

Modélisation inverse pour la qualité de l'air : éléments de méthodologie et exemples

Inverse modelling for air quality: aspects and applications

Marc BOCQUET*, Bruno SPORTISSE*

Résumé

L'objet de cet article est de donner quelques éléments méthodologiques pour la modélisation inverse des émissions en qualité de l'air : comment caractériser des émissions sur la base de données mesurées et de sorties de modèles numériques ? Trois exemples issus de travaux récents menés au sein du CEREAA, Laboratoire commun ENPC/EDF R&D, permettent d'illustrer ces thématiques : la modélisation inverse de radionucléides à petite échelle, la modélisation de précurseurs de l'ozone (NO_x) à l'échelle régionale (région de Lille) et l'identification d'une source accidentelle à l'échelle continentale (expérience ETEX). Il ne s'agit donc pas d'une revue exhaustive sur le sujet.

Mots clés

Identification de source de polluant. Dispersion atmosphérique. Qualité de l'air. Problèmes inverses.

Abstract

The objective of this article is to review some methodological aspects for inverse modelling of emissions in air quality: how to characterise emissions on the basis of observed data and model outputs? Three examples, provided by recent works carried out at CEREAA, Joint Laboratory ENPC/EDF R&D, illustrate these topics, inverse modelling of radionuclides at short scales, inverse modelling of NO_x emissions over Lille area in Northern France and identification of an accidental release at continental scale.

Keywords

Pollutant source identification. Atmospheric dispersion. Air quality. Inverse problems.

1. Contexte

Les modèles de qualité de l'air, qu'ils soient à petite échelle ou à échelle régionale/continentale, ont à présent atteint un haut degré de maturité. Les concentrations simulées, que ce soit pour des applications liées à la pollution photochimique ou à des risques industriels, sont capables de raisonnablement bien représenter les niveaux de concentrations observées (évolution temporelle, spatialisation), de sorte que ces modèles sont de plus en plus utilisés pour les études d'impact et dans un contexte opérationnel.

À petite échelle, les modèles sont en général dérivés d'une formulation gaussienne et sont analytiques. À échelle régionale/continentale, les modèles de chimie-transport permettent de simuler une discrétisation

numérique des équations de transport réactif. Dans tous les cas, les sorties des modèles sont en général des champs de concentration (le cas échéant des flux de dépôt), calculés en fonction des entrées des modèles (des bases de données, des données météorologiques, des émissions, des paramétrisations, etc.).

De nombreuses applications nécessitent néanmoins d'aller au-delà de la « simple » utilisation de modèles qui consiste à produire des cartes de concentrations de polluants sur la base de données, notamment d'un jeu d'émissions fourni par un inventaire ou une spécification d'un terme source. La problématique de la *modélisation inverse des émissions* constitue un bon exemple d'une utilisation plus sophistiquée des modèles : peut-on, et si oui comment, affiner la connaissance des émissions sur la base d'observations des concentrations ?

* Centre d'enseignement et de recherches en environnement atmosphérique (CEREAA), Laboratoire commun École nationale des Ponts et Chaussées/Électricité de France R&D – Cité Descartes, Champs-sur-Marne – F-77455 Marne-la-Vallée Cedex – France et Projet CLIME INRIA/ENPC. E-mails : marc.bocquet@cerea.enpc.fr, bruno.sportisse@cerea.enpc.fr

Cette question est pertinente pour au moins trois applications :

- dans de nombreux cas, les données d'émission sont incertaines : par exemple pour la photochimie, on estime la variance de la distribution (supposée log-normale) de probabilité des émissions de NO_x à 50 % ;
- dans le cas d'un accident industriel, la localisation même de la source (ponctuelle) peut être inconnue. Très souvent, même lorsque la source est bien localisée, elle est habituellement mal caractérisée : profil temporel des émissions, nature des polluants ;
- enfin, être capable d'affiner la connaissance des sources est d'un intérêt opérationnel direct. Qu'il s'agisse de surveiller l'application de réglementations contraignant les émissions (par exemple au niveau européen), ou bien de réaliser un diagnostic précoce lors d'une situation d'urgence (accident industriel).

Au-delà de ces applications, qui sont centrales pour le domaine de la qualité de l'air, la modélisation inverse s'applique également à l'estimation des flux de gaz à effet de serre comme le dioxyde de carbone ou le méthane, à l'échelle régionale et à l'échelle globale. C'est une approche complémentaire (dite *top-down*) de l'estimation de ces flux par inventaire (approche dite *bottom-up*), qui est donc cruciale pour une bonne appréciation de l'évolution future du climat [15]. En France, ces travaux sont notamment menés par le laboratoire LSCE, unité mixte du Commissariat à l'énergie atomique et du CNRS [18].

L'objectif de cet article est de présenter brièvement les méthodes habituellement mises en œuvre et qui relèvent, dans la terminologie de la modélisation géophysique, de *l'assimilation de données*. Trois applications permettront d'illustrer ces thèmes, en balayant les domaines de la photochimie et des risques industriels, les types de polluants (réactifs ou passifs) et les échelles (de l'échelle locale à l'échelle régionale puis continentale) :

- la première illustration concerne la dispersion d'une espèce passive (en l'occurrence un radionucléide) à petite échelle. Le modèle utilisé est un modèle gaussien pour le cas académique [10], un modèle à bouffées pour une application à des données de soufflerie [6] ;
- la seconde illustration est liée à la modélisation inverse des émissions de NO_x à l'échelle régionale (sur la région de Lille). Les paramètres modifiés sont relatifs à la distribution temporelle des émissions [11] ;
- le dernier exemple est lié à la localisation et à la caractérisation d'une source ponctuelle à l'échelle continentale. Les cas simulés correspondent à un accident hypothétique sur le parc des installations nucléaires civiles européennes, et à la campagne européenne ETEX [2, 7].

Un point important est bien entendu la capacité à estimer les incertitudes des résultats issus de la modélisation inverse. Nous montrerons à l'aide de ces exemples quelles techniques peuvent être employées à cette fin.

Cet article se veut pédagogique et écrit pour un public non averti. Nous avons fait néanmoins le choix d'utiliser le formalisme habituel, restreint au minimum requis. Cet article se fonde sur des travaux publiés par ailleurs dans des revues scientifiques internationales par les auteurs et sur le cours de l'École nationale supérieure des techniques avancées consacré à la modélisation inverse et à l'assimilation de données [14].

2. Quelques éléments méthodologiques

2.1. Modèle direct, modèle linéaire tangent, modèle adjoint

Dans toute la suite, $y = (y_1, y_2, \dots, y_m)$ désignera un ensemble de sorties d'un modèle de dispersion. Ces sorties sont calculées en fonction des entrées du modèle, notamment les émissions caractérisées par des paramètres $x = (x_1, \dots, x_n)$, via un modèle selon la relation :

$$y = f(x) \quad (1)$$

On parle classiquement de *modèle direct*. Notons que, en pratique, tout modèle numérique peut être représenté par cette relation fonctionnelle. Le schéma de principe d'un modèle de chimie-transport est donné dans la figure 1. Sur la base d'entrées comme les champs météorologiques (vitesses de vent, densité, variables décrivant l'eau atmosphérique), les flux d'émission et les conditions aux limites, le modèle résout la dispersion dans l'atmosphère (diffusion turbulente, transport par le champ de vent), les processus de perte (comme le dépôt sec ou le lessivage humide) et éventuellement les processus réactifs (liés à un mécanisme chimique). Dans le cas d'un radionucléide, les processus réactifs sont remplacés par la filiation radioactive. Dans le cas des aérosols, la dynamique des aérosols (coagulation, condensation, évaporation, nucléation, etc.) doit aussi être prise en compte.

Il est intéressant, notamment pour mener des études de sensibilité, de calculer les perturbations engendrées sur les sorties du modèle (δy) par une perturbation sur une entrée fixée (par exemple δx_1):

$$\delta y = \frac{\partial y}{\partial x_1} \delta x_1 \quad (2)$$

On parle classiquement de modèle *linéaire tangent*. Le point clé est que pour une perturbation d'une entrée fixée, on peut calculer les perturbations qui en résultent pour toutes les sorties.

À l'inverse, on peut être intéressé à calculer la perturbation pour une seule sortie, par exemple δy_1 , résultant d'une perturbation quelconque sur l'ensemble des entrées $\delta x = (\delta x_1, \dots, \delta x_n)$. Ceci revient alors à calculer :

$$\delta y_1 = \sum_{j=1}^n \frac{\partial y_1}{\partial x_j} \delta x_j \quad (3)$$

On parle alors généralement de *modèle adjoint*.

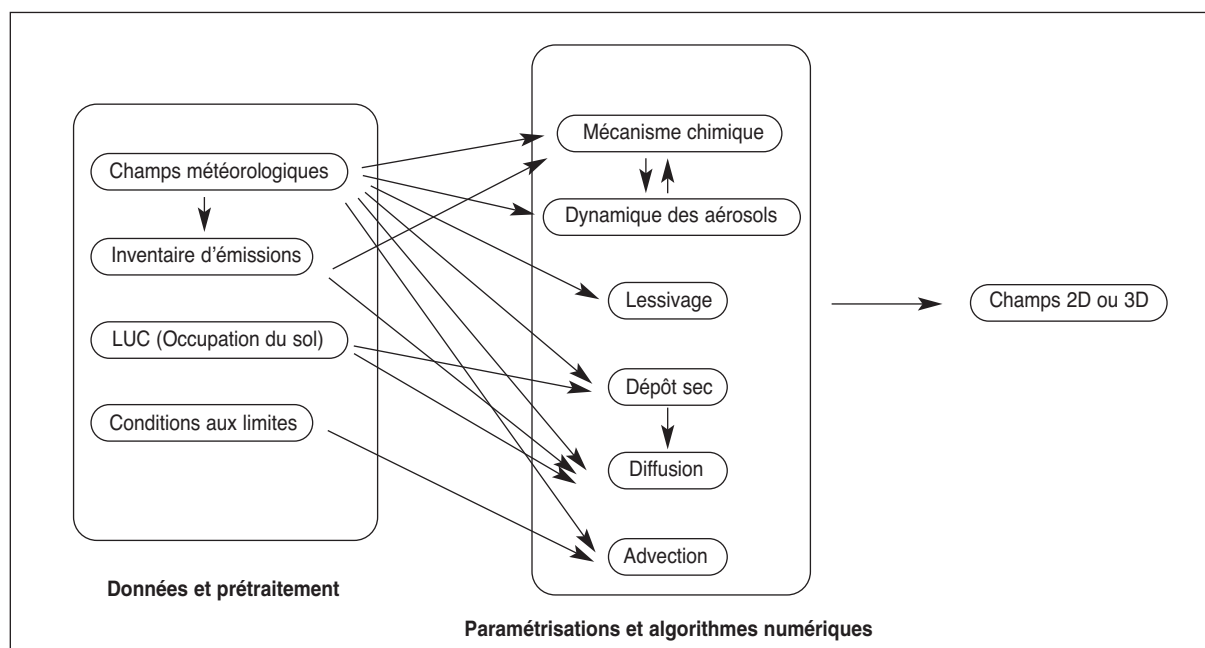


Figure 1.

Schéma de principe d'un modèle de chimie-transport à l'échelle régionale.

Schematic of chemistry and transport model at regional scale.

De manière algébrique, la matrice de sensibilité de l'ensemble des sorties par rapport à l'ensemble des entrées, $(\frac{\partial y_i}{\partial x_k})$, peut être calculée par colonne avec le modèle linéaire tangent, par ligne avec le modèle adjoint.

L'obtention des modèles linéaire tangent et adjoint pour un modèle de dispersion peut être un enjeu en soi. Un des outils puissants disponibles est l'utilisation d'un logiciel de *différenciation automatique* qui permet d'obtenir un modèle dérivé à partir du code initial [8].

2.2. Problème inverse

On suppose à présent donné un ensemble d'observations (des mesures) des sorties du modèle, que l'on note en général $\mu = (\mu_1, \dots, \mu_p)$. Ces mesures correspondent à $h(y)$ où h est, ce que l'on appelle communément, l'*opérateur d'observation*. Par exemple, si l'observation est ponctuelle en espace et en temps, h correspond à l'extraction de la sortie du modèle à une position et à un temps fixés. Si la mesure correspond à une moyenne temporelle, les sorties des modèles doivent être moyennées de manière similaire en temps, etc.

Si le modèle était parfait et s'il n'y avait pas d'erreurs de mesures, on aurait exactement :

$$\mu = h(f(x)) \quad (4)$$

pour les entrées x utilisées. L'écart constaté entre les mesures μ et l'observation des sorties du modèle $h(f(x))$ apporte une information qui peut être utilisée pour inverser les émissions.

Une méthode de modélisation inverse va alors consister à minimiser cet écart relativement aux

valeurs des paramètres d'entrée x . On définit en général ce qui est classiquement appelé une fonction coût, $J(x)$, fonction des paramètres d'entrée x :

$$J(x) = \sum_{j=1}^p \alpha_j (\mu_j - (h(f(x)))_j)^2 + \sum_{k=1}^n \beta_k (x_k - x_{bk})^2 \quad (5)$$

avec $\alpha_j > 0$ des poids qui correspondent à la confiance accordée aux observations indicées par j . Le deuxième terme éventuel de la fonction coût est relatif à l'information *a priori* portant sur les paramètres de la source x_k . Selon la terminologie de l'assimilation de données, x_{bk} représente une *ébauche* du paramètre x_k (par exemple donnée par un inventaire d'émissions).

L'utilisation des fonctions de coût quadratique, qui sous-tendent des hypothèses gaussiennes en assimilation de données en météorologie est exposée par O. Talagrand [17]. L'utilisation de telles fonctions de coût en modélisation inverse et le parallèle que l'on peut en faire avec les techniques de l'assimilation de données ont été formalisées par C.D. Rodgers [16].

De nombreuses méthodes sont utilisables pour minimiser J . Dans certains cas, des solutions analytiques (exactes) peuvent être calculées, mais, en général, un algorithme de minimisation doit être utilisé.

2.2.1. Cas général

La valeur d'entrée recherchée (x^*) , en supposant qu'elle est unique, vérifie bien sûr $\frac{\partial J}{\partial x}(x^*) = 0$. Dans le cas le plus général, un algorithme de minimisation va permettre d'approcher de manière itérative cette valeur en calculant une suite de valeurs approchées selon :

$$x_{k+1}^* = x_k^* - \eta \frac{\partial J}{\partial x}(x_k^*) \quad (6)$$

avec $\eta > 0$ un paramètre numérique (méthode du gradient).

Un point clé est bien sûr de pouvoir calculer de manière aisée le gradient $\frac{\partial J}{\partial x}$ d'une sortie J en fonction de toutes les entrées. Comme on a pu le voir précédemment, c'est là qu'intervient le modèle adjoint.

2.2.2. Cas passif ou réactif linéaire

Dans le cas d'un traceur passif ou de radio-nucléides, ou plus généralement de polluants réactifs dotés d'une chimie du premier ordre au plus, f est linéaire. Pour les observables les plus courantes, telle une concentration, mais aussi un flux de dépôt, une dose radiologique, etc., $x \rightarrow h(f(x))$ l'est également. Il en résulte que $\frac{\partial J}{\partial x}$ ne dépend pas de x et son calcul

peut alors précéder la minimisation. Lorsque le nombre d'observations est significativement inférieur aux nombres de variables d'état, il est plus intéressant de calculer la matrice ligne par ligne, c'est-à-dire de calculer les solutions adjointes correspondant à chacune des observations [13]. Celles-ci peuvent être calculées de façon exacte à l'aide du modèle adjoint, ou bien approximativement en réutilisant astucieusement le modèle direct en inversant le sens du temps, en inversant le sens du vent, en conservant la diffusion turbulente (qui est auto-adjointe), en transposant la matrice cinétique décrivant la chimie du premier ordre et les processus de pertes comme le dépôt ou le lessivage humide.

2.3. Difficultés de la modélisation inverse

Plusieurs difficultés peuvent, selon les cas, rendre non-triviale la modélisation inverse en qualité de l'air :

- d'abord le caractère spatio-temporel de la modélisation inverse la différencie de problèmes inverses plus simples. La dimension importante de l'espace des états et la complexité des phénomènes physico-chimiques se traduisent par des coûts de calcul importants ;
- la dispersion atmosphérique, notamment au travers de la diffusion turbulente, mais aussi par la chimie, entraîne une perte d'information sur les émissions au fur et à mesure de l'évolution du système. Cela signifie que la modélisation inverse est physiquement mal conditionnée [3] ;
- il est de nombreux cas où le nombre d'observations est inférieur au nombre de variables à reconstruire. Le problème est alors mal posé. Des techniques de régularisation motivées du point de vue physique permettent de contourner cet obstacle. Le terme d'ébauche présent dans la fonction coût peut ainsi être vu comme un terme de régularisation ;
- enfin, la qualité du modèle direct affecte la qualité de l'inversion, puisque le système d'inversion ne peut que s'appuyer sur la réalité approximative du modèle (erreur modèle). Parmi les sources d'erreurs modèle,

on range souvent les erreurs de représentativité (lorsque qu'une concentration en une station est censée représenter la concentration moyenne dans une maille du modèle de plusieurs dizaines de kilomètres de côté). Dans les inversions de sources accidentelles, c'est une difficulté majeure, même si elle est circonscrite et indépendante des autres sources d'erreur.

2.4. Développements méthodologiques récents

Le cas d'un accident industriel se caractérise en général par un nombre limité d'observations souvent éparpillées. Ceci se distingue de la surveillance photo-chimique puisque les réseaux de mesure dédiés fournissent, par exemple, des concentrations d'ozone sur une base horaire. De plus, l'information *a priori* est différente puisqu'il n'existe pas en général de base de données (analogue à un cadastre d'émission) pour un accident. En particulier une estimation *a priori* comme les x_{bi} n'existe pas. En revanche une information comme la positivité du terme source, triviale à énoncer, mais beaucoup moins à prendre effectivement en compte, se révèle cruciale dans la performance de la reconstruction.

Nous avons récemment montré [1] que l'on pouvait prendre en compte ce type d'information (positivité, extension du support des émissions, bornes pour l'amplitude des émissions, etc.) en généralisant la fonction coût construite sur les moindres carrés. Il s'agit donc d'une régularisation alternative à l'ébauche introduite dans l'équation (5). La méthode est flexible en ce sens que pour chaque problème de reconstruction, on peut construire une fonction coût spécifique tenant compte des données *a priori* du problème. La construction repose sur le principe de *maximum d'entropie*, ce qui garantit son optimalité du point de vue de la théorie de l'information (on maîtrise l'apport de l'information). Cette approche présente également des atouts numériques car la minimisation de la fonction coût effective peut être menée aussi bien dans l'espace des états que dans l'espace des observations (approche duale). Enfin, parce qu'elle conduit à des fonctions de coût convexes, une unique solution est garantie et le minimum sera à coup sûr atteint lors de la minimisation itérative.

Par exemple, si l'on suppose que les x_k représentent les valeurs d'une source de pollution accidentelle, dont on imagine que la distribution *a priori* suit une loi de Poisson de paramètres (θ_k, m) (ce qui garantit en particulier la positivité de la source), alors une fonction de coût adaptée formulée dans l'espace des états est :

$$J = \sum_{j=1}^p \alpha_j (\mu_j - [h(f(x))])^2 + \sum_{k=1}^n \frac{x_k}{m} \ln \frac{x_k}{m\theta_k} + \theta_k - \frac{x_k}{m}. \quad (7)$$

Cette fonction coût n'est donc plus quadratique. Il est également possible de construire des fonctions coût qui correspondent aux cas de sources localisées en espace, possédant ou non une extension temporelle, ce qui permet de contraindre le problème inverse [7].

L'approche par le maximum d'entropie se généralise sans effort au transport réactif, dont la photochimie. Toutefois la fonction coût ne peut alors s'exprimer que dans l'espace des états, et non plus dans l'espace dual des observations. Cette contrainte est à relativiser puisqu'en photochimie, il n'est pas rare que le nombre d'observations soit supérieur aux nombres de paramètres à inverser. Dans le cas où les observations sont nettement plus nombreuses, le terme d'entropie, vu comme une régularisation, perd de son intérêt.

3. Quelques illustrations

On donne à présent quelques éléments sur trois applications qui illustrent ces approches, avec notamment un accent sur la question clé de la robustesse des résultats.

3.1. Dispersion d'un traceur passif à petite échelle

3.1.1. Contexte

Dans le cadre de la prévision de la dispersion de radionucléides à petite échelle, consécutive à un accident, le Centre technique de crise de l'Institut de radioprotection et de sûreté nucléaire (IRSN) met en œuvre des modèles numériques fondés sur des approches gaussiennes. Il peut être évidemment pertinent de coupler résultats de modèles et données mesurées (par des réseaux déployés à proximité des sites) afin de requalifier le terme source, dans l'objectif d'améliorer les résultats de la prévision numérique. Celui-ci est en effet potentiellement mal connu, par exemple pour la partie diffuse des émissions (liée à la porosité de l'enceinte de confinement).

Deux séries de travaux ont été menées au sein du projet MIRA (Modélisation inverse d'un rejet atmosphérique), commun avec l'IRSN. Des expériences numériques [10] ont permis de définir des méthodes et l'application aux données de soufflerie de l'École Centrale de Lyon pour la maquette de la centrale du Bugey ont permis d'évaluer la qualité du système [6].

3.1.2. Expériences numériques

L'approche variationnelle décrite dans la section 2.2 (moindres carrés) a été mise en œuvre par D. Quélo *et al.* [10], appliquée à un simple modèle gaussien rectiligne, afin de retrouver des paramètres du rejet (débit, partie diffuse). Un point méthodologique clé qui a été étudié est l'évaluation de la robustesse des résultats de l'inversion à des sources d'incertitudes. Par exemple, certains paramètres physiques ne sont pas inversés mais peuvent être mal connus : la question posée est alors d'estimer la sensibilité du résultat de l'inversion à ces paramètres. D'une certaine manière, ceci permet d'estimer la confiance que l'on peut accorder à ces paramètres.

Une approche systématique possible est alors le recours aux méthodes dites du « second ordre » qui reviennent à calculer la dérivée seconde (c'est en réalité une matrice) de la fonction coût J . Si l'on note q

les paramètres physiques incertains, la fonction coût est aussi une fonction de ces paramètres et peut s'écrire $J(x, q)$. Le paramètre de source optimal, x^* , est défini par $\nabla_x J(x^*, q)$ et est implicitement une fonction de q . Sa sensibilité par rapport à p , $\frac{\partial x^*}{\partial q}$ peut se calculer à l'aide de $\frac{\partial^2 J}{\partial q^2}$.

L'utilisation de cette approche par D. Quélo *et al.* [10] a permis d'évaluer l'impact des sources d'incertitudes (paramètres météo, paramétrisation physique) sur le débit optimisé de la source. Les incertitudes sur la vitesse de dépôt sont ainsi apparues comme ayant le plus d'impact.

3.1.3. Applications à des données de soufflerie

Nous avons confronté cette approche à des données obtenues dans une expérience de soufflerie. À cet effet, une maquette de la centrale EDF du Bugey a été construite, puis testée sous deux conditions de vent dans la soufflerie de l'École Centrale de Lyon. Un traceur a été émis en continu en deux emplacements de la maquette représentant deux des quatre tranches du site, et des mesures de concentration ont été réalisées dans la veine [9].

La puissance informatique actuelle aidant, il peut être judicieux de substituer des modèles de dispersion locale plus évolués aux modèles gaussiens, en particulier des modèles de bouffées gaussiennes, ou des modèles lagrangiens et semi-lagrangiens. C'est pourquoi nous avons choisi un modèle à bouffées gaussiennes. Le modèle f n'est plus une expression analytique simple à manipuler, mais un code numérique dont l'adjoint est calculé de façon automatique.

Les paramètres pertinents utilisés dans ce modèle sont le débit de la source, les deux composantes du vent horizontal, et deux paramètres de diffusion turbulente contrôlant l'évolution temporelle des bouffées. Ils ont été inversés par l'assimilation variationnelle des concentrations mesurées [6].

Sur la figure 2 sont tracés trois profils de concentration. Ce sont des coupes réalisées perpendiculairement à l'axe du vent, permettant de suivre la dispersion latérale du polluant. Le premier profil illustre la comparaison des sorties du modèle direct sans inversion, aux données. Le deuxième illustre la comparaison des sorties du modèle après optimisation par inversion des paramètres de vents et débit, aux observations. Le troisième illustre la comparaison des sorties du modèle après optimisation par inversion des paramètres de vents et débit et de turbulence, aux observations.

La concordance est satisfaisante, mais des progrès sont à attendre d'une complexification du modèle (prise en compte de l'orographie, modèles à bouffées semi-lagrangiennes).

On attend de l'implémentation opérationnelle de ces modèles et méthodes d'inversion, une évaluation rapide du terme source mais aussi une estimation de la direction prise par le panache.

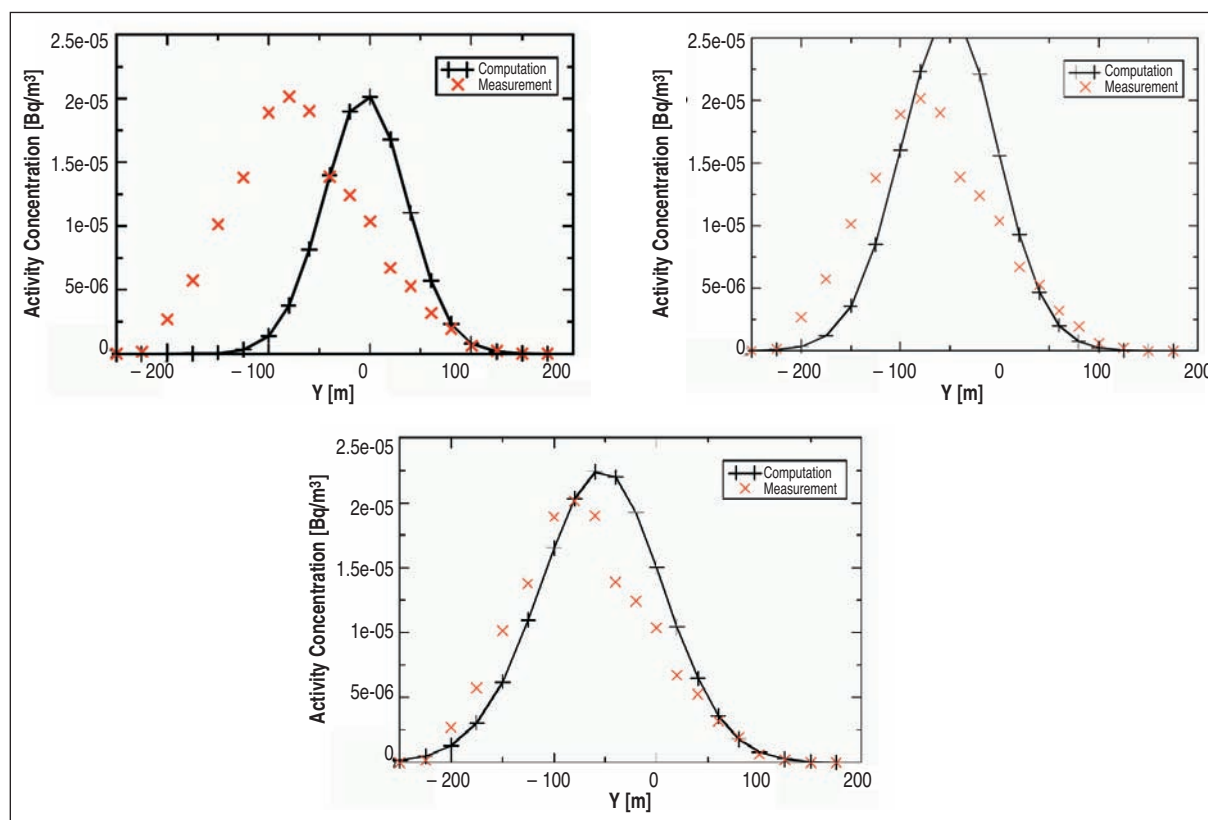


Figure 2.

Comparaison des données à 450 mètres (échelles réelles) au nord du rejet sur la maquette du Bugey.

À gauche, les données sont comparées à la simulation directe.

À droite, les données sont comparées à la simulation reconstruite après inversion du vent et du débit.

Au centre, les données sont comparées à la simulation reconstruite après inversion du vent, du débit et des deux paramètres de turbulence.

Data comparison 450 metres (real scale) North of the release, on the scale model.

On the left, data are compared to the simulation results.

On the right, data are compared to the simulation results after wind and source rate have been inverted.

Centre: the data are compared to the simulation results after wind, source rate, and two turbulence parameters have been inverted.

3.2. Photochimie à l'échelle régionale

3.2.1. Contexte

La qualité de la modélisation photochimique (ozone, oxydes d'azote) à l'échelle régionale est fortement liée à la qualité des inventaires d'émission utilisés. Or, ceux-ci sont entachés d'erreurs, que ce soit en terme de distribution spatiale, de distribution temporelle ou de spéciation chimique. Le recours à la modélisation inverse peut alors permettre d'évaluer l'adéquation des inventaires à la prévision numérique (dont les résultats peuvent être comparés à des concentrations observées).

Dans le cadre d'une étude d'évaluation de l'impact sur la qualité de l'air de divers scénarios de transport pour la région de Lille (projet du programme Prédit), nous avons appliqué une méthode de modélisation inverse.

3.2.2. Modélisation inverse

de la distribution temporelle d'oxydes d'azote

L'application des techniques d'assimilation de données et de modélisation inverse à la photochimie

à l'échelle régionale a fait l'objet de nombreux travaux. On citera notamment les travaux de Hendrik Elbern [19]. Dans l'exemple qui suit, on étudie la modélisation inverse des oxydes d'azote à l'échelle régionale, avec une application sur la région de Lille.

Des tests de sensibilité préliminaires ont montré, d'une part que les émissions d'oxydes d'azote avaient le plus fort impact sur les concentrations d'ozone (en comparaison de celles des composés organiques volatiles), d'autre part que la distribution temporelle des oxydes d'azote jouait un rôle clé. Une approche de modélisation inverse a été appliquée à la distribution temporelle des oxydes d'azote pour une semaine de mai 1998. Le modèle de chimie-transport utilisé, le modèle Polair3D sur la plate-forme *Polyphemus**, avait en effet été validé sur l'année 1998 au préalable. L'utilisation des distributions temporelles optimisées pour les deux semaines qui suivent la semaine d'optimisation ont également significativement amélioré les prévisions d'ozone (les erreurs quadratiques moyennes de comparaison aux observations des réseaux de mesure locaux diminuent, par rapport à la simulation sans distribution optimisée).

* <http://cereea.enpc.fr/polyphemus>

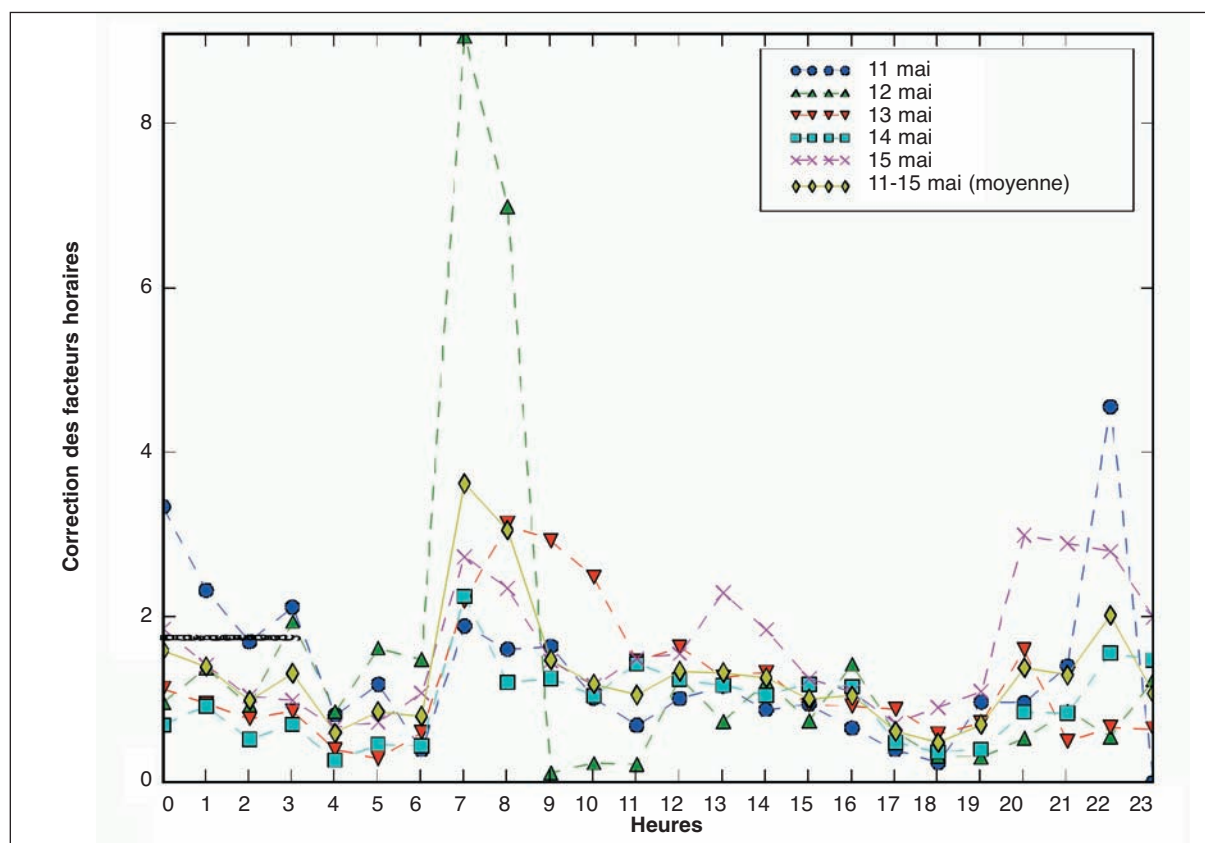


Figure 3.

Facteur correctif horaire à appliquer aux émissions de NO_x , calculé par modélisation inverse.

Correction factor on the NO_x emissions, computed through inverse modelling.

3.2.3. Évaluation de la robustesse de la distribution optimisée

À l'instar des applications précédentes, il peut être pertinent d'évaluer la sensibilité à des paramètres incertains. Contrairement au cas gaussien, une approche de second ordre (qui revient, rappelons-le, à dériver deux fois la fonction coût) est lourde à mettre en pratique. L'approche pragmatique qui a été retenue a alors été de réaliser l'inversion en perturbant les paramètres jugés incertains puis de comparer les résultats de l'inversion à ceux de l'inversion de référence. Parmi les paramètres étudiés, citons par exemple les valeurs de la diffusion verticale, des constantes cinétiques, des constantes photolytiques ou des vitesses de dépôt. Au final, l'inversion réalisée apparaît comme relativement robuste (sa forme qualitative reste inchangée avec la nécessité d'augmenter les émissions en début de journée).

3.4. Localisation d'un terme source ponctuel à l'échelle continentale : campagne ETEX

3.4.1. Contexte

En 1994, s'appuyant sur le *Joint Research Centre* à Ispra, la Commission européenne a organisé une expérience de dispersion atmosphérique à l'échelle

de l'Europe. 340 kilogrammes d'un hydrocarbure volatil, non lessivable par la pluie et de dépôt sec négligeable, ont été relâchés pendant 12 heures à Monterfil près de Rennes. 168 stations météorologiques ont alors mesuré les concentrations de ce traceur pendant plusieurs jours.

Cette campagne nommée ETEX (*European Tracer Experiment*) a servi de base à des exercices d'inter-comparaison de modèles de dispersion. Les données recueillies ont récemment servi aux premiers essais de méthodes inverses pour la reconstruction des sources de traceur [2, 4, 5, 21].

3.4.2. Profil temporel

Dans le premier exemple (basé sur ETEX-I), on cherche à reconstruire le profil temporel de la source en utilisant 230 mesures réelles, connaissant l'emplacement de la source. Pour cela, les solutions adjointes associées à ces mesures ont été calculées de façon approchée à l'aide du modèle Polair3D. La technique de régularisation utilisée a été celle fondée sur le maximum d'entropie. En particulier il a été tenu compte de la positivité de la source. En pratique, plutôt que d'utiliser une fonction de coût quadratique, on utilise une fonction de coût du type (7) (sur laquelle on remarque clairement que la source ne peut prendre que des valeurs positives).

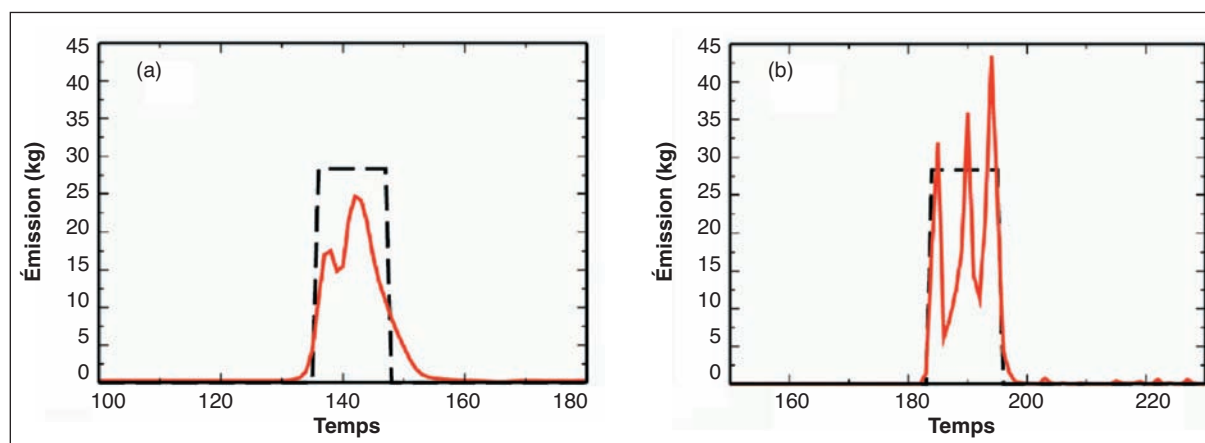


Figure 4.

À gauche (a), reconstruction locale (en trait plein) du profil d'émission pour ETEX-I.
Le profil réel (supposé) est représenté en tirets.

À droite (b), trace dans la maille de Monterfil de la reconstruction tridimensionnelle.

On the left (a), local reconstruction of the ETEX-I release rate.

The true profile is represented by a dashed line.

On the right (b), trace of the 3D reconstruction in the Monterfil grid cell.

La résolution temporelle de l'inversion est horaire. 316 kilogrammes de traceur ont ainsi été retrouvés. Le profil reconstruit est représenté sur la figure 4 (a).

Les résultats produits par cette approche sont cohérents avec les résultats obtenus par Robertson et Langner [12], puis Seibert et Stohl [21], utilisant une fonction de coût quadratique, avec ou sans terme de régularisation.

3.4.3. Reconstruction tridimensionnelle

Des expériences jumelles à ETEX-I ont été menées pour tester la validité et la portée de ces techniques de reconstruction, sur la base d'une reconstruction tridimensionnelle (la dimension temporelle et les deux dimensions spatiales du sol où se trouvent les sources). Même pour une résolution très grossière (jusqu'à $4^\circ \times 4^\circ$), le nombre de variables indéterminées peut atteindre plusieurs dizaines de milliers. La prise en compte de l'information *a priori*, telle que mise en œuvre dans les méthodes fondées sur le maximum d'entropie permet de compenser en partie le manque d'information dû à un nombre limité de mesures.

Des mesures simulées en correspondance avec les mesures validées d'ETEX-I dans un rayon de 1 000 km autour de la source, au nombre de 1 288, ont été utilisées. Elles ont été perturbées par un bruit de nature gaussienne d'écart-type représentant 20 % de la mesure. Une masse totale de 331 kg a été reconstruite, dont 226 kg imputables à la maille de Monterfil.

À nouveau, une fonction de coût du type (7) est utilisée, avec comme variables les masses émises dans chacune des mailles spatio-temporelles. Une reconstruction utilisant une fonction de coût quadratique du type (5) donne des résultats bien moins satisfaisants.

Sur la figure 4 est représentée la source reconstruite intégrée en temps. La maille de Monterfil est correctement identifiée, mais la maille adjacente à l'est n'est pas exclue. La trace de cette source reconstruite dans la maille de Monterfil est tracée sur la figure 4 (b).

Le but avoué d'une reconstruction tridimensionnelle d'un événement accidentel semble encore un objectif éloigné dans un contexte opérationnel, notamment parce que les mesures sont bruitées et davantage encore parce que le modèle sera toujours entaché d'erreur. Toutefois, cet exemple montre qu'un choix judicieux de techniques d'inversion permet de réduire le nombre d'observations nécessaires à l'inversion, à qualité des mesures et modèle fixés.

Ce type de technique a notamment été appliqué sur les mesures d'activité volumique de Césium 137, Césium 134 et Iode 131 obtenues du réseau REM pendant l'accident de Tchernobyl [20] avec une estimation de la source proche des estimations antérieures.

4. Conclusions et perspectives

La modélisation inverse de sources ponctuelles ou d'émissions surfaciques devient possible pour des modèles de dispersion atmosphérique aux échelles locale et régionale, pour des espèces inertes ou réactives. Les méthodes mises en œuvre s'appuient sur une base théorique solide.

Dans cet article, nous avons brièvement rappelé le cadre méthodologique et illustré ces thématiques par quelques travaux récents menés au CERE, Laboratoire commun à l'École nationale des Ponts et Chaussées et EDF R&D.

Comme il a été précisé, l'application de la modélisation inverse des sources en chimie atmosphérique

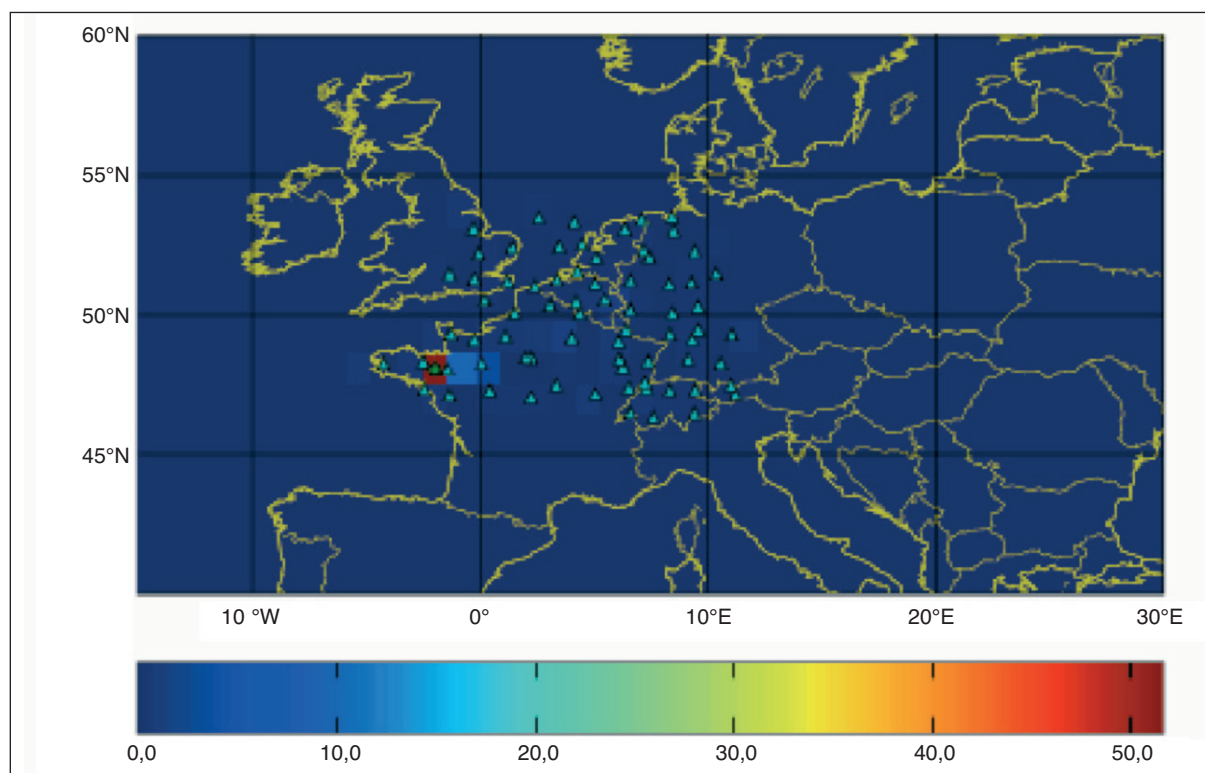


Figure 5.

Reconstruction tridimensionnelle pour une expérience jumelle d'ETEX, première campagne.

Les débits massiques de traceurs sont intégrés en temps et sont en ng.m^{-3} .

Les triangles représentent les stations de mesures utilisées pour cette reconstruction.

Le disque symbolise le site de Monterfil.

Three-dimensional reconstruction for a twin ETEX-I experiment.

The tracer released mass is integrated in time and is given in ng.m^{-3} .

Triangles represent the monitoring stations used in the reconstruction.

This disk indicates Monterfil site.

dépasse le cadre de ces exemples. L'une des applications majeures est l'estimation des flux de carbone pour le contrôle des émissions des gaz à effet de serre. On peut aussi utiliser la modélisation inverse pour améliorer la connaissance des paramètres incertains dans les modèles (voir par exemple le cas du mercure gazeux et des conditions aux limites du domaine de simulation [22]).

La prise en compte des incertitudes dans la modélisation inverse est un autre thème à explorer, la question plus générale étant de pouvoir estimer la confiance que l'on peut accorder aux résultats de l'inversion. Ce point est évidemment crucial pour une application à des fins réglementaires de ces approches.

Les applications de la modélisation inverse à la chimie atmosphérique ne font que débuter. Avec l'amélioration des modèles, de la quantité d'observations et de la diversification de leurs sources (satelli-

taires), et des progrès méthodologiques, on peut espérer que l'approche *top-down* soit une réelle source d'information et concurrence l'approche *bottom-up* dans l'inventaire des sources et flux d'émissions.

Remerciements

Nous remercions nos collègues Denis Quélo, Monika Krysta et Vivien Mallet (CEREA) dont les travaux de thèse ont permis d'illustrer les applications. Nous remercions également Olivier Isnard (IRSN), une partie des travaux ayant été initiés dans le cadre du projet commun entre l'IRSN et le CEREA sur la modélisation inverse d'un rejet atmosphérique (MIRA). Nous remercions enfin Jean-Pierre Issartel (CEREA puis DGA) pour les échanges autour de la problématique de la reconstruction.

Nous remercions Karine Barrès pour la mise en forme de l'article.

Références

1. Bocquet M. Reconstruction of an atmospheric tracer source using the principle of maximum entropy. I: Theory. *Q.J.R. Meteorol. Soc.* 2005 ; 131 : 2191-208.
2. Bocquet M. Reconstruction of an atmospheric tracer source using the principle of maximum entropy. II: Applications. *Q.J.R. Meteorol. Soc.* 2005 ; 131 : 2209-24.
3. Enting IG. Inverse Problems in Atmospheric Constituent Transport. Cambridge Atmospheric and Space Science Series. Dessler AJ, Houghton JH, Rycroft MJ (Eds.) 2002.
4. Issartel JP, Baverel J. Inverse transport for the verification of the Comprehensive Nuclear Test Ban Treaty. *Atmos. Chem. Phys.* 2003 ; 3 : 475-86.
5. Issartel JP. Rebuilding sources of linear tracers after atmospheric concentration measurements. *Atmos. Chem. Phys.* 2003 ; 3 : 2111-25.
6. Krysta M, Bocquet M, Sportisse B, Isnard O. Data Assimilation for Short-range Dispersion of Radionuclides: an Application to Wind Tunnel Data. *Atmospheric Environment* 2006 ; 40 : 7267-79.
7. Krysta M, Bocquet M. Source reconstruction of an accidental radionuclide release at European scale. À paraître dans *Q.J.R. Meteorol. Soc.*, 2007.
8. Mallet V, Sportisse B. 3-D chemistry-transport model Polair3D: numerical issues, validation and automatic-differentiation strategy. *Atmos. Chem. Phys. Discuss.* 2004 ; 3 : 1371-92.
9. Méjean P. Dispersion atmosphérique sur le site de la centrale EDF du Bugey – Essais en soufflerie. Rapport LMFA, Lyon, France. 2005.
10. Quélo D, Sportisse B, Isnard O. Data assimilation for short-range dispersion of radionuclides: a case study for second-order sensitivity. *J. Environ. Radioactivity* 2005 ; 84 : 393-408.
11. Quélo D, Mallet V, Sportisse B. Inverse modelling of NO_x emissions at regional scale over Northern France. Preliminary investigation of the second-order sensitivity. *J. Geophys. Res.* 2005 ; 110 (D24310).
12. Robertson L, Langner J. Source function estimate by means of adjoint variational data assimilation applied to the ETEX-I tracer experiment. *Atmos. Environ.* 1998 ; 32 (24) : 4219-25.
13. Uliasz M. Application of the Perturbation Theory to the Sensitivity Analysis of an Air Pollution Model. *Z. Meteor.* 1983 ; 33 (6) : 355-62.
14. Bocquet M, Mallet V, Sportisse B. Assimilation de données et modélisation inverse : applications à la dispersion atmosphérique. Cours de l'École nationale des sciences et techniques avancées (ENSTA).
15. Gurney KR, Law RM, Denning AS, Rayner PJ, Baker D, Bousquet P, Bruhwiler L, Chen YH, Ciais P, Fan S, Fung IY, Gloor M, Heimann M, Higuchi K, John J, Maki T, Maksyutov S, Masarie K, Peylin P, Prather M, Pak BC, Randerson J, Sarmiento J, Taguchi S, Takahashi T, Yuen CW. Towards robust regional estimates of CO₂ sources and sinks using atmospheric transport models. *Nature* 2002 ; 415 : 626-30.
16. Rodgers CD. Inverse Methods For Atmospheric Sounding, Theory and Practice. 2000. Series on Atmospheric, Oceanic and Planetary Physics – Vol. 2, World Scientific.
17. Talagrand O. Assimilation of Observations, an Introduction. *Journal of the Meteorological Society of Japan* 1997 ; 75 : 191-209.
18. Bousquet P, Ciais P, Peylin P, Ramonet M, Monfray P. Inverse modelling of annual atmospheric CO₂ sources and sinks 1. Method and control inversion. *J. Geophys. Res.* 1999 ; 104 (D21) : 26161-78, 10.1029/1999JD900342.
19. Elbern H, Schmidt H. Ozone episode analysis by four-dimensional variational chemistry data assimilation. *J. Geophys. Res.* 2001 ; 106 : 3569-90.
20. Davoine X, Bocquet M. Inverse modelling-based reconstruction of the Chernobyl source term available for long-range transport. *Atmos. Chemis. Phys. Discuss.* 2007 ; 7 : 1-43. À paraître dans *Atmos. Chemis. Phys.*
21. Seibert P, Stohl A. Inverse modelling of the ETEX-1 release with a Lagrangian particle model. 2000. Proceedings of the Third GLOREAM Workshop, Ischia, Italy, September 1999.
22. Roustan Y, Bocquet M. Inverse modelling for mercury over Europe. *Atmos. Chemis. Phys.* 2006 ; 6 : 3085-98.