

sa rétroaction sur la zone d'émission.

La première partie de ce chapitre est consacrée à une description non exhaustive du modèle utilisé, et des diverses paramétrisations qui y sont incluses. La deuxième partie est consacrée à une mise en perspective des performances du modèle. Enfin, la troisième partie décrit les développements que j'ai apportés au modèle.

## II.1 Description du modèle CHIMERE

### II.1.1 Principe d'un modèle Eulérien

Modéliser la composition de l'atmosphère peut se poser comme un problème déterministe, consistant à intégrer dans le temps et dans l'espace un ensemble d'équations de dérivées partielles, à partir d'un état initial supposé connu. Il est communément admis qu'il n'existe pas de solution analytique à ce problème : il faut donc utiliser des méthodes numériques qui permettent de discrétiser l'espace et le temps. Un modèle eulérien considère un domaine positionné de façon fixe dans l'espace, discrétisé spatialement sur la verticale et sur l'horizontale en une multitude de boîtes (ou mailles) telles que représentées à gauche de la Figure II.1. Dans notre cas, chaque boîte représente une portion de l'atmosphère. La méthode suppose que tous les paramètres d'état (météorologiques et chimiques) sont homogènes au sein de chaque boîte. On y simule ensuite les processus d'évolution des paramètres d'état, présentés sur la droite de la Figure II.1. Les composés émis vont ainsi réagir entre eux ou avec des composés préexistants pour former des composés secondaires, tous pouvant éventuellement se déposer, et être échangés entre les différentes mailles via des processus de transports (advection et diffusion).

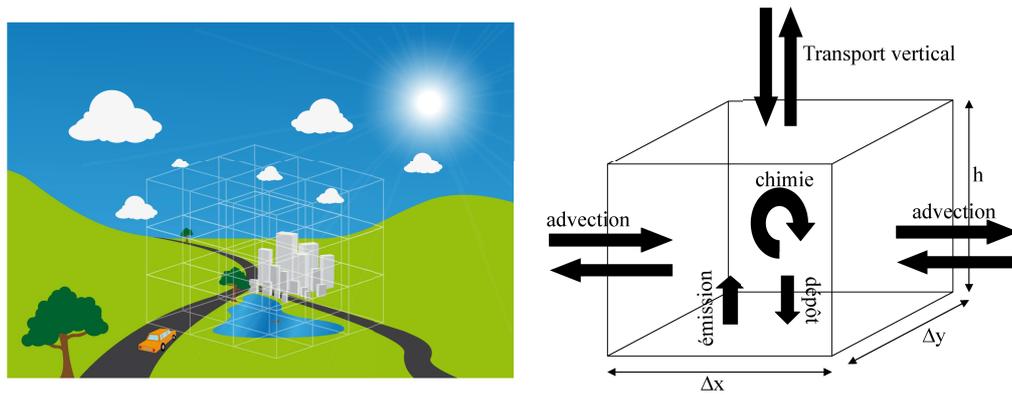


FIGURE II.1 – Schématisation d'un modèle eulérien : à gauche un maillage tridimensionnel et à droite les processus pris en compte dans chaque boîte.

Dans chaque maille, la variation de concentration de chaque espèce en fonction du temps est régie par l'équation suivante de conservation de la masse :

$$\frac{\partial C_i}{\partial t} = \left( \frac{\partial C_i}{\partial t} \right)_{chimie} + \left( \frac{\partial C_i}{\partial t} \right)_{advection} + \left( \frac{\partial C_i}{\partial t} \right)_{diffusion} + \left( \frac{\partial C_i}{\partial t} \right)_{émissions} + \left( \frac{\partial C_i}{\partial t} \right)_{dépôt} \quad (\text{II.1})$$

Le modèle a besoin de pouvoir renseigner chaque terme de cette équation afin de calculer la variation de concentration de chaque espèce en tout point de son maillage :

- La variation de concentration due à la chimie est calculée d'après un mécanisme chimique (ou schéma chimique) représentant les principales réactions atmosphériques (le plus souvent propre à chaque modèle).
- Les variations de concentration résultant des processus d'advection et de diffusion sont obtenues à l'aide d'un schéma numérique de transport utilisant les données météorologiques, calculées soit à chaque pas de temps par un module météorologique couplé au modèle (« online ») soit par un autre modèle dédié et utilisées en forçage (« offline »).
- La variation de concentration imposée par les émissions regroupe les émissions biogéniques (dont l'amplitude est contrôlée par la météorologie et dont la nature dépend du type de végétation) et les émissions anthropiques (le plus souvent sous forme d'une base de données, mais qui peut également être recalculée en fonction de la température).
- La variation de concentration liée aux processus de dépôt sec et humide est contrôlée par les données météorologiques, les propriétés physiques des polluants, et la nature du sol ou du couvert végétal (pour le dépôt sec).

## II.1.2 La chimie dans le modèle CHIMERE

### II.1.2.1 La chimie de la phase gazeuse

Le schéma chimique d'un modèle contient l'ensemble des réactions chimiques élémentaires que l'on souhaite reproduire, accompagnées de leurs constantes cinétiques qui dépendent en règle générale de la température, mais aussi de la pression atmosphérique ou encore du rayonnement solaire pour les réactions de photolyse. Comme nous l'avons vu au chapitre I.1.1, la physico-chimie atmosphérique recouvre un ensemble complexe de processus impliquant eux-mêmes un grand nombre d'espèces et de réactions. La chimie des espèces inorganiques ( $\text{HO}_x$ ,  $\text{NO}_x$ ,  $\text{O}_3$ ,  $\text{SO}_2$ ) est maintenant bien connue et peut être décrite par une dizaine d'espèces et une vingtaine de réactions, et la plupart des schémas chimiques la représentent de façon identique (Aumont *et al.*, 2005; Carter, 1990; 2000; 2010). La chimie organique est en revanche plus difficile à décrire. L'oxydation des composés organiques implique une myriade de réactions et de composés primaires et secondaires (Aumont *et al.*, 2005; Jenkin *et al.*, 2003; Saunders *et al.*, 2003) car le nombre d'espèces et de réactions nécessaires pour représenter l'oxydation complète d'un COV jusqu'au  $\text{CO}_2$  croît de façon exponentielle avec le nombre d'atomes de carbone. Typiquement, le nombre d'espèces secondaires formées par l'oxydation d'un C8 comme l'octane est de l'ordre du million d'espèces, avec une réactivité propre à chaque espèce (Aumont *et al.*, 2005). La description d'autant de réactions et de composés secondaires se heurte à deux contraintes : i) le nombre d'espèces et de réactions dépassent largement celui pour lequel les données cinétiques sont disponibles dans la littérature ou accessibles par l'expérimentation et ii) l'implémentation de tels schémas est impensable dans des modèles de chimie-transport. À ma connaissance, le schéma le plus détaillé à être intégré dans un CTM est le schéma MCM (Jenkin *et al.*, 2003) intégré dans le modèle américain CMAQ (Byun et Schere, 2006) par Ying et Li (2011) ainsi que dans le modèle GATOR-GCMOM (Jacobson, 2002) par Jacobson et Ginnebaugh (2010). Ce schéma possède 4642 espèces et 13 566 réactions, ce qui demande des ressources informatiques très importantes pour mettre en œuvre le modèle. C'est pourquoi la quasi-totalité des modèles tridimensionnels font appel à des schémas dits réduits. Trois approches de réduction, permettant de diminuer le nombre de composés organiques à prendre en compte dans les schémas chimiques, sont couramment employées dans les modèles de chimie transport CTM (Simp-

son, 1992; Lattuati, 1997; Carter, 1990; 2010) : i) la méthode de substitution, ii) la méthode de regroupement et iii) la méthode des opérateurs chimiques. Une quatrième méthode, dite d'élimination, existe pour les schémas de très grande dimension servant de référence pour l'évaluation des schémas réduits (Valorso *et al.*, 2011), et consiste à ne pas prendre en compte la chimie des espèces trop peu volatiles.

- La première méthode (substitution ou remplacement) consiste à substituer à un groupe de COV une espèce réelle (ex : les alcanes de plus de trois carbones sont souvent remplacés par le butane).
- La deuxième méthode (regroupement), consiste à créer un composé modèle ayant une réactivité et une production chimique correspondant à la moyenne de la famille qu'il représente.
- Enfin la troisième méthode (opérateurs chimiques) développée par (Carter, 1990), repose sur le fait que les bilans inorganiques découlant des chaînes d'oxydation sont peu variables d'un COV à l'autre (voir la chimie des RO<sub>2</sub> par exemple en Figure I.2 Chapitre I.1.1. On peut donc représenter le produit de l'oxydation par OH de plusieurs COV par un opérateur unique noté oRO<sub>2</sub>. Le nombre d'espèces organiques secondaires est ainsi réduit, mais cette méthode est entachée d'une perte d'information sur les bilans de dégradation de chaque composé organique.

À l'heure actuelle, deux schémas chimiques nommés MELCHIOR (Modèle Lagrangien de Chimie de l'Ozone à l'échelle Régionale) de degrés de réduction différents sont implémentés dans le modèle CHIMERE :

- Le schéma MELCHIOR1 (Lattuati, 1997) est une version réduite en combinant la première et la deuxième méthode (espèces modèles et de remplacement) du schéma chimique de Hov *et al.* (1985). Ce schéma est dédié à l'étude de la chimie de la couche limite et de la troposphère libre. Il comporte 300 réactions et 80 espèces chimiques gazeuses. Les constantes cinétiques ont été calculées à partir d'Atkinson *et al.* (1997) et De Moore *et al.* (1994). Depuis la version de 1997, une réaction hétérogène formant du HONO à partir de la réaction du NO<sub>2</sub> sur les surfaces humides (Aumont *et al.*, 2003) a été ajoutée.
- Le schéma MELCHIOR2 est une réduction du schéma MELCHIOR1 (Derognat *et al.*, 2003) par la méthode des opérateurs chimiques. Il est dédié à l'étude de la chimie de la

troposphère et de la basse troposphère ( $\sim 3\text{km}$ ). Il possède 120 réactions et 44 espèces dont (Tableaux A.1 et A.2 en Annexe A).

La majorité des réactions suit la loi d'Arrhenius complète (équation II.2) où  $k(T)$  représente la constante de vitesse dépendant de la température ( $\text{cm}^3.\text{molec}^{-1}.\text{s}^{-1}$ ),  $A$  est le facteur pré-exponentiel ou facteur de fréquence ( $\text{cm}^3.\text{molec}^{-1}.\text{s}^{-1}$ ) et  $E_A$  l'énergie d'activation ( $\text{kCal.mol}^{-1}$ ) :

$$k(t) = A \times \left(\frac{T}{300}\right)^B \times \exp\left(-\frac{E_A}{RT}\right) \quad (\text{II.2})$$

Les réactions faisant intervenir un tiers corps sont très rarement des réactions élémentaires. La constante apparente est alors une fonction linéaire de la pression pour des basses pressions, et indépendante de la pression pour des hautes pressions. La constante cinétique est alors calculée suivant la relation de Lindeman-Hinshelwood corrigée (II.3 et II.3) :

$$k(T, M) = \frac{k_0(T)[M]}{1 + \frac{k_0(T)[M]}{k_\infty(T)}} \times F^Z \quad (\text{II.3})$$

$$Z = \frac{1}{1 + \left(\log_{10} \left(\frac{k_0(T)[M]}{\frac{k_\infty(T)}{N}}\right)\right)^2} \quad (\text{II.4})$$

où  $[M]$  représente la concentration du tiers corps ( $\text{molec.cm}^{-3}$ ),  $k_0$  la constante cinétique calculée à basse pression ( $\text{cm}^3.\text{molec}^{-1}.\text{s}^{-1}$ ) et  $k_\infty$  la constante calculée à haute pression suivant l'expression d'Arrhenius précédemment décrite.  $F^Z$  est le facteur correctif apporté à l'expression de Lindeman-Hinshelwood. Pour les schémas chimiques MELCHIOR,  $N$  est toujours égale à 1 c'est pourquoi cette constante est exclue de la formulation de  $k(T, M)$  dans le modèle CHIMERE. Nous avons vu au Chapitre I.1.1 que la chimie troposphérique était pilotée par une chaîne de réactions dont la plupart sont des réactions radicalaires. Ces radicaux sont initialement formés par photodissociation ou rupture de liaison par photolyse. Pour prendre en compte ce phénomène dans le schéma chimique, il faut donc disposer des fréquences de photolyse de chaque espèce. Dans le modèle CHIMERE, ces fréquences ne sont pas calculées on-line, mais données en entrée du modèle et atténuées en fonction de l'humidité relative. Cette paramétrisation a été réalisée suite à des mesures de  $J_{NO_2}$  effectuées en région parisienne (paramétrisation non publiée). Ces constantes ont été calculées par ciel clair, en fonction de l'angle zénithal (de 0 à 90°) et sont variables selon l'altitude (de 0 à 9000m) pour

toutes les espèces photolysables du schéma chimique (Tableaux E.1 et en Annexe E).

(Dufour *et al.*, 2009) ont comparé la production de formaldéhyde (HCHO) par l'oxydation d'une dizaine de COV (Isoprène,  $\alpha$ -pinène, NC<sub>4</sub>H<sub>10</sub>, C<sub>2</sub>H<sub>6</sub>, *o*-xylène, C<sub>2</sub>H<sub>4</sub>, C<sub>3</sub>H<sub>6</sub>, MEK, CH<sub>3</sub>OH, CH<sub>3</sub>CHO) dans MELCHIOR1 et dans trois schémas chimiques de référence plus détaillés (MCM, Jenkin *et al.* (2003); Saunders *et al.* (2003); SAPRC99, Carter (2000); GECKO-A, Aumont *et al.* (2005), pour des conditions fort et bas NO<sub>x</sub>. Les auteurs ont montré qu'il existait globalement un bon accord (différences inférieures à 20%) - et spécialement dans des conditions fort NO<sub>x</sub> - entre le schéma de CHIMERE et les trois schémas de référence. On peut également considérer que les diverses évaluations du modèle CHIMERE (Beekmann et Vautard, 2010; Honore *et al.*, 2008; Colette *et al.*, 2011; Vautard *et al.*, 2005) permettent de valider le schéma chimique MELCHIOR pour les utilisations qui en sont faites.

### II.1.2.2 Représentation des particules

Le module physico-chimique décrivant l'évolution des aérosols dans le modèle CHIMERE est décrit par Bessagnet *et al.* (2005). Les aérosols y sont représentés par 14 espèces : les particules primaires (PPM), les aérosols désertiques (DUST), le carbone suie ou black carbon (BC), le carbone organique (OC), les sels marins, 5 types d'AOS, les sulfates, les nitrates, l'ammonium et les gouttelettes d'eau. Chaque espèce est répartie dans 8 classes de tailles allant de 40nm à 10 $\mu$ m. Les processus physiques pris en compte dans le modèle sont la coagulation (Gelbard et Seinfeld, 1980), la nucléation pour l'acide sulfurique (Kulmala *et al.*, 1998), et l'absorption qui est prise en compte de manière différenciée pour les espèces organiques et inorganiques. Pour les espèces inorganiques, l'équilibre entre la phase gazeuse et particulaire est calculé par le module thermodynamique ISORROPIA (Kulmala *et al.*, 1998). Ce module calcule le coefficient de partage de quatre espèces inorganiques se trouvant en phase gazeuse (NH<sub>3</sub>, HNO<sub>3</sub>, HCL, H<sub>2</sub>SO<sub>4</sub>), en fonction de la température et de l'humidité ambiante. L'oxydation des COV est une oxydation progressive impliquant une grande diversité de composés plus ou moins fonctionnalisés. Certains de ces composés secondaires possèdent une pression de vapeur saturante suffisamment basse pour pouvoir se partager entre la phase gazeuse et particulaire : ils sont appelés composés organiques semi-volatiles. Les réductions apportées aux schémas chimiques MELCHIOR ne permettent pas d'affecter une pression de vapeur saturante moyenne satisfaisante aux espèces de remplacement, qui sont définies en fonction

de la réactivité avec OH de chaque COV qu'elles représentent et non de leurs propriétés physiques. La formation des AOS est donc décrite à l'aide d'une paramétrisation empirique basée sur des observations réalisées en Chambre de Simulation Atmosphérique (Seinfeld et Pankow, 2003). Ces expériences montrent qu'il est possible d'ajuster les rendements observés d'AOS en introduisant deux composés semi-volatils hypothétiques (Odum *et al.*, 1996; Griffin *et al.*, 1999), qui n'ont pas de structure définie et sont considérés comme des variables d'ajustement. Quatre paramètres doivent alors être tabulés pour décrire la formation d'AOS associée à chaque précurseur. Ils correspondent aux coefficients stœchiométriques de formation et aux pressions de vapeur saturantes des deux composés hypothétiques. L'équilibre est ensuite géré par une constante de partitionnement dépendant de la température (Pankow, 1994).

Dans le modèle CHIMERE, les aérosols organiques secondaires sont formés à partir de l'oxydation de 7 COV biogéniques (isoprène,  $\alpha$ -pinène,  $\beta$ -pinène, humulène, ocimène, limonène et une famille représentant les autres terpènes) et 4 COV anthropiques modèles ou de remplacements (toluène, triméthylbenzène, o-xylène et n-butane). En une seule étape d'oxydation, ces COV vont former des composés semi-volatils c'est-à-dire qui peuvent se partager entre la phase gazeuse et particulaire. L'approche consiste à distinguer les composés hydrophiles, qui sont susceptibles de se dissoudre dans la phase particulaire aqueuse suivant la loi de Henry, et les composés hydrophobes qui peuvent être absorbés dans une phase particulaire organique suivant la loi de Raoult (Pun *et al.*, 2006).

### II.1.2.3 Le dépôt sec et le dépôt humide

La vitesse de dépôt sec est paramétrée suivant le modèle fréquemment utilisé de résistance de Wesely (1989). Pour les gaz, la vitesse de dépôt est donc inversement proportionnelle à la somme des résistances imposées respectivement par l'atmosphère (résistance aérodynamique  $R_a$ ), par la couche limite ( $R_b$ ) et par la surface considérée ( $R_c$ ) suivant l'équation II.5 :

$$v_{d,i} = \frac{1}{R_a + R_b + R_c} \quad (\text{II.5})$$

Les résistances aérodynamique et de couche limite sont calculées à partir des données météorologiques ( $U^*$ ,  $L$ ). La résistance de surface est calculée en fonction du type de sol, dérivé de

la base de données *GLCF* et de paramètres propres à chaque composé (constante de Henry notamment). Pour les aérosols, la vitesse de dépôt est aussi calculée suivant un schéma de résistance, mais son expression devient :

$$v_{d,i} = v_s + \frac{1}{R_a + R_b + R_a R_b v_s} \quad (\text{II.6})$$

où la vitesse de sédimentation ( $v_s$ ) vient donc s'ajouter. La résistance de surface est pondérée par la vitesse de sédimentation et la résistance aérodynamique (Zhang *et al.*, 2001). Le dépôt humide est pris en compte et dépend principalement des données météorologiques et des constantes de Henry de chaque espèce.

### II.1.3 Météorologie et transport dans le modèle CHIMERE

Le modèle CHIMERE est un CTM, ce qui signifie que les données météorologiques qui définissent la direction et l'intensité du transport doivent être pré-calculées par un modèle dédié à la simulation météorologique. Notre version du modèle CHIMERE permet l'utilisation des données provenant de deux modèles météorologiques de référence : MM5 (Mesoscale Model, Dudhia (1993), <http://www.mmm.ucar.edu/mm5/>) et WRF (Weather research and forecasting, Skamarock et Klemp (2008), <http://www.wrf-model.org/>). La liste des paramètres météorologiques utilisés par le modèle CHIMERE est donnée dans le Tableau B.1 en Annexe B. Des paramètres supplémentaires non fournis par les modèles météorologiques sont calculés par CHIMERE à partir des données météorologiques et de paramétrisations spécifiques :

- Un taux d'atténuation des fréquences de photolyse est calculé en fonction de l'humidité relative.
- La hauteur de couche limite est calculée par le modèle en prenant le maximum entre les valeurs fournies par la paramétrisation pour les atmosphères stables et celle pour les atmosphères instables. Cette formulation permet de définir si l'atmosphère est stable ou instable.
- La vitesse de friction  $U^*$  est calculée pour obtenir les vitesses de dépôt sec (Louis *et al.*, 1982).
- Le flux de chaleur contribue au calcul de la vitesse verticale de convection  $W^*$  associée à la couche limite.

- La longueur d'Obukov est calculée à partir de la vitesse de friction  $U^*$  ; elle contribue également au calcul de la vitesse de convection ( $W^*$  ; Troen et Mahrt (1986)) ainsi qu'à celui de la résistance aérodynamique utilisée dans le calcul du dépôt sec (Seinfeld et Pandis, 1998).

Les schémas de transport permettent - à partir des composantes du vent (zonal et méridien) provenant du modèle météorologique - de représenter les flux d'air aux interfaces des différentes mailles de la grille. Le modèle permet l'utilisation de trois schémas de transport horizontal : le schéma du premier ordre upwind (Prather, 1986), le schéma du deuxième ordre de Van Leer (Vanleer, 1979) et un schéma du troisième ordre nommé PPM (Parabolic Piecewise Method ; Colella et Woodward (1984)). Le plus couramment utilisé est le schéma de second ordre de Van Leer. Le transport vertical étant de faible contribution hors de la couche limite, il est calculé par le schéma upwind.

## II.1.4 Représentation des émissions

### II.1.4.1 Les émissions anthropiques

Le schéma chimique du modèle CHIMERE prend en compte l'émission de 23 espèces d'origine anthropique. Ces espèces sont représentées en Annexe D. Par défaut, le modèle utilise les données annuelles des inventaires d'émissions EMEP (Vestreng *et al.* (2005), <http://www.emep.int>) qui comportent 4 types de composés gazeux : les  $\text{NO}_x$ , les  $\text{SO}_x$ , les NM-VOC (COV non méthaniques) et le CO, ainsi que deux types de composés particulaires,  $\text{PM}_{2.5}$  et  $\text{PM}_{\text{coarse}}$ . La désagrégation temporelle des émissions de chaque espèce - depuis la résolution annuelle dans laquelle elles sont disponibles jusqu'à la résolution horaire dont le modèle a besoin - est faite en distinguant le secteur d'activité (SNAP) et le pays émetteur. Les données nécessaires pour cette étape proviennent de l'IER (Institute for Energy Economics and Rational Use of Energy, université de Stuttgart : [http://www.ier.uni-stuttgart.de/index\\_en.html](http://www.ier.uni-stuttgart.de/index_en.html)). Pour ce qui est des  $\text{NO}_x$ , 90% des émissions sont considérées comme étant du NO, 9,2% comme du  $\text{NO}_2$  et 0,8% comme du HONO, en accord avec les mesures effectuées par Kurtenbach *et al.* (2001) (voir également Aumont *et al.* (2003)). De même, 99 % des  $\text{SO}_x$  sont redistribués dans  $\text{SO}_2$  et 1% dans  $\text{H}_2\text{SO}_4$  (<http://www.emep.int/>).

Au final, les quantités de COV émis sont distribuées selon 221 espèces réelles (Passant, 2002)

en fonction du secteur d'activité considéré, (Tableau D.2 en Annexe D) puis ré-agrégées en espèces MELCHIOR suivant la procédure de Middleton *et al.* (1990), en fonction de leur réactivité et de leur nature (Tableau D.3 en Annexe D). La méthode consiste à considérer qu'un COV donné qui est émis peut être représenté par une espèce modèle ayant une constante cinétique différente si on applique à sa quantité émise un facteur  $\alpha$  calculé comme suit :

$$\alpha_i = \frac{1 - \exp(-k_i \times INTOH)}{1 - \exp(-k_{Modèle} \times INTOH)} \quad (\text{II.7})$$

- Si  $k_{relle} < k_{modle}$  l'émission de l'espèce modèle est plus faible que celle de l'espèce réelle ( $\alpha < 1$ )
- Si  $k_{relle} > k_{modle}$  l'émission de l'espèce modèle est plus grande que celle de l'espèce réelle ( $\alpha > 1$ )

Les constantes cinétiques des espèces réelles et modèles sont notées respectivement  $k_i$  et  $k_{modle}$ , elles représentent les constantes de réaction avec le radical OH calculées à 300K. *INTOH* représente une quantité d'OH intégrée sur 2 jours, et fixée à 100 ppt.mn<sup>-1</sup>. L'émission du COV modèle noté  $E_{modle}$  est donc égale à la somme des émissions des espèces réelles notées ( $E_i$ ) pondérées par les facteurs  $\alpha_i$  :

$$E_{Modèle} = \sum_i \alpha_i E_i \quad (\text{II.8})$$

Pour la formation des aérosols organiques, outre la spéciation en taille donnée par l'inventaire EMEP, le modèle a besoin d'une spéciation chimique. Les PM<sub>2.5</sub> de l'inventaire EMEP sont donc remplacés par les émissions de OC et BC de l'inventaire fourni par le LA (Laboratoire d'Aérologie, Junker et Liousse (2008)). Enfin la résolution des émissions (0,5°x0,5°) est raffinée par l'utilisation d'une base de données d'utilisation des sols (Global Land Cover Facility : <http://glcf.umiacs.umd.edu/>) qui possède une résolution kilométrique. Cette technique d'interpolation permet de redistribuer les émissions sur les mailles du modèle, en prenant en compte la localisation des zones urbanisées, et de produire des gradients d'émission à plus haute résolution que l'inventaire EMEP (Figure II.2).

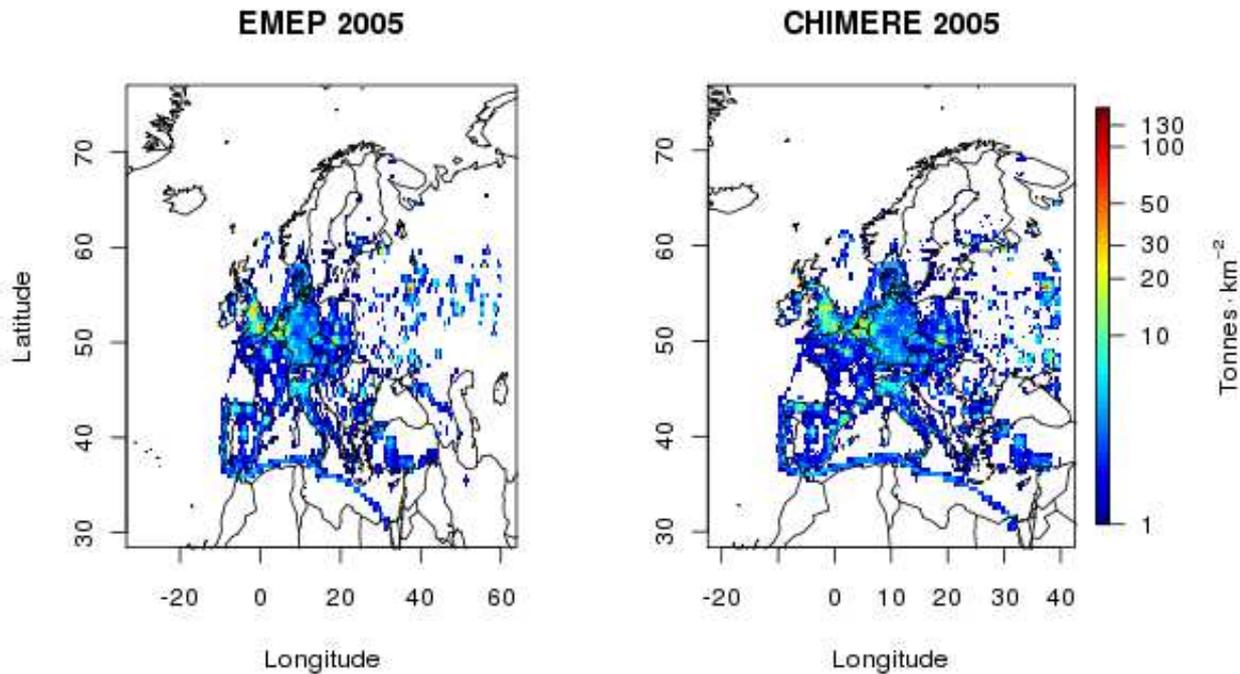


FIGURE II.2 – Illustration des inventaires d'émissions. Émissions de  $\text{NO}_x$  pour l'année 2005 en  $\text{Tonnes.km}^{-2}$  : à gauche les émissions de l'inventaire EMEP ( $0,5^\circ$ ) et à droite celles de l'inventaire EMEP respatialisées sur des mailles de  $0,1^\circ$ .

#### II.1.4.2 Les émissions biogéniques

Les schémas chimiques MELCHIOR prennent en compte 8 espèces émises par des processus biogéniques (Tableau A.1 en Annexe A). Guenther *et al.* (2006) ont développé un modèle (MEGAN : Model of Emissions of Gases and Aerosols from Nature) permettant de calculer les émissions biogéniques de 6 de ces COV (les émissions de terpènes autres qu' $\alpha$  et  $\beta$  pinène et d'humulène ne sont pas disponibles). Les émissions biogéniques sont contrôlées par des paramètres physiologiques de la biosphère et par les conditions météorologiques. Les flux d'émission ( $\mu\text{g.m}^{-2}.\text{h}^{-1}$ ) peuvent être calculés comme suit :

$$ER_i = EF_i \times \gamma(T, PPF, LAI) \quad (\text{II.9})$$

où  $ER_i$  représente le flux d'émission ( $\mu\text{g.m}^{-2}.\text{h}^{-1}$ ) de l'espèce  $i$ , et  $EF_i$  ( $\mu\text{g.m}^{-2}.\text{h}^{-1}$ ) représente le flux d'émission dans des conditions standards définies par Guenther *et al.* (2006). Le paramètre  $\gamma_i$  permet de corriger les émissions standards en fonction de la température, du flux actinique ( $PPFD$ ) et de l'indice de surfaces foliaires ( $LAI$ ). Le  $LAI$  repré-

sente le rapport entre la surface supérieure de la végétation et la surface du sol occupée. Les facteurs d'émissions sont dérivés de mesures réalisées sur 1800 types de plantes (<http://bai.acd.ucar.edu/Data/BVOC/index.shtml> ; Wiedinmyer *et al.* (2004)) combinées à la distribution géographique d'Olson *et al.* (2001). Les *LAI* sont dérivés des observations MODIS (2000). Ces données sont fournies à une résolution de 5km sur tout le globe par leur concepteur (<http://acd.ucar.edu/~guenther/MEGAN/MEGAN.htm>).

### II.1.5 Les conditions initiales et aux limites dans le modèle CHIMERE

Afin de pouvoir simuler la composition de l'atmosphère, un modèle eulérien a besoin de concentrations initiales. Le modèle CHIMERE n'étant pas un modèle global, il a en outre besoin de conditions aux limites permettant de faire entrer des masses d'air depuis l'extérieur du domaine (par le sommet et les bords). La plupart du temps, ces conditions aux limites sont calculées à partir de modèles de plus grande échelle. Dans le cas d'un « nesting » (forçage d'un petit domaine de résolution plus fine par un domaine plus grand avec le même modèle), les conditions aux limites et les conditions initiales de toutes les espèces (communes aux deux simulations) seront directement interpolées à partir des simulations de plus large échelle. Dans le cas d'un nesting, le but est de simuler une fine échelle, toutes les espèces sont donc considérées aux limites quel que soit leur temps de vie. Dans le cas d'une simulation de plus grande échelle (modèles globaux ou semi-globaux), seules les espèces à grand temps de vie sont considérées aux limites puisque ce sont celles qui peuvent être transportées sur de grandes distances. La plupart du temps, ces données sont extraites de climatologies mensuelles. Dans CHIMERE, deux climatologies (concentrations mensuelles calculées sur 1998-2002) sont disponibles pour les espèces gazeuses : la première est issue du modèle MOZART2 (Horowitz *et al.*, 2003) et la seconde de LMDz-INCA2 (Hauglustaine *et al.* (2004) ; <http://www.lmd.jussieu.fr/~lmdz/>). Les espèces prises en compte sont présentées dans les Tableaux C.2 et C.1 en Annexe C. Elles sont directement compatibles avec les espèces utilisées par MELCHIOR. Deux climatologies pour les aérosols sont également disponibles : la première est issue du modèle GOCART (Ginoux *et al.*, 2001) et la seconde du modèle LMDz-INCA (Schulz *et al.* (2006); Textor *et al.* (2006); Dentener *et al.* (2006); climatologie

calculée sur 2000 et 2001, voir les détails sur les espèces dans les Tableaux C.3 et C.4 en Annexe C).

## II.2 Participation à l'évaluation de CHIMERE dans le cadre de MEGAPOLI

Dans le cadre de projets scientifiques de grande envergure impliquant plusieurs modèles (GEMS, MAAC, CityZen, MEGAPOLI...) il est courant de réaliser des simulations avec des données de forçages communes imposées. Cela permet de s'affranchir des différences qu'elles génèrent dans les sorties des modèles lors d'exercices d'intercomparaison. Dans le cadre du projet MEGAPOLI (<http://megapoli.dmi.dk/>), un tel exercice a été mené (Haller *et al.*, 2011b;a; Sofiev *et al.*, 2011) : j'ai pour cela implémenté dans le modèle CHIMERE l'ensemble des forçages imposés (météorologie et émissions) et réalisé la totalité des simulations demandées sur l'Europe (soit toute l'année 2005 ainsi que la période de campagne de terrain couvrant juillet 2009). La configuration du modèle utilisée pour réaliser ces simulations avec le modèle CHIMERE est rappelée dans le Tableau F.1 en Annexe F. Les données d'émissions ont été utilisées dans la plupart des simulations réalisées dans le cadre de cette thèse mais les données de forçages aux limites n'ont été utilisées que dans le cadre de cette intercomparaison de modèles.

### II.2.1 Implémentation de nouvelles données d'émissions

Initialement, la base de données *GLCF* (Global Land Cover Facility : <http://glcf.umd.edu>) qui possède une résolution kilométrique était implémentée dans le modèle CHIMERE. Afin de disposer d'une base de données plus fine, j'ai implémenté la base de données *GLOBCOVER* (Arino *et al.* (2008) ; <http://ionia1.esrin.esa.int/>). Elle a été produite par l'ESA (European Spatial Agency) et utilise un ensemble de données acquises par le capteur MERIS embarqué sur ENVISAT entre 2005 et 2006. Elle a également été utilisée par l'INERIS pour générer l'inventaire d'émissions du projet CityZen sur la période allant de 1998 à 2007 à partir de l'inventaire EMEP (<https://wiki.met.no/cityzen/start>). Les inventaires ainsi obtenus ont été décrits, et leurs tendances annuelles comparées avec d'autres inventaires de la