

ARTICLES

Étude d'un épisode photochimique à l'aide d'un modèle méso-échelle et de mesures intensives sur la région de Grenoble

Study of a photochemical episode over the Grenoble area using a mesoscale model and intensive measurements

Olivier COUACH*, Ioan BALIN*, Rodrigo JIMENEZ*, Silvan PEREGO**, Frank KIRCHNER*, Pablo RISTORI***, Valentin SIMEONOV*, Philippe QUAGLIA*, Véronique VESTRI****, Alain CLAPPIER*, Bertrand CALPINI*, Hubert van den BERGH*

Résumé

La ville de Grenoble, située au carrefour de trois vallées, est systématiquement soumise à des périodes de smog estival avec de fortes concentrations en ozone (O_3). Au cours de l'été 1999, l'Association pour le contrôle et la préservation de l'air dans la région grenobloise (ASCOPARG) et l'École Polytechnique Fédérale de Lausanne (EPFL) ont mené conjointement une campagne de mesures en déployant, durant un mois, un réseau de mesures au sol renforcé par des moyens de mesures à la verticale. Deux périodes d'observations intensives (POI) ont eu lieu, la première fin juillet, et la deuxième début août. Les simulations ont été réalisées pour la première POI (24-27 juillet) avec le modèle METeorological PHOtochemistry MODeL (METPHOMOD) utilisant le mécanisme chimique Regional Atmospheric Chemistry Mechanism (RACM). Une technique de nesting one-way est utilisée avec une grande grille de 198 km de côté et une résolution de 6×6 km et une petite grille de 78×68 km avec une résolution de 2×2 km. À la verticale, 24 niveaux sont pris en compte jusqu'à 8 000 m. Au sol, les champs de vents, les concentrations d' O_3 et de dioxyde d'azote (NO_2) sont bien reproduits par le modèle et mettent en évidence le déplacement horizontal du panache d' O_3 vers le sud avec un maximum d' O_3 de 95 ppb. Pour la verticale, les mesures et les simulations montrent une couche de mélange convective (CMC) supérieure à 2 000 m, le transport horizontal du panache dans la CMC et la formation de la couche réservoir d' O_3 . La CMC est donc plus haute en terrain de montagne qu'en plaine.

Une stratification verticale spécifique de l'atmosphère, suivant trois couches, a été mise en évidence lors de cet épisode photochimique sur Grenoble. Une simulation sans émissions sur le petit domaine de calcul a permis d'évaluer la production locale d' O_3 de la ville à 32 ppb, soit un tiers de la concentration maximale mesurée et simulée dans le sud de l'agglomération.

* Laboratoire de Pollution de l'Air et des Sols (LPAS), École Polytechnique Fédérale de Lausanne (EPFL), 1015 Lausanne, Suisse, <http://dgrwww.epfl.ch/PAS/>

** IBM Suisse, Altstetterstrasse 124, 8010 Zurich, Suisse.

*** CEILAP (CITEFA-CONICET), Zufriategui 4380 (1603) Villa Martelli, Argentina.

**** Association pour le contrôle et la préservation de l'air dans la région grenobloise (ASCOPARG) 44, avenue Marcelin Berthelot, BP 2734, 38037 Grenoble Cedex 2, France.

Correspondance : olivier.couach@epfl.ch, Fax ++ 41 21 693 51 45, Tél. ++ 41 21 693 61 38.

Abstract

The Grenoble metropolitan area located in the French Alps with more than 400 thousand inhabitants suffers from periods of high ozone (O_3) concentrations in summertime. Grenoble is moreover located in the Y shaped convergence of three deep valleys with surrounding mountains up to 3 000 m above sea level (asl) leading to a very complex wind pattern. During summer 1999, a major field campaign GRENOBLE PHOTOCHEMISTRY (GRENOPHOT) involving standard ground based stations, LIDAR, aircraft, DOAS, microwave windprofilers was carried out in order to obtain the measurements needed for model validation. The air quality model METEOROLOGICAL PHOTOCHEMISTRY MODEL (METPHOMOD) developed at the University of Bern and at the Swiss Federal Institute of Technology at Lausanne, was used to investigate the dynamic characteristics of air pollution in the Grenoble area during GRENOPHOT. The lumped chemical mechanism Regional Atmospheric Chemistry Mechanism (RACM) was used for the calculation. A one-way nesting technique was used in which the large grid is a squared 198 km one with a grid resolution of 6×6 km and the small one is a rectangular 78×68 km with a grid resolution of 2×2 km. There are 24 vertical levels up to 8 000 m asl. The meteorological and chemical simulations were validated with ground and vertical profiles measurements performed during the Intensive Observation Period (IOP) July, 25-27, when the O_3 concentrations reached up to 95 ppb. Both the spatial as well as the temporal variabilities of the simulated O_3 concentrations correspond reasonably well to the measured values. They caught the O_3 plume south of Grenoble. The model results indicate a lower Planet Boundary Layer (PBL) height than the LIDAR observed. The PBL calculated by the model is about 2 100 m, whereas the LIDAR indicates about 2 400 m. The results show that the PBL in mountain terrain is higher than those found over flat terrain.

A specific vertical stratification of the atmosphere at day and night time is observed during typical photochemical episodes. Highest O_3 values appear in the south at 25 km downwind the city center, and the results show that about 32 ppb of fresh O_3 are generated in the Grenoble plume.

Introduction

La loi sur l'air du 30 décembre 1996 oblige les zones urbaines françaises de plus de 100 000 habitants à surveiller, analyser et informer la population sur l'état de la qualité de l'air qu'elle respire. Durant les périodes estivales, la ville de Grenoble et ses alentours sont exposés à des périodes de fortes concentrations d'ozone (O_3). L'Association pour le contrôle et la préservation de l'air dans la région grenobloise (ASCOPARG) a donc lancé un projet de modélisation du nuage photochimique estival en collaboration avec l'École Polytechnique Fédérale de Lausanne (EPFL) sur trois ans. En 1999, la principale activité a été d'organiser la campagne GRENOBLE PHOTOCHEMISTRY (GRENOPHOT) qui s'est déroulée de début juillet à mi-août sur l'ensemble de l'agglomération. La ville de Grenoble, qui se trouve au carrefour de trois vallées en forme de Y, plus communément appelé Y grenoblois, se démarque par ses spécificités dans la problématique de la qualité de l'air :

- épisodes fréquents de concentrations d'ozone dépassant la valeur horaire limite de 90 ppb ;
- topographie complexe du site avec des vallées étroites retenant les masses d'air ;
- circulation spécifique des masses d'air dans le Y grenoblois.

La production d' O_3 est une fonction non linéaire dépendant des oxydes d'azote (NO_x) et des composés organiques volatils (COV). La non-linéarité du processus de formation d' O_3 en fonction de ses précurseurs implique qu'il n'existe pas de relation simple entre les émissions et l' O_3 [1]. Pour comprendre sa formation,

l'emploi d'un modèle eulérien à méso-échelle [2] est nécessaire.

Dans ce travail, le modèle METEOROLOGICAL PHOTOCHEMISTRY MODEL (METPHOMOD) [3], couplé au mécanisme chimique Reactiv Atmospheric Chemistry Mechanism (RACM) [4], simule la formation d'ozone sur le Y grenoblois. Ces résultats sont utilisés pour étudier la dispersion spatio-temporelle du panache des photo-oxydants et leur distribution verticale en fonction du régime de vent. Cette étude se situe dans le cadre de l'effort d'amélioration des performances des modèles photochimiques à l'aide de mesures représentatives 3D. Elle représente une première sur la région grenobloise d'une part par l'apport de mesures dans les trois vallées, d'autre part par leur utilisation pour valider le modèle METPHOMOD sur le cas de base, enfin pour mieux comprendre l'évolution des processus photochimiques en terrain complexe.

Campagne de mesure GRENOPHOT
(25-26-27 juillet 1999)

Le but de la campagne GRENOPHOT est d'évaluer la production d'ozone et d'autres polluants dans le Y grenoblois situé au pied des Alpes, tant d'un point de vue expérimental que numérique. Cette campagne de mesures a vu se déployer, de début juillet à mi-août, un réseau de mesures (au sol et en altitude) renforcé dans le sud de l'agglomération, un système DOAS (Differential Optical Absorption Spectroscopy) [5], deux LIDAR (Light Intensity Detection And Ranging) [6], un profileur de vent, et trois jours de mesures aéroportées réparties se sont ajoutées aux mesures

Glossaire

- **ASCOPARG** : Association pour le contrôle et la préservation de l'air en région grenobloise.
- **ASL** (Above Sea Level) : unité prenant le niveau de la mer comme référence.
- **CITEPA** : Centre interprofessionnel technique d'études de la pollution atmosphérique.
- **CML** : couche de mélange convective.
- **COV** : composés organiques volatils.
- **DEM** : Digital Elevation Model.
- **DOAS** : Differential Optical Absorption Spectroscopy.
- **EPFL** : École Polytechnique Fédérale de Lausanne.
- **GRENOPHOT** : GRENOble PHOTochemistry. <http://lpas.epfl.ch/MOD/study/asco/>
- **GTOPO30** : base de données de la topographie mondiale. <http://edcdaac.usgs.gov/gtopo30/gtopo30.html>
- **ISM** : Institut Suisse de Météorologie.
- **LIDAR** : Light Intensity Detection And Ranging.
- **METPHOMOD** : METeorological PHOtochemical MOdel. <http://www.giub.unibe.ch/klimet/metphomod/>
- **NO_x** : somme des oxydes d'azote (NO + NO₂).
- **POI** : période d'observation intensive.
- **ppb** (part per billion) : unité de concentration s'exprimant en milliardième de volume.

Cette unité est principalement utilisée lorsqu'on compare les concentrations d'un même polluant à différentes altitudes. Dans un paquet d'air à mouvement vertical, la concentration d'un polluant, exprimée en ppb, ne varie pas, contrairement aux concentrations exprimées en microgrammes par mètre cube.

À 9° C et 950 hPa, 1 ppb O₃ = 1,95 µg/m³

À - 8 °C et 653 hPa, 1 ppb O₃ = 1,42 µg/m³

- **RACM** : Regional Atmospheric Chemistry Mechanism.
- **USGS/LCS** : United States Geological Survey's/ Land Cover System <http://edcdaac.usgs.gov/glcc/glcc.html>

habituelles du réseau ASCOPARG (Figure 1, p. 280).

La première période d'observation intensive (POI) a eu lieu du 25 au 27 juillet sous l'anticyclone des Açores bien installé sur les Alpes dans un flux de nord faiblissant. Le 26 juillet, à 17 heures, heure locale (HL), un fort panache d'O₃ atteignant des concentrations de 95 ppb (maximum mesuré au cours de GRENOPHOT) s'est développé à 20 km au sud de Grenoble. La seconde POI s'est déroulée

du 1^{er} au 3 août au cours d'une situation météorologique moins stable ayant généré des niveaux d'ozone inférieurs à 90 ppb. La première POI a été prise comme le cas de référence de la partie de simulation pour GRENOPHOT. Cette période ensoleillée a conduit à des niveaux élevés de photo-oxydants au sud de l'agglomération grenobloise [7].

Modélisation

Description du modèle

Le modèle employé pour cette étude est le modèle METPHOMOD [3]. C'est un modèle eulérien tridimensionnel utilisé pour le calcul d'épisodes de forte pollution en photo-oxydants dans les régions montagneuses. Il se compose d'un module météorologique pronostique : dynamique des fluides atmosphériques (champs de vents tridimensionnels, champs de pression hydrostatique ou non hydrostatique, densité de l'air, température et humidité), turbulence atmosphérique (modèle k-ε [8]), radiation solaire [9], équilibre du rayonnement infrarouge [10], transfert atmosphérique avec le sol et la végétation (implémentation d'un module en cinq couches) [11], nuages, pluie et neige. Il contient aussi un module chimique traitant la chimie en phase gazeuse, les émissions et les dépôts. METPHOMOD utilise un maillage cartésien avec une grille régulière.

Le module chimique en phase gazeuse utilisé est le module RACM. Il traite 237 réactions chimiques incluant 17 espèces inorganiques stables, 4 espèces inorganiques intermédiaires, 32 espèces organiques stables et 24 espèces organiques intermédiaires [4].

Mise en place : modélisation et nesting

La technique de nesting mise en place sur la ville de Grenoble implique un premier calcul sur un grand domaine, contenant le plus petit domaine, centré sur la zone d'étude. Les résultats obtenus sur le grand domaine sont alors utilisés comme condition de bord sur le petit domaine. Cette approche présente l'avantage de s'affranchir des conditions de bords pour la météorologie et la chimie (ce qui est important pour les photo-oxydants) sur le petit domaine de calcul.

Domaines de calcul

À l'horizontale, le grand domaine de simulation est un carré de 198 km de côté, orienté nord-sud. Il contient 33 × 33 cellules de 6 × 6 km. Ce domaine couvre l'ensemble de la région Rhône-Alpes et ses principales cités. Quant au petit domaine de simulation, il couvre un rectangle de 68 × 78 km de côté, centré sur Grenoble et orienté nord-sud, avec 34 × 39 cellules de 2 × 2 km. La figure 2, p. 281, montre les domaines de simulation et les isocontours de terrain. À la verticale, un système de coordonnées cartésiennes avec 26 niveaux est utilisé pour le grand et le petit domaine. Les calculs météorologiques et chimiques sont effectués sur les mêmes grilles.

La base de données GTOPO30 [12] a été utilisée

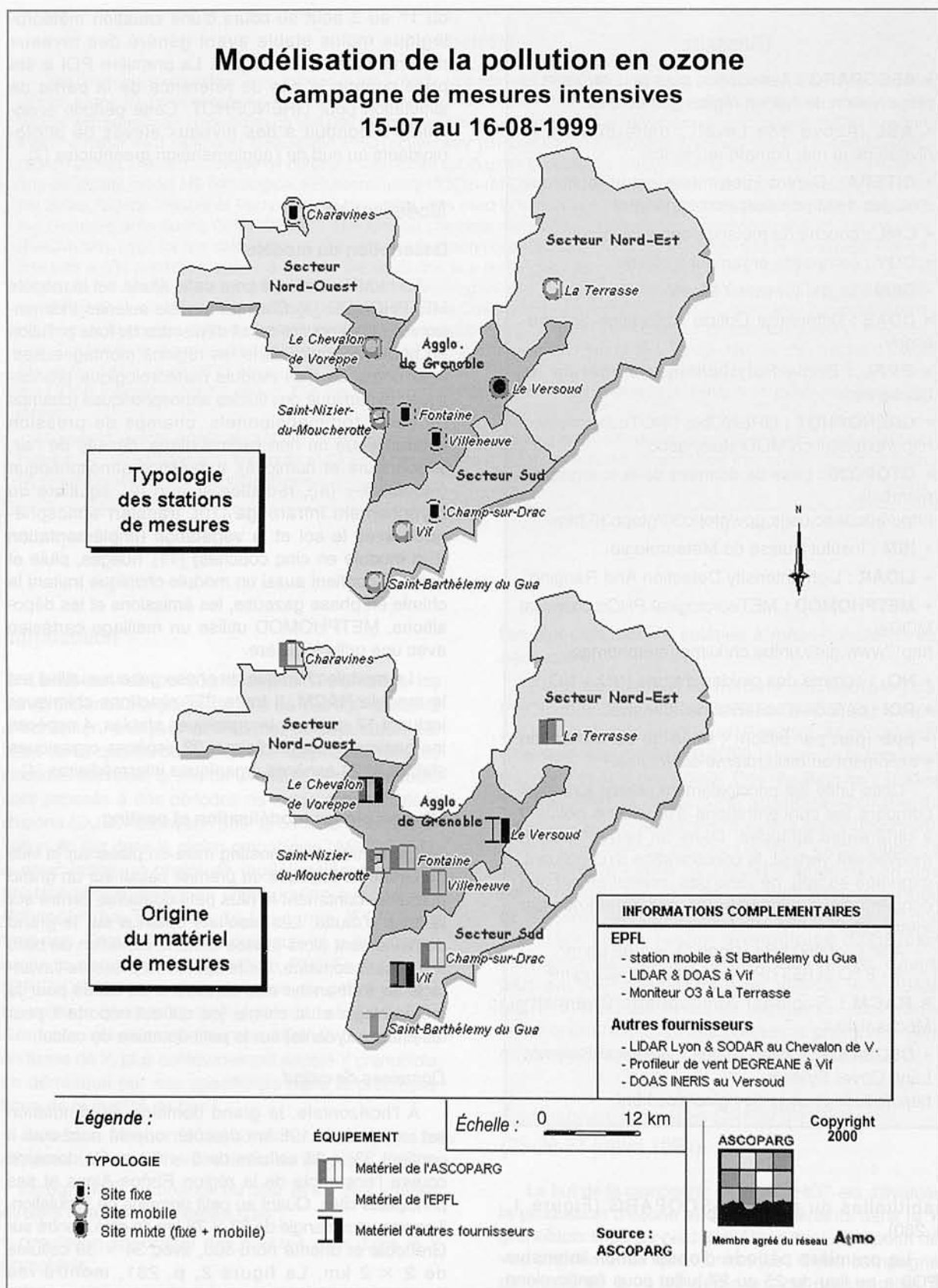


Figure 1.

Répartition spatiale des différents systèmes de mesures sur l'agglomération grenobloise au cours de la campagne de mesures intensives.
(Reproduit avec l'autorisation de l'ASCOPARG).

Network of measurement systems over the Grenoble area during the intensive measurement campaign.
(Reproduced with permission from ASCOPARG).

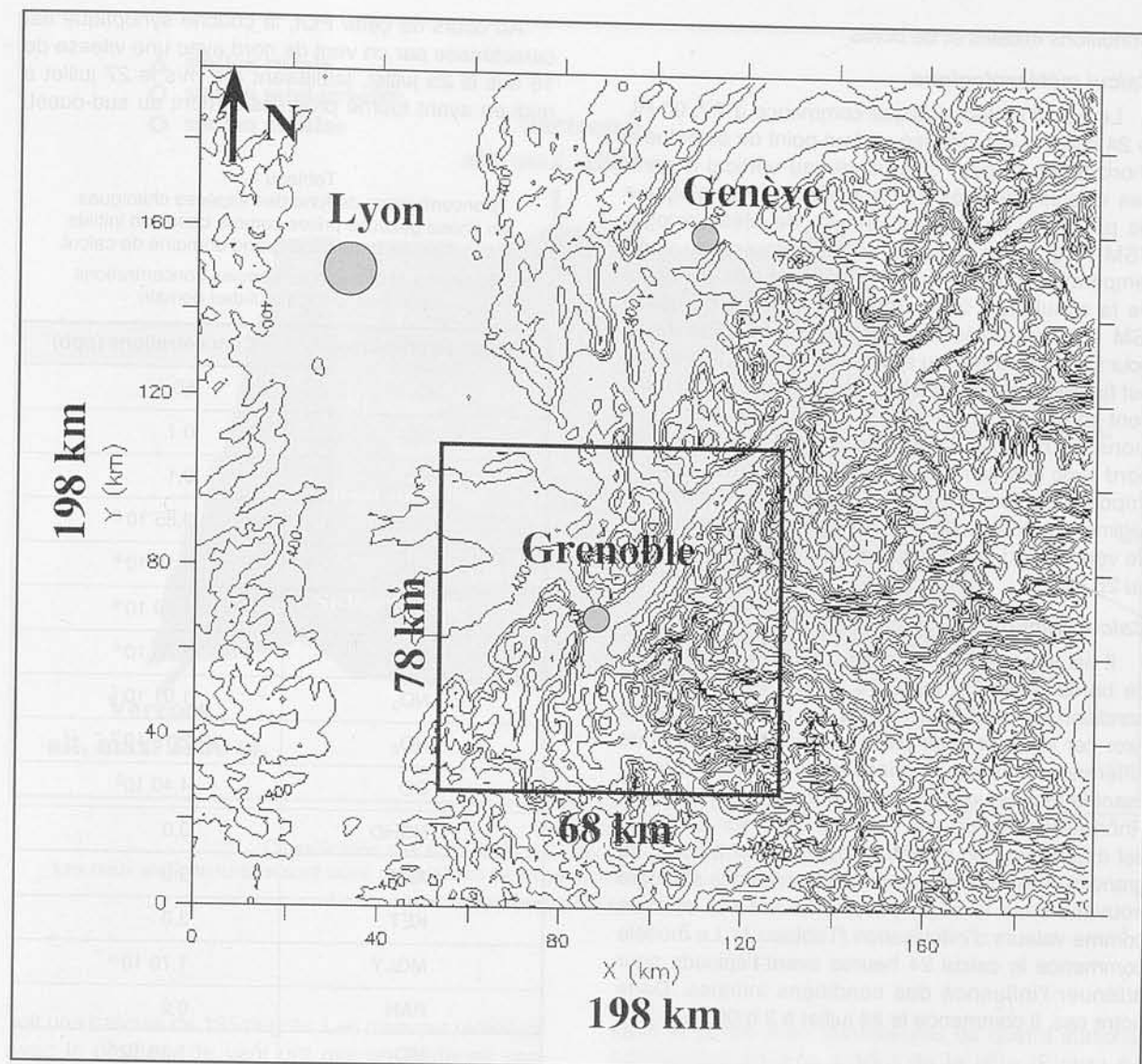


Figure 2.
Domaines de simulation numérique pour GRENOPHOT.
GRENOPHOT simulation domains.

pour les données de topographie. Il s'agit d'un modèle global digital d'élévation (DEM) avec une résolution de l'ordre de 1×1 km, rendu disponible par l'United States Geological Survey's (USGS) Earth Resources Observation System (EROS). Les données d'occupation des sols proviennent aussi de USGS EROS [13] avec une résolution de 1×1 km dans la classification USGS/Land Cover System (LCS). Dans le module de sol, 12 classes sont prises en compte et paramétrées selon le type de sol, l'albédo, la capacité calorifique du sol, la diffusivité du sol, l'humidité relative de l'air, la résistance d'évaporation du sol et des plantes.

Les émissions

Pour la campagne GRENOPHOT, deux inventaires d'émissions horaires ont été réalisés par le Centre interprofessionnel technique d'études de la

pollution atmosphérique (CITEPA) [14] : le premier pour la grande grille avec une résolution de 6×6 km, et le second pour la ville de Grenoble avec une résolution de 1×1 km. Ces cadastres font la distinction entre trois types d'émissions : les émissions surfaciques (neuf secteurs), linéaires (autoroutes et routes nationales) et ponctuelles, selon deux types de jours (semaine et dimanche). Chacun de ces inventaires inclut les émissions de NO_x , de méthane (CH_4), de monoxyde de carbone (CO) et 23 spéciations de composés organiques volatils non méthaniques (COVNM) [15]. Ces émissions ont été assemblées suivant les 32 classes de COV [4] nécessaires à l'emploi du module chimique RACM. Sur le grand domaine de calcul, les émissions les plus fortes se localisent sur les villes de Lyon et de Grenoble ainsi que le long des autoroutes partant de ces deux grandes métropoles.

Conditions initiales et de bords

Calcul météorologique

Le calcul météorologique commence à 2 h 00 HL le 24 juillet. Il est initialisé en tout point du domaine à l'horizontale et pour chaque niveau vertical à partir des calculs effectués par le modèle météorologique de prévision de l'Institut Suisse de Météorologie (ISM) [16], pour les paramètres : vitesse du vent, température potentielle et humidité de l'air. Au cours de la simulation, les paramètres extraits du calcul ISM sont interpolés linéairement par METPHOMOD pour forcer les bords. Au sommet du modèle, la pression est fixée par les valeurs ISM et les autres paramètres sont soumis à l'hypothèse du gradient nul. Les prévisions du modèle de l'ISM montrent un régime de nord avec des vents de 4 à 5 m/s, faiblissant dans la troposphère libre le 24 juillet. À partir du 26 juillet, ce régime stable bascule progressivement vers un régime de vent de sud-ouest devenant fort dans la nuit du 27 au 28 juillet.

Calcul chimique

Il est important de disposer de bonnes conditions de bords pour l'O₃, les COV, le CO et les NO_x. La condition de bord pour l'ozone est la plus délicate à fixer car on peut avoir plusieurs dizaines de ppb de différence entre deux épisodes de pollution. En utilisant la technique du nesting, l'influence de la région Rhône-Alpes et de ses grandes cités sur Grenoble est mieux prise en compte. Pour les quatre bords du grand domaine de calcul, les concentrations standard trouvées dans la troposphère libre ont été utilisées comme valeurs d'initialisation (Tableau 1). Le modèle commence le calcul 24 heures avant l'épisode pour atténuer l'influence des conditions initiales. Dans notre cas, il commence le 24 juillet à 2 h 00 HL.

Comparaison des résultats de simulation avec les mesures

Le modèle simule dans le temps la variation spatiale des photo-oxydants au cours de la POI du 27 juillet. L'ensemble de ces comparaisons portent sur la région de Grenoble et ses contreforts alpins, avec une analyse plus poussée dans la partie sud (Figure 3, ci-contre).

Météorologie

Au cours de la période d'observation, le temps synoptique sur la France a été dominé par l'anticyclone des Açores avec des vents d'altitude de nord faiblissant et tournant au sud-ouest la journée du 27 juillet. Les profils de vent réalisés avec le profileur de vent, à Vif, ont montré une stratification verticale de l'atmosphère [17] suivant trois couches : la couche synoptique située au-dessus de 2 500 à 3 000 m, la couche thermique directement influencée par la topographie du site entre le sol et 1 200 à 2 400 m, et une couche intermédiaire, plus difficile à caractériser, variant entre 1 200 et 3 000 m.

Au cours de cette POI, la couche synoptique est caractérisée par un vent de nord avec une vitesse de 16 m/s le 25 juillet, faiblissant à 9 m/s le 27 juillet à midi en ayant tourné progressivement au sud-ouest,

Tableau 1.

Concentrations de fond des espèces chimiques en phase gazeuse prises comme condition initiale et condition de bord sur le grand domaine de calcul.

Background of chemical species concentrations used for the big simulated domain.

Espèces chimiques	Concentrations (ppb)
O ₃	60
NO	0,1
NO ₂	0,1
HONO	3,85 10 ⁻⁶
HNO ₃	9,12 10 ⁻⁶
HNO ₄	1,89 10 ⁻⁶
N ₂ O ₅	3,75 10 ⁻⁶
NO ₃	1,91 10 ⁻⁷
HO ₂	2,19 10 ⁻⁷
CO	4,40 10 ²
HCHO	3,0
ALD	3,0
KET	3,0
MGLY	1,79 10 ⁻⁶
PAN	0,2
MO ₂	1,16 10 ⁻⁶
ACO ₃	2,25 10 ⁻⁹
ONIT	5,52 10 ⁻⁷
HC3	3,0
HC5	3,0
HC8	2,6
ETE	1,5
OLT	1,0
OLI	0,6
TOL	1,3
XYL	1,5 10 ⁻³
DCB	2,20 10 ⁻⁶
CSL	1,91 10 ⁻⁷
H ₂ O ₂	2,47 10 ⁻⁷
ISO	2,0 10 ⁻¹¹
CH ₄	1,7 10 ³

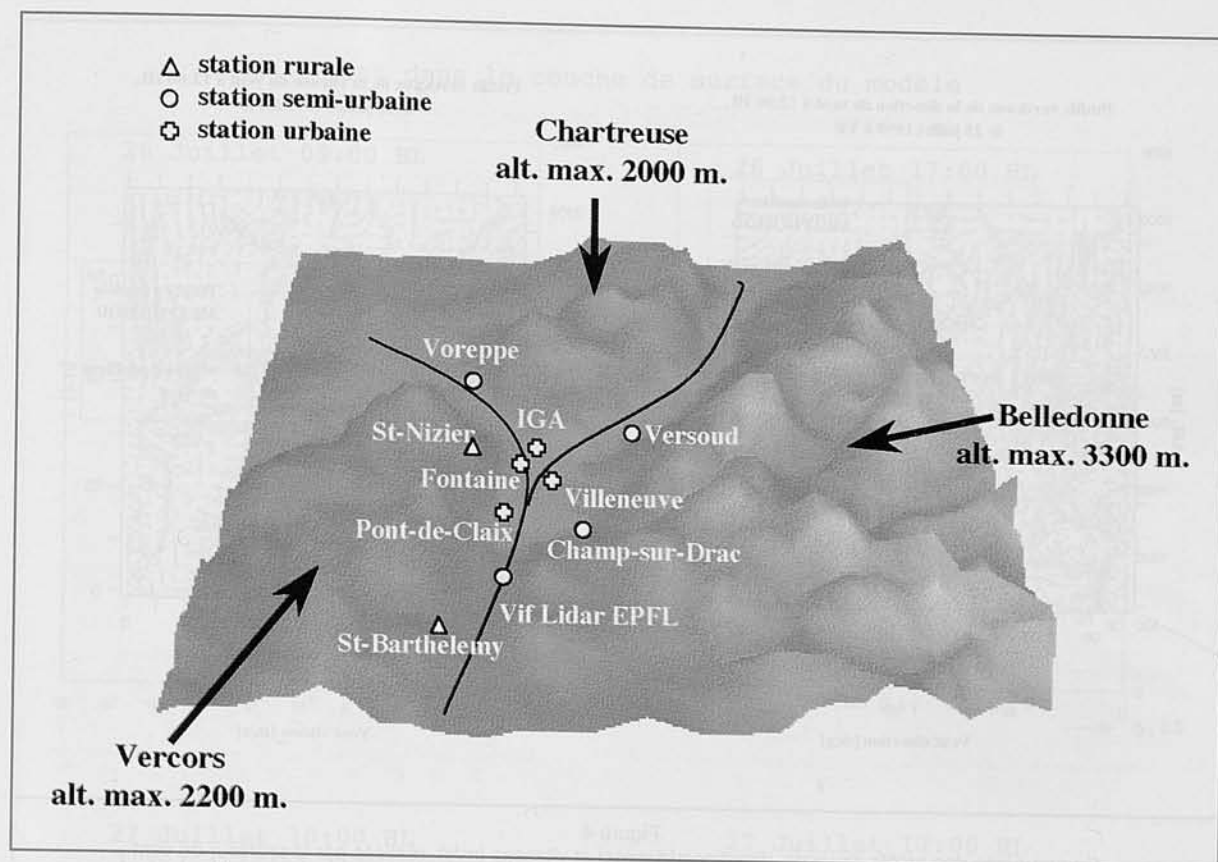


Figure 3.

Classification des stations de mesures pour les comparaisons par type.

Les deux stations rurales sont aussi des stations de moyenne altitude (Saint-Nizier 1 000 m, Saint-Barthélemy 620 m).

Ground stations typology.

soit une bascule de 135 degrés. Les mesures réalisées avec le profileur de vent ont mis en évidence ces trois couches, reproduites par le modèle. La figure 4, p. 284, illustre la difficulté pour reproduire correctement la complexité des champs de vent dans une zone comme Grenoble. Néanmoins, ces comparaisons montrent la stratification verticale au niveau de la direction du vent ; elle est plus nuancée pour la vitesse et montre que le modèle, à ce moment-là, sous-estime la vitesse du vent au niveau de la première couche.

Les résultats du modèle montrent une interaction complexe entre le vent à l'échelle synoptique et les systèmes de vents locaux, qui se développent dans les trois vallées du Y grenoblois. Les vents locaux se développent dans la couche thermique située entre le sol et 1 200 à 2 400 m. L'après-midi du 27 juillet, le modèle montre un vent de sud-ouest dans la troposphère libre et au sommet des massifs montagneux. Cependant, ce régime synoptique n'a pas d'influence sur les vents locaux de la couche thermique, dominé par les effets de canalisation des vallées qui transportent les masses d'air de la ville vers le sud de l'agglomération, et les vents de pente qui stockent les masses d'air sur les pentes de Belledonne avant de les pousser en fin de journée vers le sud (Figure 5, p. 285). La vitesse et la direction du vent simulées sont comparées

dans le temps avec les mesures de quatre stations ponctuelles situées autour de la ville (Figure 6, p. 286). À Saint-Barthélemy, le cycle diurne (vents catabatiques-anabatiques) est bien mis en évidence par les mesures et la simulation. Pour la station de l'IGA, les résultats de simulation sont moins bons. Ce résultat est dû à la situation géographique de convergence de fond de vallée de cette station qui est une zone de turbulence. Des mesures traditionnelles de température ont été réalisées pour ces stations et les comparaisons avec les simulations montrent un bon accord (Figure 7, p. 287). Ces résultats montrent la capacité du modèle à retrouver le régime thermique et à simuler correctement les systèmes de vents de vallée, paramètres primordiaux pour les processus photochimiques.

Chimie

Distribution horizontale de l'ozone

La figure 8, p. 288, montre la distribution spatiale des concentrations d'O₃ sur la couche de surface du modèle le matin et en fin d'après-midi. Le matin, la destruction de l'O₃ en surface par titration avec le NO dans les zones émettrices de ce polluant précurseur est mise en évidence. L'après-midi, le panache d'O₃

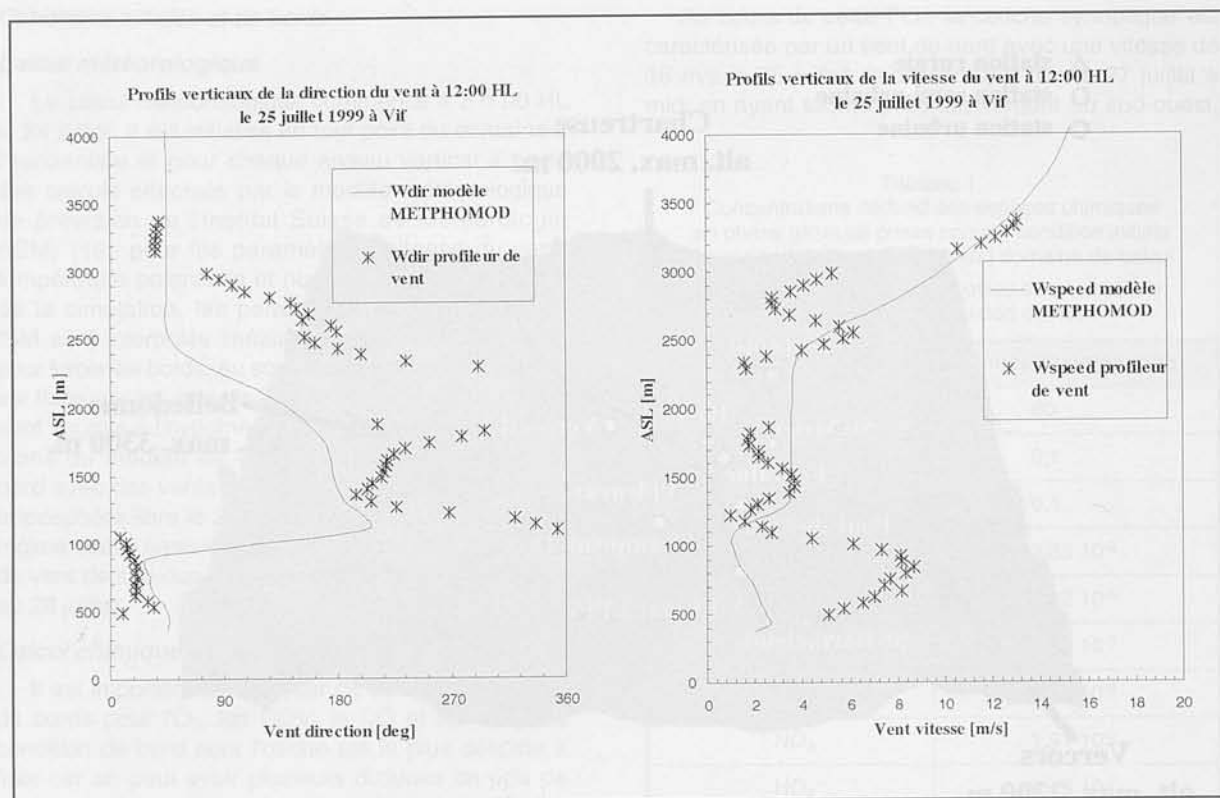


Figure 4.

Comparaison des profils de vents, directions (degrés) et vitesses (m/s), réalisés par le profileur de vent et calculés par le modèle, à Vif, le 25 juillet à 12 h 00 HL.

Comparison between windprofiler and model calculations for wind direction (°) and wind speed (m/s), at Vif, the 25th July at 12 h 00 Local Time (LT).

produit par les polluants précurseurs (NO_x et COV) émis par l'agglomération est transporté au sud de la ville. C'est là qu'il atteint son maximum à environ 20 km du centre urbain. Les masses d'air coincées entre le massif du Vercors et le massif de l'Oisans, du fait des vents faibles, permettent aux polluants primaires de réagir ensemble pour former le maximum d' O_3 . Ensuite, ce panache d' O_3 est poussé par les vents de vallée au sud de la ville, avant d'être dilué par le transport et la turbulence, et finalement alimenter la couche réservoir en début de nuit.

Pour faciliter les comparaisons des résultats de simulation avec les mesures, la figure 3, p. 283, suggère une classification des stations de mesures suivant trois types :

- type 1 rural : stations de Saint-Barthélemy et de Saint-Nizier (niveaux d' O_3 élevés la nuit) ;
- type 2 semi-urbain : stations de Vif, Champ-sur-Drac, Voreppe et Versoud (niveaux d' O_3 moyennement élevés la nuit) ;
- type 3 urbain : stations de Villeneuve et Fontaine (niveaux d' O_3 nocturnes inférieurs à 10 ppb).

Les stations de type 2 et 3 se caractérisent par de faibles niveaux d' O_3 nocturnes car elles sont proches des sources de pollution. Ces concentrations, basses durant la nuit, sont essentiellement dues à la destruction de l' O_3 par les NO_x . En revanche, les

stations de type 1, loin des sources de pollution, affichent des niveaux d' O_3 élevés la nuit car la déposition sèche est le processus de destruction de l' O_3 le plus important. Dans la journée, les stations de type 3, soumises à de fortes émissions de NO_x , affichent des maximums d' O_3 assez faibles. Les fortes concentrations d' O_3 indiquées par les stations de type 1 et 2 situées au sud de Grenoble identifient la zone où se développe le panache photochimique.

Le maximum d' O_3 , compris entre 90 et 100 ppb, apparaît entre 14 h 00 et 15 h 00 HL le 27 juillet dans la vallée du Drac où se trouvent les stations de Champ-sur-Drac, Vif et Saint-Barthélemy (Tableau 2, p. 287). Les stations de type 2 enregistrent 90 ppb d' O_3 à 14 h 00 HL. À 16 h 00 HL, le maximum d' O_3 de 95 ppb est capturé par Saint-Barthélemy, station de type 1, soit 1 heure après avoir enregistré le maximum d' O_3 en fond de vallée (Figure 9, p. 289). Les concentrations nocturnes d' O_3 simulées sont dans l'ensemble en accord avec les mesures. Le modèle simule correctement les concentrations élevées d' O_3 pour les stations de type 1. L' O_3 stocké dans la couche réservoir est mis en évidence au cours des trois jours et atteint une concentration de 70 ppb durant la nuit du 26 au 27 juillet. Les faibles concentrations résultant des réactions avec les NO_x sont bien reproduites en milieu urbain (Figure 8, p. 288).

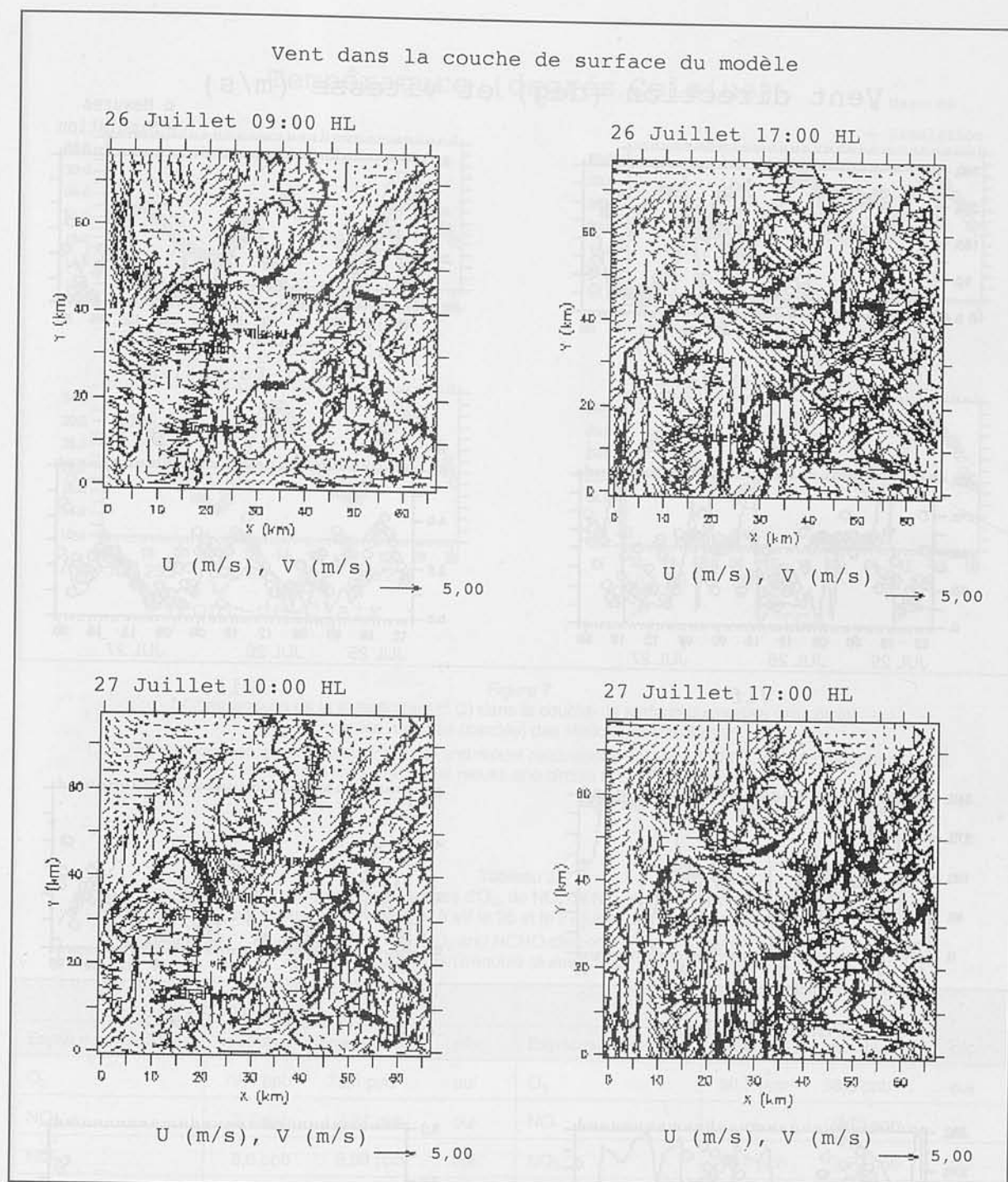


Figure 5.

Vents simulés dans la couche de surface du modèle, le 26 juillet à 9 h 00 et 17 h 00 HL, et le 27 juillet à 10 h 00 et 17 h 00 HL.

Wind in the lowest layer on 26th July at 9 h 00 and 17 h 00 LT, and 27th July at 10 h 00 and 17 h 00 LT.

Distribution horizontale des NO_x

La figure 10, p. 290, montre que les NO_x sont observés près des sources d'émissions (centres urbains et grands axes routiers). De ce fait, leur concentration est plus difficile à modéliser car les NO_x vont être grandement influencés par des effets locaux mal considérés à méso-échelle. La figure 11,

p. 291, montre un assez bon accord entre les mesures et les valeurs simulées pour les stations de type 1 et 2. Les stations de type 3 présentent des valeurs nocturnes simulées plus élevées que les mesures (Figure 9, p. 289). Le modèle sous-estime la hauteur de mélange la nuit sur les zones urbaines, car la formulation de calcul de la turbulence est mal

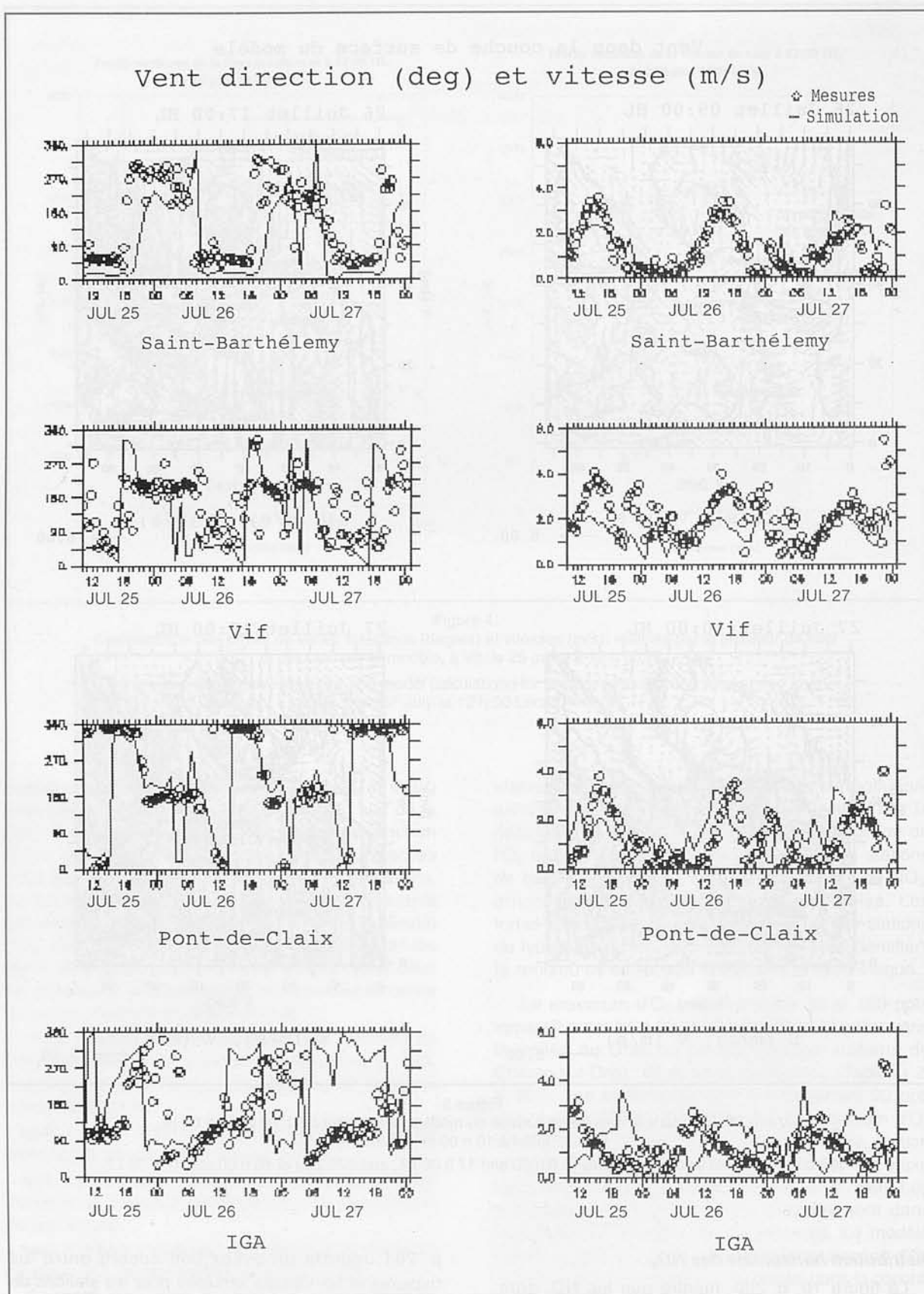


Figure 6.

Comparaison des directions (degrés) et des vitesses de vent (m/s) dans la couche de surface du modèle (trait plein) avec les mesures (cercles) des stations ponctuelles.
Comparison between ground measurements and model calculations from 25th to 27th July for wind direction (°) and wind speed (m/s). Solid lines are model results and circles are measurements.

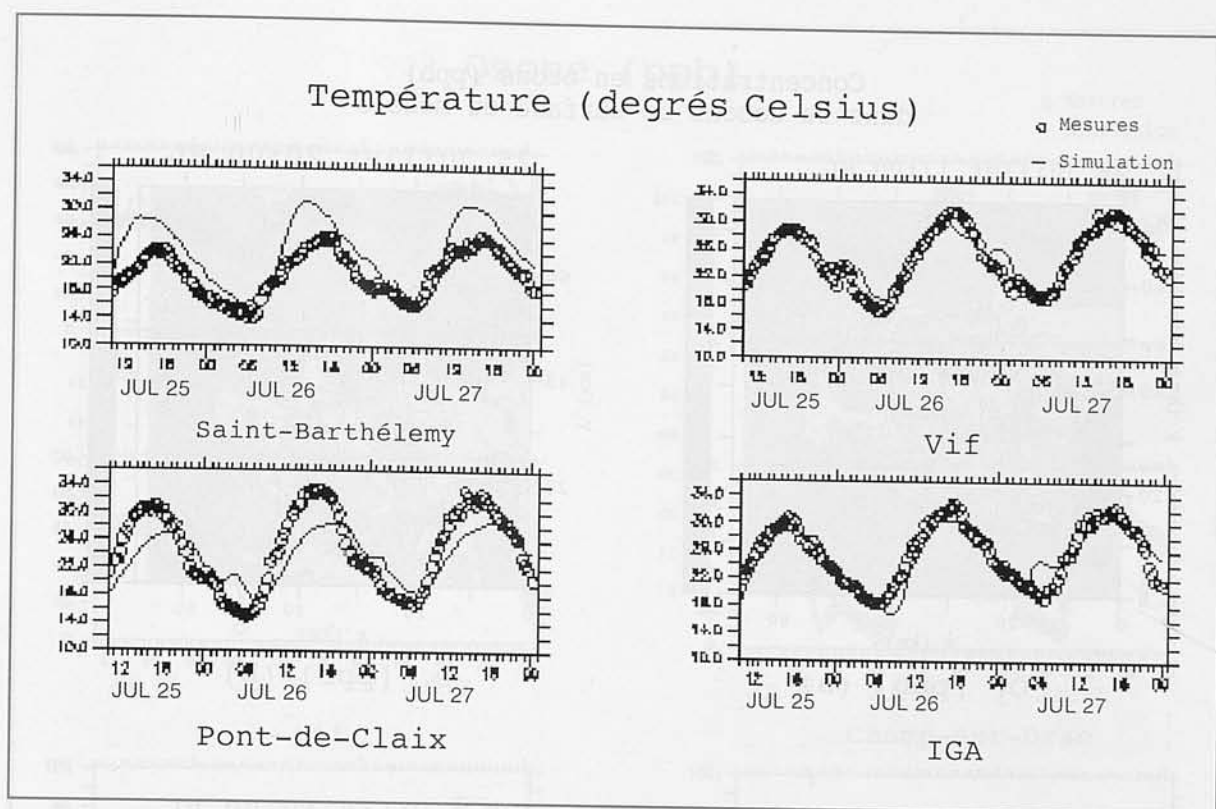


Figure 7.

Comparaison de la température (° C) dans la couche de surface du modèle (trait plein) avec les mesures (cercles) des stations ponctuelles.

Comparison between ground measurements and model calculations from 25th to 27th July of temperature (° C). Solid lines are model results and circles are measurements.

Tableau 2.

Concentrations maximales horaires d'O₃, de NO, de NO₂ et de formaldéhyde (HCHO), en ppb, mesurées et simulées à Vif le 26 et le 27 juillet dans le panache de la ville.

Highest O₃, NO, NO₂ and HCHO concentrations measured and simulated in the Grenoble plume on 26th and 27th July.

26-07-99				27-07-99			
Espèces chimiques	mesures	simulations	pic	Espèces chimiques	mesures	simulations	pic
O ₃	79,4 ppb	79,8 ppb	oui	O ₃	90,5 ppb	88,3 ppb	oui
NO	2,7 ppb	2,21 ppb	oui	NO	—	0,72 ppb	—
NO ₂	8,6 ppb	8,98 ppb	oui	NO ₂	7,4 ppb	3,79 ppb	oui
HCHO	5,9 ppb	5,70 ppb	oui	HCHO	7,2 ppb	5,69 ppb	non

adaptée à la ville. Les polluants émis sont moins dilués que dans la réalité et restent alors prisonniers dans le premier niveau vertical du modèle [18].

Distribution verticale de l'ozone

Sur le site de Grenoble, les mouvements verticaux et le mélange des masses d'air vont conditionner le maximum d'O₃. On a montré qu'au cours des épisodes photochimiques une stratification verticale du vent se

met en place. C'est pourquoi on s'attend à trouver une stratification verticale pour la chimie.

La figure 12, p. 292, compare l'évolution verticale dans le temps de l'O₃ mesurée par LIDAR à Vif et la simulation. La couche de mélange convective (CMC) monte d'un jour à l'autre car les températures augmentent entre le 25 et le 27 juillet avec peu d'humidité. Le modèle calcule une hauteur de mélange de 1 300 m le 25 juillet et de 2 100 m le 27 juillet. Les mesures LIDAR montrent une CMC un peu plus haute

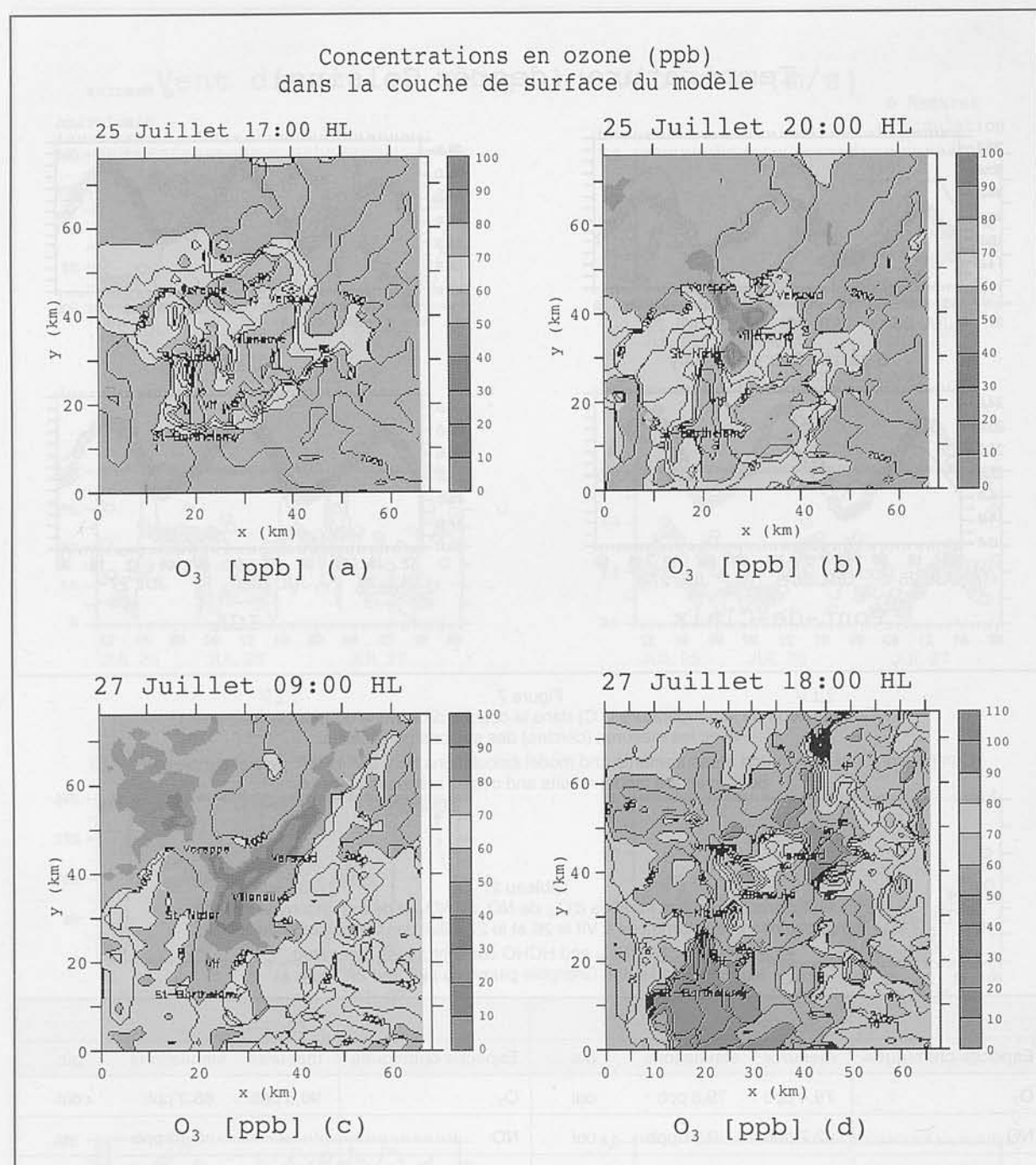


Figure 8.

Concentrations d'O₃ simulées dans la couche de surface du modèle : (a) 25 juillet 17 h 00 HL, (b) 25 juillet 20 h 00 HL, (c) 27 juillet 9 h 00 HL, (d) 27 juillet 18 h 00 HL.

Simulated O₃ values [ppb] in the lowest layer on 25th July at (a) 17 h 00, (b) 20 h 00 and 27th July at (c) 9 h 00, and (d) 18 h 00 LT.

s'élevant jusqu'à 2 400 m le 27 juillet. Cette différence peut être due à un effet de la topographie complexe du site de Grenoble. Le modèle et le LIDAR mettent ainsi en évidence une CMC dont le sommet est plus haut que celui mesuré pour les régions de plaine [17]. La nuit tombée, la CMC est ramenée à sa valeur nocturne, et il se forme en altitude la couche résiduelle appelée aussi couche réservoir (Figure 12,

p. 292) qui va stocker une partie de l'O₃ produit au cours de la journée dans la CMC. Entre le 26 et le 27 juillet, le modèle et le LIDAR mettent en évidence cette couche réservoir [19] entre 1 200 et 2 000 m avec un maximum d'O₃ de 70 ppb. Dans la couche stable nocturne, entre le sol et 600 m, l'O₃ est rapidement détruit en réagissant avec la molécule NO. Cette destruction commence dans la couche de

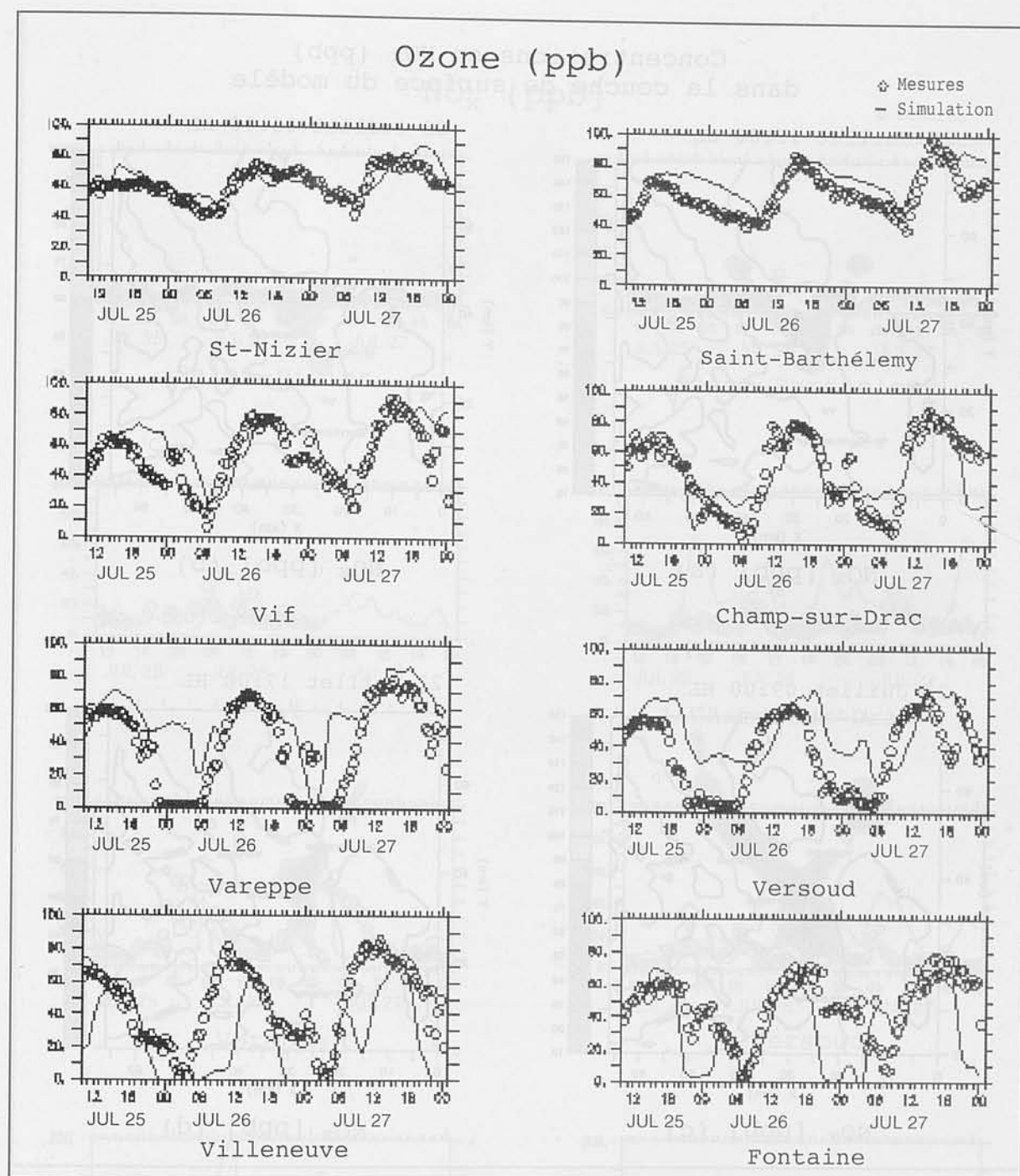


Figure 9.

Comparaison des concentrations d'O₃ (ppb) simulées (trait plein) dans la couche de surface du modèle avec les mesures (cercles) des stations ponctuelles.
Comparison between ground measurements and model simulations from 25th to 27th July for O₃ (ppb).
Solid lines are model results and circles are measurements.

surface à 2 h 00 HL, le 26 juillet, et s'accroît à partir de 5 h 00 jusqu'à 8 h 00 HL avec l'augmentation des émissions de NO_x dues majoritairement au trafic. Entre 8 h 00 et 11 h 30 HL, le brassage de la couche réservoir avec la CMC explique l'augmentation des concentrations d'O₃ proches du sol avant l'arrivée du panache produit par l'agglomération.

Au niveau de la couche de surface, les profils verticaux d'O₃ affichent systématiquement une discontinuité entre la mesure au sol du DOAS et le premier point de mesures LIDAR (Figure 13, p. 293). Les simulations réalisées sans tenir compte du flux de dépôt sèche pour l'O₃ montrent que cette discontinuité, vue par les mesures, est bien

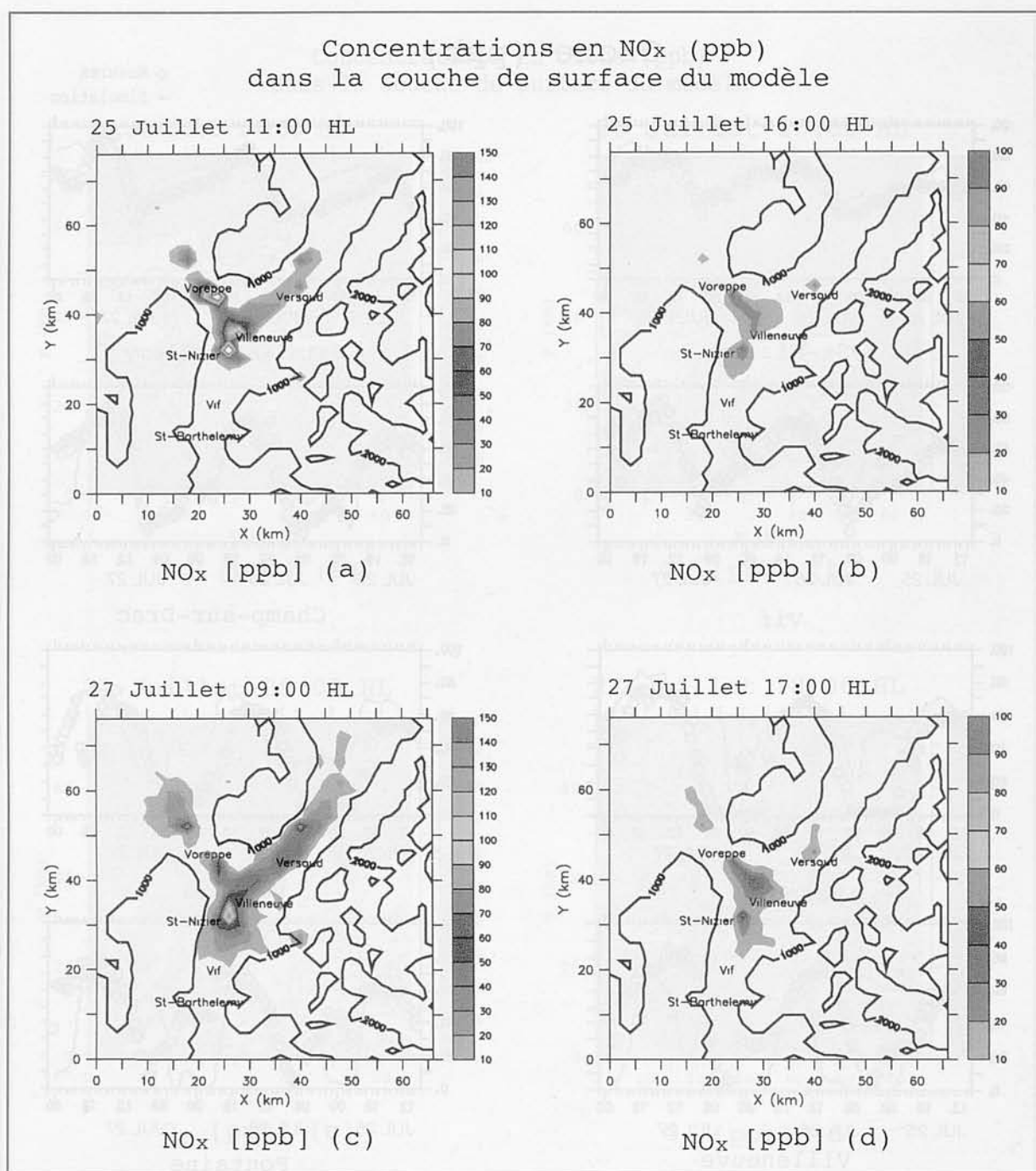


Figure 10.

Concentrations de NO_x simulées dans la couche de surface du modèle : (a) 25 juillet 11 h 00 HL, (b) 25 juillet 16 h 00 HL, (c) 27 juillet 9 h 00 HL, (d) 27 juillet 17 h 00 HL.

Modeled NO_x values [ppb] on the surface on 25th July at (a) 11 h 00, (b) 16 h 00 and 27th July at (c) 9 h 00, and (d) 17 h 00 LT.

réelle et correspond à la déposition sèche. Ce dépôt sec peut être estimé à 10 ppb pour les 100 premiers mètres au-dessus du sol. La simulation montre que c'est vers 15 h 00 HL que le dépôt sec de l'O₃ est le plus élevé, c'est-à-dire quand le maximum d'O₃ est atteint.

Le panache d'O₃ produit par la ville est mis en évidence à Vif par une répartition verticale sur la

hauteur de la CMC les après-midi des 25, 26 et 27 juillet. L'O₃ généré par les NO_x et les COV principalement émis au centre-ville, est transporté horizontalement par les vents thermiques poussant le panache vers le sud. Pour estimer la production de l'agglomération, un calcul a été effectué pour le petit domaine sans émissions anthropiques. Le tableau 3, p. 294, montre les maximums d'O₃ et le ΔO₃ entre

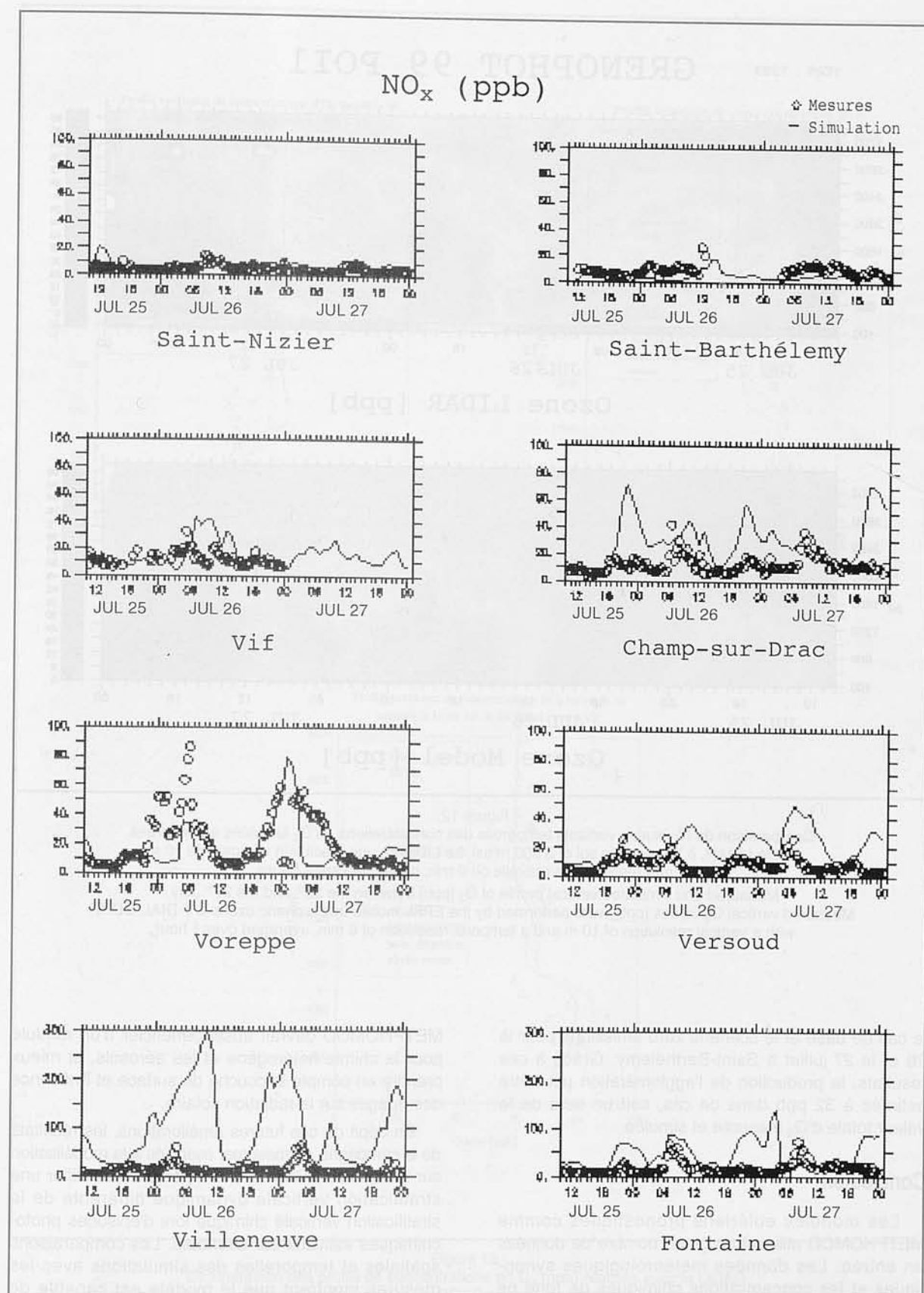


Figure 11.

Comparaison des concentrations de NO_x simulées (trait plein) dans la couche de surface du modèle avec les mesures (cercles) à différentes stations ponctuelles.

Comparison between ground measurements and model simulations from 25th to 27th July for NO_x .

Solid lines are model results and circles are measurements.

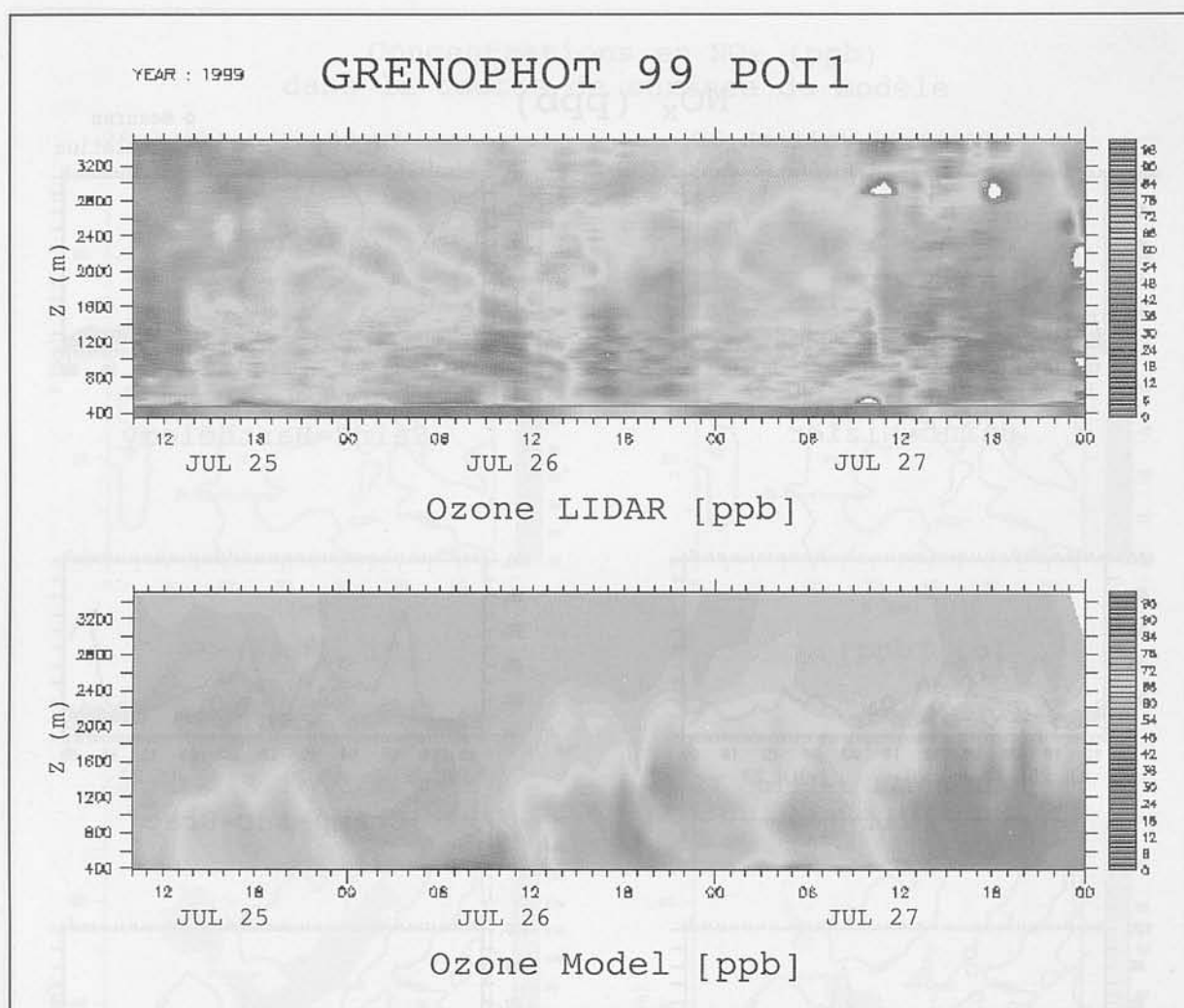


Figure 12.

Comparaison de l'évolution verticale temporelle des concentrations en O_3 simulées et mesurées par le LIDAR, à Vif, entre le sol et 3 500 m asl. Le LIDAR a une résolution verticale de 10 m et une résolution temporelle de 6 min, moyennée sur 1 heure.

Measured and simulated vertical profile of O_3 [ppb] between the 25th and the 27th July. Measured vertical O_3 values [ppb] were performed by the EPFL mobile tropospheric ozone UV-DIAL LIDAR with a vertical resolution of 10 m and a temporal resolution of 6 min, averaged over 1 hour.

le cas de base et le scénario zéro émissions pour le 26 et le 27 juillet à Saint-Barthélemy. Grâce à ces résultats, la production de l'agglomération peut être estimée à 32 ppb dans ce cas, soit un tiers de la valeur totale d' O_3 mesurée et simulée.

Conclusion

Les modèles eulériens pronostiques comme METPHOMOD utilisent un grand nombre de données en entrée. Les données météorologiques synoptiques et les concentrations chimiques de fond ne sont souvent pas disponibles et doivent être estimées, ce qui conduit à une incertitude pour les concentrations simulées. De plus, la résolution spatiale et temporelle des émissions devra être améliorée dans le futur pour générer moins d'erreurs et d'incertitudes.

METPHOMOD devrait aussi bénéficier d'un module pour la chimie hétérogène et les aérosols, et mieux prendre en compte la couche de surface et l'influence des nuages sur la radiation solaire.

En dépit de ces futures améliorations, les résultats de la campagne de mesures, associés à la modélisation sur la région de Grenoble, ont permis d'identifier une stratification verticale dynamique différente de la stratification verticale chimique lors d'épisodes photochimiques estivaux sur Grenoble. Les comparaisons spatiales et temporelles des simulations avec les mesures montrent que le modèle est capable de reproduire correctement la situation réelle et le panache au sud de la ville. La modélisation du cas de base a permis de valider le modèle sur un épisode de trois jours (25, 26 et 27 juillet 1999). L'accord qualitatif entre les mesures au sol disponibles et les résultats

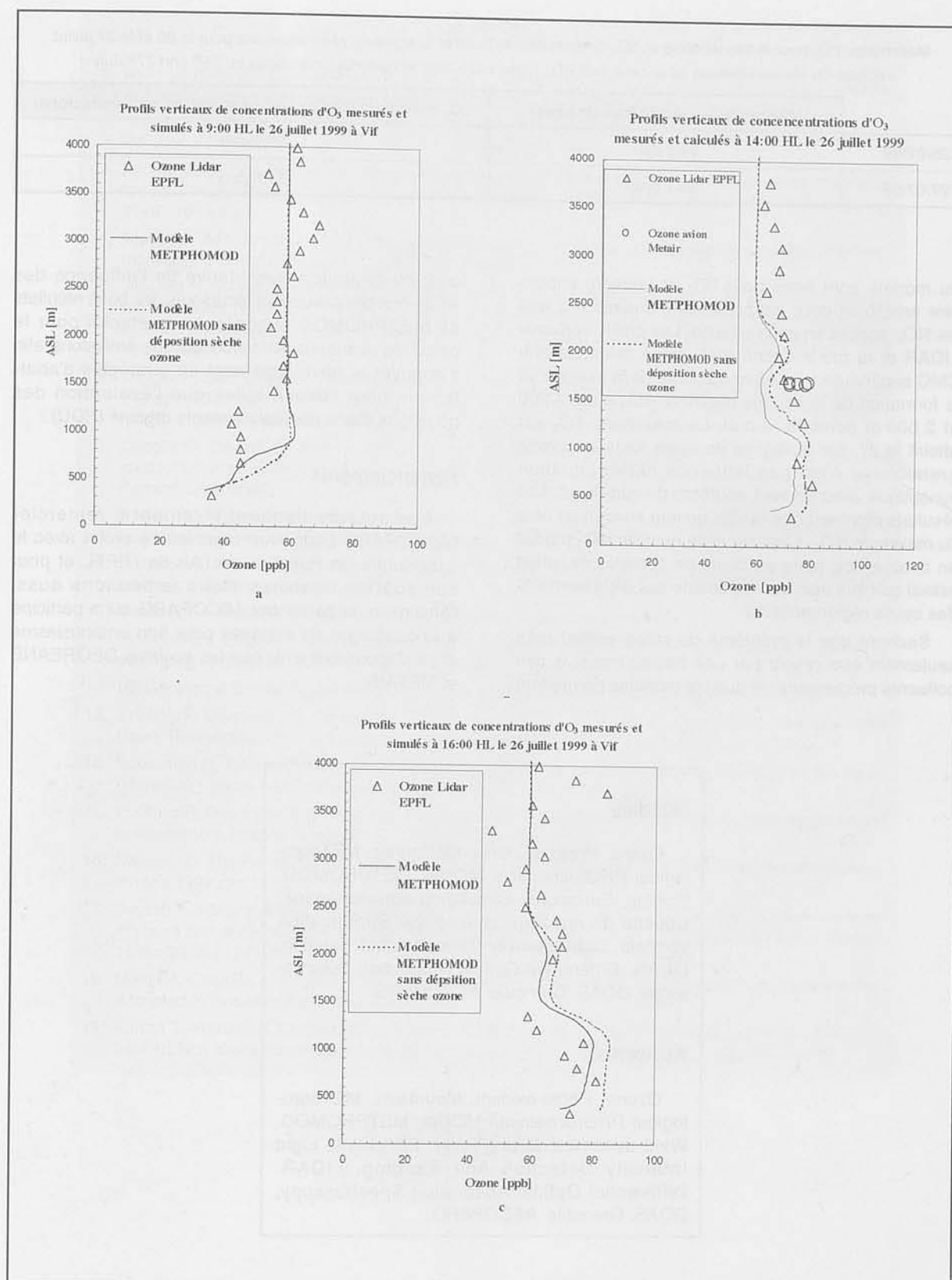


Figure 13.

Comparaison des profils de concentrations en O_3 (ppb) réalisés avec le LIDAR (la première valeur de chaque profil est la valeur DOAS au sol) et calculés par le modèle, à Vif, le 26 juillet à différentes heures de la journée : (a) 9 h 00, (b) 14 h 00 et (c) 16 h 00 HL.

Dans la figure b la mesure réalisée par avion est ajoutée et valide la mesure LIDAR.

Comparison between O_3 LIDAR vertical profile using DOAS measurement for ground value and simulation on 26th July at Vif site : (a) 9 h 00, (b) 14 h 00 and (c) 16 h 00 LT.

On the figure b, the aircraft measurement validates the LIDAR.

Tableau 3.

Maximums d'O₃ pour le cas de base et ΔO_3 entre le cas de base et le scénario zéro émissions pour le 26 et le 27 juillet.
Highest O₃ values between base case and ΔO_3 (base case-zero emissions) simulations on 26th and 27th July.

	Maximum O ₃ calculé (cas de base)	ΔO_3 maximum (cas de base-simulation zéro émissions)
26-07-99	84,2 ppb	32,5 ppb
27-07-99	93,7 ppb	31,8 ppb

du modèle sont bons pour l'O₃ et peuvent encore être améliorés pour les polluants primaires tels que les NO_x, surtout en zone urbaine. Les profils verticaux LIDAR et la modélisation mettent en évidence une CMC supérieure à 2 100 m au cours de la journée, et la formation de la couche réservoir d'O₃ entre 1 200 et 2 000 m pendant la nuit. Le maximum d'O₃ est atteint le 27, car le régime de vents dans la cuvette grenobloise n'est pas influencé par la situation synoptique avec un vent soufflant du sud-ouest. Les résultats montrent que la ville génère environ un tiers du maximum d'O₃. C'est sur cette quantité d'O₃ produit en deux à trois jours au cours de périodes de smog estival qu'il faut agir, car elle amène aux dépassements des seuils réglementaires.

Sachant que le problème du smog estival peut seulement être résolu par une baisse massive des polluants précurseurs, et que les modèles permettent

une interprétation quantitative de l'influence des émissions des polluants précurseurs, les bons résultats de METPHOMOD suggèrent son emploi pour le calcul de scénarios de réduction des émissions afin d'appuyer le développement de stratégies d'abattement pour l'ozone telles que l'évaluation des nouveaux Plans de déplacements urbains (PDU).

Remerciements

Les auteurs tiennent vivement à remercier l'ASCOPARG pour avoir organisé ce projet avec le Laboratoire de Pollution de l'Air de l'EPFL et pour son soutien financier. Nous remercions aussi l'ensemble du personnel ASCOPARG qui a participé à la campagne de mesures pour son enthousiasme et sa disponibilité ainsi que les sociétés DEGREANE et METAIR.

Mot clés

Ozone. Photo-oxydants. Montagnes. METeoro-logical PHOtochemical MODEL, METPHOMOD. Modèle. Émissions. Circulation atmosphérique. Couche de mélange convective. Stratification verticale. Light Intensity Detection And Ranging, LIDAR. Differential Optical Absorption Spectroscopy, DOAS. Grenoble. ASCOPARG.

Keywords

Ozone. Photo-oxidant. Mountains. METeoro-logical PHOtochemical MODEL, METPHOMOD. Wind dynamics. Mixing layer. Emissions. Light Intensity Detection And Ranging, LIDAR. Differential Optical Absorption Spectroscopy, DOAS. Grenoble. ASCOPARG.

Références

1. National Research Council, Rethinking the ozone problem in urban and regional air pollution. National Academic Press, Washington, DC 1991.
2. Anquetin S, Chollet JP, Guilbaut C. Transport et évolution de la pollution sur l'agglomération grenobloise. Pollution à l'échelle locale et régionale ; Cachan 1993 : 99-108.
3. Perego S. METPHOMOD, a numerical mesoscale model for simulation of regional photosmog in complex terrain : model description and application during Pollumet 1993 (Switzerland). Meteorol Atmos Phys 1999 ; 70 : 43-69.
4. Stockwell WR, Kirchner F, Kuhn M, Seefeld S. A new mechanism for regional atmospheric chemistry modelling. J Geophys Res 1997 ; 102 (D22) : 25847-79.
5. Jimenez R, Martilli A, Balin I, van den Bergh H, Calpini B, Larsen B, Favaro G, Kita D. Measurement of formaldehyde (HCHO) by DOAS : Intercomparison to DNPH measurements and interpretation from Eulerian model calculations. Proceedings of A&WMA 93rd Annual Conference, Salt Lake City (UT), June 18-22. Paper n 829, 2000.
6. Quaglia P, Larcheveque G, Jimenez R, Lazzarotto B, Simenov V, Ancellet G, van den Bergh H, Calpini B. Planetary Boundary Layer ozone fluxes combined airborne, ground based LIDARs and wind profilers measurements. Analysis, European Journal Analytical Chemistry 1999 ; 27 (4) : 305-10.
7. Quaglia P, Couach O, Balin J, Simeonov V, Lazzarotto B, van den Bergh H, Calpini B. Air pollution measurements during the Grenoble 1999 campaign ; Eurotrac Symposium 2000, Garmisch-Partenkirchen 2000.
8. Apsley DD, Castro IP. A limited-length-scale k- ϵ model for the neutral and stably-stratified atmospheric boundary layer. Boundary-Layer Meteorol 1997 ; 83 : 75-98.
9. Paltridge G, Platt C. Radiative processes in meteorology and climatology. Development in atmospheric science, 5. Elsevier, Amsterdam 1976.
10. Pielke RA. Mesoscale meteorological modelling. Orlando. Academic Press 1984.
11. Deardorff's J. Efficient prediction of ground surface temperature and moisture with inclusion of a layer of vegetation. J Geophys Res 1978 ; 83 (C4) : 1889-1903.
12. US Geological Survey. Digital elevation models, data user guide 5. Reston, Virginia 1993 : 50 p.
13. Brown JF, Loveland TR, Ohlen DO, Zhu Z. The Global Land-Cover Characteristics Database : The Users' Perspective. Photogrammetric Engineering and Remote Sensing 1999 ; 65 (9) : 1069-74.
14. Bouscaren R, Riviere E, Heymann Y. Réalisation d'un inventaire d'émissions simplifiées pour la ville de Grenoble (1 heure-1 km²). Convention n° 98338001, CITEPA 392, 1999.
15. Friedrich R, Obermeier A. Anthropogenic emissions of Volatile Organic Compounds in reactiv hydrocarbons in atmosphere, hrsg. v. Hewitt CN, Academic Press 1999 : 1-39.
16. Majewski D. The Europa Modell of the Wetterdienst. ECMWF Seminar on numerical methods in atmospheric models 1999 ; 2 : 147-91.
17. Beyrich F, Acker K, Kalab D, Klemm O, Moller D, Schaller E, Werhahn J, Weisensee U. Boundary layer structure and photochemical pollution in the Harz Mountains – an observational study. Atmos Environ 1996 ; 30 (8) : 1271-81.
18. Martilli A, Clappier A, Rotach MW. An urban surface exchange parametrisation for mesoscale models. Accepted by Boundary-Layer Meteorology 2002.
19. Künzle T, Wanner H. On the relation between ozone storage in the residual layer and daily variation in near-surface ozone concentration – a case study, Boundary-Layer Meteorology 1994 ; 69 : 221-47.