MC2-AQ (*Plummer et al., 2001*). Le couple GEM-AQ / MC2-AQ a produit des simulations qui ont plus ou moins sous estimé les concentrations d'ozone troposphérique. Suivant les épisodes simulés, les écarts ont été associés à une intrusion d'ozone stratosphérique qui n'a pas été pris en compte dans les conditions initiales ou attribués aux processus physiques de la basse troposphère tel que les brises de mer et brises de terre. Les évaluations complètes de GEM-AQ et MC2-AQ sont en cours.

La revue des articles et des documents disponibles au public nous a montré que les trois modèles ont fait l'objet d'évaluation soit pour un évènement de pollution particulier de quelques jours, soit pour une période de plusieurs semaines. Les résultats de ces évaluations ne sont toutefois pas comparables compte tenu des polluants ou des paramètres retenus dans les analyses, de la période simulée et des méthodes d'analyses utilisées. D'autre part, les articles n'ont pas précisément identifié l'origine des écarts entre les observations et les simulations. Finalement les méthodes utilisées pour évaluer GEM-AQ nous ont paru peu informatives, en ce sens que le paramètre utilisé dans la première étude et l'utilisation de ce modèle dans la deuxième évaluation ne nous permettent pas de conclure sur les habiletés de ce modèle en tant que modèle de qualité de l'air à l'échelle régionale. Notre projet constituerait donc le premier banc d'essai qui évaluerait les trois modèles canadiens de qualité de l'air à l'échelle régionale.

2.3 Caractérisation de l'expérience

2.3.1 Définition de l'expérience

Dans le cadre de ce projet nous souhaitons évaluer les trois modèles pour plusieurs situations où les niveaux d'ozone observés sur le continent peuvent être ou non problématiques. Nous avons réalisé l'intercomparaison des modèles à partir d'une évaluation du champ d'ozone simulé en surface par rapport à celui observé. Le choix pour la période de référence s'est porté sur une plage de huit semaines comprise entre le 6 juillet et le 31 août 2004. Cette période a couvert la majeure partie de l'été et était représentative des situations estivales où les conditions météorologiques et photochimiques pouvaient être favorables à l'accumulation

de l'ozone au point de franchir les seuils réglementaires canadiens et donc devenir une problématique potentielle du point de vue sanitaire et environnemental. Une période de huit semaines nous a également permis d'évaluer les modèles à mesure que les systèmes synoptiques ont traversé le continent nord américain et influencé les niveaux d'ozone troposphérique lors de leurs passages.

Le domaine d'évaluation que nous avons choisi correspond au domaine commun aux trois modèles, à savoir, le domaine utilisé avec AURAMS (figure 2). Nous avons décidé d'évaluer les données simulées par chaque modèle par rapport aux données horaires disponibles dans ce domaine. Ces données d'observation proviennent des mesures d'ozone brutes recueillies sur plus de 1200 stations qui sont réparties sur l'Amérique du nord et maintenues par les réseaux de surveillance de la qualité de l'air canadiens et américains.

Une base de données d'observation correspondant au domaine d'évaluation et constituée de rapport de mélange horaire d'ozone (ppb) a été construite afin de faciliter la gestion et la manipulation des informations. Les stations utilisées pour cette étude ont fait l'objet d'une sélection afin d'obtenir une base de données fiable pour l'intercomparaison des trois modèles. La sélection s'est fondée sur deux critères que devaient respecter les stations de mesure :

Nous avons considéré les stations si leur typologie est définie comme rurale, suburbaine ou urbaine. Les typologies de station sont définies lors de l'installation d'une station afin de répondre aux objectifs qui sont demandés aux réseaux de surveillance. L'agence de protection environnementale des États-Unis a émis une réglementation (*US Environmental Protection Agency, 2006*) qui est, dans les grandes lignes, internationalement appliquée par les réseaux de surveillance de la qualité de l'air. Les annexes D et E de ce document rappellent les critères pour structurer un réseau de mesure en vue de répondre aux missions qui leurs sont données. Ils fournissent également les conditions qui permettent de caractériser la typologie des stations existantes ou d'installer une nouvelle station selon la typologie souhaitée. Dans le cadre d'une évaluation de modèle, ces critères nous permettent de comparer les concentrations simulées à des concentrations mesurées sur des stations dont on connaît la représentativité spatiale.

Nous avons retenu les stations considérées si elles possédaient un taux de représentativité supérieur ou égal à 75%. Le taux de représentativité est défini comme le rapport du nombre de données valides sur le nombre d'heures qui caractérisent la période d'évaluation.

L'application de ces critères nous a permis de retenir 683 stations de mesure sur les 885 disponibles pour le domaine d'évaluation qui couvre la moitié est de l'Amérique du nord.

Pour évaluer les trois modèles, nous avons accès aux sorties des simulations opérationnelles de CHRONOS et nous devons produire les simulations pour les deux autres modèles. À partir de ces simulations et pour nous affranchir de l'influence des méthodes d'interpolation, nous avons extrait les rapports de mélanges horaires qui ont été simulés aux points de grille les plus proches des sites de mesure pour procéder à nos analyses.

2.3.2 Sélection des secteurs d'évaluation

Le grand nombre de sites d'évaluation et l'étendue du domaine d'évaluation (figure 2) présente un défi de taille pour produire des analyses pour chacune des stations. De plus, les données simulées sur un point de grille représentent les valeurs moyennes d'une cellule et les comparer à celles mesurées en un point présente une difficulté supplémentaire dans l'interprétation des analyses appliquées à chaque station. D'autre part, des influences locales ou de micro échelles, qui ne peuvent être prises en compte par les modèles, sont en mesure de perturber temporairement les sites de mesure. Pour limiter les effets de ces particularités, une sélection restreinte et avisée des sites de mesure permettant de générer une base de données de référence est une solution couramment employée lors des évaluations. Ainsi, pour ses analyses spectrales, *Sirois et al. (1999)* ont effectué une sélection de 48 sites sur les 322 disponibles à partir de deux critères : 27 des sites d'évaluation étaient équipés de capteurs météorologiques, les sites restant ont été sélectionnés afin d'assurer la meilleure couverture possible sur le domaine d'évaluation.

Une alternative possible consiste à grouper toutes les stations disponibles afin de limiter, d'une part, les interférences locales indésirables et d'autre part d'optimiser les analyses afin de qualifier/quantifier les performances des modèles à reproduire les caractéristiques chimiques moyennes communes à chaque groupe. Pour grouper les stations par secteur, nous sommes inspirés des travaux de *Lehman et al. (2004)* qui utilise une méthode

mathématique dite d'analyse successive des composantes principales (rotated principal component analysis - RPCA) et permet d'identifier les caractéristiques spatiales et temporelles de l'ozone sur l'est du continent américain. Cette approche a été employée initialement par *Eder et al. (1993)* afin de définir, sur la partie orientale des USA, des régions où les concentrations horaires d'ozone sont homogènes. *Lehman et al. (2004)* ont appliqué cette méthode sur une sélection de 194 sites de surveillances sur les 1090 disponibles. La figure 4 présente le résultat de l'analyse successive des composantes principales qui a identifié cinq régions : Le nord-est du continent (1), la région des grands lacs (2), la côte Atlantique des USA (3), le sud des plaines intérieures du Mississippi et du Missouri (4) et finalement la Floride (5). *Lehman et al. (2004)* a également montré que pour chaque région, les signatures temporelles sur une saison estivale moyenne et les niveaux d'ozone étaient homogènes.

Dans l'objectif de regrouper les stations disponibles par secteur, nous souhaitons également que chacun de ces secteurs soit, à tout moment, représentatif de la même masse d'air. Pour y parvenir, nous avons supposé d'une part que la situation synoptique détermine en partie les concentrations maximums d'ozone observées dans la région qu'elle influence au cours d'une journée. Ainsi, l'évolution de ces concentrations, d'une journée à l'autre, nous permet d'en déduire le régime météorologique. D'autre part, si deux stations ont observé des évolutions et des amplitudes similaires des concentrations maximums d'ozone, nous pouvons dire qu'elles seraient sous l'influence du même système synoptique. Nous avons donc travaillé avec les niveaux maximums horaires d'ozone qui ont été observés sur tous les sites et pour chaque journée incluse dans la période d'évaluation. Pour définir les secteurs, nous avons calculé les coefficients de corrélation entre la série temporelle des maximums horaires observés sur une station donnée et celles des autres. Et selon notre hypothèse, les stations les plus corrélées entre elles seraient supposément représentatives de la même masse d'air.

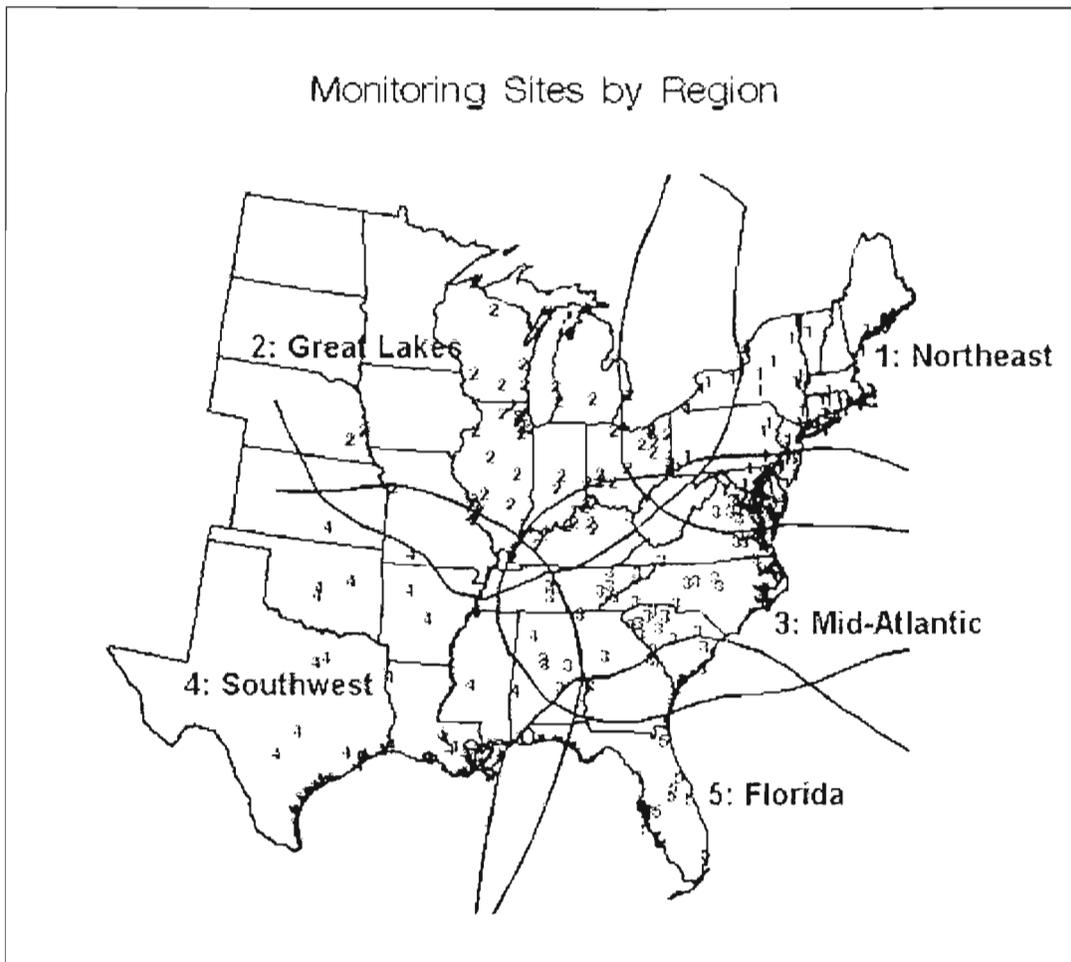


Figure 4 : Carte représentant les secteurs retenus par l'analyse successive des composantes principales.
(Extrait de *Lehman et al.* - 2004)

Dans un deuxième temps, nous avons réalisé une analyse de sensibilité pour définir le coefficient de corrélation qui nous permettrait de reproduire autant que possible le découpage obtenu par *Lehman et al.* (2004). Une première analyse a été réalisée pour 5 valeurs du coefficient de corrélation : 0.5, 0.6, 0.65, 0.7 et 0.8 car en regroupant toutes les stations qui ont présenté un coefficient de corrélation entre elles égale ou supérieur à 0.5, nous nous sommes aperçus que nous avons découpé le domaine spatialement. Cette analyse nous a donc montré que pour ces cinq valeurs nous avons obtenue respectivement 9, 28, 41, 65 et 190 regroupements distincts. Les figures 5 à 7 présentent les découpages obtenues pour les

valeurs de 0.5, 0.65 et 0.8. La figure 5 nous montre que sur les 9 regroupements, deux d'entre eux (vert et cyan) contiennent la majorité des sites de mesure. Dans le cas où la valeur seuil est de 0.65 (figure 6), nous remarquons que pour les 41 secteurs identifiés, 6 regroupent un grand nombre de station aux dépends des secteurs restants. Finalement la figure 7 nous indique que pour des valeurs au-delà de 0.8, la surface des secteurs n'est plus représentative de l'échelle synoptique.

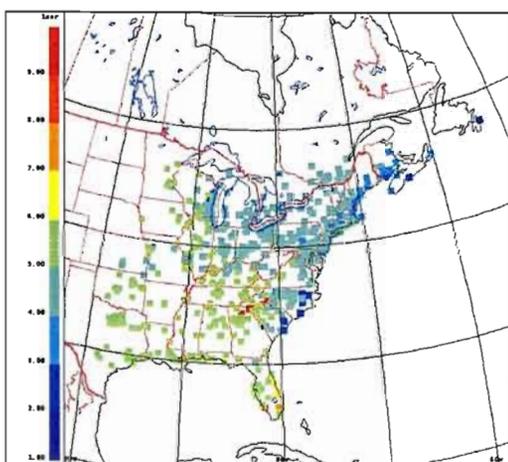


Figure 5 : Découpage du domaine d'étude pour une valeur seuil de 0.5 – 9 secteurs.

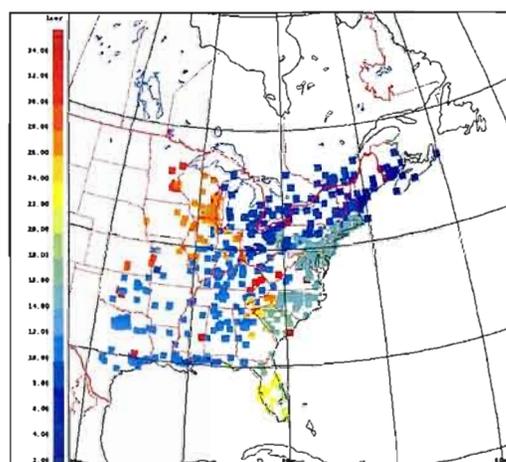


Figure 6 : Découpage du domaine d'étude pour une valeur seuil de 0.65 – 41 secteurs.

De cette analyse préliminaire, il en est ressorti que la valeur du coefficient de corrélation que nous recherchions pour définir la valeur seuil devait être comprise entre 0.5 et 0.65. Les valeurs seuil au-delà de 0.65 ne caractérisaient plus les masses d'air mais des variations météorologiques à l'échelle régionale. Cette analyse nous a également montré que le nombre total de secteurs obtenus seul ne suffisait pas. Il nous fallait déterminer la distribution des sites de mesure dans chaque secteur et ne conserver que ceux qui ont regroupé un nombre significatif de stations de mesure.

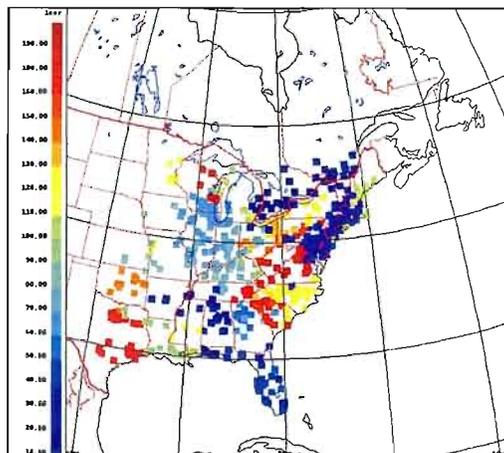


Figure 7 : Découpage du domaine d'étude pour une valeur seuil de 0.80 – 190 secteurs.

À partir des conclusions de l'analyse de sensibilité préliminaire, nous avons décidé qu'un groupe doit être constitué d'au moins 5 % du nombre total de stations disponibles (soit 34 sites) pour être significatif et ainsi devenir un secteur d'évaluation. À partir des distributions des stations par secteurs observés dans cette analyse, nous avons réalisé une deuxième étude où les valeurs de corrélation seuil ont varié entre 0.51 et 0.69 par incrémentation de 0.01. À partir de celle-ci, nous avons extrait, pour chaque valeur seuil, le nombre de groupes de station qui contenaient plus de 5% des stations disponibles et le taux de recouvrement du domaine résultant. Celui-ci est défini comme le nombre total de stations regroupées par rapport au nombre de stations initialement disponibles.

La figure 8 présente les variations du nombre de groupes significatifs et du taux de recouvrement du domaine d'étude en fonction de l'incrément de la valeur seuil. Ce graphique nous montre que pour des coefficients de corrélation qui évoluent entre 0.55 et 0.7 le domaine d'étude est divisé en au moins 4 groupes représentatifs. Pour ce même intervalle de coefficients de corrélation, les taux de recouvrement sont généralement supérieurs à 70%. Cependant tous les coefficients de corrélation supérieurs à 0.67 présentent des taux de recouvrement inférieurs à 60%. Nous remarquons également que les meilleurs taux de recouvrement ont été supérieurs à 90% pour 4 secteurs significatifs. Ceux-ci ont été obtenus pour des valeurs seuil de 0.55 et 0.56. Ce graphique nous permet d'identifier les valeurs des

coefficients de corrélation pour lesquelles le domaine d'évaluation est découpé en un nombre de secteur équivalent au découpage de *Lehman et al. (2004)* et où la plus grande partie des stations disponibles peuvent être utilisé.

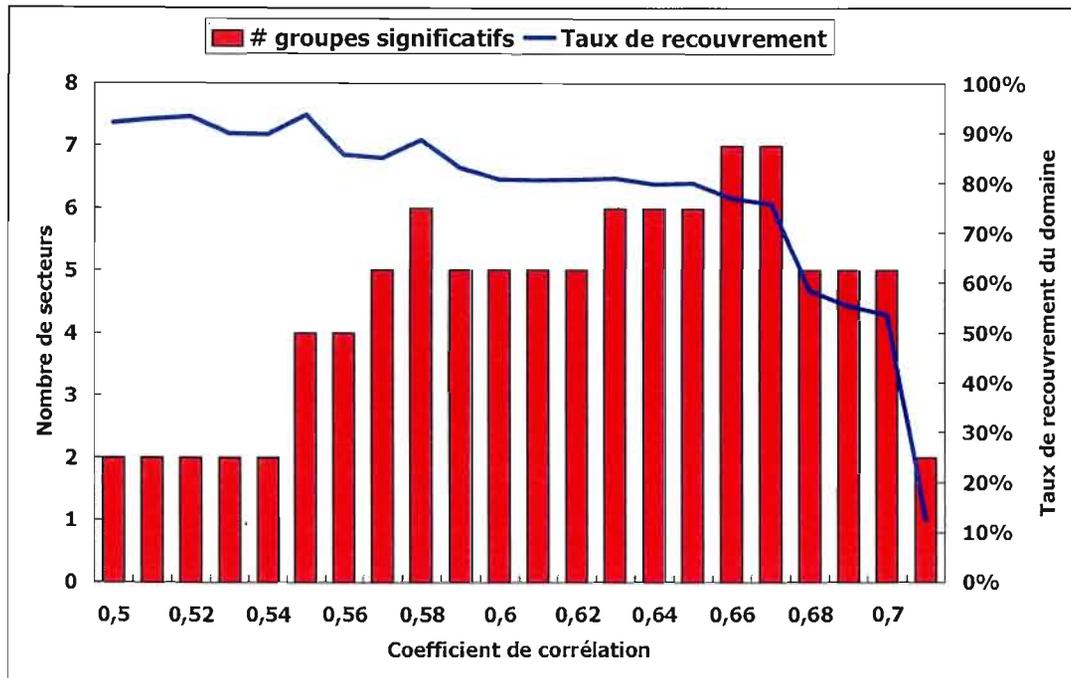


Figure 8 : Évolution du nombre de secteurs significatifs et du taux de recouvrement selon le coefficient de corrélation choisi comme valeur seuil.

Ainsi, cette deuxième étude nous a indiqué que la valeur seuil de 0.57 ainsi que celles comprises entre 0.59 et 0.62 proposent 5 secteurs, avec des taux de recouvrement supérieurs à 80 %. Ces résultats nous suggèrent de sélectionner la valeur seuil définitive dans ce groupe de coefficients de corrélation. Pour sélectionner une de ces valeurs, nous avons donc tracé la distribution des secteurs sur l'Amérique du nord pour nous assurer que ceux-ci couvrent la majorité du domaine d'évaluation et pour retenir le coefficient de corrélation approprié à son découpage.

Les figures 9 à 13 présentent, pour 4 coefficients de corrélation d'intérêt, toutes les stations qui ont été retenues pour former un des cinq groupes représentatifs. Nous remarquons que les

délimitations entre les secteurs sont de plus en plus prononcées à mesure que la valeur du coefficient de corrélation augmente. Nous perdons cependant un certain nombre de stations. Pour un coefficient de corrélation de 0.57, 640 sites ont été retenus alors que 552 l'ont été pour une corrélation de 0.62. D'autre part, nous constatons que la péninsule floridienne ne ressort jamais pour ces cinq coefficients de corrélation.

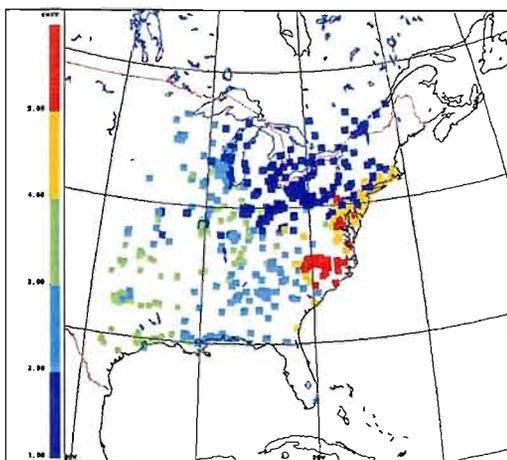


Figure 9 : Répartition géographique des secteurs représentatifs obtenus pour une valeur seuil de 0,57.

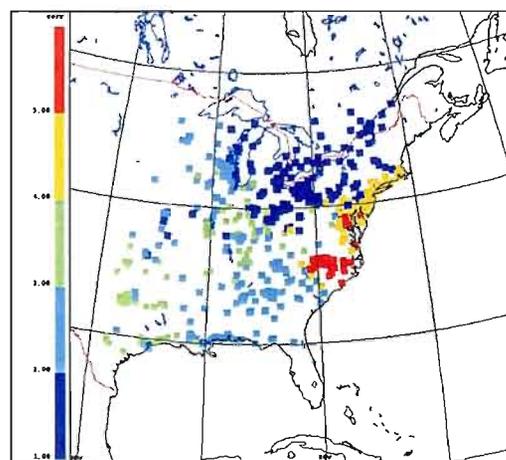


Figure 10 : Répartition géographique des secteurs représentatifs obtenus pour une valeur seuil de 0,59.

Pour obtenir un découpage similaire à celui obtenu par *Lehman et al. (2004)* qui est composé de cinq secteurs et qui définit la péninsule floridienne comme un secteur distinct et compte tenu du nombre de groupes significatifs, nous nous sommes intéressés aux coefficients de corrélation de 0.55 et 0.56 qui découpent le domaine d'évaluation en 4 groupes et présentent de hauts taux de recouvrement. Nous avons donc produit les répartitions des secteurs sur le domaine d'évaluation (figure 14 et 15) pour voir si ceux-ci nous permettent d'obtenir ou de définir un cinquième secteur qui représenterait la Floride. La figure 14, nous montre que la Floride est intégrée dans le plus large (couleur cyan) des quatre secteurs lorsque la valeur seuil de corrélation est égale à 0.55.

En revanche, une valeur seuil de 0,56 (figure 15) permet de définir de 4 secteurs et d'isoler la péninsule floridienne en tant que cinquième secteur d'évaluation bien que celui-ci regroupe

moins de 5% des sites disponibles. Les 22 stations représentés par les carrés rouges ont cependant des coefficients de corrélation respectifs supérieurs ou égaux à 0.56.

Finalement, nous avons conservé cette sectorisation et défini les secteurs suivants : Le nord-est du continent (bleu), le centre du continent (cyan), l'atlantique nord (vert), l'atlantique sud (orange) et la Floride (rouge). Les stations qui sont corrélées avec un secteur mais qui sont géographiquement placées dans un autre secteur ont été conservées sans aucune modification de notre part.

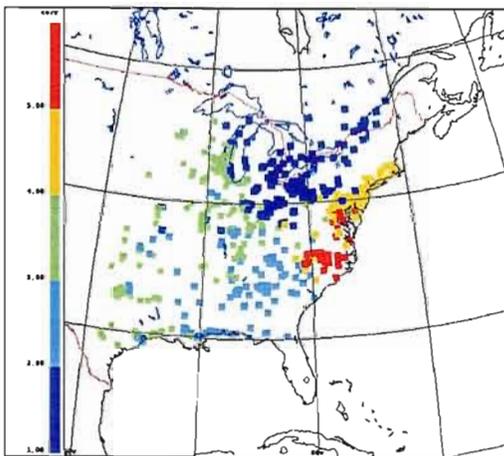


Figure 11 : Répartition géographique des secteurs représentatifs obtenus pour une valeur seuil de 0,60.

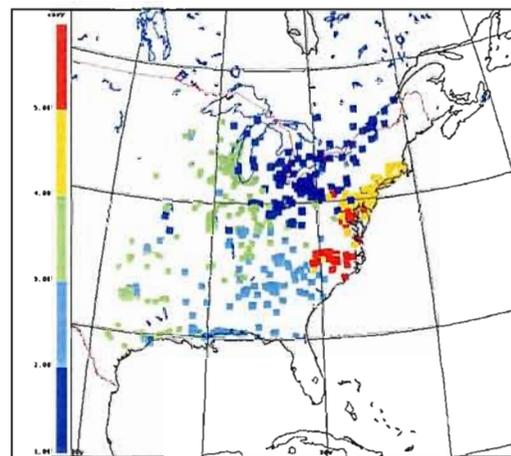


Figure 12 : Répartition géographique des secteurs représentatifs obtenus pour une valeur seuil de 0,61.

Comparativement au découpage obtenu par *Lehman et al. (2004)* nous remarquons que celui que nous avons déterminé est sensiblement différent. Les différences majeures que nous constatons sont l'absence du secteur qui caractérise la région des grands lacs, la division de la côte est des États-Unis d'Amérique en deux secteurs et finalement, un élargissement des secteurs qui définissent le nord-est et les plaines du centre sud du continent américain. Ces différences sont attribuables à la méthode de regroupement utilisée, ainsi qu'aux choix du nombre de stations et de la nature de la base de données. Malgré ces différences, nous montrerons la viabilité de cette démarche pour évaluer les performances d'un modèle à

reproduire les comportements communs d'un polluant selon les conditions météorologiques qui influencent chaque secteur.

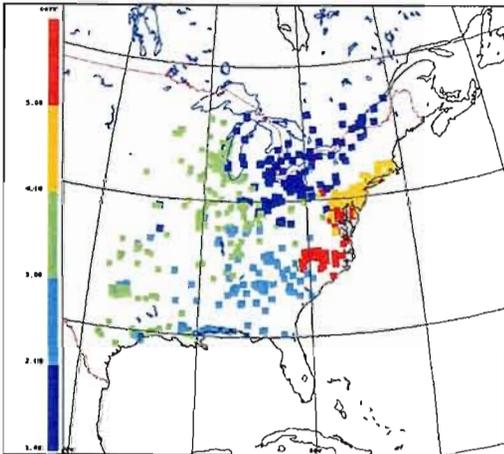


Figure 13 : Répartition géographique des secteurs représentatifs obtenus pour une valeur seuil de 0,62.

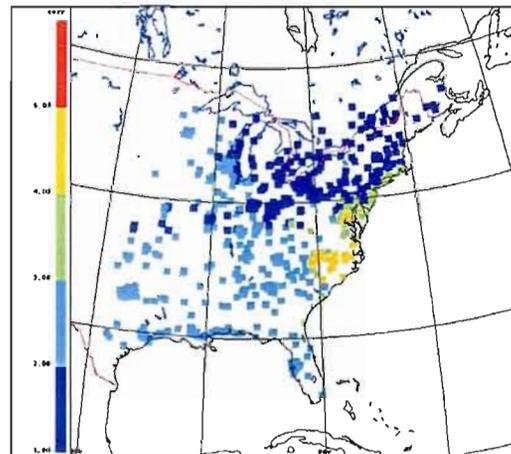


Figure 14 : Répartition géographique des secteurs représentatifs obtenus pour une valeur seuil de 0,55.

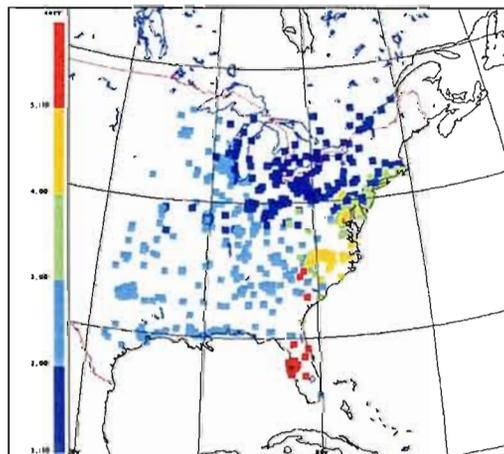


Figure 15 : Répartition géographique des secteurs représentatifs obtenus pour une valeur seuil de 0,56. Cette répartition correspond à la sectorisation choisie pour ce projet.

Les performances des trois modèles à reproduire l'évolution des niveaux horaires d'ozone du 6 juillet au 31 août 2004 sur la partie orientale de l'Amérique du nord seront évaluées par rapport aux observations horaires provenant de 607 stations qui ont été regroupées en cinq secteurs : Le nord-est du continent, le centre du continent, l'atlantique nord, l'atlantique sud et la péninsule floridienne.

CHAPITRE 3

ÉTUDE D'INTERCOMPARAISON

3.1 Réalisations avec le modèle GEM – AQ

Le cahier des charges que nous nous sommes donné pour ce projet nous imposait l'utilisation des émissions anthropiques implémentées dans CHRONOS et AURAMS afin de concentrer notre évaluation sur les processus météorologiques et photochimiques impliqués dans la production des niveaux d'ozone. Nous souhaitons également modifier la géométrie de la grille de GEM-AQ pour optimiser les temps de calculs tout en conservant une grille constante à haute résolution qui couvrait l'Amérique du nord. Ces deux éléments nous ont donc conduit à redistribuer les émissions anthropiques de la grille d'AURAMS sur notre grille de GEM-AQ.

Les sources ponctuelles d'émissions ont été rapportées au point de grille le plus proche et dans le cas des sources majeures, nous avons créé un fichier standard selon les conventions du Centre Météorologique Canadien (CMC) qui tient compte de la hauteur où les émissions sont rejetées. Les sources surfaciques ont été interpolées de la grille d'AURAMS à celle de GEM-AQ. La création de ce fichier nous a conduits à produire du code additionnel afin que GEM-AQ soit en mesure de le lire et d'être intégré dans le calcul des émissions à chaque itération.

Les premières tentatives de simulation nous ont rapidement montré que la version de GEM-AQ mise à notre disposition n'était pas en mesure de prendre les émissions qui ne sont pas à la surface. Cette constatation nous indique que toutes les évaluations effectuées par nos prédécesseurs ont soit juste pris en compte les émissions de surface où alors, toutes les émissions ont été ramenées à la surface.

Pour optimiser les temps de calculs, les modèles de simulations peuvent être conçus de telle sorte que leur domaine de calcul peut être assigné à différents processeurs et l'information échangée par l'utilisation d'un protocole de type MPI (message passing instruction). Bien que le modèle météorologique GEM présente cette caractéristique, nous avons réalisé un test de reproductibilité des simulations de GEM-AQ selon différents découpages de sa grille. Ce test nous a indiqué qu'avec la version disponible lors de l'étude, les différentes configurations ne produisaient pas les mêmes résultats. Après une période d'évaluation, il a été établi que la résolution de ces dysfonctionnements dépassait le cadre de cette étude et il a été décidé de réduire l'évaluation à deux modèles.

Malgré un travail conséquent sur l'établissement d'une nouvelle grille et de la redistribution des émissions sur celle-ci, les difficultés rencontrées nous ont contraintes à limiter l'intercomparaison entre CHRONOS et AURAMS.

3.2 Analyse de la distribution des écarts par classe de pollution

Compte tenu de la quantité de données sortie des deux modèles, nous avons réalisé une première analyse par classe de pollution afin d'obtenir une idée générale des performances des deux modèles. Cette analyse est similaire à celle de *Schmidt et al. (2001)*. Toutefois, dans le cas présent, les valeurs seuils ont été adaptées aux conditions canadiennes. Nous avons choisi les valeurs seuils de 65 et 82 ppb. Le seuil de 82 ppb correspond à l'objectif canadien de la qualité de l'air ambiant, relatif à l'ozone, fixé en 1976 en vertu de la *Loi sur la lutte contre la pollution atmosphérique* de 1973 et confirmés en 1989 en vertu de la *Loi canadienne sur la protection de l'environnement (LCPE)* de 1988. Cet objectif définit les rapports de mélange horaires maximums permis sur le sol canadien. La valeur de 65 ppb en moyenne horaire est également caractéristique des niveaux modérés d'ozone observables en saison estivale.

3.2.1 Regard sur la répartition des niveaux horaires

La première étape consiste à analyser la répartition des rapports de mélanges observés et simulés pour les trois classes de pollution.

À la lecture du tableau 2, nous constatons que, durant la période d'évaluation, 95% des rapports de mélange horaires observés étaient en dessous de 65 ppb. Les seuils de 65 et 82 ppb n'ont été dépassés que 4 et 1% du temps sur l'ensemble du domaine. AURAMS présente une distribution des rapports de mélange similaire à celle des observations. CHRONOS, par contre, produit une distribution sensiblement différente où les dépassements des seuils sont plus fréquents.

Tableau 2 : Répartition des rapports de mélange horaires (c en ppb) observés et simulés par CHRONOS et AURAMS

Statistiques sur les niveaux horaires	Observations	CHRONOS	AURAMS
$c < 65$	95%	82%	94%
$65 \leq c < 82$	4%	11%	5%
$c \geq 82$	1%	7%	1%

3.2.2 Distribution sur l'ensemble du domaine

Les figures 16 et 17 présentent les distributions des écarts entre les niveaux simulés moins ceux observés par classes de pollution simulées, déterminées sur l'ensemble du domaine d'évaluation à partir des données respectivement produites par AURAMS et CHRONOS.

Pour la première classe de pollution ($c < 65$ ppb), AURAMS reproduit les rapports de mélange observés. En effet dans 66% des cas, les écarts absolus sont inférieurs à 15 ppb (représentés par les colonnes cyan, verte et jaune) et 26% (colonne verte) présentent des écarts absolus inférieurs à 5 ppb. D'autre part l'enveloppe de cette classe de pollution est centrée sur la catégorie représentative des écarts absolus inférieurs à 5 ppb. En revanche, AURAMS surestime les deux autres classes de pollution représentatives des épisodes de smog, avec des écarts des rapports de mélange de plus de 15 ppb plus de 58% du temps.

Pour des rapports de mélange inférieurs à 65 ppb, CHRONOS produit une distribution des écarts assez similaire à celle d'AURAMS. 65% des écarts absolus sont inférieurs à 15 ppb,

26% sont sous le seuil de 5 ppb. Cependant, l'enveloppe de cette classe de pollution indique une tendance, plus prononcée qu'AURAMS, à généralement surestimer les rapports de mélange inclus dans cette classe. CHRONOS surestime également les rapports de mélanges supérieurs à 65 ppb avec plus de 15 ppb d'écart sur plus de 72% du temps.

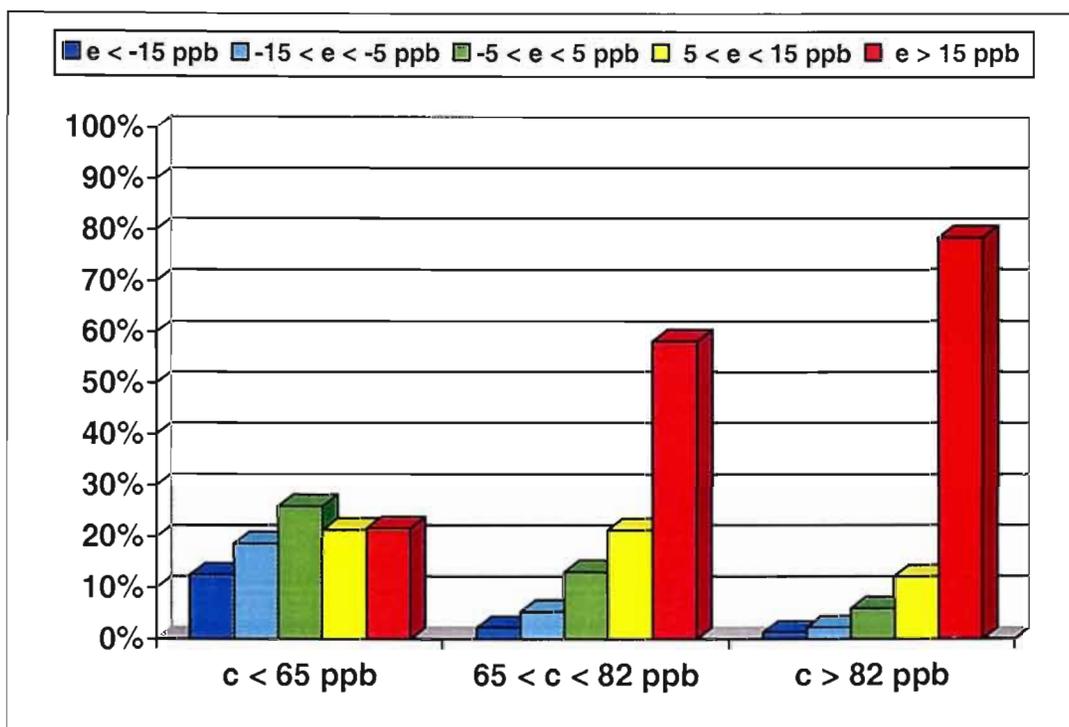


Figure 16 : Distribution des écarts de pollution sur l'ensemble du domaine produit par AURAMS

Cette analyse nous montre, d'une part, que les niveaux d'ozone simulés par AURAMS ont produit une répartition, sur l'ensemble du domaine, semblable aux observations et que ceux provenant de CHRONOS ont produit une répartition sensiblement différente où les dépassements des seuils de 65 et 82 ppb étaient plus fréquents.

D'autre part, les distributions des écarts entre les niveaux simulés et observés par classes de pollution nous indiquent que les deux modèles ont correctement simulé, pour

au moins 65% des cas, les niveaux d'ozone inférieurs à 65 ppb. En revanche, les classes de pollution représentatives des processus d'accumulation sont généralement surestimées de plus de 15 ppb dans plus de 58% des cas pour AURAMS et plus de 70% des cas pour CHRONOS.

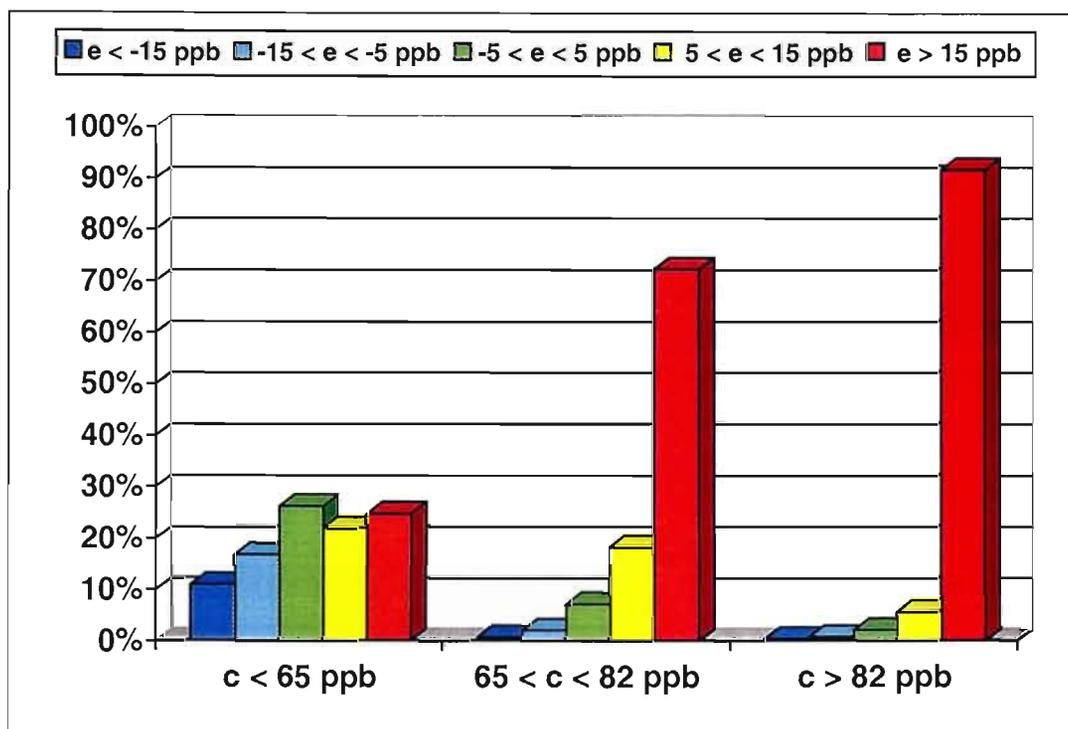


Figure 17 : Distribution des écarts de pollution sur l'ensemble du domaine produit par CHRONOS

3.3 Analyse de l'évolution temporelle des maximums horaires

Le maximum horaire pour la journée (en termes de rapport de mélange) est une quantité intéressante car elle dépend des conditions physico-chimiques de l'atmosphère pour la journée considérée. L'évolution temporelle du maximum horaire observé reflète l'évolution des conditions météorologiques qui ont régné au site de mesure et son voisinage. Cette

analyse appliquée aux maximums horaires simulés permet de caractériser les performances du modèle à reproduire les conditions météorologiques et physico-chimiques de l'atmosphère qui règne sur la cellule dans laquelle se trouve la station de mesure.

Compte tenu du nombre de stations de référence utilisées, nous avons déterminé pour chacun des cinq secteurs et pour chaque journée la moyenne spatiale des maximums horaires observés ou simulés. L'évolution temporelle de la moyenne spatiale de cette variable permet de caractériser les forçages météorologiques synoptiques commun à chaque secteur qui amplifient ou modèrent le processus d'accumulation des espèces chimiques troposphériques.

3.3.1 Nord-est du continent

La figure 18 présente les évolutions temporelles des moyennes spatiales des maximums horaires observés et simulés, pour le secteur représentant le nord-est du continent américain.

Du 5 juillet au 31 août 2004, la moyenne spatiale des maximums horaires observés (courbe tirée noire) a oscillé entre 34 et 71 ppb. Il y a eu quatre changements majeurs de masse d'air durant la période d'évaluation, où la moyenne spatiale des maximums horaires a été inférieure ou égale à 40 ppb : du 24 au 25 juillet, du 5 au 6 août, du 12 au 14 août et du 29 au 30 août 2004. Deux périodes ont été particulièrement favorables à l'accumulation de l'ozone : du 20 au 22 juillet et du 2 au 3 août 2004. Les moyennes spatiales ont été pour ces périodes supérieures à 65 ppb.

L'évolution temporelle de la moyenne spatiale des maximums horaires simulés par AURAMS est assez bien corrélée avec celle des observations (coefficient de corrélation $R = 0.68$) et le biais normalisé (B) est de 6%. De plus, l'ordre de grandeur des maximums horaires est reproduit lors des épisodes marqués d'accumulation ou de dispersion. Nous constatons cependant que les périodes de transition, observées du 5 au 10 juillet 2004 et du 23 au 29 août 2004, sont systématiquement surestimées par AURAMS.

Malgré une meilleure corrélation ($R = 0.82$) entre les observations et les sorties de CHRONOS, nous constatons que ce dernier surestime systématiquement la moyenne des

maximums horaires ($B = 36\%$) et que les périodes de transition n'ont pas été correctement simulées.

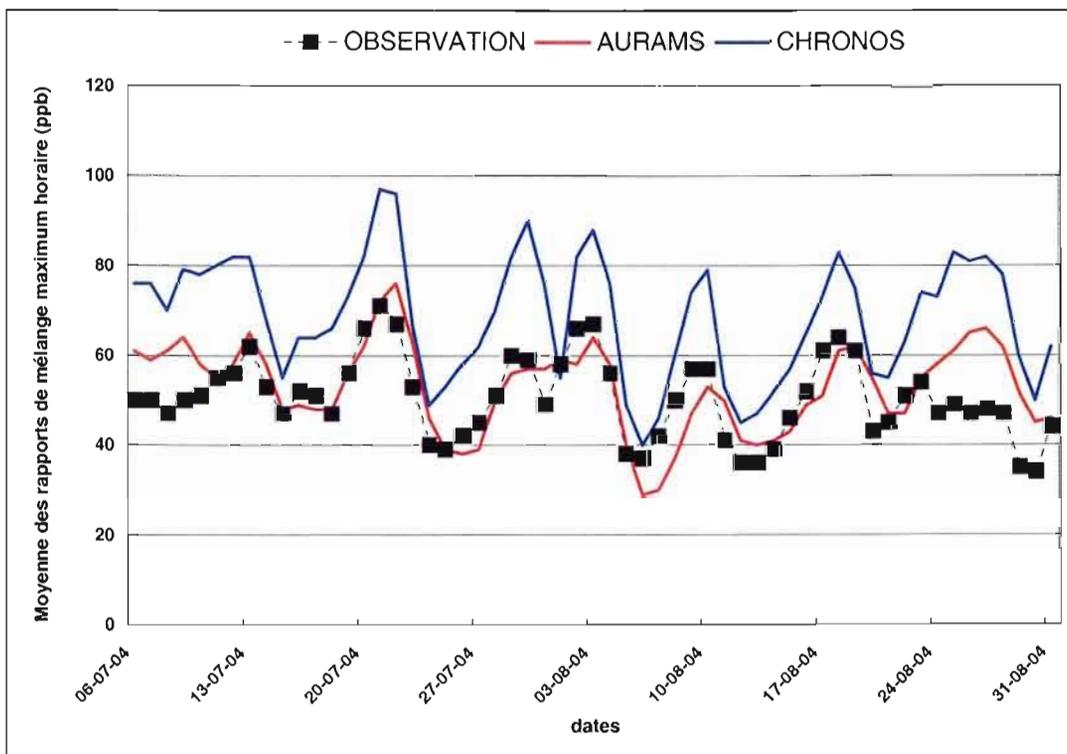


Figure 18 : Évolution temporelle de la moyenne, sur le secteur nord-est du continent, des rapports de mélanges horaires maximum observés et simulés

3.3.2 Centre du continent

La même analyse pour le secteur représentant le centre du continent américain (figure 19) indique que la moyenne spatiale des maximums horaires observés a varié entre 37 et 70 ppb. Il y a eu deux périodes favorables à la dispersion de l'ozone et trois plus favorables à l'accumulation de ce constituant.

L'évolution temporelle de la moyenne des maximums horaires simulés par CHRONOS est mieux corrélée ($R = 0.75$) que celle produite par AURAMS ($R = 0.49$). Néanmoins, ce dernier reproduit les moyennes des maximums horaires associés aux épisodes d'accumulation et de dispersion. On note une sous-estimation de la moyenne des maximums horaires lors de leurs augmentations progressives et une surestimation lors des phases de transition synoptique. Pour AURAMS, le biais normalisé est de 5%. Comme pour le secteur précédent, CHRONOS surestime systématiquement la moyenne des maximums horaires quelques soit les conditions synoptiques. Le biais normalisé est de 36%.

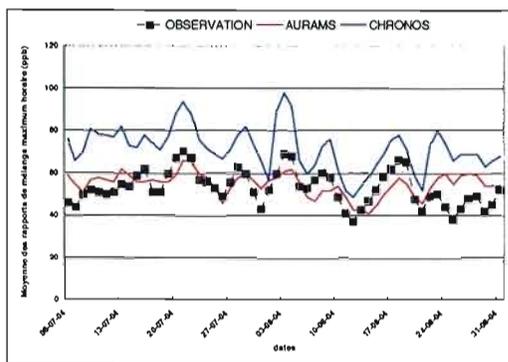


Figure 19 : Évolution temporelle de la moyenne, sur le secteur du centre du continent, des rapports de mélanges horaires maximum observés et simulés.

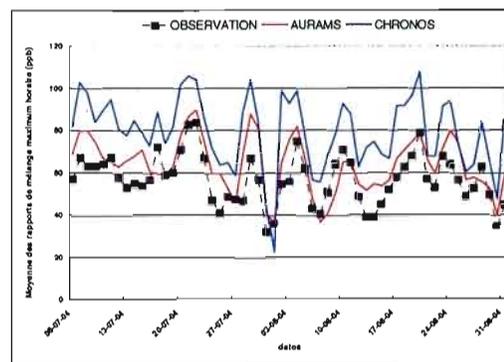


Figure 20 : Évolution temporelle de la moyenne, sur le secteur de l'atlantique sud, des rapports de mélanges horaires maximum observés et simulés.

3.3.3 Atlantique sud

Dans le cas du secteur de l'atlantique sud (figure 20) la variation temporelle de la moyenne spatiale des maximums horaires présente une alternance des maximums horaires beaucoup plus marquée que les deux secteurs précédents. Une analyse des situations synoptiques (archivées sur les sites Internet www.météocentre.com et du centre national américain des ouragans www.nhc.noaa.gov) montre que les passages des ouragans Alex, Charley et Gaston ont fortement influencé l'évolution des concentrations d'ozone dans ce secteur, entre les 31 juillet et 2 août, 14 et 15 août puis finalement entre le 28 et 29 août 2004 respectivement. La

moyenne spatiale des rapports de mélange horaires maximums oscille brusquement entre 32 et 84 ppb. Nous observons 4 phases particulièrement propices à l'accumulation des polluant (>70 ppb) et 5 phases favorables à la dispersion (≤ 40 ppb). Trois de ces dernières sont directement attribuables aux passages des ouragans qui ont généré de très bonnes conditions de dispersion dans un vaste domaine.

L'influence associée aux passages des ouragans sur les concentrations d'ozone est capturée par les deux modèles. Nous observons que les moyennes spatiales des maximums horaires simulés varient avec des amplitudes plus grandes que celles observées. Les corrélations entre les évolutions temporelles simulées et observée restent cependant bonnes : AURAMS et CHRONOS présentent des coefficients de corrélation de 0.78 et 0.83 respectivement. À l'instar des secteurs précédents, AURAMS reproduit généralement l'ordre de grandeur des maximums horaires (B = 14%) et CHRONOS conserve sa tendance de surestimation systématique (B = 41%). AURAMS présente quelques différences de variation lors des phases de transition entre les systèmes synoptiques.

3.3.4 Atlantique nord

Comme pour les secteurs de l'atlantique sud, les systèmes tropicaux Alex, Charley et Gaston ont été déterminants dans la variation rapide de la moyenne spatiale des maximums horaires observés (figure 21). Cette variation a évolué dans les mêmes proportions (moyenne = 56, min = 29 et max = 82 ppb) que celles relevées pour la région de l'atlantique sud. La figure 21 indique la présence de six phases favorables à l'accumulation ou la moyenne spatiale a été supérieure ou égale à 70 ppb. Les trois périodes propices à la dispersion des polluants correspondent aux passages des trois systèmes tropicaux précédemment cités.

Les corrélations entre les sorties des modèles et les observations sont assez bonnes (pour AURAMS : $R = 0.74$, pour CHRONOS : $R = 0.80$). Les biais normalisés indiquent que CHRONOS surestime dans une plus grande mesure qu'AURAMS les niveaux maximums (respectivement B = 39% et B = 13%). La figure 21 indique que la surestimation de CHRONOS est systématique alors qu'AURAMS surestime les phases de transitions météorologiques.

3.3.5 Péninsule floridienne

La moyenne spatiale des maximums horaires observés, pour la péninsule floridienne (figure 22) varie entre 25 et 82 ppb. Nous constatons que deux épisodes ont été favorables à l'accumulation des polluants, dont une de façon très prononcée et que quatre phases ont été propices à la dispersion des polluants. Les trois dernières phases coïncident avec les passages des ouragans Alex, Charley et Gaston ainsi que la tempête tropicale Bonnie qui a combiné ses effets à ceux de l'ouragan Charley.

Pour ce secteur, AURAMS et CHRONOS produisent une évolution temporelle de la moyenne spatiale des maximums horaires bien corrélée avec celle des observations (respectivement $R = 0.77$, $R = 0.87$). À l'encontre des autres secteurs étudiés, CHRONOS produit des moyennes spatiales des maximums horaires plus proches des observations ($B = 13\%$) alors que celles d'AURAMS sont similaires ($B = 1\%$). Ces biais, notablement plus faibles que ceux calculés sur les autres secteurs, s'expliquent par le nombre et la répartition des sites de mesure sur la péninsule et le régime des vents auquel elle est soumise. La carte de la Floride (figure 24) montre que 15 des 22 sites sont répartis sur la côte ouest de la Floride, à la périphérie de la ville de Tampa.

La figure 23 représente la climatologie des vents pour le mois d'août à Tampa. Celle-ci indique qu'en août, Tampa est, un peu plus de la moitié du temps, sous des vents de Nord-Ouest à Est. Les masses d'air qui passent au-dessus du Golfe du Mexique ou de l'atlantique contiendraient peu, ou pas, d'ozone produit et accumulé en amont et/ou de polluants précurseurs. La variation des maximums horaires pourrait donc être principalement liée à l'activité photochimique qui s'opèrerait au voisinage des sites de mesures alors que les quatre autres secteurs pourraient être influencés par le transport des polluants émis et produit en amont.

Nous notons également sur la figure 22 que les valeurs minimums atteintes par la moyenne des maximums horaires simulés par AURAMS sont, à deux reprises (cercles pointillés rouges), nettement plus faibles que ceux issus des observations. Pour expliquer cette constatation, nous avons regardé, pour tous les points de grille qui sont associés aux stations, l'évolution des maximums horaires simulés comparativement à celle des maximums

observés. Nous avons remarqué que ce secteur est couvert par AURAMS et CHRONOS de 15 et 20 points de grille respectivement. Comme ceux-ci sont comparés aux 22 stations du secteur, nous en déduisons que certains points de grille des deux modèles ont été évalués par rapport à plusieurs stations.

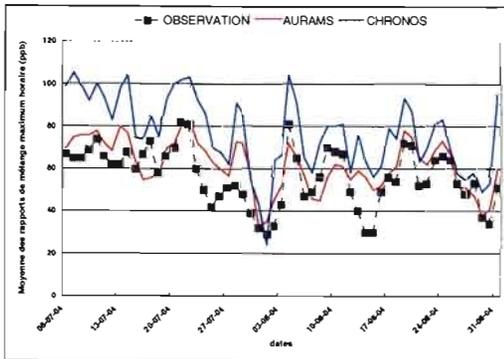


Figure 21 : Évolution temporelle de la moyenne, sur le secteur de l'atlantique nord, des rapports de mélanges horaires maximum observés et simulés.

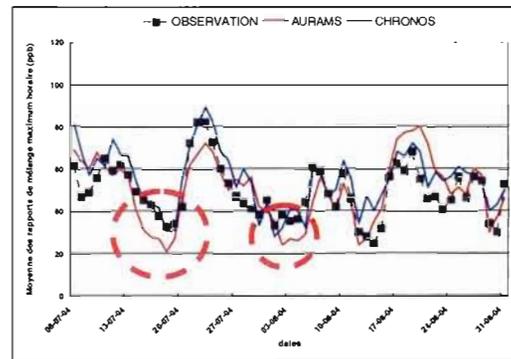


Figure 22 : Évolution temporelle de la moyenne, sur le secteur de la Floride, des rapports de mélanges horaires maximum observés et simulés.

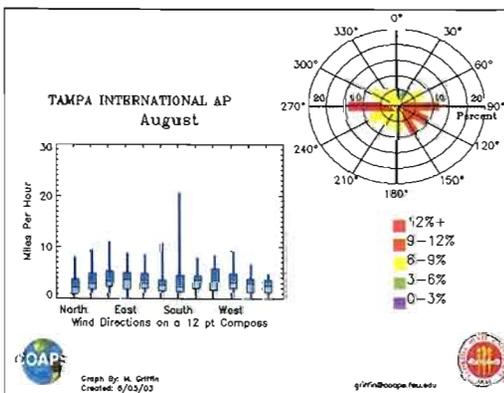


Figure 23 : Climatologie des vents pour le mois d'août à Tampa.

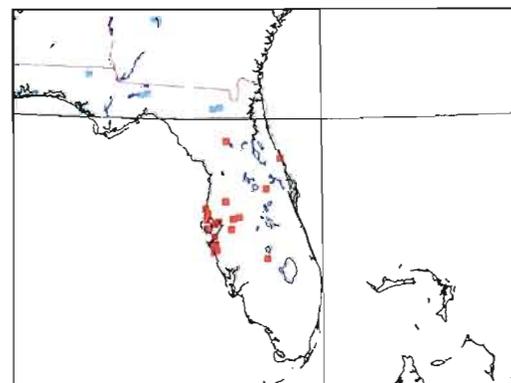


Figure 24 : Répartition des sites de mesure sur la péninsule floridienne (points rouges).

Nous avons porté une attention particulière à deux points de la grille d'AURAMS qui ont, chacun, été comparée aux observations de quatre sites. Nous avons tracé les évolutions des niveaux maximums simulés à ces deux points de grille avec celles observées par les 4 stations respectives. La figure 25 nous montre que l'évolution des niveaux maximums du point de grille (51;9) a reproduit les variations observées par le site de Gandy Blvd (OBS 4) mais elle n'a pas reproduit celles observées aux trois autres sites. La figure 26 nous montre que le point de grille (52;7) sous estime généralement les maximums horaires et notamment les valeurs minimums des maximums horaires. Nous constatons donc que les niveaux d'ozone qui ont été simulés par AURAMS n'ont pas systématiquement reproduit les niveaux observés sur les sites de mesure.

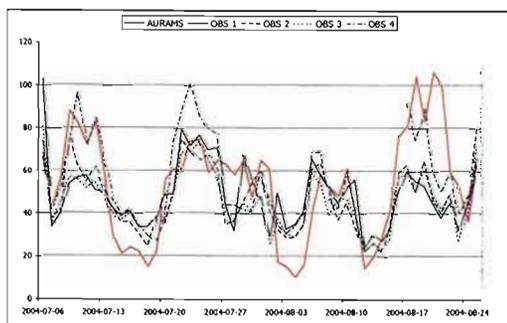


Figure 25 : Évolutions temporelles des MaxH du point de grille (51;9) d'AURAMS évalué par rapport aux 4 sites de référence qui lui sont attribués.

OBS 1 - 3452 DARLINGTON Rd.
 OBS 2 - 2435 SHARKEY Rd.
 OBS 3 - JOHN A CHESNUT SR PARK.
 OBS 4 - 5121 GANDY BLVD.

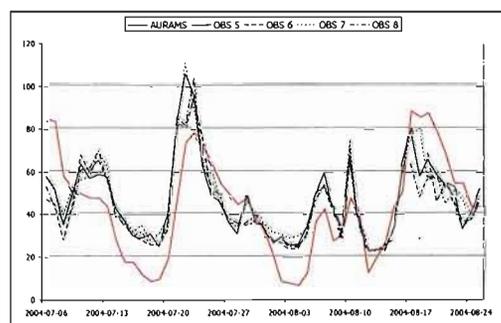


Figure 26 : Évolutions temporelles des MaxH du point de grille (52;7) d'AURAMS évalué par rapport aux 4 sites de référence qui lui sont attribués.

OBS 5 - 5502 33RD AVE W
 OBS 6 - 5511 39TH STREET EAST.
 OBS 7 - LIDO PARK MCKINLEY DR.
 OBS 8 - Paw Park

Dans le cas de la figure 26, ce comportement s'explique par la localisation géographique du point de grille (52;7). Celui-ci est situé au-dessus de l'océan. Nous avons donc comparé des niveaux d'ozone océaniques qui sont, sous un régime de vents d'ouest, plus faibles que les niveaux terrestres qui ont été mesurés par les sites de surveillance. Le cas particulier de ce

point de grille nous souligne l'importance que peut avoir la résolution d'une grille sur une région étroite où un point de grille placé en mer peut être comparé à des sites de mesures placés le long de la côte.

Pour expliquer les différences de comportement que nous avons observées sur la figure 25, nous avons remarqué que bien que les quatre sites de surveillance ont mesuré des niveaux d'ozone représentatifs de leurs environnements immédiats, leurs évolutions et leurs amplitudes sont différentes. Nous pensons donc que d'un point de vue spatial et pris individuellement, ces sites ne sont pas nécessairement représentatifs des niveaux d'ozone dans la cellule qui les regroupe. Pour obtenir des niveaux observés qui sont spatialement plus représentatifs de chaque cellule nous avons calculé, pour chaque journée, la valeur moyenne des niveaux maximums observés par les sites inclus dans chaque cellule de la grille d'AURAMS. Nous avons ensuite calculé la moyenne des niveaux maximums de ce secteur afin de la comparer à celle calculée à partir des niveaux maximums simulés aux points de grille d'AURAMS. La figure 27 présente la variation des moyennes des niveaux maximum d'ozone observés et de ceux simulés par AURAMS sur le secteur de la Floride.

Dans l'ensemble, nous remarquons que la nouvelle méthode de calcul de la moyenne n'a pas affecté les variations des niveaux d'ozone liées au régime météorologique. Nous constatons cependant que pour une certaine période (cercle pointillé rouge) les nouvelles moyennes des niveaux simulés sont du même ordre de grandeur que celles obtenue à partir des observations, alors que sur la figure 22 nous avons noté des différences. Toutefois, cette méthode ne nous a pas permis d'atténuer les écarts que l'on observe dans le cercle pointillé bleu.

À l'aide de cette analyse, nous pouvons conclure que CHRONOS et AURAMS capturent les variations significatives des rapports de mélange horaires maximums qui dépendent des conditions synoptiques. Cette performance pourrait être associée au modèle météorologique GEM qui a piloté ces deux modèles de qualité de l'air. Alors que CHRONOS surestime systématiquement la moyenne spatiale des maximums horaires sur tous les secteurs sauf la Floride, AURAMS reproduit l'amplitude de cette quantité en dehors des phases de transition météorologique. La surestimation de CHRONOS de

la moyenne spatiale des maximums horaires observés dans cette analyse ne semble pas influencée par la météorologie, du moins pas à l'échelle synoptique. Le cas particulier de la Floride est intéressant pour deux raisons; il nous montre d'une part, que CHRONOS est en mesure de reproduire les bonnes concentrations maximums d'un secteur où il n'existe pas ou peu de polluant en amont susceptible d'influencer les niveaux d'ozone. D'autre part, ce type de secteur qui est essentiellement longiligne met en évidence l'importance de la résolution de la grille d'un modèle de qualité de l'air. Ainsi, la grille d'AURAMS présente une résolution pour laquelle un point de grille peut être comparé à plusieurs stations de référence qui n'ont pas observé les mêmes maximums. Nous avons également vu qu'un point de grille situé sur l'eau peut être comparé à des sites de référence qui sont sur terre.

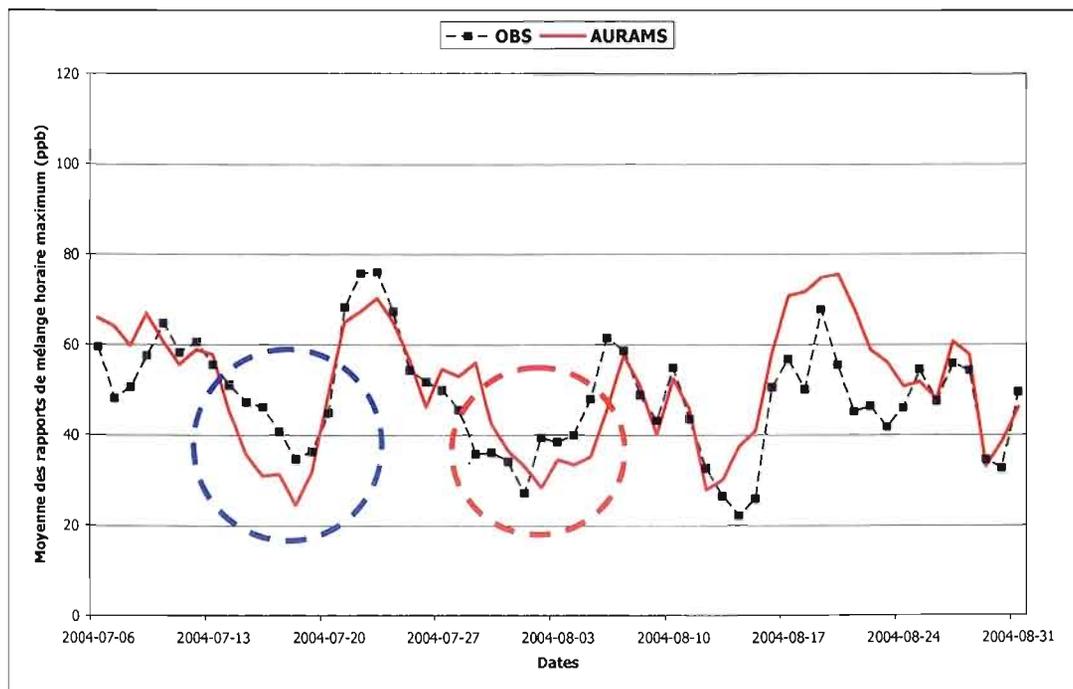


Figure 27 : Évolution temporelle de la moyenne, sur le secteur de la Floride, des rapports de mélanges horaires maximum observés et simulés par AURAMS. La moyenne à été calculé à partir des niveaux maximums moyens d'ozone de chaque cellule.

3.4 Analyse des profils moyens journaliers de secteur

Le profil moyen journalier (PMJ) d'un site de mesure est calculé en faisant la moyenne, sur le nombre de jour (j) et pour chaque heure de la journée (h), des rapports de mélange horaires à une heure donnée. Nous obtenons pour chaque site l'évolution temporelle moyenne des rapports de mélange pour une période de 24 heures.

$$PMJ_{(h)} = \frac{1}{j} \sum_1^j [O_3]_{(h)} \quad (3.1)$$

Cette analyse, appliquée aux observations, permet d'étudier les forçages et les influences locales qui agissent quotidiennement, et indépendamment des forçages synoptiques, sur les niveaux de polluant mesurés par la station de surveillance considérée. Si nous nous concentrons sur une journée type (jour de semaine, samedi ou dimanche), la moyenne permet de caractériser la signature d'une influence ou d'une source locale liée à l'activité humaine ou propre au domaine couvert par la station. En appliquant cette technique aux rapports de mélange simulés au point de grille le plus proche d'un site de mesure, nous sommes en mesure de caractériser les capacités d'un modèle à reproduire les forçages quotidiens qui agissent sur l'évolution de la moyenne des rapports de mélange et dans une certaine mesure, les influences qui peuvent être prescrites à l'échelle de la résolution du modèle.

Compte tenu du nombre de stations de référence utilisées, nous avons déterminé le profil moyen journalier de secteur (PMJS) pour chacun des cinq secteurs. Nous avons calculé pour chaque heure de la journée (h) la moyenne spatiale des niveaux moyens d'ozone observés ou simulés sur les sites de mesure (s).

$$PMJS_{(h)} = \frac{1}{s} \sum_1^s PMJ_{(h)} \quad (3.2)$$

Le PMJS permet de définir un comportement moyen, commun à toutes les stations considérées et nous permet de nous affranchir des influences de micro échelle de chaque site de mesure qui ne peuvent pas être décrit dans le modèle.

Une discrimination a été réalisée selon le type de jour, seuls les jours de semaine ont fait l'objet d'une analyse et sont présentés dans ce mémoire car les nombres de jour pour les jours de fin de semaine n'étaient pas suffisant pour établir une fiabilité sur le calcul de leur moyenne.

3.4.1 Nord-est du continent

La figure 28 présente les PMJS observés et simulés sur le secteur nord-est du continent. Les niveaux nocturnes maximum sont de l'ordre de 20 ppb. Ceux-ci diminuent pour atteindre un minimum en début de matinée, de l'ordre de 15 ppb, correspondant au pic de trafic automobile matinal où le monoxyde d'azote émis consomme une grande partie des molécules d'ozone présentes pour former du dioxyde d'azote. Peu après, la décomposition du NO_2 par le rayonnement solaire associée à la présence des composées organiques volatiles initie et entretient les réactions de production d'ozone.

Les concentrations d'ozone atteignent leurs niveaux maximums, plus de 45 ppb en moyenne, en deuxième partie d'après-midi quand la température ambiante est également à son maximum. Par la suite, les diminutions progressives de la température ambiante et de l'intensité du rayonnement solaire inhibent les réactions productrices d'ozone. Les niveaux d'ozone diminuent progressivement pour retourner à leurs valeurs nocturnes.

Les PMJS obtenus à partir des simulations d'AURAMS et de CHRONOS reproduisent la variation du cycle décrit précédemment. Pour ce secteur, AURAMS et CHRONOS présentent des niveaux nocturnes d'ozone similaires aux observations. L'influence du trafic automobile matinal est également capturée par les deux modèles. CHRONOS se distingue d'AURAMS dès que les processus de production photochimique entrent en œuvre. Alors qu'AURAMS surestime légèrement le taux de production d'ozone, le matin, et les niveaux diurnes qui en résulte, CHRONOS surestime largement ce taux de production pour atteindre des niveaux maximum d'ozone 30% supérieurs à ceux observés. De plus, le maximum est atteint plus tôt, en début d'après-midi. Finalement, lors de la diminution progressive des niveaux d'ozone, nous remarquons que le taux de consommation d'ozone augmente à partir de 20 heures. CHRONOS et AURAMS présentent ainsi des rapports de mélanges supérieurs en fin de journée par rapport à ceux observés.

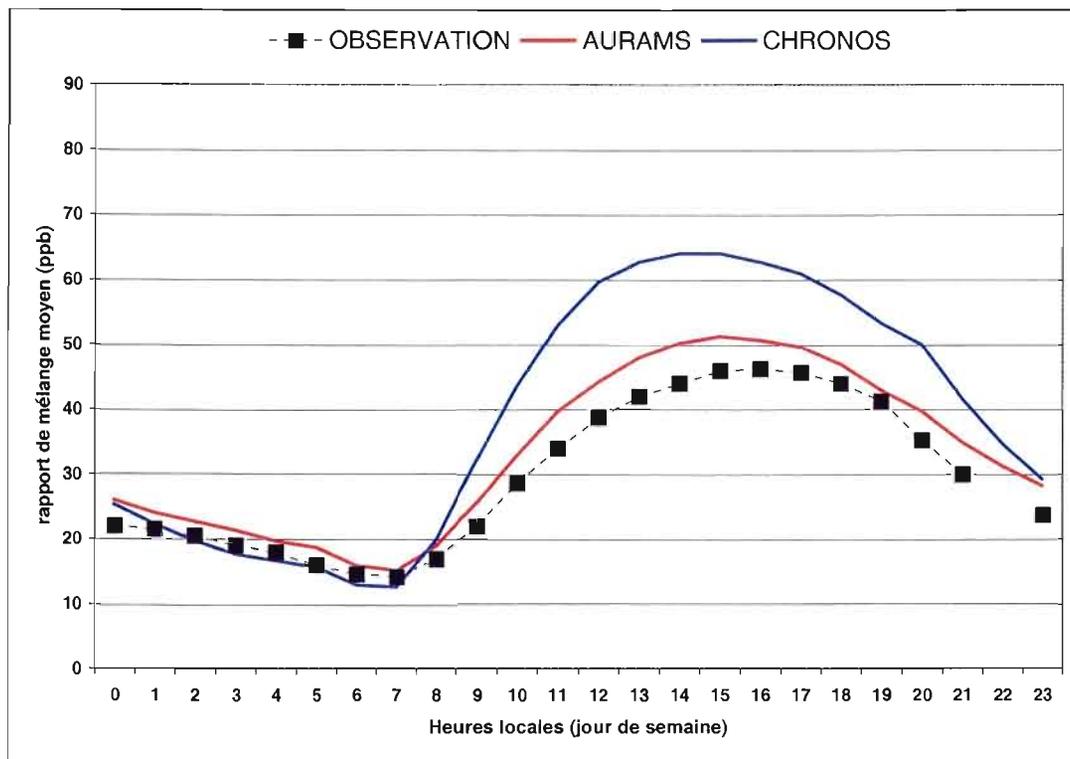


Figure 28 : Profils moyens journaliers calculés sur le secteur nord-est du continent (PMJS) à partir des rapports de mélange observés et simulés. Les typologies rurale, suburbaine et urbaine sont prises en compte.

3.4.2 Centre du continent

Le PMJS obtenu à partir des observations appartenant au centre du continent (figure 29) présente des niveaux nocturnes maximum de 20 ppb, d'un minimum de l'ordre de 12 ppb en matinée et de niveaux maximums proche de 50 ppb en milieu d'après-midi. Pour ce secteur, AURAMS a produit un PMJS semblable aux observations. Toutefois une légère surestimation apparaît en fin d'après-midi pour atteindre un écart de l'ordre de 5 ppb en soirée. CHRONOS produit quant à lui, un PMJS où les niveaux nocturnes et le minimum sont similaires aux observations. Les niveaux diurnes sont surestimés dès la mise en œuvre des processus photochimiques. L'écart maximum, de l'ordre de 15 ppb, est atteint en début d'après-midi. Le maximum diurne simulé par CHRONOS arrive plus tôt que celui observé. En soirée, CHRONOS surestime le taux de consommation d'ozone en début de soirée.

3.4.3 Atlantique sud

Le PMJS issu des observations sur la région de l'atlantique sud (figure 30) montre des niveaux nocturnes maximum de l'ordre de 25 ppb, des niveaux minimum en matinée aux alentours de 12 ppb et des niveaux maximum atteints en milieu d'après-midi, supérieurs à 50 ppb. AURAMS et CHRONOS produisent des niveaux nocturnes semblables aux observations, avec toutefois une surestimation de moins de 5 ppb de la part d'AURAMS. Les deux modèles produisent respectivement des niveaux diurnes supérieurs de 25% et 50% par rapport aux observations. D'autre part, CHRONOS anticipe l'arrivée du niveau maximum par rapport aux observations. Les surestimations des deux modèles apparaissent dès le démarrage des processus de production photochimique. Nous observons une discontinuité/ralentissement marqué(e) dans la diminution des niveaux d'ozone entre 19 et 20 heures légales. Puis jusqu'à la fin de la journée, CHRONOS et AURAMS produisent des taux de consommation supérieurs à celui observé.

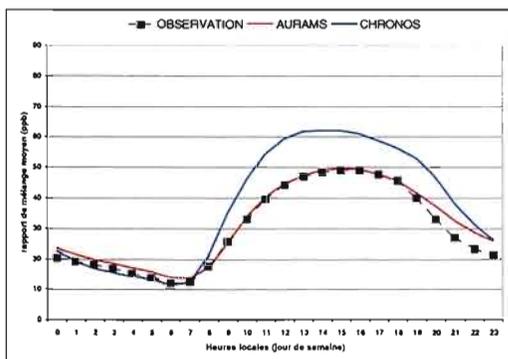


Figure 29 : PMJS du centre du continent à partir des rapports de mélange observés et simulés. Les typologies rurale, suburbaine et urbaine sont prises en compte.

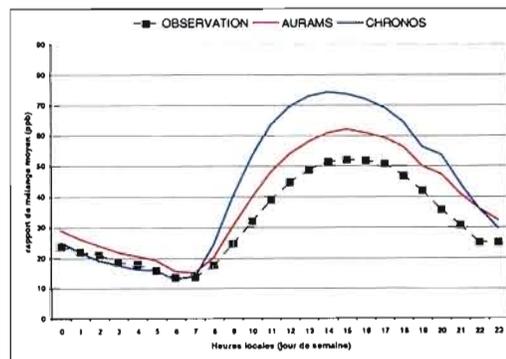


Figure 30 : PMJS de l'atlantique sud à partir des rapports de mélange observés et simulés. Les typologies rurale, suburbaine et urbaine sont prises en compte.

3.4.4 Atlantique nord

Le PMJS produit à partir des observations sur la région de l'atlantique nord (figure 31) indique des niveaux nocturnes maximum de 20 ppb, un minimum matinal de 10 ppb et des niveaux diurnes maximum de l'ordre de 55 ppb, en après-midi. Pour ce secteur, AURAMS produit des niveaux nocturnes supérieurs de 30% à ceux observés alors que CHRONOS les reproduit. Les niveaux diurnes obtenus à partir des simulations d'AURAMS et de CHRONOS sont respectivement, en moyenne, supérieurs de 15% et 35% à ceux issus des observations. Le décrochement de fin d'après-midi est également très marqué pour les deux modèles. Les écarts associés à ces décrochements sont de l'ordre de 40 à 50 % du niveau observé. En soirée, les taux de consommation simulés sont supérieurs à celui observé.

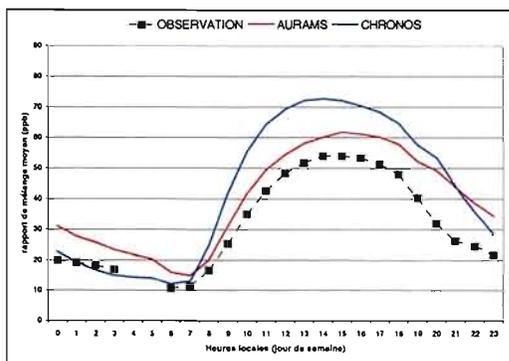


Figure 31 : PMJS de l'atlantique nord à partir des rapports de mélange observés et simulés. Les typologies rurale, suburbaine et urbaine sont prises en compte.

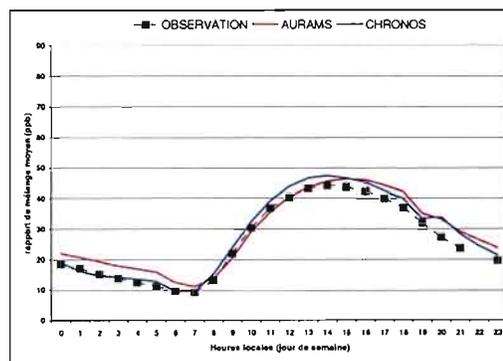


Figure 32 : PMJS de la Floride à partir des rapports de mélange observés et simulés. Les typologies rurale, suburbaine et urbaine sont prises en compte.

3.4.5 Péninsule floridienne

Le PMJS (figure 32) qui caractérise les observations sur la péninsule floridienne présente des niveaux nocturnes maximum inférieurs à 20 ppb pour atteindre un minimum matinal de 10 ppb. Les niveaux maximums diurnes sont de l'ordre de 45 ppb en après-midi. Pour ce secteur, AURAMS produit un PMJS où les niveaux nocturnes sont surestimés de 3 à 5 ppb.

Les niveaux diurnes sont cependant similaires aux observations. CHRONOS reproduit les niveaux nocturnes et le niveau minimum matinal. À l'encontre des secteurs précédents, CHRONOS produit des niveaux diurnes semblables aux observations. Les écarts relatifs entre le PMJS observé et celui de CHRONOS sont inférieurs 10%.

De plus, le taux de production simulé de début de journée est semblable à celui observé. Néanmoins, en début de soirée, les PMJS des deux modèles décrochent du PMJS observé. Les écarts associés restent de l'ordre de 5% par rapport aux niveaux observés. Toutefois, les taux de consommation de l'ozone simulés sont similaires à celui observé ce qui induit un écart quasi-constant pour la fin de la soirée.

3.4.6 Caractérisation des écarts entre les niveaux simulés et observés

L'analyse des PMJS nous a permis d'identifier des plages de la journée où les modèles n'ont pas reproduit les niveaux observés. D'autre part, les deux modèles ont présenté dans leur PMJS des secteurs de l'atlantique et de la Floride un décrochement marqué en début de soirée par rapport aux PMJS observés. Le taux de consommation de l'ozone semblait sous estimé et l'écart entre les niveaux observés et simulés augmentaient. Ce décrochement est peu marqué sur les secteurs du nord-est et du centre du continent mais l'écart présent entre les niveaux de soirée est présent. Pour trouver une ou des pistes d'explication et voir si celles-ci sont communes à tous les secteurs, nous avons tracé le PMJS des écarts absolus et des écarts relatifs entre les niveaux simulés par les deux modèles et ceux observés (figures 33 à 42).

Le PMJS des écarts absolus entre les niveaux simulés par AURAMS et ceux observés (figure 33) sur le secteur nord-est du continent varie entre 1 et 6 ppb. Son évolution ne semble pas liée à un cycle particulier. Celui de CHRONOS est plus marqué et les écarts sont compris entre -2 et 21 ppb. Ceux-ci évoluent selon un cycle qui correspond à celui du rayonnement solaire. L'écart relatif (figure 34) entre les niveaux observés et ceux simulés par AURAMS varie, au cours de la journée, entre 4% et 20%. Nous constatons que malgré la faible amplitude des valeurs des écarts absolus, ceux-ci peuvent être significatifs par rapport au niveau concerné. Nous n'identifions pas de cycle particulier sur la journée, mais il semble cependant que les écarts les plus significatifs sont nocturnes. CHRONOS, quant à lui, produit

un écart relatif cyclique qui oscille entre -12% et 56%. Les écarts positifs apparaissent à l'activation des processus photochimiques et persistent en soirée.

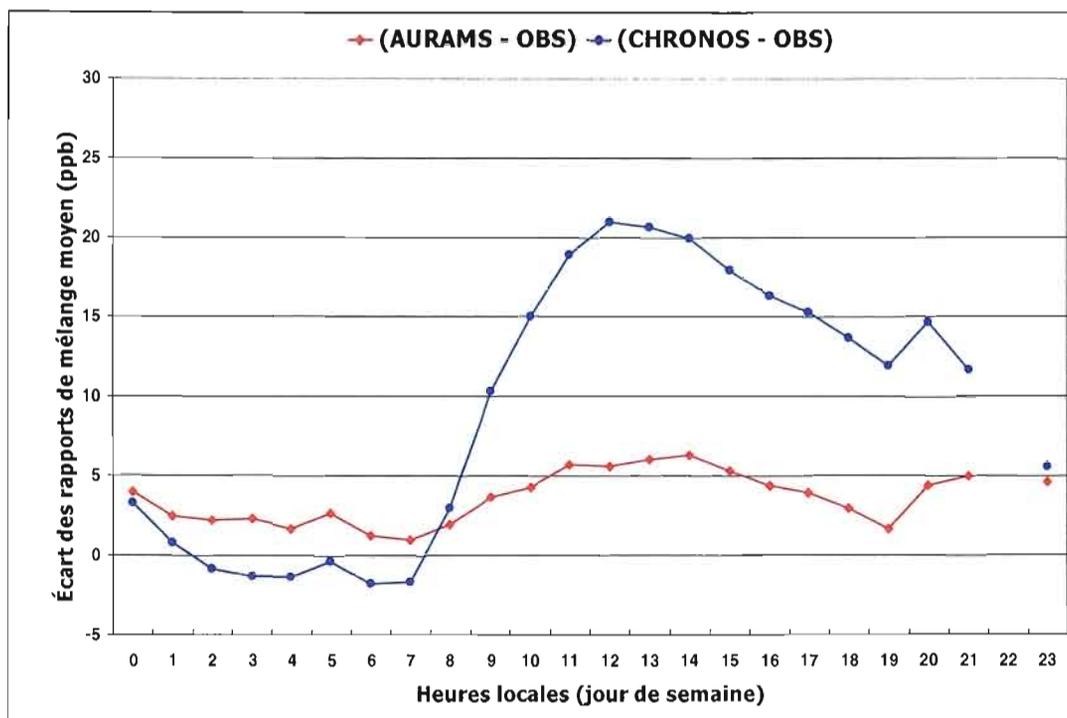


Figure 33 : PMJS des écarts absolus entre les niveaux d'ozone simulés par rapport à ceux observés pour le secteur du nord-est du continent. Les interruptions dans les profils sont causées par l'absence de données observées.

Les figures 35 et 36 présentent les analyses sur les écarts absolus et relatifs pour le secteur du centre du continent. Le PMJS des écarts absolus (figure 35) associés aux simulations d'AURAMS varie entre -1 et 6 ppb. Cela représente toutefois des écarts relatifs (figure 36) qui sont compris dans un intervalle entre -3% et 23%. Les deux figures montrent que les variations sont cycliques et que les meilleures performances sont obtenues en journée et que celles-ci se dégradent rapidement à partir de 19 heures. Sur ce secteur, les simulations de CHRONOS présentent des variations cycliques des types d'écarts semblables à ce qui a été identifié pour le secteur du nord-est où les surestimations apparaissent à l'activation des

processus photochimiques. Nous observons également un deuxième écart maximum en début de soirée. Les écarts absolus sont compris entre -1 et 15 ppb qui représentent des écarts relatifs -8% à 42%. L'écart relatif maximum est observé en début de soirée et les plus faibles sont obtenus la nuit.

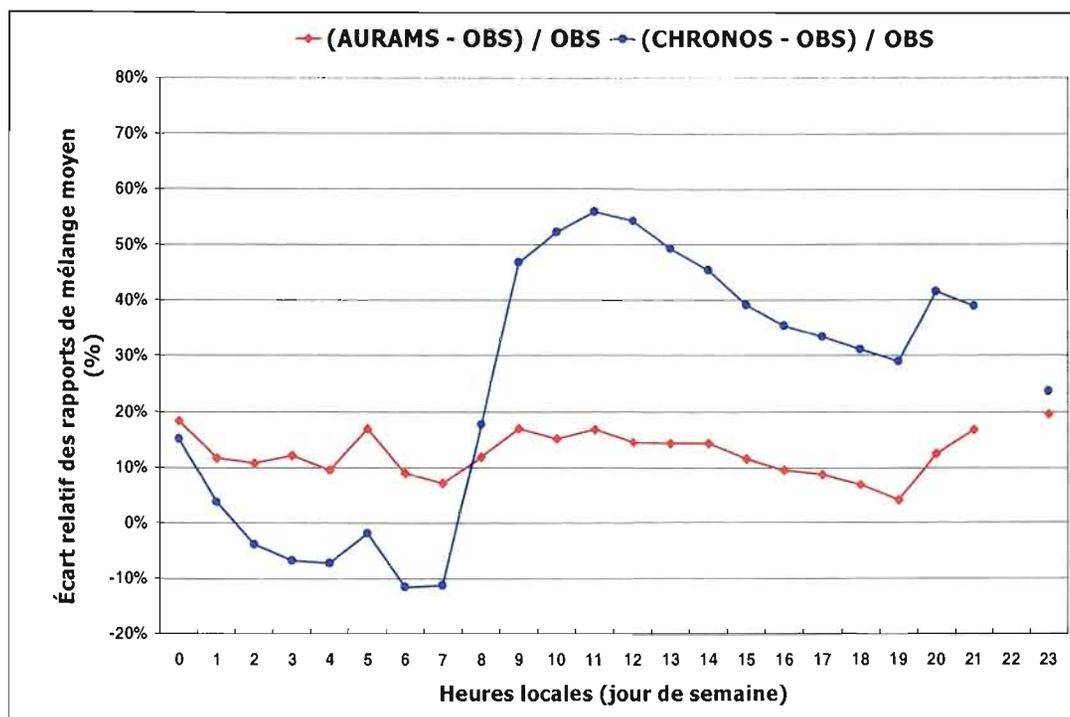


Figure 34 : PMJS des écarts relatifs entre les niveaux d'ozone simulés par rapport à ceux observés pour le secteur du nord-est du continent. Les interruptions dans les profils sont causées par l'absence de données observées.

Les PMJS des écarts absolus et relatifs pour le secteur de l'atlantique sud sont présentés sur les figures 37 et 38. Les écarts absolus (figure 37) d'AURAMS les plus faibles sont de l'ordre de 2 à 5 ppb et sont obtenus la nuit. Ils augmentent progressivement en début de journée pour stagner à des valeurs proches de 10 ppb en mi-journée et atteindre un maximum de 12 ppb en début de soirée. En relatif, les écarts oscillent faiblement autour de 20% et l'augmentation de l'écart absolu de début de journée ne semble pas significative sur l'évolution de l'écart

relatif. En revanche, l'augmentation qui apparaît en début de soirée est plus significative et atteint 45% du niveau observé. À partir des deux graphiques, nous ne discernons pas de cycle particulier pour AURAMS.

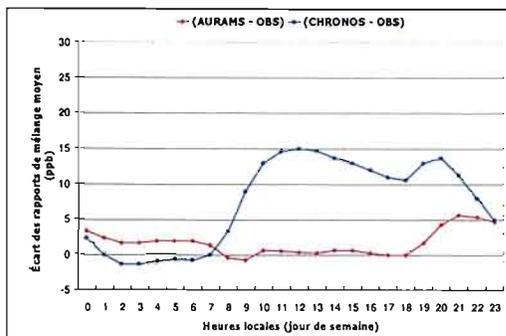


Figure 35 : PMJS des écarts absolus entre les niveaux d'ozone simulés par rapport à ceux observés pour le secteur du centre du continent.

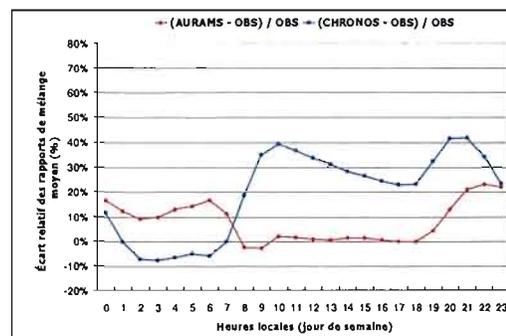


Figure 36 : PMJS des écarts relatifs entre les niveaux d'ozone simulés par rapport à ceux observés pour le secteur du centre du continent.

La présence d'un cycle, en partie lié à l'ensoleillement, des écarts de la part de CHRONOS est également marquée pour le secteur de l'atlantique sud. En absolu, les écarts sont compris entre -2 et 25 ppb et en relatifs entre -10% et 67%. La figure 38 indique que le niveau simulé en début de soirée est supérieur de 50% à celui observé. La même analyse sur le secteur de l'atlantique nord (figure 39 et 40) nous indique que les écarts absolus associés aux simulations d'AURAMS sont compris entre 3 et 17 ppb et ceux de CHRONOS évoluent entre -2 et 22 ppb.

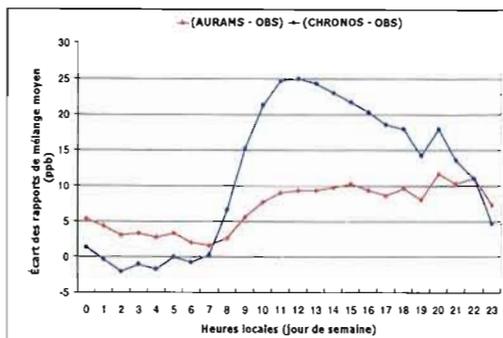


Figure 37 : PMJS des écarts absolus entre les niveaux d'ozone simulés par rapport à ceux observés pour le secteur de l'atlantique sud.

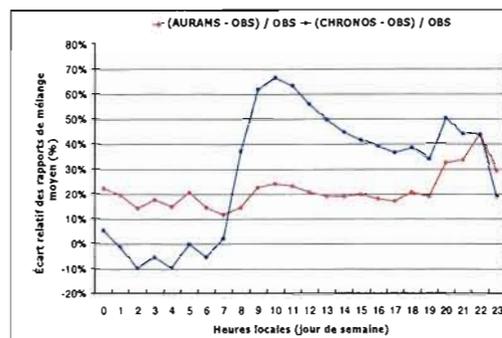


Figure 38 : PMJS des écarts relatifs entre les niveaux d'ozone simulés par rapport à ceux observés pour le secteur de l'atlantique sud.

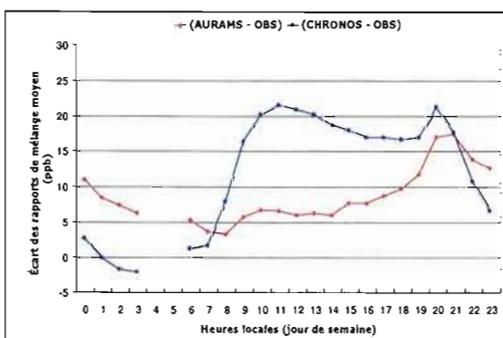


Figure 39 : PMJS des écarts absolus entre les niveaux d'ozone simulés par rapport à ceux observés pour le secteur de l'atlantique nord. Les interruptions dans les profils sont causées par l'absence de données observées.

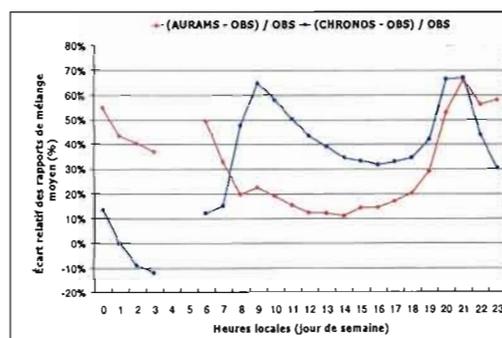


Figure 40 : PMJS des écarts relatifs entre les niveaux d'ozone simulés par rapport à ceux observés pour le secteur de l'atlantique nord. Les interruptions dans les profils sont causées par l'absence de données observées.

L'analyse de l'évolution des écarts absolu (figure 41) et relatif (figure 42) appliquée sur le secteur de la Floride nous montre que les écarts absolus des deux modèles sont contenus -2 et 7 ppb. Cependant, leurs influences par rapports aux niveaux observées n'ont pas la même importance. Les écarts relatifs de CHRONOS sont généralement inférieurs à 20%. L'écart relatif le plus important (23%) est observé à 20 heures. La présence d'un cycle associé à celui

du soleil n'est pas particulièrement identifiable. Nous retrouvons seulement la présence du décrochement de fin de journée.

Les écarts relatifs nocturnes et matinaux d'AURAMS sont régulièrement supérieurs à 20%, ceux de journée sont compris entre -10% et 14% et à partir de 20 heures ils augmentent pour dépasser à nouveau le seuil des 20%. Nous pouvons deviner le cycle quotidien des écarts où ceux-ci sont minimums en journée et maximum la nuit.

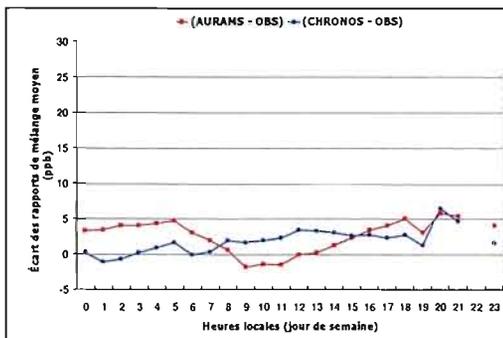


Figure 41 : PMJS des écarts absolus entre les niveaux d'ozone simulés par rapport à ceux observés pour le secteur de la Floride. Les interruptions dans les profils sont causées par l'absence de données observées.

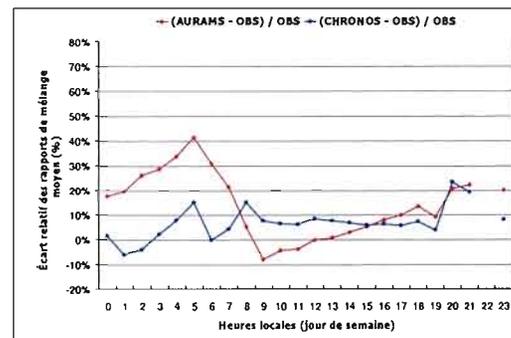


Figure 42 : PMJS des écarts relatifs entre les niveaux d'ozone simulés par rapport à ceux observés pour le secteur de la Floride. Les interruptions dans les profils sont causées par l'absence de données observées.

3.4.7 Caractérisation des taux de production/consommation

Dans les analyses des PMJS, nous avons régulièrement évoqué le taux de production/consommation de l'ozone. Pour le caractériser et l'évaluer, nous avons tracé pour chaque secteur l'évolution de la différence entre deux concentrations d'ozone temporellement consécutives ramenées à la première des deux concentrations :

$$\tau_{t(\%)} = \frac{[O_3]_t - [O_3]_{t-1}}{[O_3]_{t-1}} \quad (3.3)$$

La figure 43 présente les évolutions temporelles simulées et observées sur le secteur du nord-est du continent. Les trois courbes nous montrent que la production d'ozone est liée à la variation du cycle solaire. Sur ce secteur, le taux de consommation horaire nocturne, déduit des niveaux observés, fluctue autour de -5% par heure (%/h) jusqu'à 6 heures du matin. Les processus photochimiques débutent graduellement à partir de 7 heures pour être maximum à 9 et 10 heures où les taux de production sont de l'ordre de 30%. Par la suite le taux de production diminue régulièrement, due à l'activation du mélange turbulent en surface entre autre, jusqu'à 17 heures pour devenir un taux de consommation de l'ordre de 15% en milieu de soirée.

L'évolution de ce taux, obtenu à partir des niveaux d'AURAMS, présente des caractéristiques semblables à celui des observations. Les ordres de grandeurs sont respectés pour une grande partie de la journée. Nous noterons cependant deux périodes où les évolutions divergent : à 6 heures et à 20 heures. Bien que CHRONOS reproduit la variation quotidienne du cycle, les taux de production sont nettement surestimés lors de l'activation des processus photochimiques et lorsqu'ils sont les plus efficaces. Ils sont également plus précoces. Ils sont par la suite similaires aux taux observés en après-midi. À l'instar d'AURAMS, l'évolution des taux diverge, à 20 heures, de celle observée. Puis peu après, reproduit l'ordre de grandeurs des taux de consommation nocturnes observés.

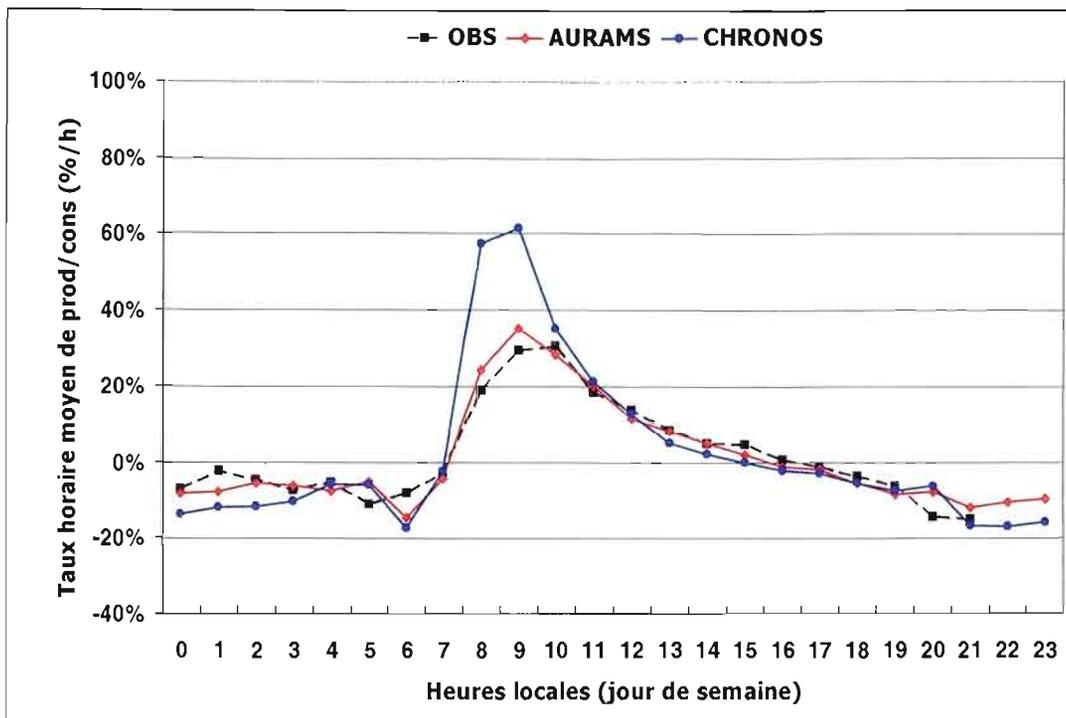


Figure 43 : PMJS du taux de production/consommation d'ozone simulés et observé sur le secteur nord-est du continent.

Les figures 44 à 47 présentent la même analyse réalisée sur les quatre autres secteurs. AURAMS présente, sur les quatre secteurs, une évolution des taux de production/consommation du même ordre de grandeur que ceux observés. Nous remarquons également que pour les quatre secteurs, le taux de consommation calculé à 20 heures ne correspond pas à ceux provenant des observations.

Les évolutions des taux de production/consommation obtenus pour trois des quatre secteurs par CHRONOS montrent généralement la surestimation des taux de production lors des phases d'activation des processus photochimiques et l'anticipation des niveaux les plus efficaces. La Floride se démarque en présentant une évolution des taux similaires à celle observé bien que l'anticipation du taux en début de matinée soit également observée. Finalement sur l'ensemble des secteurs, nous constatons la divergence des taux de consommation à 20 heures.

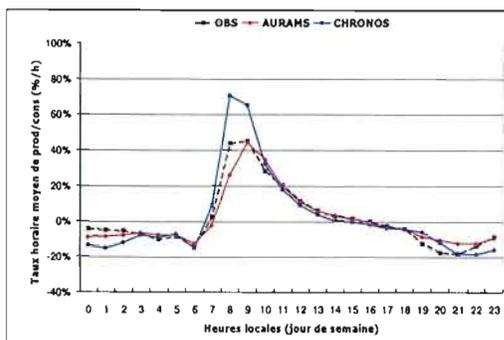


Figure 44 : PMJS du taux de production/consommation d'ozone simulés et observé sur le secteur du centre du continent.

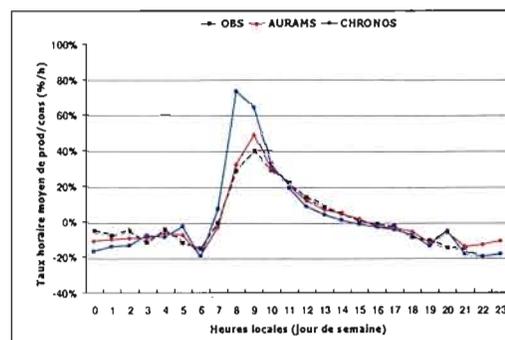


Figure 45 : PMJS du taux de production/consommation d'ozone simulés et observé sur le secteur Atlantique sud.

La caractérisation du taux de production/consommation nous a permis d'identifier, en partie, l'origine de certains écarts observés entre les PMJS des niveaux d'ozone simulés et observés. Les niveaux diurnes fortement surestimés par CHRONOS sont en partie dus au taux de production d'ozone en matinée qui est surestimé et anticipé pour tous les secteurs sauf la Floride. Elle nous permet également d'associer les décrochements de début de soirée que nous avons remarqué sur les deux modèles à une simulation d'un taux de consommation généralement sous estimé. D'autre part, cette caractéristique nous suggère que la nature de ces écarts est attribuable à un élément commun aux deux modèles. Cependant, cette analyse ne nous permet pas d'expliquer la surestimation des niveaux nocturnes produits par AURAMS.

Dennis et al., (2005) ont réalisé une évaluation du modèle de qualité de l'air CMAQ (Community Multiscale Air Quality). Ils ont constaté que la couche de mélange simulée par le modèle météorologique MM5 (Mesoscale Model v5), qui pilote le modèle de qualité de l'air CMAQ, s'effondrait trop rapidement en fin d'après-midi. Selon eux, cet effet pourrait engendrer la formation prématurée d'une couche nocturne stable et favoriser ainsi l'accumulation des polluants en surface puis finalement induire une surestimation des concentrations en soirée. Pour vérifier cette hypothèse, ils ont effectué une comparaison, similaire à celle que nous avons utilisée, entre les observations de carbone élémentaire fournies par quelques sites de référence bien équipés et les simulations produites par le

modèle de qualité de l'air CMAQ/MM5. La conclusion de cette comparaison est consistante avec l'hypothèse émise.

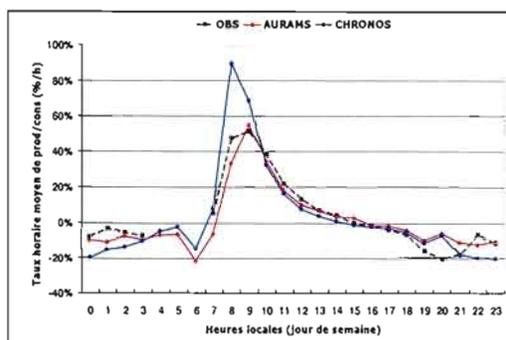


Figure 46 : PMJS du taux de production/consommation d'ozone simulés et observé sur le secteur Atlantique nord.

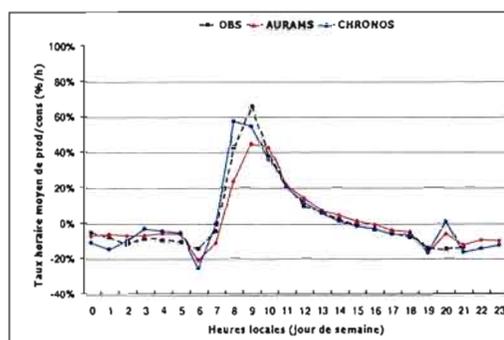


Figure 47 : PMJS du taux de production/consommation d'ozone simulés et observé sur le secteur de la Floride.

Dans notre cas, ces décrochements pourraient être associés à une accumulation de l'ozone induite par la présence prématurée d'une couche nocturne stable simulée. Une accumulation des polluants primaires tels que le CO, les NO_x et les COV, conduirait alors à une consommation de l'ozone plus efficace qu'elle ne l'est en réalité. Le synchronisme des décrochements que nous avons observés pour les deux modèles et l'hypothèse de *Dennis et al(2005)*, nous laisse supposer que le modèle météorologique GEM pourrait également provoquer un effondrement prématuré de la couche de mélange.

L'analyse des profils moyens journaliers de secteurs simulés et observés nous apprend que les deux modèles reproduisent généralement les niveaux nocturnes et capture le niveau minimum qui est atteint lors du pic de trafic automobile matinal. Cette analyse nous indique également que CHRONOS surestime sensiblement les niveaux diurnes sur tous les secteurs sauf la Floride, alors que AURAMS présente généralement de meilleures performances.

La caractérisation des écarts nous indique que les deux modèles produisent une variation cyclique des écarts. La variation des écarts de CHRONOS, sur les quatre premiers secteurs, est en partie liée au cycle solaire alors que celle d'AURAMS semble généralement influencée par des processus chimiques nocturnes.

La caractérisation des taux de production/consommation durant la journée nous permet de montrer que les surestimations diurnes de CHRONOS sont liées au taux de production lors de l'activation des processus photochimiques. Cependant, compte tenu du fait que les évolutions sont différentes pour le secteur de la Floride, et sachant que les deux modèles utilisent dans une large mesure les mêmes formulations pour la description de la chimie atmosphérique, nous sommes amenés à suspecter que les émissions biogéniques et/ou anthropiques utilisées par CHRONOS pourraient être responsable des différences observées. Cette analyse et l'hypothèse validée de *Dennis et al. (2005)* nous suggèrent également que les surestimations des niveaux qui apparaissent en début de soirée sur les deux modèles pourraient être attribuables à la simulation des processus atmosphériques qui régissent la couche de mélange. Les surestimations nocturnes d'AURAMS et leurs cycles n'ont pas pu être expliquées par ces analyses.

3.5 Analyse du diagramme de Taylor

Le diagramme de *Taylor et al. (2001)* est largement utilisé par les groupes de modélisation du climat pour des intercomparaisons de modèles (*J. Räisänen, 1997; Lambert & Boer, 2001*) ou des études de sensibilité (*Denis et al., 2003*). Il propose un graphique bidimensionnel qui résume le comportement de deux champs, l'un par rapport à l'autre, à l'aide de trois quantités statistiques et de la loi des cosinus. Ces quantités statistiques sont la corrélation et la différence quadratique moyenne entre les deux champs ainsi que le rapport de leurs écarts-types respectifs. Ce diagramme peut être utilisé pour illustrer les performances relatives de plusieurs modèles par rapport à une référence commune ou pour présenter l'évolution des performances associées aux modifications apportées à un modèle. Cet outil permet de déterminer l'origine de la différence quadratique moyenne entre le champ de référence et le champ évalué. Elle peut être due à une variance exagérée ou sous estimée, comme elle peut

être associée à une mauvaise corrélation (spatiale ou temporelle) des champs. Les quantités statistiques peuvent être calculées sur des bases de données constituées sur un domaine spatial, un jeu de modèles ou une période temporelle.

Jusqu'à récemment, la communauté de la modélisation de la qualité de l'air ne l'avait pas encore utilisé. Dans le cadre de cette étude, il nous semblait intéressant d'appliquer cet outil graphique en guise de synthèse des performances des modèles par rapport aux observations.

Pour lire le diagramme, nous rappelons que :

Les axes des abscisses et des ordonnées correspondent à la valeur de l'écart-type normalisé par rapport au champ de référence σ_n .

$$\sigma_n = \frac{\sigma_{\text{mod}}}{\sigma_{\text{obs}}} = \frac{\sqrt{\frac{1}{N} \sum_{i=1}^N (x_{\text{mod},i} - \bar{x}_{\text{mod}})^2}}{\sqrt{\frac{1}{N} \sum_{i=1}^N (x_{\text{obs},i} - \bar{x}_{\text{obs}})^2}}$$

L'angle entre l'axe des abscisses et la droite qui passe par l'origine des axes des abscisses et des ordonnées et par le point qui représente la performance du champ simulé, caractérise son coefficient de corrélation R par rapport au champ de référence.

$$R = \frac{\frac{1}{N} \sum_{i=1}^N (x_{\text{mod},i} - \bar{x}_{\text{mod}})(x_{\text{obs},i} - \bar{x}_{\text{obs}})}{\sigma_{\text{mod}} \sigma_{\text{obs}}}$$

La distance entre le point qui représente la performance du champ simulé et le point de coordonnées (1,0), noté OBS, correspond à la différence quadratique moyenne centrée E' entre les deux champs.

$$E' = \sqrt{\frac{1}{N} \sum_{i=1}^N [(x_{\text{mod},i} - \bar{x}_{\text{mod}})(x_{\text{obs},i} - \bar{x}_{\text{obs}})]^2}$$

Ainsi, dans un cas où le champ simulé serait identique au champ de référence, le point représentatif du champ simulé aurait les coordonnées (1,0). Si le champ modélisé présentait une variance identique aux observations, mais avec une corrélation inférieure à 1, le point représentatif serait sur l'arc de cercle de rayon unitaire et son azimute correspondrait à la valeur du coefficient de corrélation. Dans le cas contraire où le champ analysé serait parfaitement corrélé mais son écart-type serait différent de celui du champ de référence, le point représentatif serait positionné sur l'axe des abscisses, à une distance de l'origine de l'axe des abscisses correspondant à la valeur de l'écart-type normalisé.

Dans le cadre de ce projet, les calculs des quantités statistiques nécessaires ont été établis pour l'ensemble du domaine et pour chaque secteurs afin d'obtenir une vue d'ensemble et pour voir si les performances sont équivalentes pour tous les secteurs.

3.5.1 Performances Générales

Les analyses statistiques ont été effectuées avec l'ensemble des données horaires observées et simulées.

Le tableau 3 montre que les deux modèles soumis à l'intercomparaison présentent des coefficients de corrélation des niveaux horaires proches de 0,7. Les différences de performances des deux modèles sont plus notables sur la valeur des écart-types normalisés. AURAMS présente une valeur proche de l'unité alors que CHRONOS surestime cette quantité de plus de 40%.

Tableau 3 : Performances générales des deux modèles.

Statistiques sur les niveaux horaires	CHRONOS	AURAMS
Coefficient de corrélation	0,71	0,66
Écart-type normalisé	1,41	1,01

3.5.2 Performances par secteur

La figure 48 présente les performances des deux modèles pour chaque secteur. Les indices de 1 à 5 représentent respectivement le nord-est du continent, le centre du continent, les secteurs de l'atlantique sud et nord et finalement la péninsule floridienne.

Le nuage de points rouges correspondant aux performances d'AURAMS selon les secteurs montre que les secteurs présentent des coefficients de corrélation compris entre 0,6 et 0,72 et les écart-types normalisés sont compris dans un intervalle entre 0,92 et 1,18. Le nuage de points bleus présente les performances de CHRONOS pour chaque secteur. Les coefficients de corrélation sont regroupés dans un intervalle débutant à 0,68 et se terminant par 0,74 et les écart-types normalisés sont compris entre 1,15 et 1,56.

Plusieurs particularités ressortent de ce diagramme :

1. La similitude des coefficients de corrélations d'AURAMS et de CHRONOS nous indique que les éléments communs aux deux modèles influencent de la même manière l'évolution temporelle des niveaux horaires d'ozone. Pour améliorer la corrélation entre les simulations et les observations, il faudrait intervenir sur ces éléments communs;
2. Les différences notables entre les écart-types normalisés pour chaque secteur respectif semblent imputables à des éléments distincts entre les deux modèles. Ceux de CHRONOS le conduisent à surestimer les écart-types simulés sur les quatre premiers secteurs de plus de 34% par rapport aux observations respectives;
3. Pour les quatre premiers secteurs, les deux modèles produisent une distribution des nuages de points similaires. Cette caractéristique géométrique suggère que pour chaque secteur, sauf la Floride, la même cause génère les différences observées sur les écart-types;
4. Les performances des deux modèles sur le secteur de la Floride (points #5) se distinguent de celles obtenues pour les quatre autres. Pour les deux modèles, les deux points sont à l'écart des quadrilatères formés par les quatre premiers. Nous remarquons également que la nature de la différence quadratique moyenne n'est pas la même selon le modèle. Alors

que CHRONOS améliore sa performance par rapport aux autres secteurs en présentant un écart-type normalisé plus proche de l'unité, AURAMS la dégrade en diminuant son coefficient de corrélation.

L'analyse du diagramme de Taylor nous indique que les écarts entre les niveaux d'ozone simulés par les deux modèles et ceux observés peuvent avoir différentes origines. Les éléments communs aux deux modèles nous ont conduits à observer une similitude des coefficients de corrélation et une ressemblance dans la répartition des points représentant les quatre premiers secteurs. Des éléments ou des caractéristiques propres à chaque modèle nous amènent à constater d'une part la surestimation systématique des écart-types dans le cas de CHRONOS alors qu'AURAMS présente de meilleures performances sur tous les secteurs hormis la Floride. D'autre part, le cas particulier de la Floride nous montre que CHRONOS a réalisé sur ce secteur une meilleure performance qu'AURAMS. Cette dernière remarque nous laisse suggérer que CHRONOS a produit des variations des niveaux d'ozone plus proches des observations alors que AURAMS a produit des évolutions temporelles des niveaux d'ozone moins bien corrélées aux observations.

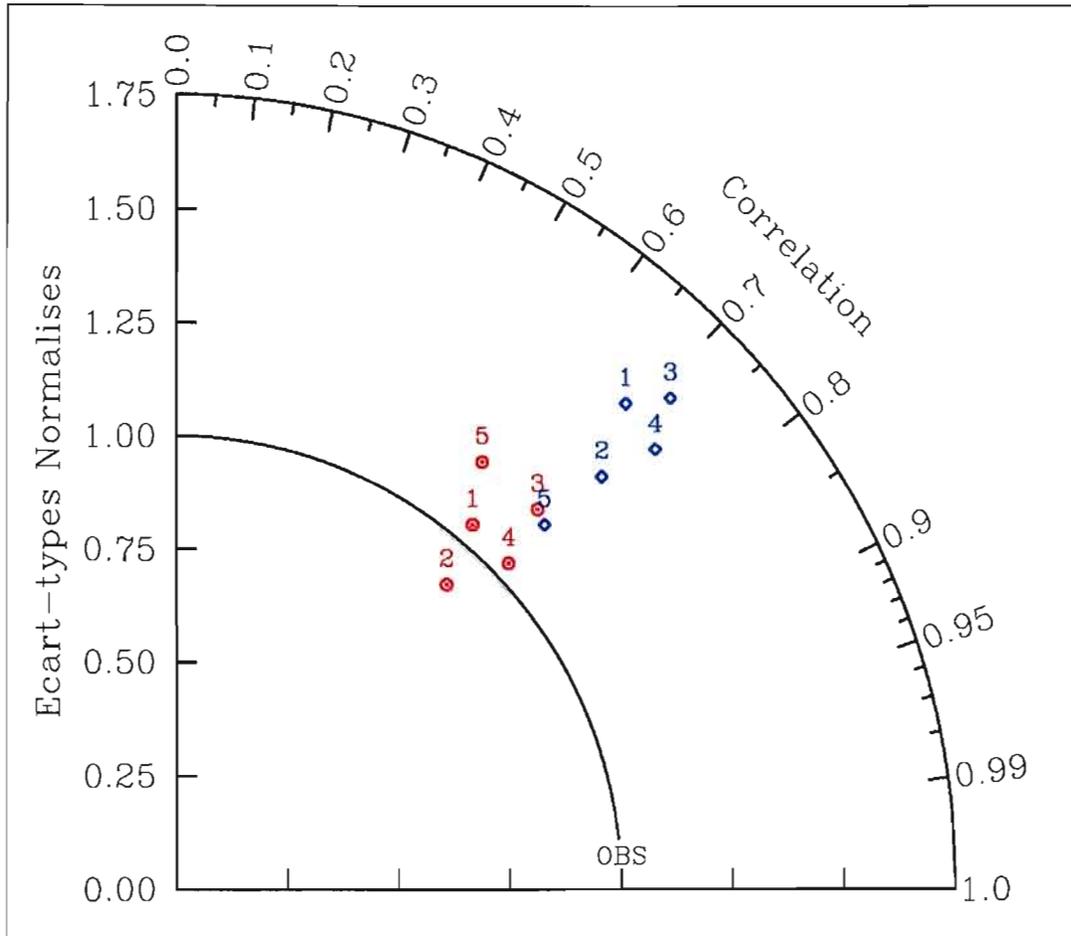


Figure 48 : Diagramme de Taylor regroupant les secteurs d'analyse. Les typologies rurale, suburbaine et urbaine sont prises en compte. Les performances par secteur d'AURAMS sont en rouge et celles de CHRONOS sont en bleu.

3.6 Analyses spatiales

Jusqu'à présent toutes les analyses ont été réalisées à partir des séries temporelles. Celles-ci nous ont permis d'identifier quelques caractéristiques des écarts entre les niveaux horaires d'ozone observés et simulés par les deux modèles. Pour compléter notre évaluation, nous avons évalué les performances des modèles à partir de la répartition spatiale de la différence entre les moyennes des niveaux d'ozone observés et simulés sur la période d'évaluation, de

leurs coefficients de corrélation et du rapport de leurs écart-types. Ces trois quantités ont été calculées pour tous les sites de mesure sélectionnés, puis nous avons procédé à leurs distributions dans cinq classes en fonction de leurs valeurs.

3.6.1 Répartition spatiale de la différence entre les moyennes observées et simulées

Le tableau 4 présente la distribution des différences entre les moyennes simulées et observées sur chaque site de mesure. Cette analyse nous montre que les simulations de CHRONOS ont surestimé les moyennes d’ozone de 5 ppb et plus sur un plus grand nombre de site que celles d’AURAMS. Plus précisément, 20% des 607 sites ont été surestimés de plus de 15 ppb et près de la moitié des sites ont été surestimés de 5 à 15 ppb, alors que 28% des stations de mesure ont été correctement simulés à plus ou moins 5 ppb près.

Tableau 4 : Distribution des différences entre les moyennes simulée et observée sur chaque site.

	$\Delta = C_{\text{Sim(moyen)}} - C_{\text{Obs(moyen)}}$				
	$\Delta < -15$	$-15 \leq \Delta < -5$	$-5 \leq \Delta < 5$	$5 \leq \Delta < 15$	$\Delta \geq 15$
CHRONOS	0,2%	2,3%	27,8%	49,3%	20,4%
AURAMS V0	0,8%	9,6%	44,3%	40,5%	4,8%

Les simulations produites par AURAMS présentent de meilleurs résultats. Les moyennes de plus de 44% des sites ont été correctement reproduites et près de 40% des sites ont été surestimés de 5 à 15 ppb. Nous remarquons cependant que les moyennes de 10% des sites ont été sous estimées de 5 à 15 ppb.

Les figures 49 et 50 illustrent la répartition spatiale de cette différence de moyenne produite par chaque modèle. Ainsi, Nous constatons que la répartition de cette différence produite par CHRONOS (figure 49) est influencée par la géographie du continent. Ainsi, les sites, où les surestimations sont les plus importantes (>15 ppb), sont essentiellement regroupées sur un domaine qui couvre la chaîne des Appalaches, ainsi que son versant occidental. Ce domaine est encerclé par les sites où les surestimations sont comprises entre 5 et 15 ppb et nous

retrouvons les sites où les différences sont les moins significatives sur des secteurs périphériques qui couvrent l'ouest du Mississippi et la péninsule floridienne.

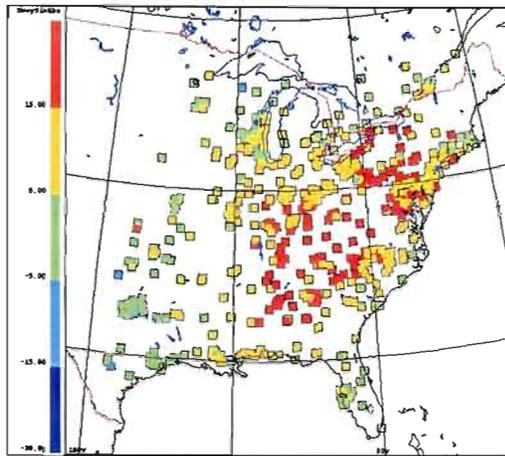


Figure 49 : Répartition spatiale de la différence entre les moyennes des niveaux horaires d'ozone simulés par CHRONOS et observés.

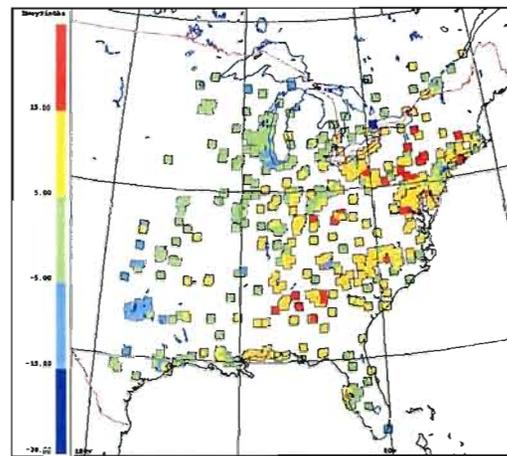


Figure 50 : Répartition spatiale de la différence entre les moyennes des niveaux horaires d'ozone simulés par AURAMS et observés.

La figure 50 présente la même analyse réalisée sur les niveaux d'ozone simulés par AURAMS. Nous remarquons que sur l'ensemble du domaine de simulation les surestimations de plus de 15 ppb n'ont pas de liens géographiques prononcés. Ces surestimations restent toutefois incluses dans un secteur où les moyennes simulées sont généralement surestimées de 5 à 15 ppb par rapport à celles observées. Ce secteur est similaire à celui que nous avons identifié sur les simulations de CHRONOS. Les différences les moins significatives couvrent essentiellement le centre du continent américain. AURAMS a également sous estimé les moyennes des niveaux d'ozone sur des sites qui sont généralement situés dans les états du Texas et de l'Oklahoma, mais comme le rappelle la figure 2, ils sont également au voisinage de la bordure de la grille d'AURAMS.

3.6.2 Répartition spatiale des coefficients de corrélation

Le tableau 5 présente la distribution des coefficients de corrélation qui ont été calculés, pour chaque site de mesure, entre les niveaux simulés par CHRONOS ou AURAMS et ceux observés. Nous rappelons que les moyennes des corrélations obtenues pour CHRONOS et AURAMS ont été respectivement de 0.71 et 0.66. Nous constatons que pour CHRONOS, les coefficients de corrélation de plus de la moitié des sites font partie de l'intervalle contenant la valeur moyenne et que presque 35% des sites ont obtenu des coefficients de corrélation plus élevés. Pour sa part, AURAMS produit une distribution où près des deux tiers des sites ont un coefficient de corrélation compris entre 0.60 et 0.75. La distribution des sites restant nous indique que ce modèle ne semble pas reproduire l'évolution des niveaux d'ozone de presque un site sur cinq.

Tableau 5 : Répartition des coefficients de corrélation calculés pour chaque site de mesure.

	C : Coefficient de corrélation				
	C<0.5	0.45<=C<0.6	0.6<=C<0.75	0.75<C<0.9	C>=0.9
CHRONOS	1,3%	5,4%	58,5%	34,8%	0,0%
AURAMS V0	6,6%	14,3%	62,4%	16,6%	0,0%

La répartition spatiale des coefficients de corrélation calculés pour chaque site de mesure entre les séries temporelles des niveaux horaires simulés par CHRONOS et ceux observés est présentée sur la figure 51. Nous rappelons que la moyenne spatiale de ces coefficients de corrélation est comprise dans l'intervalle [0.60 – 0.75 [qui correspond au vert de l'échelle de couleur. Une majorité des sites appartenant à cet intervalle sont localisés dans le quadrant nord-ouest du domaine d'évaluation qui recouvre la région des grands lacs et le sud de celle-ci. CHRONOS a également simulé des niveaux horaires qui présentent les coefficients de corrélation supérieurs et ceux-ci sont généralement distribués dans le sud du continent ainsi que dans le versant oriental du sud des Appalaches. Nous notons, toutefois que les coefficients de corrélation les plus faibles, qui représentent moins de 7% des sites de

mesures, sont généralement situés à l'ouest de la chaîne de Appalaches, et notamment dans la vallée de l'Ohio.

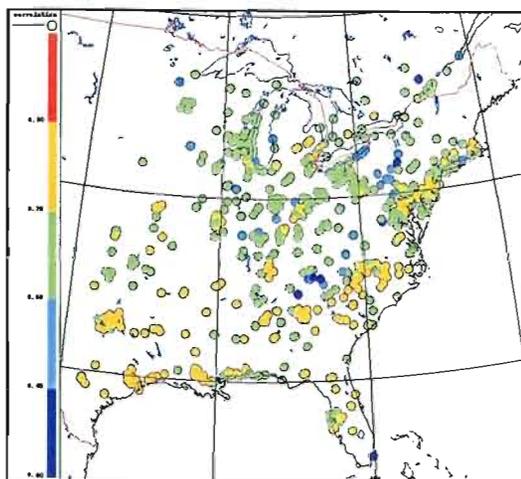


Figure 51 : Répartition spatiale du coefficient de corrélation entre les évolutions temporelles des niveaux horaires d'ozone simulés par CHRONOS et observés à chaque site de mesure.

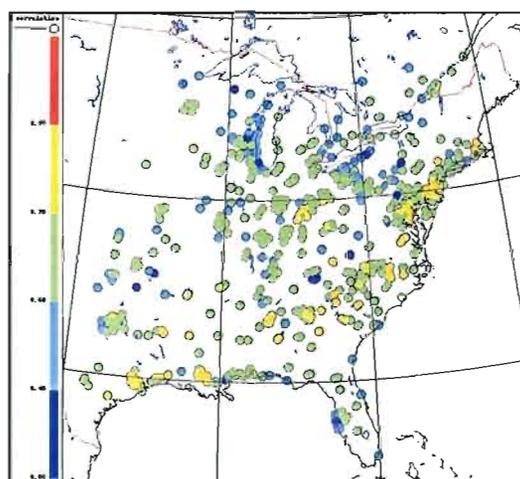


Figure 52 : Répartition spatiale du coefficient de corrélation entre les évolutions temporelles des niveaux horaires d'ozone simulés par AURAMS et observés sur chaque site de mesure.

La même analyse réalisée sur les simulations d'AURAMS est présentée sur la figure 52. Les sites compris dans l'intervalle $[0.60 - 0.75[$ sont répartis dans l'ensemble du domaine d'évaluation alors que les sites présentant de meilleures corrélation ($[0.75 - 0.90[$) sont essentiellement sur le versant est de la chaîne des Appalaches et le long du golfe du Mexique. Finalement, les intervalles regroupant les coefficients de corrélation inférieurs à 0.60 s'observent sur les sites qui sont regroupées dans la vallée de l'Ohio, en bordure des lacs Michigan et Érié, sur la côte ouest de la Floride, où la résolution de la grille du modèle pourrait ne pas être assez fine, ainsi que dans quelques régions limitrophes de la frontière occidentale de la grille du modèle.

3.6.3 Répartition spatiale du rapport des écart-types

Le tableau 6 présente la distribution des rapports des écart-types des niveaux horaires d'ozone observés et simulés pour chaque site de mesure.

Tableau 6 : Distribution des rapports des écart-types calculés pour chaque site de mesure.

	$R = \sigma_{\text{Sim}} / \sigma_{\text{Obs}}$				
	$R < 0.5$	$0.5 \leq R < 0.9$	$0.9 \leq R < 1.1$	$1.1 \leq R < 1.5$	$R \geq 1.5$
CHRONOS	0,0%	0,2%	8,9%	55,7%	35,3%
AURAMS V0	0,3%	30,5%	35,7%	31,5%	2,0%

Nous remarquons que les simulations de CHRONOS surestiment la variation des niveaux d'ozone de 10% à plus de 50 % sur la majorité des sites de référence. Les variations des niveaux d'ozone simulés par AURAMS sont plus proches de la réalité pour un peu plus du tiers des sites de référence, sont sous estimées de plus de 10% pour le deuxième tiers et surestimées de plus de 10% pour le dernier tiers.

Les figures 53 et 54 présentent la répartition spatiale du rapport des écart-types des niveaux horaires d'ozone simulés, respectivement par CHRONOS et AURAMS, par rapport à ceux observés. Comme l'indique le tableau 3, la surestimation des écart-types de CHRONOS est observable sur l'ensemble du domaine d'évaluation (figure 53). Toutefois, les surestimations supérieures à 50% se retrouvent essentiellement dans les vallées du Mississippi, de l'Ohio et du Saint-Laurent ainsi que le long de la côte est américaine.

L'analyse réalisée sur les simulations d'AURAMS (figure 54) nous montre que l'essentiel des surestimations de plus de 10% sont cantonnées le long de la côte est. Les sous-estimations sont réparties sur le reste du domaine avec toutefois des regroupements significatifs dans les prairies centrales des États-Unis et le long de la chaîne des Appalaches.

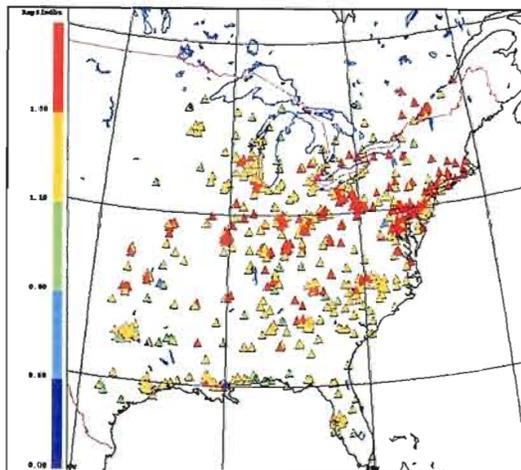


Figure 53 : Répartition spatiale du rapport des écart-types des niveaux horaires d'ozone simulés par CHRONOS et observés.

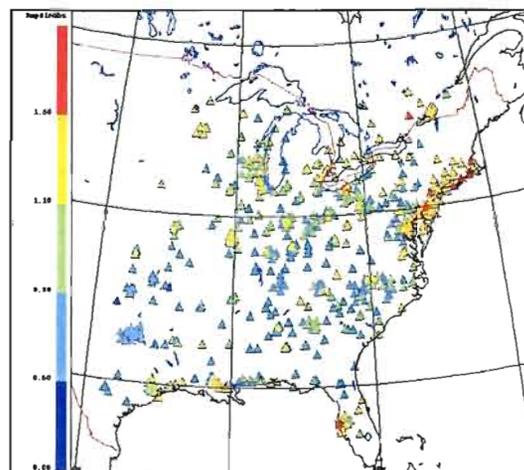


Figure 54 : Répartition spatiale du rapport des écart-types des niveaux horaires d'ozone simulés par AURAMS et observés.

Ces analyses spatiales nous ont permis de compléter l'évaluation des deux modèles et d'identifier des caractéristiques géographiques dans les écarts entre les simulations et les observations. Ainsi, la répartition de la différence des niveaux moyens d'ozone nous a montré d'une part que les surestimations de CHRONOS sont plus généralisées car elles sont observées sur un plus grand nombre de sites que celle d'AURAMS. Les surestimations des deux modèles couvrent cependant l'essentiel de la chaîne des Appalaches et ses deux versants. D'autre part, AURAMS a sous estimé les niveaux moyens de 10% des sites qui sont généralement situés aux abords de sa grille de calcul. La répartition des coefficients de corrélation nous a indiqué une certaine homogénéité de ceux-ci de la part des deux modèles. Toutefois, CHRONOS a généralement réalisé de meilleures performances qu'AURAMS pour ce paramètre. La moins bonne résolution de ce dernier semble influencer sa capacité à reproduire l'évolution des niveaux d'ozone dans les secteurs où les effets locaux sont importants. Finalement, la répartition spatiale du rapport des écart-types complète cette analyse en soulignant la surestimation généralisée des écart-types produits par CHRONOS. Les surestimations les plus importantes de ce modèle se retrouvent dans les vallées des trois grands fleuves présents

dans le domaine d'évaluation et le long de la côte est américaine. C'est dans ce dernier secteur qu'AURAMS a produit ses surestimations les plus importantes.

3.7 Discussion sur les conclusions des analyses

Pour évaluer les performances des deux modèles puis identifier une ou des signatures caractéristiques des différences de comportement entre les simulations et les observations, cinq analyses ont été effectuées à partir des niveaux horaires et des niveaux maximums horaires.

En termes de performances, il apparaît que les simulations de CHRONOS ont produit, durant la période d'évaluation, une répartition des niveaux horaires sensiblement différente de celle obtenue par les observations. Celles-ci surestiment, notamment, les occurrences où les rapports de mélanges sont supérieurs ou égaux à 65 ppb. L'analyse des écarts entre les niveaux horaires observés et simulés nous a indiqué que les niveaux inférieurs à 65 ppb sont généralement bien simulés avec toutefois une tendance à leurs surestimations de 5 ppb et plus. En revanche, les rapports de mélanges supérieurs à 65 ppb sont très régulièrement surestimés de plus de 15 ppb. L'analyse de la moyenne spatiale des maximums horaires nous a montré que pour tous les secteurs, les variations significatives des niveaux d'ozone influencées par le passage des systèmes synoptiques ont été capturées. Les coefficients de corrélations associés sont compris entre 0.75 et 0.87. Cependant, pour tous les secteurs, sauf la Floride, les amplitudes de la moyenne des maximums horaires (maxH) simulés ont été systématiquement supérieures de plus de 30% à celles observées, et ce, quelques soient les conditions météorologiques. Dans le cas particulier de la Floride, la moyenne des maxH simulés a été du même ordre de grandeur que celle provenant des observations. Cette particularité a pu être expliquée en partie par la climatologie des vents qui sont, à cette saison de l'année, principalement d'origine maritime ou océanique et qui advecteraient peu ou pas de polluants susceptibles d'influencer l'activité photochimique sur la péninsule. Grâce à la péninsule floridienne, nous retenons que le modèle est en mesure de produire des maxH semblables à ceux observés. La troisième analyse réalisée à partir de la moyenne spatiale des profils moyens journaliers, nous a indiqué que CHRONOS a reproduit, pour tous les secteurs,

les niveaux moyens nocturnes et matinaux. Cependant, et hormis pour la Floride, les niveaux diurnes ont été systématiquement surestimés de 30 à 50% sur tous les secteurs. Ces surestimations sont caractérisées par une évolution qui est corrélée au cycle solaire ainsi que par des taux de production matinale bien plus importants que ceux observés. Une fois de plus, la péninsule floridienne nous montre que CHRONOS est capable de reproduire les niveaux horaires d'ozone ainsi que les taux de production matinale observés. Cette nouvelle constatation nous suggère que les processus qui décrivent l'activité photochimique dans le modèle ne sont pas à l'origine des écarts observés sur les autres secteurs. Cette analyse nous a également mis en évidence la présence d'un comportement particulier des niveaux d'ozone simulés en début de soirée. Nous suspectons que ce comportement est associé à un effondrement prématuré de la couche de mélange simulé par GEM. Celle-ci contribue à surestimer les niveaux d'ozone en minimisant les taux de consommation. L'analyse du diagramme de Taylor appliqué aux niveaux horaires d'ozone simulés par CHRONOS, nous indique que les coefficients de corrélation et les écart-types pour chaque secteur varient respectivement autour d'une valeur moyenne de 0.71 et de 1.41. L'origine des écarts est attribuable à la surestimation de la variation des niveaux d'ozone simulés ainsi qu'à la corrélation moyenne entre les simulations et les observations. Cependant, il semble que la surestimation des écart-types semble être la cause majeure. Finalement, les analyses spatiales de la moyenne des niveaux horaires observés et simulés, de leur coefficient de corrélation et de leurs écart-types calculés sur la période d'évaluation nous ont permis de caractériser géographiquement les performances de CHRONOS. Il en est ressorti que les moyennes simulées sur 70% des sites de mesure ont été surestimées de plus de 5 ppb. Ces sites sont essentiellement groupés dans une région qui s'étend largement de part et d'autre de la chaîne des Appalaches. Nous avons également remarqué que les surestimations les plus importantes (≥ 15 ppb) couvrent cette chaîne montagneuse et son versant occidental. Les coefficients de corrélation de plus de 90% des stations sont supérieurs à 0.60. La majorité des sites dont le coefficient de corrélation est compris entre 0.60 et 0.75 sont répartis dans la région des grands lacs et au sud de celle-ci. Les sites qui ont présenté de meilleurs coefficients de corrélation sont disséminés sur le versant est de la chaîne des Appalaches ainsi que sur le sud du continent. Nous avons également constaté que près de 5% des sites ont obtenus des valeurs inférieures à 0.60 et se retrouvent répartis à l'ouest des Appalaches et notamment

dans la vallée de l'Ohio. Finalement, les écart-types des rapports de mélange horaires simulés ont été surestimés de plus 10% sur plus de 90% des sites de référence. Nous avons trouvé la majorité de ces sites dans les vallées des fleuves Mississippi, Ohio et Saint-Laurent ainsi que le long de la côte est américaine.

Pour sa part, AURAMS a produit des simulations qui ont reproduit la répartition des rapports de mélange horaires. L'analyse sur la distribution des écarts par classe de pollution nous a indiqué que les niveaux horaires inférieurs à 65 ppb sont généralement bien simulés, avec toutefois une légère tendance à la surestimation. Les niveaux horaires supérieurs à 65 ppb sont régulièrement surestimés de plus de 15 ppb. L'analyse sectorielle de la moyenne spatiale des maxH nous a montré que pour l'ensemble des secteurs, leurs variations significatives d'une journée à l'autre ont été correctement appréhendées par le modèle et les coefficients de corrélation associés de chaque secteur sont compris entre 0.49 et 0.78. Nous avons également remarqué que, pour tous les secteurs, l'amplitude de la moyenne des maxH simulés est généralement de l'ordre de celle des maxH observés. Nous avons toutefois constaté que le secteur de la Floride est légèrement dissocié des autres secteurs en présentant quelques valeurs légèrement inférieures à celles observés. Nous avons mis en évidence l'influence probable de la résolution horizontale de la grille d'AURAMS par une analyse qui montre que la valeur du point de grille est plus proche de la valeur moyenne obtenue à partir des maxH des sites présents dans la cellule concernée que des maxH de chaque site pris individuellement. L'analyse de la moyenne spatiale des profils moyens journaliers nous a permis de constater qu'AURAMS produit des niveaux nocturnes et matinaux du même ordre de grandeur que ceux observés. Ils sont toutefois systématiquement légèrement supérieurs et en écart relatif cela peut représenter des surestimations de 10 à 50%. Nous avons remarqué que ce modèle a surestimé les niveaux diurnes de 10% à 20% sur les trois secteurs qui bordent l'océan Atlantique, alors qu'il a reproduit ceux observés sur les secteurs du centre des États-Unis et de la Floride. Ces deux secteurs qui sont géographiquement différents partagent cependant une caractéristique commune du point de vue modélisation. Comme nous l'avons spécifié précédemment, la Floride n'a pas de source de pollution en amont qui pourrait influencer la photochimie sur ce secteur. Du point de vue modèle, le centre du continent n'a pas de source de pollution en amont car la frontière de la grille d'AURAMS est

proche et ne permet pas de prendre en compte les émissions qui sont plus à l'ouest de celle-ci et qui pourrait avoir une influence importante. Les évolutions des taux de production/consommation des cinq secteurs sont semblables à ceux qui ont été observées. Cette constatation nous suggère que la principale origine des surestimations ne vient pas de la description des processus de production d'ozone dans le modèle. À l'instar de CHRONOS, nous avons observé un décrochement des niveaux d'ozone simulés par rapport aux observations qui apparaît en début de soirée sur tous les secteurs. Ce décrochement, suspecté d'être provoqué par l'effondrement prématuré de la couche de mélange au profit de la couche nocturne stable, contribue à la surestimation des niveaux d'ozone en atténuant le taux de consommation. L'analyse du diagramme de Taylor appliqué aux niveaux horaires d'ozone simulés par AURAMS nous indique que les coefficients de corrélation et les écart-types pour chaque secteur sont regroupés respectivement autour d'une valeur moyenne de 0.66 et de 1.01. L'origine des écarts semble essentiellement attribuable à la corrélation moyenne entre les simulations et les observations. L'analyse des répartitions spatiales des moyennes simulées et observées, de leur coefficient de corrélation ainsi que de leurs écart-types calculées du 6 juillet au 31 août 2004 nous a permis d'évaluer la présence ou l'absence de différences géographiques dans les performances de ce modèle. Nous avons constaté que les moyennes simulées ont été surestimées de plus de 15 ppb sur seulement 5% des sites de référence. La répartition géographique de ces sites ne permet pas d'identifier une région particulière. Elles sont cependant toutes englobées dans une région où les moyennes ont été surestimées de 5 à 15 ppb et qui couvre la chaîne des Appalaches et ses abords immédiats. Les moyennes ont été correctement simulées pour 44% des sites que l'on retrouve répartis à la périphérie de la zone de surestimation et notamment à l'ouest de la région des grands lacs. Nous avons également remarqué que les moyennes ont été sous estimées pour presque 10% des sites que l'on retrouve majoritairement dans la région de Dallas (Texas). Les coefficients de corrélations de 62% des sites sont compris entre 0.60 et 0.75 et sont répartis sur l'ensemble du domaine. 17% des sites ont présenté des coefficients de corrélation de plus de 0.75 et couvre essentiellement le versant est des Appalaches. Les sites restants qui ont obtenu des corrélations inférieures à 0.60, sont regroupés en bordure des grands lacs, sur la côte ouest de la Floride ainsi qu'à proximité de la frontière ouest de la grille du modèle. Finalement, la quasi-totalité des sites de référence a été distribuée sur trois classes de rapports

des écart-types à proportion de un tiers des stations par classe. Nous avons remarqué que l'essentielle des stations où les écart-types ont été surestimés sont regroupées le long de la côte est américaine. Les deux autres classes se partagent le reste du domaine d'évaluation, cependant les écart-types simulés sur les sites présents aux abords de la limite ouest de la grille de simulation ont sous estimé les variations observées. En complément des analyses précédentes, cette dernière appuie les hypothèses suggérant, d'une part, l'influence des conditions imposées à la limite ouest de la grille d'AURAMS et d'autre part les limites fixées par la résolution horizontale à reproduire les effets locaux qui peuvent influencer les processus d'accumulation ou de dispersion des polluants.

Ces deux évaluations ont été réalisées en parallèles dans le but de caractériser les écarts entre les simulations et les observations. Pour aborder cette partie de la discussion, nous rappelons que les deux modèles possèdent les éléments communs suivants : le modèle météorologique GEM ainsi que l'essentiel des mécanismes en phase gazeuse de chimie atmosphérique d'ADOM II. Les processus d'advection de ces deux modèles de qualité de l'air reposent sur la formulation semi-lagrangienne proposée par *Pudykiewicz (1997)* et finalement, ils utilisent les mêmes données d'émissions anthropiques. Un des intérêts de l'intercomparaison réside dans les différences qui existent, entre autre, dans la représentation des émissions biogéniques et des caractéristiques géométriques des deux grilles. L'insertion des mécanismes de CAM, relatifs aux aérosols et aux réactions hétérogènes, dans AURAMS concerne plus particulièrement les particules et devrait donc avoir peu d'influence sur la simulation des niveaux d'ozone. L'analyse du diagramme de Taylor nous a permis de cerner une caractéristique des écarts, en termes de coefficient de corrélation et d'écart-type normalisé. En effet, ce diagramme nous a suggéré que :

Les éléments communs aux deux modèles sont à l'origine de la similarité des coefficients de corrélation et de la répartition géométrique des quatre points qui représentent tous les secteurs autres que la Floride. Les analyses précédemment réalisées nous ont permis de mettre en évidence l'influence notable du modèle météorologique GEM sur les évolutions horaires et quotidiennes des rapports de mélange d'ozone. L'analyse sur les profils moyens journaliers

nous a cependant montré que GEM pourrait être impliqué dans la surestimation des niveaux horaires d'ozone de début de soirée en simulant un effondrement prématuré de la couche de mélange.

Les différences notables qui ont été constatées entre les écart-types normalisés de CHRONOS et ceux d'AURAMS semblent être imputables aux éléments distincts. L'analyse des profils moyens journaliers de CHRONOS nous a fourni des indices en montrant la nature cyclique de la variation des écarts, sa forte corrélation avec l'ensoleillement et en précisant la période de la journée pour laquelle les taux de production sont surestimés.

Le cas particulier de la péninsule floridienne nous a indiqué que CHRONOS a réalisé sa meilleure performance sur ce secteur, en présentant le meilleur de ses écart-types normalisés et AURAMS sa plus mauvaise, en présentant le plus faible de ses coefficients de corrélation. Ce secteur nous a permis de voir d'une part que les formulations des deux CTM étaient en mesure de reproduire le cycle quotidien de l'ozone observé si les sources de pollution situées en amont ont une influence négligeable. Les surestimations observées sur les autres secteurs ne semblent pas être imputables aux CTM. D'autre part, cette étroite péninsule a également illustré l'influence que peut avoir la résolution horizontale d'un modèle sur les performances de ses simulations. Nous avons montré que les niveaux d'ozone calculés dans une cellule pourraient être comparés à des sites de mesure, inclus dans la cellule, qui ont observé des niveaux d'ozone sensiblement différents en raison de leur typologie ou d'effets locaux qui ne peuvent pas être pris en compte dans le modèle. Les faibles coefficients de corrélation entre les simulations d'AURAMS et les observations que nous avons observées sur les sites de référence localisés en bordure des grands lacs semblent appuyer cette caractéristique.

L'influence des dimensions de la grille d'AURAMS nous a également été suggérée à deux reprises. La version d'AURAMS que nous avons utilisé possède une grille qui couvre la moitié est du continent nord américain. Cette caractéristique interdit au modèle de prendre en considération les émissions situées dans la moitié ouest du continent américain. Elle s'est traduite, sur le secteur du centre du continent par une meilleure représentation des niveaux d'ozone en matinée mais également par une nette sous estimation des valeurs moyennes et

des écarts types ainsi que par des coefficients de corrélation des niveaux maximums généralement plus faibles.

Finalement, l'analyse spatiale des trois valeurs statistiques nous a montré que les écarts ne sont pas homogènes sur l'ensemble du domaine d'évaluation. Nous avons par ailleurs identifié une région plus ou moins vaste, dépendamment des modèles, qui couvre la chaîne des Appalaches et son versant occidental où les moyennes d'ozone ont été surestimées. Cette caractéristique spatiale souligne l'influence que pourrait avoir la description géographique des émissions sur les niveaux d'ozone simulés.

CHAPITRE 4

ANALYSE DE SENSIBILITÉ AUX ÉMISSIONS DE SURFACE

4.1 Mise en contexte

Au cours de l'été 2004, une campagne de mesure intensive a été organisée et coordonnée par un organisme spécifiquement créé par plusieurs institutions américaines, canadiennes et européennes : l'International Consortium for Atmospheric Research on Transport and Transformation (ICARTT 2004). Les objectifs de la campagne étaient de caractériser :

- La qualité de l'air dans la partie est de l'Amérique du nord;
- Le transport intercontinental de l'Amérique du nord vers le nord de l'Europe;
- Les effets de la pollution atmosphérique sur le bilan radiatif

Dans ce cadre international, les objectifs scientifiques des activités prévues par Environnement Canada visaient à étudier les interactions des gaz à l'état de traces et des aérosols dans les nuages, ainsi que sur le transport de la pollution dans les provinces maritimes.

Cette étude a créé une opportunité intéressante pour procéder à une intercomparaison de modèles de prévision de qualité de l'air. Les performances en temps réel de CHRONOS, d'AURAMS et de cinq modèles américains ont ainsi fait l'objet d'évaluations comparatives. Dans le cadre de cet exercice, une prévision d'ensemble de qualité de l'air, calculée à partir des simulations des sept modèles, a aussi été étudiée et évaluée. Les résultats présentés par *McKeen et al. (2005)* ont montré que tous les modèles impliqués dans l'intercomparaison ont présenté des résultats similaires au niveau de la répartition spatiale des coefficients de corrélation, pour les séries temporelles des maximums journaliers des moyennes, horaire et mobile sur 8 heures (des niveaux d'ozone observés et simulés).

Dans cette étude, les surestimations et les coefficients de corrélation entre les niveaux maximums observés et simulés par les deux modèles canadiens sont similaires à ceux que nous avons calculés. Les émissions anthropiques utilisées par AURAMS et CHRONOS étaient représentatives des années 1995 (Canada) et 1996 (USA) alors que trois des cinq modèles américains disposaient de données plus récentes (respectivement 2001 et 2004). De même, les émissions biogéniques définies dans les deux modèles canadiens n'étaient pas basées sur les inventaires les plus récents.

Environnement Canada a mis en place une évaluation rétrospective des performances d'AURAMS avec les bases d'émissions anthropiques et biogéniques les plus récentes. Dans ce cadre, il nous fut proposé de réaliser de nouvelles simulations de l'été 2004 en remplaçant les émissions biogéniques calculées par BEIS 1 et 2 par ceux de BEIS 3.09, puis en changeant les émissions anthropiques par celles des inventaires de 2000 (Canada) et 2001 (USA). Dans le cadre de notre projet, ces tâches constituaient une suite logique car elles nous permettaient d'évaluer la sensibilité du modèle aux champs d'émissions, ce qui concordait avec les conclusions émises dans notre chapitre précédent.

4.2 Présentation des modifications

Dans la première simulation modifiée d'AURAMS (AURAMS V1), les émissions biogéniques calculées par le couple BEIS 1 et 2, décrit précédemment, ont été remplacées par celles issues de la version 0.9 de BEIS 3 (BEIS 3.09). Les modifications apportées permettent une représentation plus détaillée de la végétation sur le continent nord-américain, des ajustements des facteurs d'émissions et un remplacement de l'algorithme qui décrit l'influence du rayonnement solaire sur le feuillage. Les figures 55 à 58 présentent un aperçu des conséquences de ces modifications pour deux espèces chimiques liées à la production de l'ozone troposphérique.

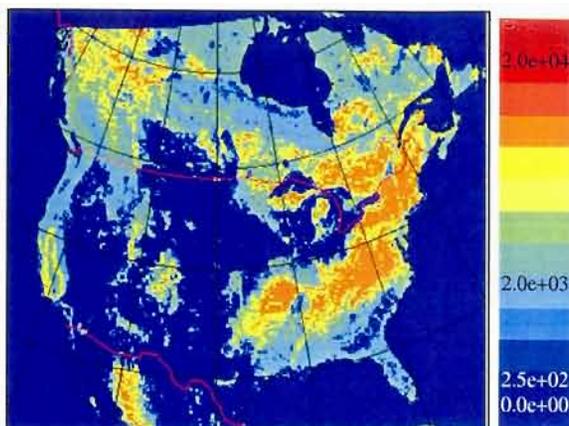


Figure 55 : Répartition des émissions d'isoprène ($\mu\text{g}/\text{m}^2/\text{hr}$) sur le continent nord américain, pour une température standard de 30°C et une insolation standard, obtenue à partir de BEIS2.

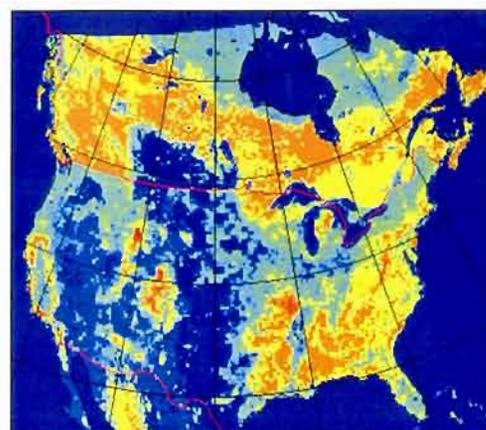


Figure 56 : Répartition des émissions d'isoprène ($\mu\text{g}/\text{m}^2/\text{hr}$) sur le continent nord américain, pour une température standard de 30°C et une insolation standard, obtenue à partir de BEIS3.

En comparant les figures 55 et 56, nous constatons que les modifications ont eu une influence significative sur les émissions biogéniques d'isoprène sur l'ensemble du continent et plus particulièrement sur le Canada et l'est des États-Unis. En effectuant la même analyse sur les graphiques 57 et 58, nous remarquons également une influence significative sur les émissions biogénique de NO dans les prairies canadiennes et le centre des États-Unis.

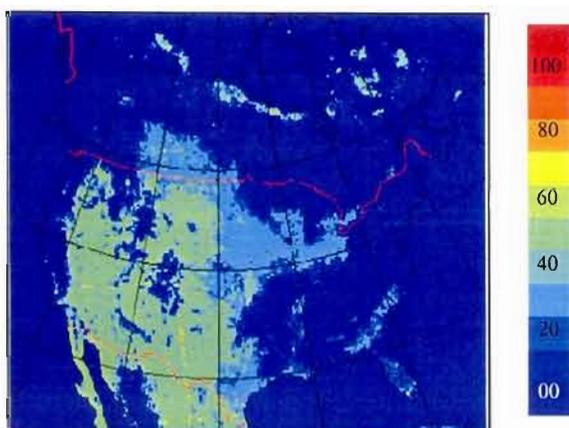


Figure 57 : Répartition sur le continent nord américain des émissions de NO ($\mu\text{g}/\text{m}^2/\text{hr}$), à partir du sol, obtenue à partir de BEIS2.

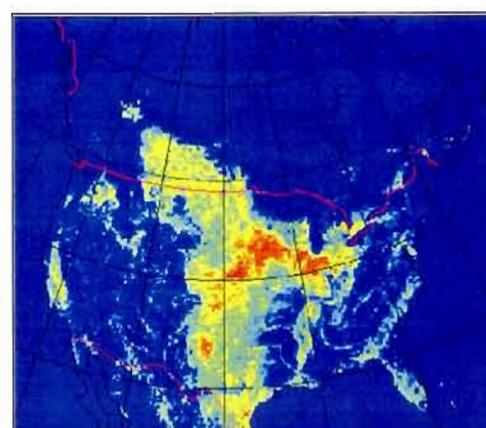


Figure 58 : Répartition sur le continent nord américain des émissions de NO ($\mu\text{g}/\text{m}^2/\text{hr}$), à partir du sol, obtenue à partir de BEIS3.

Dans la deuxième simulation modifiée d'AURAMS (AURAMS V2), en plus de l'utilisation de BEIS 3.09, les émissions anthropiques ont été remplacées par celles des inventaires canadien et américain de 2000 et 2001, respectivement. Le tableau 7 montre que les nouveaux inventaires ont relevé une diminution significative des émissions des polluants précurseurs d'ozone sur l'ensemble de l'Amérique du nord.

Tableau 7 : Résumé des émissions d'oxydes d'azote (NOx) et des composés organiques volatiles relevées par les autorités canadiennes et américaines pour les deux périodes de référence 1995/96 et 2000/2001. (Sources : Canada http://www.ec.gc.ca/pdb/cac/Emissions1990-2015/emissions_e.cfm - É-Unis <http://www.epa.gov/ttn/chief/trends/>)

	NOx (tonnes)		Écart relatifs	COV (tonnes)		Écart relatifs
	1995/96	2000/01		1995/96	2000/01	
États-Unis	22485712	19546403	-13.07%	18934954	15523905	-18.01%
Canada	2464158	2451441	-0.52%	2756224	2548845	-7.52%
Amérique du nord	24949870	21997844	-11.83%	21691178	18072750	-16.68%

4.3 Analyses des simulations de AURAMS V1 et AURAMS V2

La section suivante décrit les résultats des comparaisons entre les performances de la simulation originale d'AURAMS et celles d'AURAMS V1 et V2. À cette fin, nous utiliserons les mêmes analyses que celles utilisées dans le chapitre précédent.

4.3.1 Regard sur la répartition des niveaux horaires

Le tableau 8 présente la répartition des niveaux horaires obtenue à partir des trois simulations d'AURAMS. Nous rappelons que la répartition des niveaux d'ozone simulés par AURAMS était similaire à celle des observations.

Les rapports de mélanges simulés par AURAMS V1 et AURAMS V2 présentent des répartitions semblables. Elles sont cependant différentes de la version de référence et présente une surestimation des deux classes de pollution où les niveaux horaires sont supérieurs à 65 ppb. Ces répartitions sont plutôt semblables à celles obtenues par les rapports de mélange simulés par CHRONOS (cf. Tableau 2 : 82%, 11%, 7%). Le remplacement des émissions biogéniques par BEIS 3.09 semble être la modification responsable des répartitions par classe

de pollution produites par AURAMS V1 et V2. En revanche, l'actualisation des émissions anthropiques aurait peu d'impact sur ce type d'analyse.

Tableau 8 : Répartition des rapports de mélange horaires (c en ppb) simulés par les trois versions d'AURAMS

Statistiques sur les niveaux horaires	AURAMS	AURAMS V1	AURAMS V2
$c < 65$	94%	80%	79%
$65 \leq c < 82$	5%	13%	13%
$c \geq 82$	1%	7%	8%

AURAMS V1 et AURAMS V2 présentent des répartitions sensiblement différentes à la version originale d'AURAMS en surévaluant les classes de pollution représentatives des épisodes favorables à l'accumulation des polluants. Les nouvelles émissions biogéniques (BEIS 3.09) semble en être la cause principale.

4.3.2 Analyse de la distribution des écarts par classe de pollution

Les figures 59 et 60 présentent les distributions des écarts par classes de pollution simulées, déterminées pour l'ensemble du domaine d'évaluation à partir des données respectivement produites par AURAMS V1 et AURAMS V2.

Pour la classe de pollution des niveaux inférieurs à 65 ppb, AURAMS V1 reproduit assez régulièrement les rapports de mélange observés (figure 55). En effet dans 57% des cas, les écarts absolus sont inférieurs à 15 ppb (représentés par les colonnes cyan, verte et jaune) et 22% présentent des écarts absolus inférieurs à 5 ppb (colonne verte). Cependant, l'enveloppe de cette classe de pollution est centrée sur les deux catégories qui représentent les écarts compris entre -5 et 15 ppb (colonne verte et colonne jaune). Comparativement à la distribution obtenue par la version de référence (figure 16), pour cette classe de pollution, AURAMS V1 surestime les niveaux d'ozone de plus de 15 ppb (colonne rouge) une fois et demie plus souvent (36% au lieu de 22%).

Nous observons également qu'AURAMS V1 surestime les deux autres classes de pollution plus fréquemment que la version originale. Pour ces deux classes, les rapports de mélanges sont supérieurs de plus de 15 ppb (colonne rouge) plus de 78% du temps et de plus de 5 ppb (colonne jaune et colonne rouge) plus de 92% du temps. Ces nouvelles distributions des écarts par classes de pollution sont liées à la modification effectuée sur les émissions biogéniques.

La même analyse pour AURAMS V2 (figure 60) nous montre que les niveaux inférieurs à 65 ppb sont correctement simulés (les écarts absolus sont inférieurs à 15 ppb) dans 55% des cas et bien simulés (< 5 ppb) dans 21% des cas. Nous notons qu'AURAMS V2 surestime les niveaux inférieurs à 65 ppb de plus de 15 ppb dans 36% des cas également. L'enveloppe de cette classe de pollution est semblable à celle observée pour AURAMS V1.

Pour les classes où les niveaux de pollution sont supérieurs à 65 ppb et 82 ppb, les écarts de plus de 15 ppb représentent plus de 90% des cas. Il semble que l'actualisation des émissions anthropiques n'a pas eu d'influence notable dans cette analyse par rapport à l'influence associée aux nouvelles émissions biogéniques.

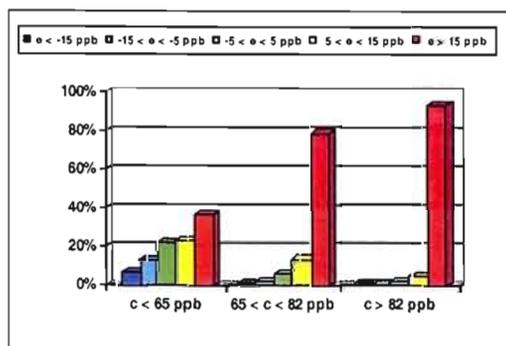


Figure 59 : Distribution des écarts de pollution sur l'ensemble du domaine produit par AURAMS V1.

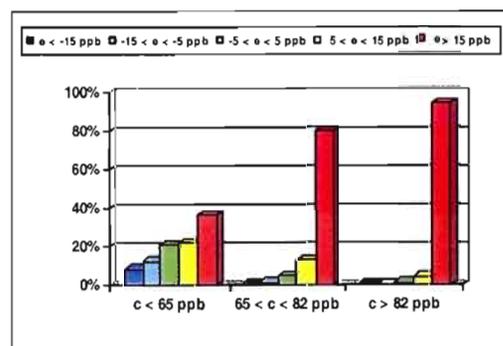


Figure 60 : Distribution des écarts de pollution sur l'ensemble du domaine produit par AURAMS V2.

Cette analyse nous a montré qu'AURAMS V1 et V2 n'ont pas reproduit la répartition des niveaux d'ozone dans les classes de pollution alors que la simulation originale présentait une répartition adéquate. Cette analyse nous a précisé que bien qu'AURAMS

V1 et AURAMS V2 aient régulièrement reproduit les niveaux de pollution inférieurs à 65 ppb, ils présentent également une tendance à les surestimer plus souvent que la version originale. La surestimation des niveaux de pollution supérieurs à 65 et 82 ppb est systématique de la part des deux versions. À ce stade de l'analyse, nous pouvons déjà supposer que les modifications apportées aux émissions biogéniques ont fortement dégradées les performances générales d'AURAMS alors que la mise à jour des émissions anthropiques aurait eu peu d'influence sur cette analyse.

4.3.3 Analyse de l'évolution temporelle des maximums horaires

La figure 61 présente l'évolution temporelle de la moyenne spatiale, sur le secteur nord-est du continent, des niveaux maximums horaires qui ont été obtenues par les trois simulations d'AURAMS.

Globalement, nous observons d'une part que les trois évolutions sont fortement corrélées. Les coefficients de corrélation d'AURAMS V1 et V2 par rapport à la version originale sont respectivement de 0,97 et 0,95. D'autre part, les deux versions modifiées ont systématiquement surestimé la moyenne spatiale des niveaux maximums horaires. Les biais normalisés sont de 30%.

Les figures 62 à 65 illustrent la même analyse pour les quatre autres secteurs. Pour tous les secteurs, les coefficients de corrélation d'AURAMS V1 et AURAMS V2 par rapport à la simulation originale sont supérieurs à 0,93 et les biais normalisés sont compris entre 20% et 30%. AURAMS V2 présente des biais normalisés supérieurs de 8% en moyenne à ceux d'AURAMS V1 sur tous les secteurs hormis le secteur de l'atlantique sud où les biais normalisés des deux versions sont similaires.

Cette analyse nous a montré que les deux versions modifiées d'AURAMS reproduisent généralement les mêmes variations de la moyenne des niveaux maximum en fonction des forçages synoptiques que celles obtenues par le modèle de référence. Cependant les moyennes des maximums horaires sont en général surestimées de 20% à 30% par rapport à ceux calculés par la version originale d'AURAMS. Ces surestimations sont majoritairement attribuables aux nouvelles émissions biogéniques.

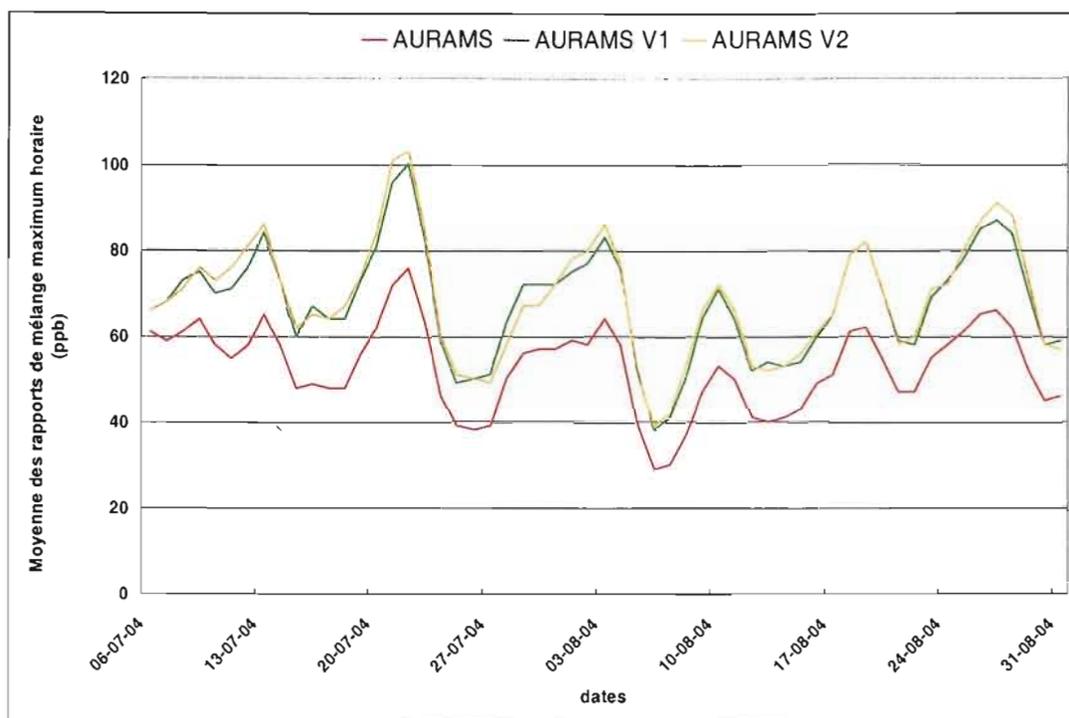


Figure 61 : Évolution temporelle de la moyenne, sur le secteur nord-est du continent, des rapports de mélanges horaires maximums simulés par les trois versions d'AURAMS.

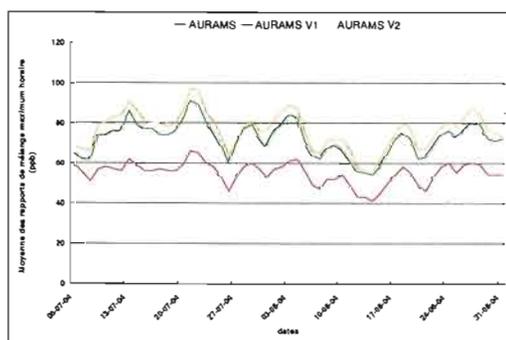


Figure 62 : Évolution temporelle de la moyenne, sur le secteur centre du continent, des rapports de mélanges horaires maximums simulés par les trois versions d'AURAMS.

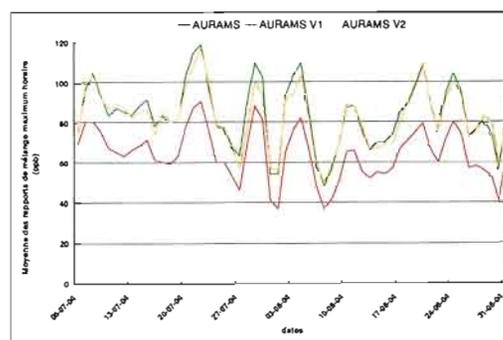


Figure 63 : Évolution temporelle de la moyenne, sur le secteur de l'atlantique sud, des rapports de mélanges horaires maximums simulés par les trois versions d'AURAMS.

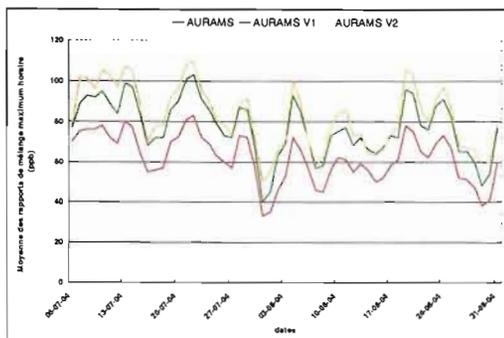


Figure 64 : Évolution temporelle de la moyenne, sur le secteur de l'atlantique nord, des rapports de mélanges horaires maximums simulés par les trois versions d'AURAMS.

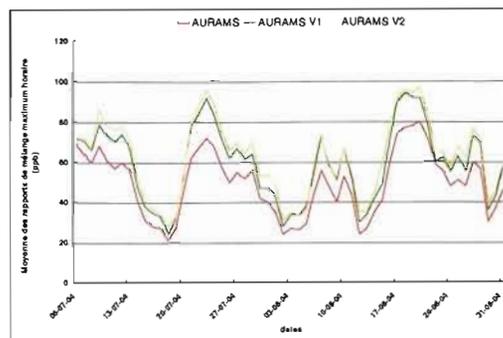


Figure 65 : Évolution temporelle de la moyenne, sur le secteur de la Floride, des rapports de mélanges horaires maximums simulés par les trois versions d'AURAMS.

4.3.4 Analyse des profils moyens journaliers de secteur (PMJS)

La figure 66 présente les PMJS obtenus par les trois simulations d'AURAMS sur le secteur nord-est du continent. Les deux simulations modifiées reproduisent la variation du niveau horaire moyen où les niveaux maximums sont atteints en milieu d'après-midi et les minimums en début de matinée. Cependant, tous les niveaux horaires moyens de la journée simulés AURAMS V1 et V2 surestiment ceux produits par la version originale d'AURAMS. Les surestimations de AURAMS V1 sont comprises entre 5 ppb, 7h (locale), et 15 ppb à 12h; Celles d'AURAMS V2 évoluent entre 4 ppb (5h), et 15 ppb (16h). Bien que les écarts entre les deux versions modifiées soient faibles, nous remarquons que les niveaux nocturnes, et de fin de soirée, simulés par AURAMS V1 sont supérieurs de quelques ppb à ceux d'AURAMS V2 alors que les niveaux diurnes sont similaires.

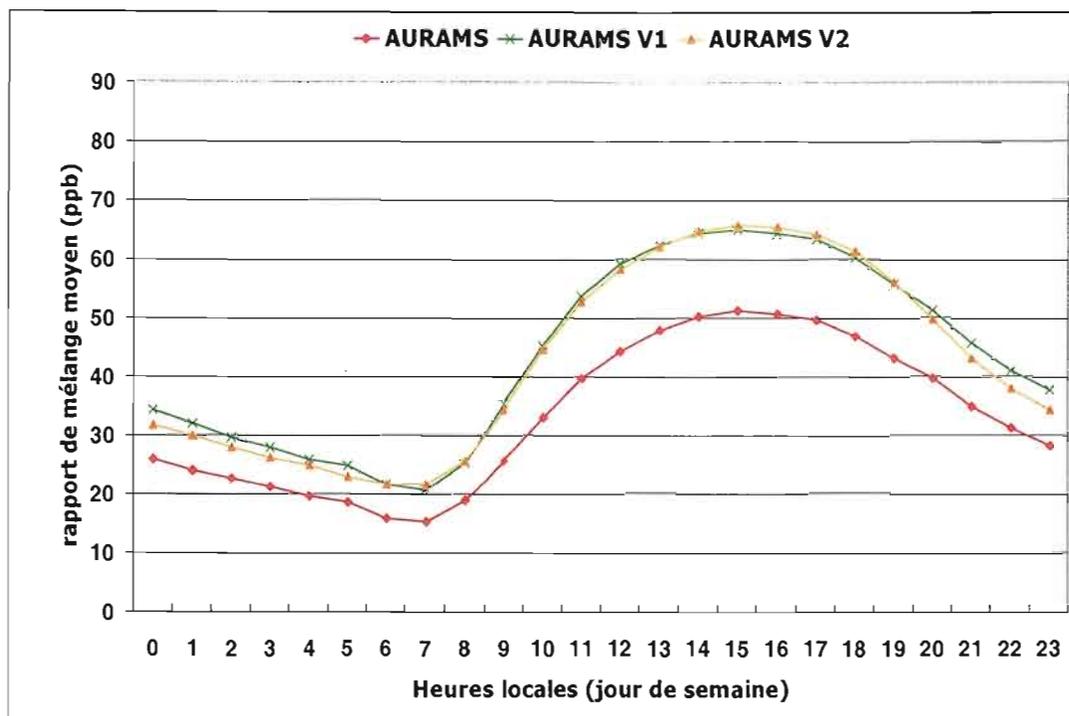


Figure 66 : Profils moyens journaliers calculés sur le secteur nord-est du continent (PMJS) à partir des rapports de mélange simulés par les trois versions D'AURAMS. Les typologies rurale, suburbaine et urbaine sont prises en compte.

Les PMJS des trois simulations d'AURAMS sur les quatre autres secteurs sont présentés par les figures 67 à 70. Ceux simulés par AURAMS V1 et V2 présentent, par rapport à la simulation de référence, les mêmes caractéristiques que celles décrites pour le secteur nord-est : elles reproduisent le cycle nyctémère mais surestiment systématiquement tous les niveaux horaires moyens. Les surestimations minimales sont obtenues en début de matinée et sont comprises entre 2 et 5 ppb. Les surestimations maximales apparaissent en mi-journée et sont dans un intervalle de 9 à 18 ppb. Nous constatons également que les niveaux nocturnes et de soirées simulés par AURAMS V2 sont généralement plus faibles que ceux d'AURAMS V1 alors que les niveaux diurnes obtenus par les deux simulations modifiées d'AURAMS sont généralement du même ordre de grandeur.

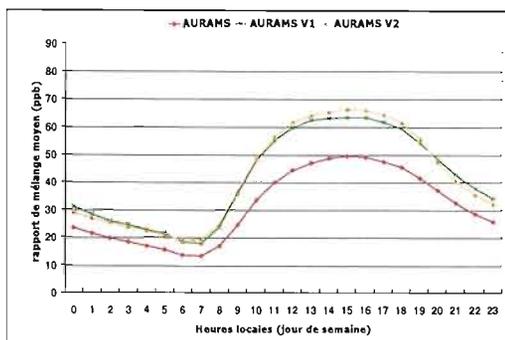


Figure 67 : PMJS du centre du continent à partir des rapports de mélange simulés par les trois versions d'AURAMS. Les typologies rurale, suburbaine et urbaine sont prises en compte.

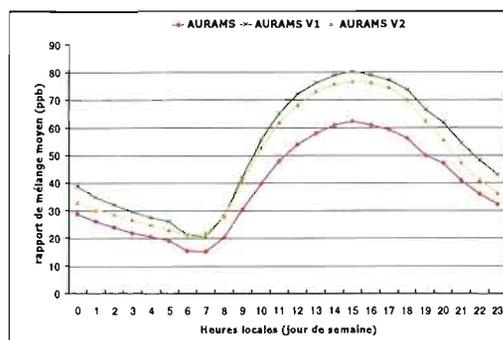


Figure 68 : PMJS de l'atlantique sud à partir des rapports de mélange simulés par les trois versions d'AURAMS. Les typologies rurale, suburbaine et urbaine sont prises en compte.

Il est intéressant de constater qu'en début de soirée, les niveaux simulés par AURAMS V2 se comportent différemment des deux autres versions d'AURAMS. Alors qu'AURAMS et AURAMS V1 présentent à 20h un palier que nous avons précédemment associé à la simulation de la transition entre la couche de mélange et la couche nocturne stable, AURAMS V2 simule une diminution plus progressive des niveaux d'ozone. Il semble que les modifications apportées aux émissions anthropiques ont influencé le comportement des niveaux d'ozone en début de soirée.

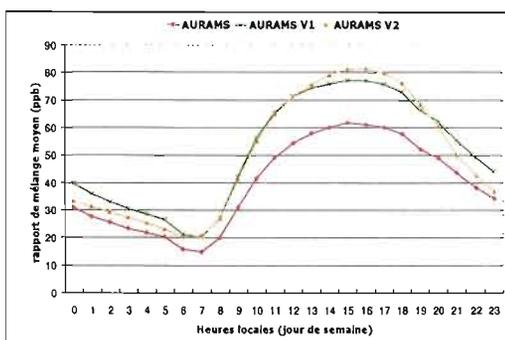


Figure 69 : PMJS de l'atlantique nord à partir des rapports de mélange simulés par les trois versions d'AURAMS. Les typologies rurale, suburbaine et urbaine sont prises en compte.

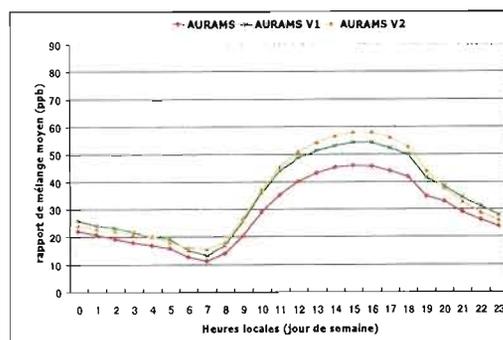


Figure 70 : PMJS de la Floride à partir des rapports de mélange simulés par les trois versions d'AURAMS. Les typologies rurale, suburbaine et urbaine sont prises en compte.

4.3.5 Caractérisation des taux de production/consommation moyens

La variation quotidienne des taux moyens de production/consommation simulés pour le secteur nord-est du continent est présentée sur la figure 71. Les trois simulations d'AURAMS présentent des taux moyens de production similaires, même durant la plage horaire qui correspond à l'activité photochimique. Les taux les plus élevés sont observés entre 8h et 11h et sont compris entre 20% et 40%. Les taux de consommation, simulés par les trois versions en dehors de la plage horaire d'ensoleillement, sont également semblables. Ceux-ci augmentent en fin d'après-midi et se stabilisent pour la nuit aux alentours de 10%. Les taux de consommation maximums (14%) apparaissent généralement à l'heure où les émissions sont contrôlées par le pic de trafic matinal.

Les différences que nous pouvons remarquer entre les simulations modifiées et celle de référence sont négligeables pour AURAMS V1 qui a produit une évolution quasi-identique à la version de référence, et remarquables pour AURAMS V2 qui a généralement reproduit les taux simulés de référence, à l'exception notamment de celui qui correspond aux émissions matinales et, dans une moindre mesure, celui associée à l'effondrement de la couche de mélange. Cette analyse nous montre que les trois simulations d'AURAMS ont produit des taux de production/consommation similaires indépendamment des émissions biogéniques fournies alors que les surestimations des niveaux horaires d'ozone qui ont été observées précédemment, en dépendaient. D'autre part, les nouvelles émissions anthropiques ont tendance à atténuer le taux de consommation associé aux émissions matinales des gaz précurseurs mais également celui associé à la formation prématurée de la couche nocturne stable. Ces particularités nous suggèreraient de premièrement vérifier si les émissions de NOx ont diminuées entre les inventaires de 1995-1996 et 2000-2001 puis deuxièmement d'évaluer son influence par rapport à celle qui pourrait être induite par la simulation de la couche limite par GEM.

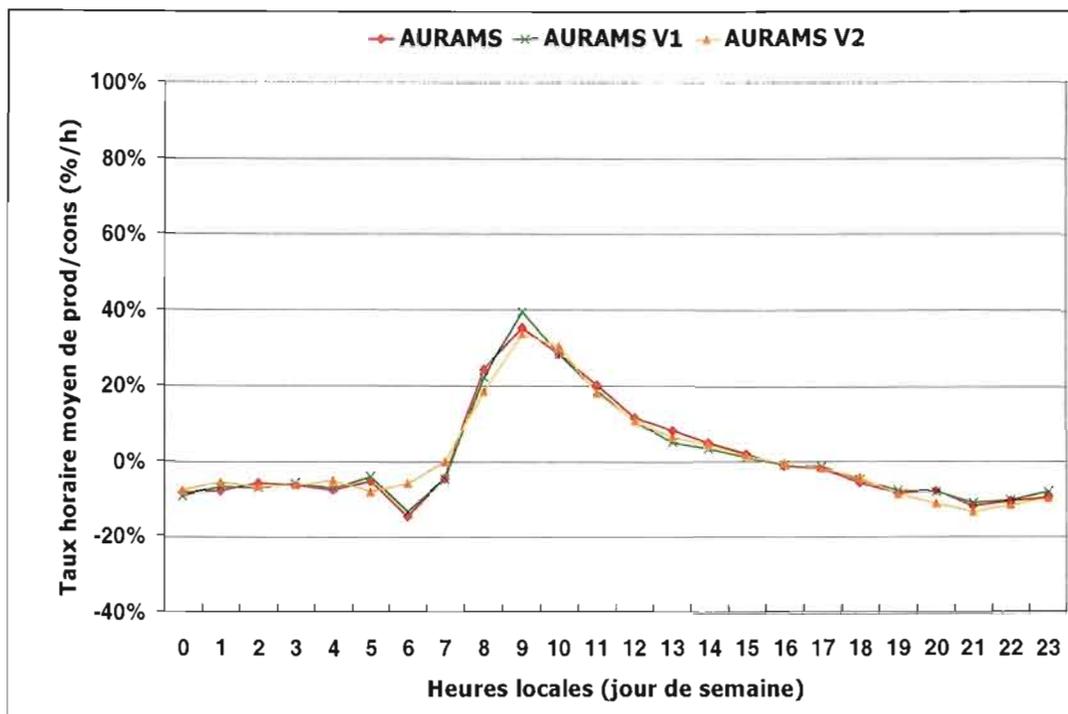


Figure 71 : PMJS du taux de production/consommation d'ozone simulés par les trois versions d'AURAMS sur le secteur nord-est du continent.

Les figures 72 à 75 présentent les évolutions du taux moyens de production/consommation des quatre autres secteurs. À l'instar des observations effectuées sur le secteur nord-est, les évolutions des taux de production/consommation moyens sur les quatre secteurs sont cohérentes entre elles. Elles reproduisent toutes les taux de production sur la même plage horaire. Les maximums sont observés à 9h et sont supérieurs à 45%. Il en est de même pour les taux de consommation et les maximums apparaissent généralement en début de matinée et sont de 15% à 20%.

Alors que AURAMS V1 produit pour les quatre secteurs des évolutions du taux de production/consommation similaires à celles de référence, celles obtenues pour AURAMS V2 sont sensiblement différentes à l'heure de pointe matinale, où les taux de consommation sont sous estimés par rapport à la simulation originale, et en début de soirée, où ils sont surestimés. L'influence liée aux processus qui décrivent la couche de mélange sur les taux de consommation reste cependant perceptible.

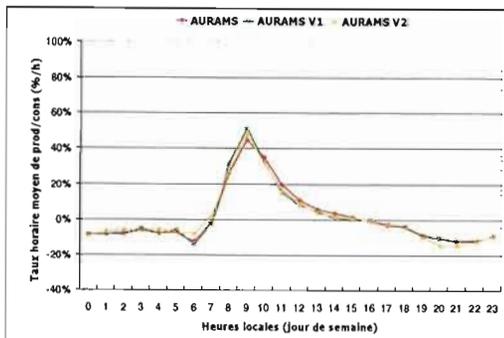


Figure 72 : PMJS du taux de production/consommation d'ozone simulés par les trois versions d'AURAMS sur le secteur du centre du continent.

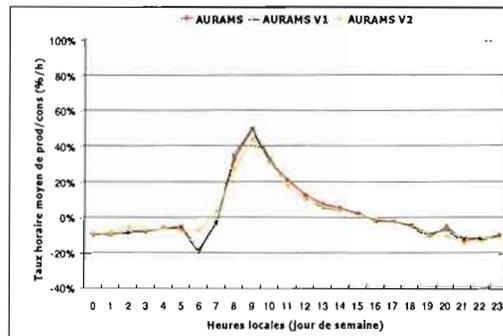


Figure 73 : PMJS du taux de production/consommation d'ozone simulés par les trois versions d'AURAMS sur l'atlantique sud.

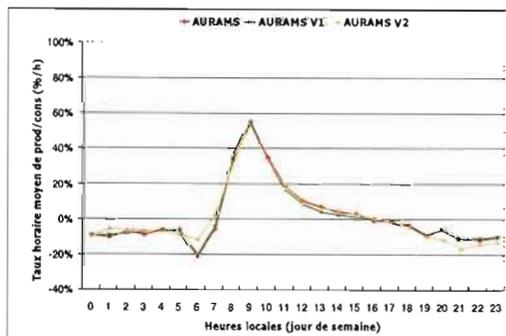


Figure 74 : PMJS du taux de production/consommation d'ozone simulés par les trois versions d'AURAMS sur l'atlantique nord.

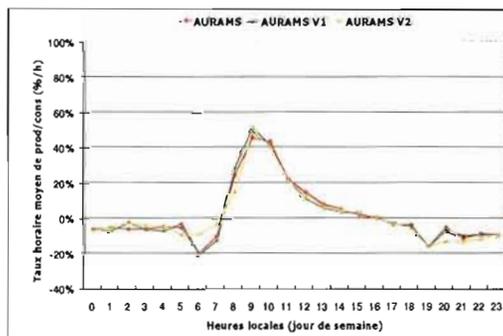


Figure 75 : PMJS du taux de production/consommation d'ozone simulés par les trois versions d'AURAMS sur la Floride.

L'analyse des PMJS nous a montré que les modifications apportées successivement à AURAMS ont sensiblement modifié les niveaux horaires moyens. Ceux-ci sont systématiquement surestimés de 7% à 44% en dehors de la plage photochimiques et de 17% à 48% dans cette plage. Les modifications apportées aux émissions biogéniques semblent être l'influence la plus importante sur ces surestimations. L'actualisation des émissions anthropiques semble avoir atténué les effets associés à l'effondrement prématuré de la couche de mélange sur les niveaux d'ozone. Une analyse identique sur

une simulation où seules les émissions anthropiques seraient modifiées compléterait avantageusement cette étude. L'analyse des taux de production/consommation nous a indiqué que les modifications apportées aux émissions biogéniques et anthropiques n'ont pas fortement dégradé l'évolution des taux de production/consommation. Cette constatation nous amène à supposer que la surestimation des niveaux moyens d'ozone est directement liée à la définition des émissions biogéniques. Celle-ci surestimerait les quantités réelles de polluants précurseurs d'ozone amenant ainsi le modèle à produire des simulations qui amplifieraient les niveaux d'ozone. Les différences de comportement qui ont été observées avec AURAMS V2 ont, d'une part, minimisé les conséquences de l'effondrement de la couche de mélange bien que les effets soient encore visibles. Cette atténuation dans la consommation de l'ozone, observées en début de soirée permettrait d'expliquer les niveaux nocturnes plus faibles qui ont été observées dans les PMJS d'AURAMS V2. D'autre part, les taux de consommation matinale d'AURAMS V2 pourraient être liés à une diminution des émissions d'oxydes d'azote émis par le trafic automobile. Au regard des autres possibilités mentionnées précédemment, cette hypothèse reste à vérifier.

4.4 Analyse des simulations des trois versions d'AURAMS par rapport aux observations

4.4.1 Analyse du diagramme de Taylor

La figure 76 présente les performances des trois simulations d'AURAMS pour chaque secteur par rapport aux observations. Les indices de 1 à 5 représentent respectivement le nord-est du continent, le centre du continent, les secteurs de l'atlantique sud et nord et finalement la péninsule floridienne. Nous rappelons que le nuage de points rouges correspondant aux performances de la simulation de référence d'AURAMS et que les secteurs présentent des coefficients de corrélation compris entre 0,6 et 0,72 et des écart-types normalisés compris dans un intervalle de 0,92 à 1,18. Les nuages de points de couleurs vert et orange présentent respectivement les performances d'AURAMS V1 et d'AURAMS V2, pour chaque secteur. Les coefficients de corrélation pour ces deux simulations sont regroupés dans

le même intervalle que celle de référence. Cependant, les écart-types normalisés sont compris entre 1,21 et 1,5 pour la première version modifiée et entre 1.28 et 1.52 pour la deuxième.

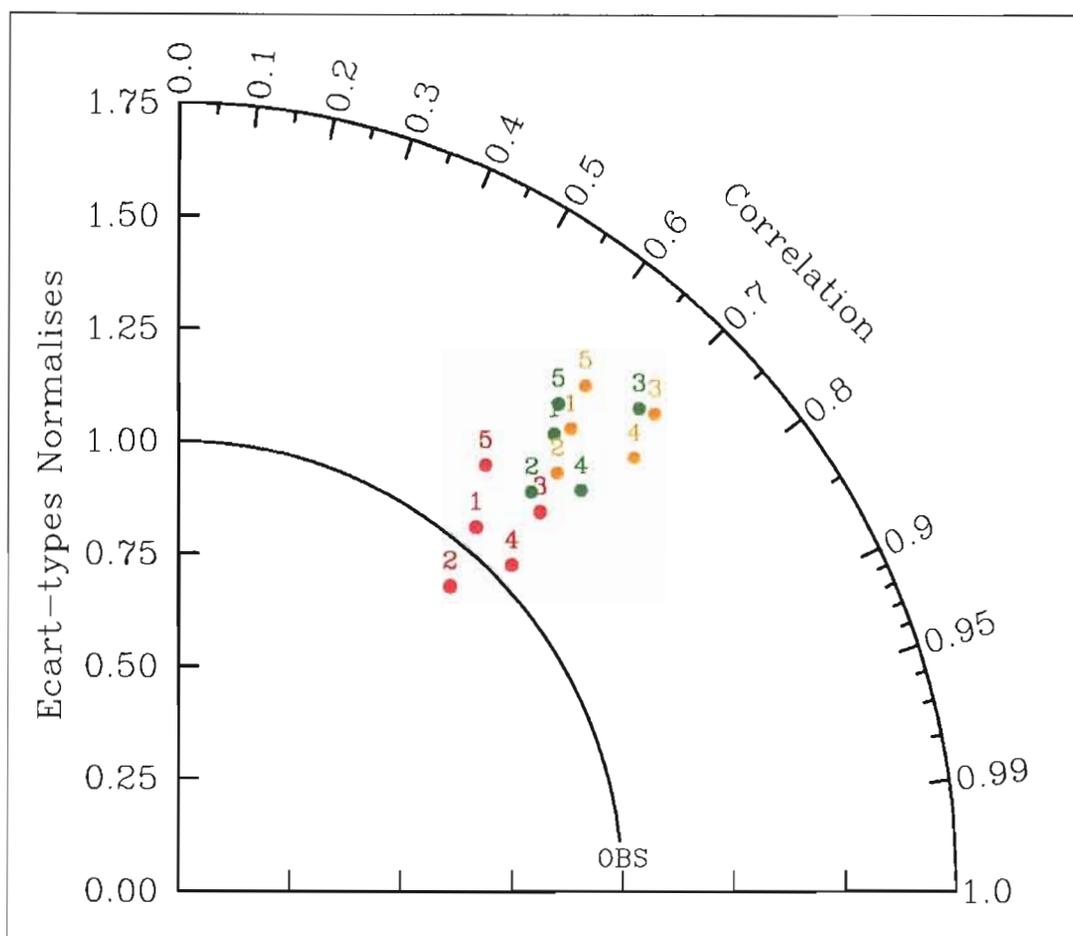


Figure 76 : Diagramme de Taylor regroupant les secteurs d'analyse. Les typologies rurale, suburbaine et urbaine sont prises en compte. Les performances par secteur d'AURAMS sont en rouge, d'AURAMS V1 en vert et d'AURAMS V2 en orange.

Les changements apportés aux émissions biogéniques et anthropiques n'ont aucune influence sur la corrélation entre les niveaux horaires d'ozone observés et simulés par les trois simulations d'AURAMS. Elles ont eu en revanche un impact notable sur les écarts types et sur la distribution des nuages de points. Il apparaît, d'une part que l'amplitude des niveaux

d'ozone simulés est en grande partie dépendante de la description des émissions et d'autre part, que les coefficients de corrélation sont liés aux processus qui décrivent les conditions météorologiques régissant les activités chimiques et photochimiques dans la troposphère.

L'étude du diagramme de Taylor nous a montré d'une part que l'utilisation de champs d'émissions modifiés a sensiblement dégradé les performances du modèle. Ces dégradations s'appliquent essentiellement sur l'amplitude des écart-types normalisés. D'autre part, cette analyse nous a permis d'associer définitivement l'amplitude des écart-types à la description des émissions et les coefficients de corrélations aux processus qui décrivent les conditions météorologiques et photochimiques.

4.4.2 Répartition spatiale de la différence entre les moyennes observées et simulées

Le tableau 9 présente la distribution des différences entre les moyennes simulées et observées pour chaque site de mesure. Nous remarquons que pour la première simulation modifiée près de la moitié des sites de surveillance présente des surestimations supérieures à 15 ppb et plus du tiers des sites ont des surestimations comprises dans l'intervalle [5 – 15[ppb. Seul 12,5% des sites de référence ont des différences peu significatives.

Tableau 9 : Distribution des différences entre les moyennes simulée et observée sur chaque site.

	$\Delta = C_{\text{Sim(moyen)}} - C_{\text{obs(moyen)}}$				
	$\Delta < -15$	$-15 \leq \Delta < -5$	$-5 \leq \Delta < 5$	$5 \leq \Delta < 15$	$\Delta \geq 15$
AURAMS V1	0%	1,5%	12,5%	39%	47%
AURAMS V2	1%	1,6%	11,5%	36,7%	49,1%

La figure 77 nous présente la répartition de la différence entre les niveaux moyens simulés par AURAMS V1 et observés pour chaque site de mesure du domaine d'évaluation. D'emblée, nous observons la surestimation des niveaux moyens associée à l'utilisation des émissions biogéniques provenant de BEIS 3.09 sur l'ensemble du continent nord américain, par rapport à la simulation originale d'AURAMS (figure 50). Bien que l'effet des nouvelles

émissions biogéniques est remarquable sur une majorité des sites de mesure, les surestimations les plus importantes sont réparties de part et d'autre de la chaîne des Appalaches, particulièrement dans les vallées de l'Ohio et du Mississippi ainsi que le long de la côte est des États-Unis.

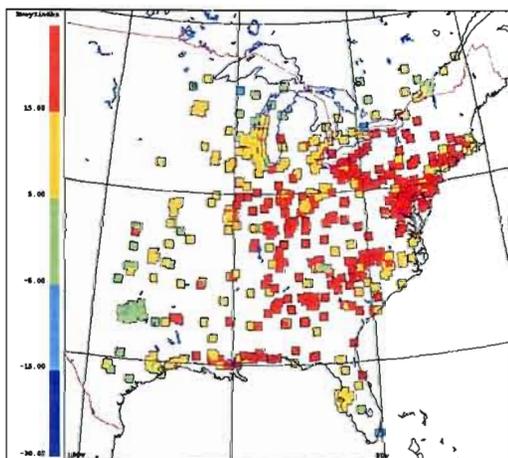


Figure 77 : Répartition spatiale de la différence entre les moyennes des niveaux horaires d'ozone simulées par AURAMS V1 et observées.

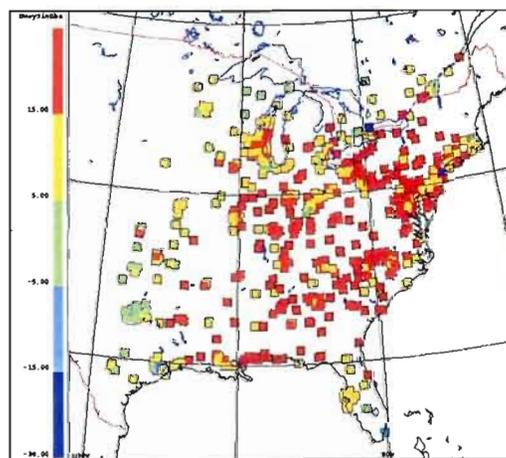


Figure 78 : Répartition spatiale de la différence entre les moyennes des niveaux horaires d'ozone simulées par AURAMS V2 et observées.

La même analyse pour AURAMS V2 est présentée sur la figure 78. Le tableau 9 nous montre que l'actualisation des émissions anthropiques n'a pas eu d'effet très important sur l'ensemble du domaine d'évaluation. Nous remarquons cependant qu'elle a eu un effet à l'échelle régionale, notamment le long de la côte est des USA, où les écarts ont légèrement diminué, et dans les grands pôles urbains où les surestimations se sont accentuées.

4.4.3 Répartition spatiale des coefficients de corrélation

Le tableau 10 illustre la distribution des coefficients de corrélation qui ont été calculés, pour chaque site de mesure, entre les niveaux simulés par AURAMS V1, AURAMS V2 et les observations.

Tableau 10 : Distribution des rapports des écart-types calculés pour chaque site de mesure

	C : Coefficient de corrélation				
	C<0.5	0.45<=C<0.6	0.6<=C<0.75	0.75<C<0.9	C>=0.9
AURAMS V1	3,5%	17,6%	63,9%	15,0%	0,0%
AURAMS V2	3,1%	16,3%	61,4%	19,1%	0,0%

À l'instar de la simulation originale, près de deux tiers des sites appartiennent à la classe [0.60 – 0.75] ppb. Les deux classes moyennes contiennent chacune 15 à 20 % des stations restantes. Les répartitions géographiques de cette variable sont présentées sur les figures 79 et 80 pour AURAMS V1 et V2 respectivement. Celles-ci sont quasi identiques à la répartition obtenue pour la simulation originale d'AURAMS (figure 53). Les changements associés aux émissions biogéniques et anthropiques n'ont pas eu d'impact majeur sur les valeurs de cette variable statistique et sur sa distribution géographique.

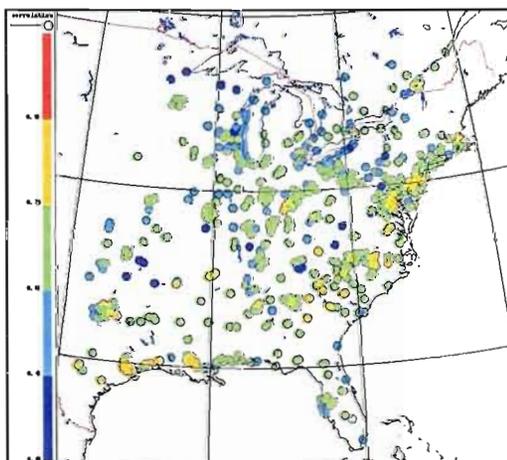


Figure 79 : Répartition spatiale du coefficient de corrélation entre les évolutions temporelles des niveaux horaires d'ozone simulées par AURAMS V1 et observées sur chaque site de mesure.

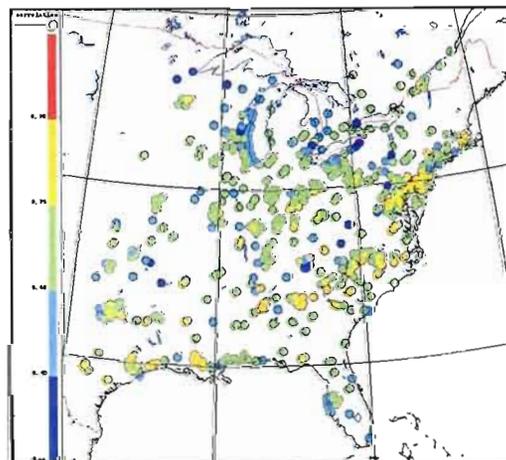


Figure 80 : Répartition spatiale du coefficient de corrélation entre les évolutions temporelles des niveaux horaires d'ozone simulées par AURAMS V2 et observées sur chaque site de mesure.

4.4.4 Répartition spatiale du rapport des écart-types

L'analyse des écart-types (tableau 11) nous indique que pour les deux simulations modifiées, la variation des niveaux horaires d'ozone est surestimée pour plus de 70% des stations de référence. AURAMS V1 et AURAMS V2 ont respectivement reproduit les variations de seulement 19% et 15% des sites de mesure alors que la simulation originale les reproduisait dans plus de 35% des cas.

Tableau 11: Distribution des rapports des écart-types calculés pour chaque site de mesure

	$R = \sigma_{\text{Sim}} / \sigma_{\text{Obs}}$				
	$R < 0.5$	$0.5 \leq R < 0.9$	$0.9 \leq R < 1.1$	$1.1 \leq R < 1.5$	$R \geq 1.5$
AURAMS V1	0,0%	9,9%	18,8%	45,0%	26,4%
AURAMS V2	0,0%	7,9%	14,7%	46,3%	31,1%

Les répartitions spatiales du rapport des écart-types pour AURAMS V1 et V2 sont respectivement présentées par les figures 81 et 82. Comparativement à la figure 54, les rapports des écart-types sont généralement surestimés sur l'ensemble du domaine et plus particulièrement le long de la côte est américaine ainsi que sur la périphérie de la région des grands lacs. Les régions du centre des États-Unis, qui sont limitrophes à la limite de la grille d'AURAMS semblent légèrement moins influencées par l'utilisation des nouvelles données d'émissions.

L'actualisation des émissions anthropiques n'a pas, pour ce paramètre, d'influence particulière sur l'ensemble du domaine d'évaluation.

Ces analyses spatiales nous ont permis de voir les effets qu'ont produit la réactualisation des émissions biogéniques et anthropiques. Comme nous pouvions nous y attendre à partir des analyses précédentes, la surestimation des niveaux d'ozone est notable sur l'ensemble des sites de référence. Nous constatons également que les surestimations les plus importantes sur la moyenne des niveaux d'ozone sont directement associées aux nouvelles émissions biogéniques. Elles ne sont cependant pas

homogènes sur l'ensemble du domaine d'évaluation. C'est une nouvelle fois la chaîne des Appalaches et ses versants qui ont présenté les surestimations les plus importantes. Les écart-types ont été également très sensibles aux nouvelles émissions, notamment les biogéniques, particulièrement le long de la côte est des États-Unis. L'analyse spatiale des coefficients de corrélation nous indique que ceux-ci ont été peu sensibles aux conséquences induites par la réactualisation des émissions biogéniques et anthropiques.

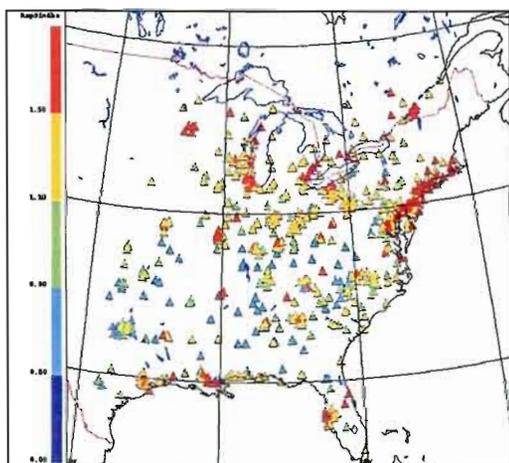


Figure 81 : Répartition spatiale du rapport des écart-types des niveaux horaires d'ozone simulées par AURAMS V1 et observées.

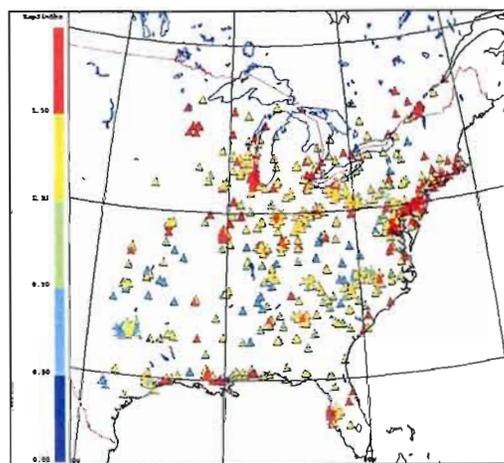


Figure 82 : Répartition spatiale du rapport des écart-types des niveaux horaires d'ozone simulées par AURAMS V2 et observée.

CONCLUSION

Les objectifs de ce travail consistaient à évaluer et comparer les performances opérationnelles de trois modèles numériques de qualité de l'air à l'échelle régionale, développés et utilisés par différentes institutions canadiennes. Il s'agissait aussi de caractériser les différences observées par rapport à la réalité afin d'identifier les défaillances des modèles. CHRONOS, AURAMS et GEM-AQ reflètent différentes approches de modélisation et différents degrés de complexité dans le nombre d'interactions chimiques et/ou physico-chimiques qu'ils représentent. CHRONOS et AURAMS ont déjà prouvé leurs capacités à reproduire un ou plusieurs épisodes extrêmes de pollution au niveau du sol. Cependant, les épisodes sélectionnés et les méthodes d'évaluation utilisées ne nous ont pas permis de comparer les performances l'une à l'autre. Par ailleurs, l'évaluation de GEM-AQ par ses concepteurs est toujours en cours.

Pour atteindre les objectifs énoncés, nous avons évalué les simulations de ces trois modèles durant une période estivale de huit semaines, débutant le 6 juillet 2004, et sur un domaine couvrant la moitié est de l'Amérique du nord. Nous avons développé une méthode qui a découpé le domaine d'évaluation en cinq secteurs afin d'optimiser les analyses et de caractériser le comportement moyen des modèles sur les cinq secteurs suivants: le nord-est et le centre du continent, les régions Atlantique nord et sud et la Floride. Nous avons comparé les concentrations horaires d'ozone simulées en surface avec celles mesurées par 607 sites de mesure appartenant à des réseaux de surveillance de la qualité de l'air canadiens et américains. Pour compléter la caractérisation des écarts, nous avons réalisé une étude de sensibilité du modèle AURAMS au changement des émissions biogéniques et anthropiques. Deux simulations ont été effectuées pour la même période et ont été comparées, à l'aide des mêmes analyses, à la simulation originale d'AURAMS ainsi qu'aux observations.

En terme de performances, les résultats des analyses ont montré que CHRONOS a correctement reproduit les évolutions quotidiennes des niveaux d'ozone, ainsi que les différents régimes des niveaux maximums d'ozone qui sont influencées par le passage des systèmes synoptiques. Les moyennes respectives des coefficients de corrélation ont été de

0.71 et 0.81. Bien qu'il ait correctement simulé les niveaux nocturnes, ce modèle a surestimé les niveaux diurnes d'ozone de 30 à 50%, en moyenne. Les moyennes spatiales des niveaux maximums d'ozone simulés lors des épisodes de pollution ont été systématiquement supérieures de 30 à 40% à celles calculées à partir des observations. Nous avons également remarqué des différences dans les caractéristiques spatiales de cette surestimation; ainsi, sa répartition spatiale a présenté un motif où les écarts de plus de 15 ppb ont été produits sur une région qui couvre largement la chaîne des Appalaches et ses deux versants.

Les mêmes analyses, appliquées aux sorties d'AURAMS, nous ont indiqué que celui-ci a assez bien reproduit les évolutions quotidiennes des concentrations d'ozone avec une moyenne des coefficients de corrélation de 0.66 et qu'il a correctement capturé leurs variations associées aux passages des systèmes météorologiques. La moyenne de ces coefficients de corrélation calculés pour chaque secteur a été de 0.69. AURAMS a produit des niveaux nocturnes du même ordre de grandeur que ceux observés tout en les surestimant légèrement. Ces surestimations ont été de quelques ppb pour tous les secteurs, hormis le secteur de l'atlantique nord où ils ont pu représenter jusqu'à 50% des niveaux observés. Les niveaux diurnes simulés sont généralement plus élevés que ceux observés. Toutefois, ces surestimations ont rarement excédé 20%. D'autre part, les moyennes des niveaux maximums simulés qui ont été calculées pour chaque secteur sont similaires à celles caractérisant les observations. L'analyse des répartitions spatiales nous a montré que les surestimations supérieures à 5 ppb ont été produites le long et aux abords de la chaîne des Appalaches.

Malgré le travail de préparation qui a été réalisé, GEM-AQ n'a finalement pas pu être évalué car nous n'avons pas été en mesure de réaliser les simulations sur l'ordinateur du service météorologique du Canada (SMC). D'autre part, il s'est avéré que la version qui était à notre disposition n'était pas en mesure d'intégrer les sources d'émissions telles que les cheminées industrielles qui émettent les polluants à des hauteurs non négligeables. L'utilisation de la version qui était à notre disposition aurait forcé l'utilisateur à produire des simulations en retirant ces émissions où en les rapportant à la surface. Ces simulations auraient négligé soit l'influence de sources d'émissions particulièrement importantes, soit l'influence des processus de transport des polluants en altitude. Lorsqu'une version de GEM-AQ sera en mesure d'être roulée par l'ordinateur du SMC et de tenir compte des émissions de polluants

en altitude, il serait intéressant de compléter cette étude en réalisant les mêmes analyses pour évaluer les choix relatifs aux processus de transport et à la définition des émissions biogéniques.

L'étude de sensibilité effectuée sur AURAMS, nous a souligné la forte dépendance des performances de celui-ci aux émissions qui lui sont fournies. Cependant, nous avons montré que les émissions biogéniques n'ont pas altéré les taux de production/consommation simulés par AURAMS et qu'ils sont restés similaires à ceux observés. Les émissions biogéniques ont essentiellement généré une surestimation de l'amplitude des niveaux diurnes. Ainsi dans cette étude, nous avons constaté que les émissions biogéniques fournies par BEIS 3.09 ont contribué à augmenter la surestimation des niveaux diurnes d'ozone de 17 à 40% et les niveaux nocturnes de 7 à 44%. En revanche, l'actualisation des émissions anthropiques a eu une influence sur les taux de consommation matinale en les réduisant à 10% environ. Cette particularité pourrait être induite par une diminution des émissions d'oxydes d'azote associées au trafic automobile entre les années où les inventaires ont été réalisés.

Les analyses qui ont été réalisées en parallèle sur CHRONOS et AURAMS, nous ont également permis de caractériser les écarts observés. Les analyses temporelles nous ont indiqué que pour les deux modèles, les écarts les plus significatifs ont généralement été observés en milieu de journée et qu'ils ont été la conséquence d'une exagération des taux de production de début de journée. Il est également apparu que les niveaux d'ozone qui ont été surestimés en début de soirée par les deux modèles, pourraient être reliés à l'effondrement prématuré de la couche de mélange et/ou à la définition des émissions anthropiques de début de soirée. Les analyses qui ont été réalisées sur le secteur de la Floride nous ont montré que les deux modèles ont réagi différemment par rapport aux autres secteurs. Les limitations imposées par sa grille ont détérioré les simulations d'AURAMS en termes de corrélation. Avec sa résolution plus fine et l'absence d'émission en amont, les simulations de CHRONOS ont reproduit les niveaux d'ozone et leurs variations quotidiennes qui ont été observés sur la Floride. Les diagrammes de Taylor des simulations de CHRONOS et d'AURAMS nous ont illustré l'origine des écarts en termes de coefficients de corrélation et d'écart-types. Il est apparu que les éléments communs à CHRONOS et AURAMS ont fortement influencé les

coefficients de corrélation alors que les éléments distincts ont pour leurs part influencé les écart-types.

Cette caractérisation des écarts nous a finalement conduit à identifier les éléments des modèles qui pourraient être à leurs origines.

Nous avons constaté que le modèle météorologique GEM a influencé les performances des deux modèles en terme de corrélation. Mais il pourrait être en partie responsable des surestimations des niveaux d'ozone en début de soirée par la simulation d'un effondrement prématuré de la couche de mélange. Cette caractéristique a fait l'objet d'une étude plus approfondi qui a conduit à la publication d'articles : *Makar et al. (2005)*, *Smyth et al. (2006)* ;

La résolution d'AURAMS qui est approximativement deux fois plus large que celle de CHRONOS, nous a conduit à évaluer les niveaux d'ozone simulés par AURAMS sur la Floride selon une approche différente. Nous avons comparé les niveaux maximum d'une cellule de la grille à la moyenne des niveaux maximums qui ont été observés par les stations comprises dans la cellule. Il s'est avéré que les mêmes simulations d'AURAMS pourraient présenter de meilleures performances ;

La frontière ouest de la grille d'AURAMS ne lui permet pas de tenir compte des émissions qui sont plus à l'ouest de celle-ci. Nous supposons que l'absence de ces informations est à l'origine des moins bonnes performances d'AURAMS dans ce secteur;

Finalement, il s'est avéré que les émissions, et notamment les émissions biogéniques, ont joué un rôle majeur dans les écarts observés dans l'analyse de sensibilité. Cette analyse complémentaire nous a permis d'associer l'influence des émissions aux amplitudes des niveaux d'ozone simulés et de l'écart-type des niveaux horaires sans toutefois modifier les taux de production/consommation. Nous avons également remarqué que la région la moins bien simulée couvre l'essentielle de la chaîne des Appalaches et ses deux versants. Cette constatation nous a amené à associer les différences entre les moyennes qui ont été observés sur les simulations de CHRONOS aux émissions biogéniques générées par le couple BEIS2 et BELD v3.

Finalement, cette étude nous aura permis de développer des outils d'analyse qui seront réutilisés par les Services Météorologiques du Canada dans leurs futures évaluations de modèles de qualité de l'air.

BIBLIOGRAPHIE

- Atkinson, R., Gas-phase tropospheric chemistry of organic compounds : A review, 1990, *Atmos. Environ.*, Part A, 24, 1-41
- Atkinson, R, D.L. Baulch, R.A. Cox, R.F. Hampson, J.A. Kerr and J. Troe. 1992, Evaluated kinetic and photochemical data for atmospheric chemistry : Supplement IV, *Atmos. Environ.*, Part A, 26, 1187-1230
- Bin Zhu, Hui Xiao, Meiyuan Huang and Zihua Li. 2001. Numerical study of cloud effects on tropospheric ozone. *Water air soil pollut.* 129, 199-216
- Bouchet, V., M.D. Moran, L.P. Crevier, A.P. Dastoor, S. Gong, W. Gong, P.A. Makar, S. Menard, B. Pabla and L. Zhang. 2003. Wintertime and summertime evaluation of the regional PM air quality model AURAMS. Proceedings of the 26th NATO/CCMS ITM on Air Pollution Modelling and its Application, May 29-29, Istanbul, Turkey. *Kluwer/Plenum Publishers, New York*, 97-104
- Ching, J.K.S., S.T. Shipley and E.V. Browell. 1988. Evidence for cloud venting of mixed layer ozone and aerosols, *Atmos. Environ.* 22, 225-242
- Comité fédéral-provincial de la pollution de l'air. 1976. Criteria for national Air Quality Objectives: Sulphur Dioxides, Suspended Particulates, Carbon Monoxide, Oxidants (Ozone) and Nitrogen Dioxide.
- Côté, J., S. Gravel, A. Méthot, A. Patoine, M. Roch and A. Staniforth. 1998a, The operational CMC-MRB Global Environmental Multiscale (GEM) Model. Part I : Design Consideration and Formulation. *Mon. Wea. Rev.*, 126, 1373-1395
- Côté, J., J.-G. Desmarais, S. Gravel, A. Méthot, A. Patoine, M. Roch and A. Staniforth. 1998b, The operational CMC-MRB Global Environmental Multiscale (GEM) Model. Part II : Results. *Mon. Wea. Rev.*, 126, 1397-1418
- Cotton, W.R., G.D. Alexander, R. Hertenstein, R.L. Walko, R.L. McAnelly and M. Nicholls. 1995. Cloud venting – A review and some new global annual estimates. *Earth-Science Rev.* 39, 169-206
- Cros B., P. Durand, H. Cachier, Ph. Drobinski, E. Frejafon, C. Kottmeier, P.E. Perros, V.-H. Peuch, J.-L. Ponche, D. Robin, F. Sayd, G. Toupance and H. Wortham. 2004. The ESCOMPTE program: an overview. *Atmospheric Research* 69, 241 – 279
- Decker, C.E., L.A. Ripperton, J.J.B. Worth, F.M. Vukovich, W.D. Bach, J.B. Tommerdahl, F. Smith, and D.E. Wagoner. 1976. Formation and Transport of oxidants Along Gulf Coast and in Northern U.S. EPA-450/3-76-003. *U.S. Environmental Protection Agency*, Research Triangle Park, N.C.
- Denis, B., R. Laprise, and D. Caya. 2003. Sensitivity of a regional climate model to the resolution of the lateral boundary conditions. *Clim. Dyn.* 20, 107-126

- Dennis, R.L., S.J. Roselle, R. Gilliam and J. Arnold. 2005. High time-resolved comparisons for in-depth probing of CMAQ fine-particle and gas prediction. Presented at 27th NATO / CCMS ITM on Air Pollution Modelling and its Application, October 25-29, Banff, Alberta, Canada
- Eder, B.K., J.M. Davis and P. Bloomfield. 1993. A characterization of the spatiotemporal variability of non-urban ozone concentrations over the eastern United States. *Atmos. Environ.*, Vol. 27A No 16, 2645-2668
- Gouvernement du Canada. 1988. Loi canadienne sur la protection de l'environnement (LCPE)
- Gong, S.L., L.A. Barrie, J.P. Blanchet, K. Von Salzen, U. Lohmann, G. Lesins, L. Spacek, L.M. Zhang, E. Girard, H. Lin, R. Leaitch, H. Leighton, P. Chylek and P. Huang. 2003. Canadian Aerosol Module: A size-segregated simulation of atmospheric aerosol processes for climate and air quality models 1. Module development. *J. Geophys. Res.* 108, D1, 4007, doi 10.1029/2001JD002002
- Greenhut, G.K. 1986. Transport of ozone between boundary layer and cloud layer by cumulus clouds. *J. Geophys. Res.* 91D, 8613-8622
- Holton, J. R., P. H. Haynes, M. E. McIntyre, A. R. Douglass, R. B. Rood and L. Pfister 1995. Stratosphere-troposphere exchange. *Rev. Geophys.*, 33(4), 403-440
- Lambert, S.J. and G.J. Boer. 2001. CIMP1 evaluation and intercomparison of coupled climate models. *Clim. Dyn.*, 17, 83-106
- Lehman, J., K. Swinton, S. Bortnick, C. Hamilton, E. Baldrige, B.K. Eder and B. Cox. 2004. Spatio-temporal characterization of tropospheric ozone across the eastern United States. *Atmos. Environ.*, Vol. 38, 4357-4369
- Logan, J.A. 1989. Ozone in rural areas of the United States. *J. Geophys. Res.* 94, 8511-8532
- Lurman, F.W., A.C. Lloyd and R. Atkinson. 1986. A chemical mechanism for use in long-range transport / acid deposition computer modelling. *J. Geophys. Res.* 91, 10905-10936
- Lyons, W.A., R.H. Calby, and C.S. Keen. 1986. The impact of mesoscale convective systems on regional visibility and oxydant distributions during persistent elevated pollution episodes. *J. Clim. Appl. Meteor.* 25, 1518-1531
- MacDonald, A.M., C.M. Banic, W.R. Leaitch and K.J. Puckett. 1993. Evaluation of the Eulerian acid deposition and oxidants model (ADOM) with summer 1988 aircraft data. *Atmos. Environ.*, 27A, 1019-1034
- Makar, P.A., V. Bouchet, L.P. Crevier, S. Gong, W. Gong, S. Menard, M. Moran, B. Pabla and S. Venkatesh. 2003. AURAMS runs during the Pacific2001 time period – a model/measurement Comparison. Proceedings of the 26th NATO/CCMS ITM on Air Pollution Modelling and its Application, May 29-29, Istanbul, Turkey. *Kluwer/Plenum Publishers, New York*, 97-104

- Makar, P.A., V.S. Bouchet, W. Gong, M.D. Moran, C. Stroud, S. Strawbridge, K. Anlauf, F. Froude and S.M. Li. 2005. The impact of anthropogenic heat and surface roughness on air quality during Pacific2001. *EGU Geophysical Res. Abstracts*, Vol 7, 02159
- McKeen, S.A., E.Y. Hsie, M. Trainer, R. Tallamraju and S.C. Liu. 1991. A regional model study of the ozone budget over the Eastern United States. *J. Geophys. Res.* 96, 10809-10845
- McKeen, S., J. Wilczak, G. Grell, I. Djalalova, S. Peckham, E.-Y. Hsie, W. Gong, V. Bouchet, S. Menard, R. Moffet, J. McHenry, J. McQueen, Y. Tang, G.R. Carmichael, M. Pagowski, A. Chan, T. Dye, G. Frost, P. Lee and R. Mathur. 2005. Assessment of an ensemble of seven real-time ozone forecasts over eastern North America during the summer of 2004. *J. Geophys. Res.* 110, D21307, doi:10.1029/2005JD005858
- Moran, M.D., A.P. Dastoor, S.-L. Gong, W. Gong and P.A. Makar. 1998. Conceptual design for AES unified regional air quality modelling system. Air Quality Research Branch, Meteorological service of Canada, Downsview, Ontario M3H 5T4, Canada
- Morneau G. and N. Pentcheva. 2004. The use of air quality models to estimate the local and transboundary influence during smog episodes. Extended abstract of the 13th Conference on the applications of Air Pollution Meteorology with the Air and Waste Manage. Assoc.
- Nenes, A., C. Pilinis and S.N. Pandis. 1998. ISORROPIA : a new thermodynamic equilibrium model for multiphase multicomponent marine aerosols. *Aquatic Geochem.*, 4, 123-152
- Odum, J.R., T. Hoffman, F. Bowman, D. Collins, R.C. Flagan and J.H. Seinfeld. 1996. Gas/particulate partitioning and secondary aerosol formation. *Enviro. Sci. Technolo.* 30, 2580-2585
- O'Neill, N.T., M. Campanelli, A. Lupu, S. Thulasiraman, J.S. Reid, M. Aubé, L. Neary, J.W. Kaminsky and J.C. McConnell. 2006. Evaluation of the GEM-AQ air quality model during the Québec smoke event of 2002: Analysis of extensive and intensive optical disparities. *Atmos. Enviro.* 40, 3737 – 3749
- Pierce, T., C. Geron, L. Bender, R. Dennis, G. Tonneson, and A. Guenther. 1998. Influence of the increased isoprene emissions on regional ozone modeling. *J. Geophys. Res.* 103, 25,611 – 25,629
- Plummer, D. A., J. C. McConnell, L. Neary, J. Kaminsky, R. Benoit, J. Drummond, J. Narayan, V. Young, D.R. Hastie. 2001. Assessment of emissions data for the Toronto region using aircraft-based measurements and air quality model. *Atmos. Enviro.* 35, 6453 – 6463
- Pudykiewicz, J.A., A. Kallaur, and P.K. Smolarkiewicz. 1997. Semi-Lagrangian modelling of tropospheric ozone, *Tellus*, Ser. B, 49, 231-248
- Räisänen, J. 1997. Objective comparison of patterns of CO₂ induced climate change in coupled GCM experiments. *Clim. Dyn.*, 13, 197-211

- R.T.I. 1975. Investigation of Rural Oxidant Levels as Related to Urban Hydrocarbon. Control Strategies. EPA-450/3-75-036. Presented at the 83rd Annual Meeting and Exhibition of the Air and Waste Management Association., Pittsburgh, Penn., June 24-29
- Russell, A.G. and R. Dennis. 2000. Narsto critical review of photochemical models and modeling. *Atmos. Environ.* 34, 2283-2324
- Schmidt, H., C. Derognat, R. Vautard and M. Beekman. 2001. A comparison of simulated and observed ozone mixing ratios for the summer of 1998 in Western Europe. *Atmos. Environ.*, 35, 6277-6297
- Scholtz M.T., A. Taylor, A. Ivanoff, M.D. Moran, D. Davies, P.A. Makar, S. Venkatesh, P. Cheung and J. Barton. 1999. Application of the Canadian Emissions Processing system, Version 1.0 (CEPS1.0): four case studies. *Proc. 9th AWMA Emission Inventory System Symp.* AWMA Book VIP-93, Oct 26-28. Raleigh, North Carolina, Air & Waste Management Association, Pittsburgh, 456-468
- Seinfeld, J.H. and S.N. Pandis. 1998. Atmospheric chemistry and physics. *Wiley-Interscience*, New York
- Sirois, A., J.A. Pudikiewicz and A. Kallaur. 1999. A comparison between simulated and observed ozone mixing ratios in eastern North America. *J. Geophys. Res.* 104, D17, 21397-21423
- Smyth, S.C., Yin, D., Roth, H., Jiang, W. Moran. M.D. and L.P. Crevier. 2006. The impact of GEM and MM5 Modeled Meteorological Conditions on CMAQ Air Quality Modeling Results in Eastern Canada and the Northeastern United States. *J. of Applied Meteor. and Climat.* Volume 45, 1525 - 1541
- Stohl, A, N. Spichtinger-Rakowsky, P. Bonasoni, H. Feldman, M. Memmesheimer, H.E. Scheel, T. Trickl, S. Hübener, W. Ringer and M. Mandl. 2000. The influence of stratospheric intrusions on alpine ozone concentrations. *Atmos. Environ.*, 34, 1323-1354
- Struzewska J. 2005. ESCOMPTE Modelling Exercise – contribution of GEM-AQ / MC2-AQ modeling system. *Maqnet.ca*, Volume 3, Issue 6
- Taylor, K.E. 2001. Summarizing multiple aspects of model performance in a single diagram. *J. Geophys. Res.* 106, D7, 7183-7192
- US Environmental Protection Agency. 40 CFR Parts 53 and 58. 2006. Revisions to Ambient Air Monitoring Regulations; Final Rule. www.epa.gov/ttnamti1/40cfr53.html
- Wesley, M.L. and B.B. Hicks. 1977. Some factors that affect the deposition rates of sulfur dioxide and similar gases on vegetation. *J. Air Pollut. Control Assoc.* 27, 1110-1116
- Zangh, L., S. Gong, J. Padro and L. Barrie. 2001. A size-segregated particle dry deposition scheme for an atmospheric aerosol module. *Atmos. Environ.*, 35, 549-560
- Zangh, L., M.D. Moran, P.A. Makar, J.R. Brook and S. Gong. 2002. Modelling gaseous dry deposition in AURAMS: a unified regional air-quality modeling system. *Atmos. Environ.*, 36, 537-560