

## ACHILLE Newsletter

**Lettre semestrielle à  
l'attention de la  
communauté ADOMOCA**

Numéro 9, Septembre 2012

**Edito**

Le dernier atelier ADOMOCA-2 organisé par Philippe Ricaud s'est déroulé du 10 au 12 septembre 2012 aux Lecques. Treize participants provenant de 5 institutions différentes ont présenté leurs résultats et développements récents en assimilation de données pour la chimie atmosphérique. Ce nouveau numéro d'Achille donne un aperçu, quoique partiel, du large et riche spectre thématique balayé lors de la rencontre. L'atelier a également été l'occasion de discuter de la future proposition ADOMOCA-3, et particulièrement de son contenu : perspectives scientifiques (assimilation des données aérosols, assimilation multivariée / multi-espèces / multi-données, inversion généralisée des paramètres des modèles, assimilation multi-échelles, etc.), et futurs développements (nouveaux solveurs, nouveaux opérateurs d'observation pour les aérosols, adaptation de VALENTINA aux nouveaux calculateurs, bibliothèque de paramétrisations SUGAR, etc.). La proposition ADOMOCA-3 sera finalisée à la fin du printemps 2013.

*Marc Bocquet***Nouveau solveur  
chimique****Un nouveau solveur chimique pour les  
modèles de chimie-transport**D. Cariolle<sup>1</sup>

Les modèles de chimie transport combinent l'intégration des équations de transport des espèces avec la résolution d'un système chimique rendant compte des interactions entre espèces. Dans la plupart des cas le modèle décompose les calculs en une succession d'opérateurs qui correspondent aux différents processus : transport, sources, lessivage, dépôt sec, chimie en phase gazeuse, chimie

hétérogène, et éventuellement chimie en phase aqueuse et évolution des aérosols. Ces différents processus ont des caractéristiques temporelles très variées, de plusieurs minutes pour le transport jusqu'à la milliseconde pour la chimie, si bien que le conditionnement des équations à résoudre est une étape incontournable.

Pour ce qui est de la chimie, le problème est donc de calculer l'évolution temporelle du système chimique sur un incrément de temps de plusieurs minutes, alors que le système est parfois hors équilibre avec des solutions transitoires nécessitant de très petits pas de temps. On parle alors de « raideur » (« stiffness » en anglais) du système. Des solutions algorithmiques efficaces existent à ce problème, par exemple les solveurs « 2steps » (Verwer, 1994) ou de « Rosenbrock » (Sandu et al., 1997). Néanmoins ils sont d'un usage pas toujours simple, certains paramètres devant être optimisés en fonction du problème à résoudre et de la machine cible où sont faites les intégrations. Par ailleurs les modèles utilisent souvent un préprocesseur pour décrire le système chimique à résoudre, préprocesseur qui doit être actionné en amont de l'intégration du code et qui implique une maintenance parallèle au modèle lui-même, ce qui rend l'ensemble assez lourd à mettre en œuvre.

Pour pallier ces difficultés un solveur chimique a été développé avec les propriétés suivantes :

- parfaite conservation de la masse (à la précision des machines),
- facile à implémenter. Notamment sans étape amont (préprocesseur), l'ensemble des sous-routines est disponible dans le code principal,
- s'adaptant aux états du système chimique pour atteindre une bonne précision dans les calculs,
- permettant l'introduction de nouvelles espèces en cours de simulation.

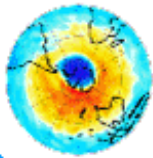
Le solveur résout donc le système d'équations de type :  $dC_i / dt = \dots - K_{ij} C_i C_j - J C_i \dots$  où les  $C$  sont les concentrations, les  $K$  et  $J$  les vitesses de réactions et de photodissociations.

Le système est discrétisé de la manière suivante :

$$(1) \quad (C_i^{t+1} - C_i^t) / dt = \dots - \nabla K_{ij} C_i^t C_j^{t+1} - (1 - \nabla) K_{ij} C_i^{t+1} C_j^t - J C_i^{t+1}$$

Ce qui conduit à inverser la matrice  $M$  définie par :  $C^t = M C^{t+1}$  où  $M$  comporte des termes calculés avec les concentrations au temps  $t$ . La méthode consiste donc à résoudre le système par une méthode semi-implicite, le point spécifique étant d'une part l'évaluation du paramètre  $\nabla$  qui est réactualisé en utilisant les concentrations au pas de

<sup>1</sup> CERFACS/SUC CNRS-URA 1875, Toulouse, France



Verwer, J.G. Gauss-Seidel iteration for stiff ODEs from chemical kinetics. SIAM J. Sci. Comput. 15(1994), 1243-1250, 1994.

temps  $t$ :  $\nabla = C_i^t / (C_i^t + C_j^t)$  ce qui diminue sensiblement la raideur du système, et le choix adaptatif du pas de temps d'autre part. Pour ce faire on utilise la méthode itérative de prédiction du pas de temps utilisée dans le schéma 2step. A chaque pas de temps on calcule après une première évaluation des concentrations utilisant le pas de temps courant et la résolution de (1), la quantité  $E$  fonction de la courbure de la solution :

$$(2) \quad E = 2(rC^{n+1} - (1-r)C^n + C^{n-1}) / (1+r)$$
$$r = (t^n - t^{n-1}) / (t^{n+1} - t^n)$$

puis on corrige le pas de temps par la formule :

$$dt_{new} = \max(\max(0.001, \min(2., 0.8/\sqrt{|E|}))dt_{old}, dt_{min}).$$

Dans la version fortran du solveur l'inversion de matrice de l'équation (1) est réalisée à l'aide de la subroutine DGES de la bibliothèque Scalapack, ce qui assure une bonne efficacité sur la plupart des calculateurs.

Notre solveur, que l'on propose de nommer ASIS (Adaptative Semi-Implicite Scheme), est donc adaptatif par le calcul spécifique effectué sur le jacobien du système (via l'introduction de  $\nabla$ ) et par l'évaluation dynamique du pas de temps.

Ce solveur a été testé avec succès avec le schéma chimique REPROBUS utilisé dans le modèle de chimie-climat CNRM-CCM, son adaptation au code LMDz-REPROBUS est en cours. Par ailleurs il est également utilisé par le modèle de la planète Mars (1D et 3D) par F. Lefèvre (LATMOS). On a également développé une version pour le schéma RELACS (hybride de RACM et REPROBUS) comprenant 80 espèces et 300 réactions. Les figures ci-après montrent l'évolution des espèces OH, HO<sub>2</sub>, HC8P lors d'une intégration de 6 jours ainsi que le nombre d'itérations nécessaires au solveur par tranches de 15 minutes. Le pas de temps minimal est de 5s, mais il peut atteindre 150s lorsque le système est en quasi-équilibre. La simulation donne des résultats quasi identiques à ceux obtenus par intégration avec le pas de temps minimal fixé, mais le solveur ASIS est 15 fois plus rapide.

L'objectif est dans un premier temps de tester le schéma RACMOBUS (le plus complet utilisé par le modèle MOCAGE) puis d'introduire le solveur ASIS dans la bibliothèque commune du CNRM SUGAR (Système Unifié pour les Gaz et les Aérosols Réactifs) qui devrait à terme inclure l'ensemble des schémas chimiques utilisés par les modèles MOCAGE et CNRM-CCM.

#### Références :

Sandu, A., J.G. Verwer, J.G. Bom et al. Benchmarking stiff ODE solvers for atmospheric chemistry problems II : Rosenbrock solvers. Atmos. Environ., 31, 3459-34727, 1997.

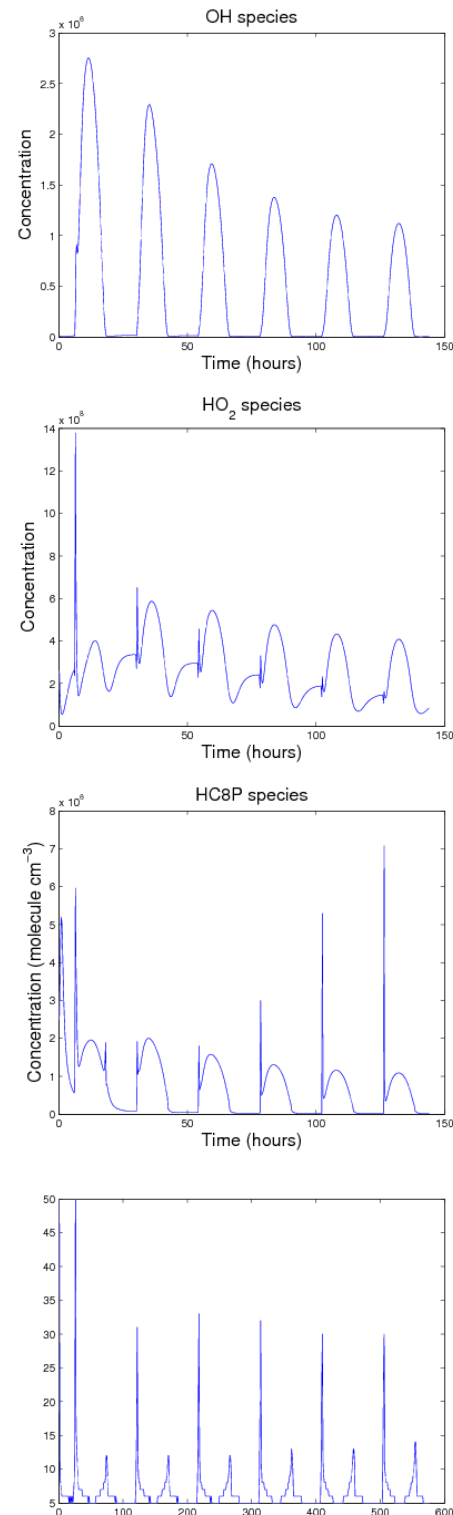
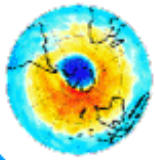


Figure 1 : Concentrations (molécules cm<sup>-3</sup>) calculées avec le solveur ASIS pour les espèces OH, HO<sub>2</sub> et HC8P lors d'une intégration de 6 jours du schéma chimique RELACS pour des conditions proches du sol. Nombre d'itérations utilisé par le solveur par intervalles de 15 minutes. On note l'adaptation du solveur aux transitions jour-nuit durant lesquelles les évolutions des espèces sont importantes et le pas de temps décroît pour augmenter en milieu de jour ou de nuit.



## Modélisation inverse

### Erreurs de représentativité et assimilation de données in situ : Application à l'inversion de flux de CO à l'échelle régionale

M.R. Koohkan<sup>2,3</sup>, M. Bocquet<sup>2,3</sup>

Dans la modélisation de la qualité de l'air, les données d'entrée des modèles numériques telles que les conditions initiales et aux limites, les flux d'émission des polluants ainsi que les coefficients de diffusion verticale sont des données indispensables pour mener à bien une simulation. Cependant, les incertitudes sur ces données d'entrée et peut-être le manque de compréhension de certains processus physiques conduisent à des erreurs dans les simulations. Pour les réduire, des méthodes d'assimilation de données peuvent être utilisées. Celle-ci combinent des données d'observation avec des informations provenant de modèles de chimie et de transport et de leurs statistiques d'erreur, pour trouver les valeurs optimales des paramètres qui minimisent les erreurs.

Dans la présente étude, un système 4D-Var est développé pour estimer des champs d'émission surfacique et volumique. L'analyse spatio-temporelle de ces flux est donnée sous la forme de facteur dépendant de l'espace (résolu à  $0,5^\circ \times 0,5^\circ$ ) et du temps, et qui multiplie les flux d'un inventaire a priori.

Nous utilisons ce système pour inverser les flux de monoxyde de carbone (CO), à l'échelle régionale (la France) et en utilisant les observations de 89 stations de la Base de Données de la Qualité de l'Air (BDQA). Ce réseau d'observation est basé sur des stations de proximité situées près de zones industrielles, urbaines ou de trafic. Nous avons diagnostiqué que l'écart entre les résultats du modèle de chimie transport et les observations est principalement dû aux erreurs de représentativité. Lors d'une simulation de 8 semaines, commençant au premier janvier 2005, cette erreur mène à un biais du même ordre de grandeur que les concentrations. La corrélation entre les résultats de la simulation et les observations est de seulement 0,16.

La méthode 4D-Var ne conduit pas à une amélioration évidente du biais bien que la corrélation atteigne 0,36. En effet, cette méthode n'apporte pas de solution au problème de la représentativité. Les résultats d'optimisation

montrent une augmentation très forte par rapport à l'inventaire a priori (EMEP+MEGAN), d'environ 36%, durant la période d'analyse. Pour cette raison, un modèle statistique sous-maille est introduit et est couplé au système 4D-Var. Ce système d'assimilation couplé, 4D-Var- $\xi$ , n'optimise pas seulement le champ des inventaires mais également un ensemble de coefficients d'influence,  $\xi_i$  avec  $i=1, \dots, 89$ , qui quantifient la représentativité de chacune des 89 stations.

L'optimisation conjointe dans le 4D-Var- $\xi$  conduit à une meilleure représentation de la variabilité de la concentration de CO avec une amélioration très significative des indicateurs statistiques (Fig. 2). Durant la période d'analyse, le biais entre le modèle et les observations est quasiment éliminé. La corrélation est améliorée jusqu'à 0,73 (voir Tab. 1). L'estimation de l'inventaire total par le 4D-Var- $\xi$  est proche de celle obtenue par le CITEPA et correspond à une augmentation de 9% par rapport à l'inventaire a priori (EMEP+MEGAN). La figure 3 illustre la différence entre les flux estimés par 4D-Var et ceux obtenus par le 4D-Var- $\xi$ .

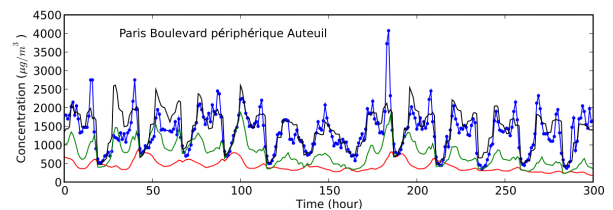


Figure 2. Profil de la station située au Boulevard périphérique Auteuil (Paris) pour les premières 300 heures: observations (bleu), simulation (rouge), système 4D-Var (vert) et système 4D-Var- $\xi$  (noir).

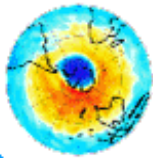
Une prévision de concentration de CO a été réalisée pour le reste de l'année 2005. Les observations durant cette période de 10 mois environ ne sont pas assimilées et ne servent qu'à la validation. Les indicateurs statistiques montrent que le système 4D-Var- $\xi$  engendre de meilleurs résultats comparé au système 4D-Var (corrélation  $\sim 0,7$  pour 4D-Var- $\xi$  et  $\sim 0,35$  pour 4D-Var), avec une variabilité saisonnière marquée. La persistance des scores sur toute l'année montre la pertinence des coefficients d'influence  $\xi_i$  sur toute l'année.

Au test de prévision s'ajoute un test de validation croisée. Parmi les 89 stations du réseau, 49 stations sont sélectionnées aléatoirement pour l'optimisation. Les résultats du 4D-Var- $\xi$  sont comparés avec les observations des 40 stations restantes servant à la validation. Les concentrations obtenues par le système 4D-Var- $\xi$  donnent de meilleurs scores quand on les compare aux observations. De plus la masse totale de l'inventaire obtenu par 4D-Var- $\xi$  avec 49 stations est proche de celle obtenue avec 89 stations.

Au contraire, avec une optimisation par le 4D-Var, l'inventaire a posteriori dépend significativement du choix des stations.

<sup>2</sup> Université Paris-Est, CERE, laboratoire commun École des Ponts ParisTech et EdF R&D, France

<sup>3</sup> INRIA, centre de recherche de Paris Rocquencourt, France



	Mean(S) ( $\mu\text{g}/\text{m}^3$ )	Mean(O) ( $\mu\text{g}/\text{m}^3$ )	NB	RMSE ( $\mu\text{g}/\text{m}^3$ )	R	FA2	FA5	Masse totale de l'inventaire (Tg)
Simulation (1er janvier 2005-26 février 2005)	303	662	-0,74	701	0,16	0,52	0,90	1,06
4D-Var	396	662	-0,50	633	0,36	0,59	0,92	1,44
Optimisation des coefficients d'influence	615	662	-0,07	503	0,57	0,73	0,96	1,06
4D-Var- $\xi$	671	662	0,01	418	0,73	0,79	0,97	1,16

Tableau 1 : Comparaison des observations et résultats des systèmes d'inversion (moyennes, biais normalisé, écart-type, corrélation, FA2 et FA5).

La méthodologie présentée ici montre que des informations utiles aux échelles grossières peuvent être mieux extraites des observations atmosphériques fortement impactées par les erreurs de représentativité. On trouvera plus de détails sur la méthodologie et les résultats dans [1].

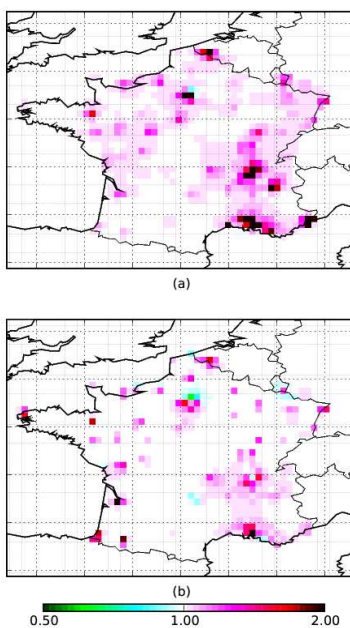


Figure 3 : Ratio entre les flux a posteriori et les flux a priori (EMEP+MEGAN): (a) inventaire obtenu avec 4D-Var, (b) inventaire obtenu avec 4D-Var- $\xi$ .

Référence :

[1] Accounting for representativeness errors in the inversion of atmospheric constituent emissions: Application to the retrieval of regional carbon monoxide fluxes. M. R. Koohkan and M. Bocquet. Tellus B, 64, 19047, 2012

## Observation de l'ozone troposphérique

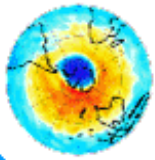
### Observation de l'ozone de couche limite depuis l'espace : Que voit-on ? Application à un cas de pollution photochimique

G. Foret<sup>4</sup>, J. Barré<sup>5</sup>, B. Gaubert<sup>4</sup>, M. Eremenko<sup>4</sup>, A. Coman<sup>4</sup>, P. Sellitto<sup>4</sup>, J. Cuesta<sup>4</sup>, G. Dufour<sup>4</sup>, M. Beekmann<sup>4</sup>

Notre capacité à observer l'ozone troposphérique depuis l'espace s'est fortement accrue au cours de la dernière décennie. Plusieurs instruments ont ainsi été utilisés pour étudier la structure du champ d'ozone troposphérique à partir de sondeurs UV ; OMI, GOME-2, SCHIAMACHY. Mais ce sont surtout les sondeurs TIR (Thermal Infra Red) qui ont démontré la meilleure capacité à observer avec précision les champs d'ozone troposphériques : TES (Parrington et al, 2009) ; IASI (Eremenko et al, 2008 ; Dufour et al, 2012). Dans le cas de ces instruments « TIR », une information précise portant sur la basse troposphère (colonne 0-6km) est extraite des mesures de radiances. Néanmoins, la sensibilité de ces instruments reste limitée dans la couche limite atmosphérique. Cet aspect est bien sur un point limitant dans la perspective d'exploiter ces mesures dans le domaine de la qualité de l'air. Pourtant la question de l'apport de telles observations pour renseigner les concentrations d'ozone dans la couche limite reste ouverte notamment dans certaines situations particulières. En effet, Foret et al (2009) puis Coman et al (2012) ont montré qu'une partie non négligeable de cette information pouvait être transportée vers la surface par la subsidence des masses d'air en présence de circulation anticyclonique. En Europe, c'est

<sup>4</sup> Laboratoire Inter-universitaire des Systèmes atmosphériques, LISA/IPSL, Université Paris Est et 7, CNRS/INSU UMR 7583, Créteil, France

<sup>5</sup> CNRM-Game, Météo-France/CNRS-URA 1357, Toulouse, France



notamment le cas du bassin Méditerranéen caractérisé, durant la période estivale, par de fortes concentrations d’ozone et une situation anticyclonique persistante. Par ailleurs, en qualité de l’air, une préoccupation centrale est la surveillance et la prévision des pics de pollution. De telles situations, dans le cas de l’ozone, se manifestent, en été, en présence de situations anticycloniques. De telles conditions sont associées à : de faibles couverts nuageux et donc à une photochimie intense; des vents faibles et donc une faible dispersion. En conséquence, les concentrations d’ozone dans la couche limite sont fortes; le nombre de pixel disponibles pour l’observation est important. Dans le cas particulier des sondeurs « TIR », le contraste thermique entre le sol et les premières couches de l’atmosphère est augmenté permettant une meilleure sensibilité de ces instruments à la basse troposphère voire la couche limite ; couche limite qui elle-même peut voir son épaisseur augmenter sensiblement.

Dans ce contexte, la présente étude vise à estimer la capacité de ces sondeurs d’ozone spatiaux à observer et caractériser un épisode de pollution à l’ozone. Le cas d’étude sélectionné est un événement de pollution d’Août 2009 (~ 19-21 août) au cours duquel des dépassements du seuil d’information (90 ppb d’ozone) sont observés. Il est caractérisé par une situation anticyclonique présente le 19/08 sur l’Europe de l’ouest et qui va se déplacer vers l’Est le 20/08 et 21/08 avec l’arrivée d’un système dépressionnaire (Figure 4). Cet épisode que l’on peut qualifier de modéré est représentatif des événements de pollution à l’ozone observé sur l’Europe ces dernières années. On a vérifié que les modèles de chimie-transport (CHIMERE ; MOCAGE) retranscrivent, au moins qualitativement, bien l’épisode et notamment les forts gradients zonaux des concentrations d’ozone le long du front. Les modèles montrent également que cette structure est présente jusqu’à des altitudes supérieures à 4km d’altitude. L’utilisation de traceurs chimiques de la surface tels que le PAN (Péroxy Acétyle Nitrate) montre que cette structure est due en grande partie aux soulèvements des masses d’air de la couche limite par le système frontal. Cette structure verticale est en partie confirmée par les quelques profils d’ozone mesurés à Frankfurt (MOZAIC) et Payerne (Sondes).

Une inspection aussi exhaustive que possible des observations satellitaires disponibles a été conduite

et montre que seul l’instrument IASI reproduit correctement cet événement (Figure 5). Les instruments UV semblent manquer de sensibilité (GOME2 ; OMI) alors que l’instrument TES est limité par un faible échantillonnage spatial.

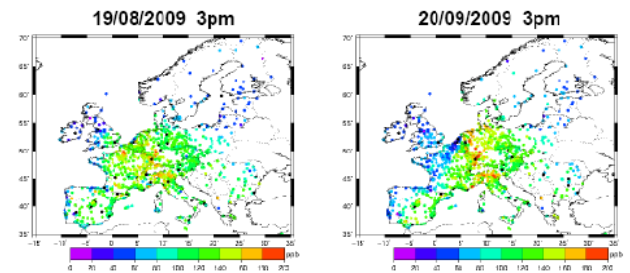


Figure 4 : Ozone surface concentrations ( $\mu\text{g.m}^{-3}$ ) from ground based stations. (<http://acm.eionet.europa.eu/databases/airbase/>)

La confrontation des observations IASI (colonnes 0-6km) aux modèles est consistante et montre la capacité d’un tel instrument à observer un épisode de pollution d’ampleur modéré. Ces conclusions doivent encore être affinées et un effort conséquent de validation et d’analyse est encore en cours. Ces conclusions si elles sont encourageantes appellent des considérations plus quantitatives. Pour cela nous avons réalisé un exercice d’assimilation croisée des observations IASI. Les colonnes 0-6km d’ozone ont ainsi été assimilées par deux systèmes d’assimilation distincts construits avec des modèles et méthodes d’assimilation différentes, CHIMERE-EnKF (Coman et al, 2012) et MOCAGE-Valentina (Barré et al, 2012). Cette approche doit permettre de s’affranchir en partie de la dépendance des résultats au système d’assimilation lui-même et donc de rendre plus robuste les conclusions. La comparaison des champs d’ozone de référence aux champs analysés doit permettre d’évaluer la quantité d’information apportée par IASI dans la troposphère ainsi que sa capacité à améliorer les outils de modélisation à l’échelle d’événements journaliers. Les domaines horizontaux couverts par les modèles et le jeu d’observations assimilé sont identiques.

L’évaluation des résultats est réalisée avec les profils d’ozone disponibles (MOZAIC ; sondages) mais aussi avec les observations de surface présentées ci-dessus (Figure 4). Les résultats de cet exercice sont encore très préliminaires et leur analyse commence à peine. Les premiers résultats associés à cet exercice d’assimilation sont attendus dans les semaines à venir.

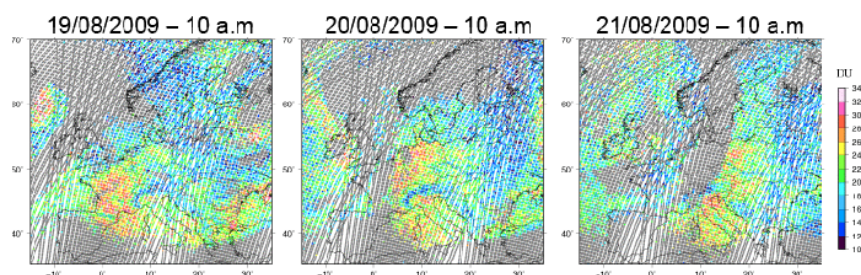
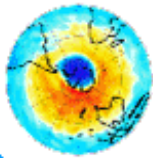


Figure 5 : 0-6km ozone columns (DU) retrieved from IASI measurements at 10 am



## Références :

Barré J., V.-H. Peuch, J.-L. Attié, L. El Amraoui, W. A. Lahoz, B. Josse, M. Claeysman, and P. Nédélec, Stratosphere-troposphere ozone exchange from high resolution MLS ozone analyses, *Atmos. Chem. Phys.*, 12, 6129–6144, 2012.

Coman A., Foret G., Beekmann M., Eremenko M., Dufour G., Gaubert B., Ung A., Schmechtig C., Flaud J.M. and Bergametti G.: Assimilation of IASI partial tropospheric columns with an Ensemble Kalman Filter over Europe, *Atmos. Chem. Phys.*, 12(5): 2513-2532, 2012.

Dufour, G., Eremenko, M., Griesfeller, A., Barret, B., LeFlochmoe'n, E., Clerbaux, C., Hadji-Lazaro, J., Coheur, P.-F., and Hurtmans, D.: Validation of three different scientific ozone products retrieved from IASI spectra using ozonesondes, *Atmos. Meas. Tech.*, 5, 611–630, doi:10.5194/amt-5-611-2012, 2012.

Eremenko, M., Dufour, G., Foret, G., Keim, C., Orphal, J., Beekmann, M., Bergametti, G., and Flaud, J.-M.: Tropospheric ozone distributions over Europe during the heat wave in July 2007 observed from infrared nadir spectra recorded by IASI, *Geophys. Res. Lett.*, 35, L18805, doi:10.1029/2008GL034803, 2008.

Foret, G., Hamaoui, L., Schmechtig, C., Eremenko, M., Keim, C., Dufour, G., Boynard, A., Coman, A., Ung, A. and Beekmann, M.: Evaluating the potential of IASI ozone observations to constrain simulated surface ozone concentrations, *Atmos. Chem. Phys.*, 9, 8479–8491, 2009.

Parrington, M., Jones, D. B. A., Bowman, K. W., Horowitz, L. W., Thompson, A. M., Tarasick, D. W., and Witte, J. C.: Estimating the summertime tropospheric ozone distribution over North America through assimilation of observations from the Tropospheric Emission Spectrometer, *J. Geophys. Res.*, 113, D18307, doi:10.1029/2007JD009341, 2008.

## Assimilation globale et continentale

### Caractérisation de la couche de transition extra-tropicale avec l'assimilation de MOPITT CO et de MLS O3

J. Barré<sup>5</sup>

Nous proposons d'assimiler les profils d'O3 stratosphériques restitués par Aura/MLS et les profils de CO troposphériques restitués par Terra/MOPITT dans le modèle de chimie transport MOCAGE. Nous avons quantifié la valeur ajoutée de l'assimilation de données d'O3 et de CO dans la région de la tropopause extra-tropicale, pour un cas d'étude au dessus de l'Europe et à l'échelle globale.

Dans cette étude on comparera deux champs différents d'O3, i.e. le modèle seul (free run) et les analyses d'O3, et deux champs différents de CO, i.e. le modèle seul (free run) et les analyses de CO. On étudiera comparativement donc 4 relations O3-CO. Dans un premier temps, nous nous sommes

concentrés sur le cas d'étude STE. L'étude des relations O3-CO permet d'établir une quantification de la hauteur et de l'épaisseur de la couche de transition. La relation O3-CO pour les "free runs" montre une ExTL d'environ 3km qui est centrée à 0.5km au dessus de l'isentrope 360-K (i.e. 1.5km au dessus de la tropopause thermique). Cette distribution montre un comportement typique des modèles, c'est à dire une surestimation de l'épaisseur de la ExTL et de son altitude (i.e. au dessus de la tropopause thermique). Les analyses d'O3 ont tendance à étirer la distribution de la ExTL vers la surface à cause d'une augmentation des valeurs de concentration d'O3 au niveau de l'UTLS. Cela élargit l'épaisseur de la ExTL d'environ 1km et descend son altitude moyenne de 1km plus proche de la tropopause thermique. Dans ce cas, la distribution de la ExTL montre des valeurs maximales au niveau de la tropopause thermique ce qui montre la capacité des analyses d'O3 à représenter l'évènement STE. Les analyses de CO, quant à elles, permettent de réduire l'épaisseur de la ExTL en réduisant l'extension de sa distribution du coté stratosphérique d'environ 0.4km. L'altitude de la ExTL se trouve alors sur l'isentrope 360-K. La signature de l'évènement STE n'est pas identifiée à partir des analyses de CO, à cause de la faible sensibilité des diagnostics aux variations de CO en troposphère. En combinant l'information fournie par les analyses d'O3 et les analyses de CO, la distribution de la ExTL a une altitude et une forme plus réaliste centrée sur la tropopause thermique.

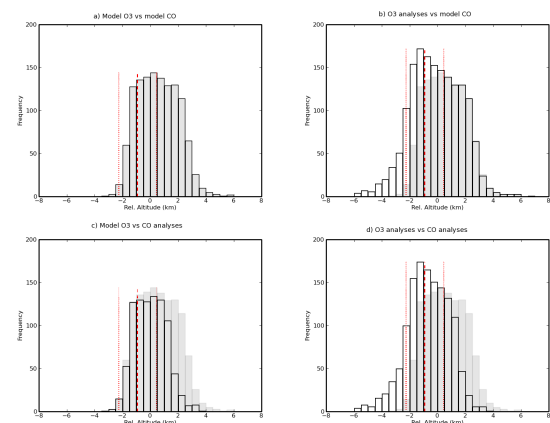
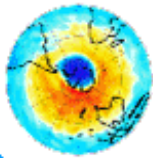


Figure 6 : Histograms showing the distributions of the ExTL in relative altitude space in the region between 30°W-10°E, 40°N-65°N on 15 August 2007 at 12:00 UT. Model O3 vs model CO (a), O3 analyses vs model CO (b), model O3 vs CO analyses (c) and O3 analyses vs CO analyses (d) are displayed in black and model O3 vs model CO distribution is over-plotted in gray on the plots. Red dashed and dotted vertical lines show the mean and the standard deviation of the location of the thermal tropopause, respectively. The histograms display the absolute frequencies.

Dans une seconde partie nous avons focalisé l'étude à l'échelle globale sur le mois d'août 2007. En comparaison du free run, les analyses d'O3 montrent un étalement de la ExTL vers la surface ce qui a pour effet de déplacer la position moyenne de la ExTL plus proche de la tropopause thermique. Les

<sup>5</sup> CNRM-Game, Météo-France/CNRS-URA 1357, Toulouse, France



analyses de CO réduisent l'étalement stratosphérique de la ExTL qui a aussi pour effet de baisser la localisation moyenne de la ExTL vers la tropopause thermique. Quand les analyses d'O3 et de CO sont utilisées simultanément dans les diagnostics, un effet synergique est observé. L'altitude moyenne de la ExTL suit bien celle de la tropopause thermique au delà des latitudes 50°N et 50°S. L'épaisseur de la ExTL est globalement réduite en comparaison avec le free run. Cela montre bien que l'assimilation des données MLS O3 et MOPITT CO permet de représenter de manière plus réaliste la ExTL entre la stratosphère et la troposphère. Comme il a été montré dans le cas d'étude, un échange de la stratosphère vers la troposphère est caractérisé par une extension troposphérique de la ExTL. A l'échelle globale, l'extension troposphérique vue par les analyses d'O3 de la ExTL en dessous du niveau 2-PVU montre les échanges de la stratosphère vers la troposphère en moyenne.

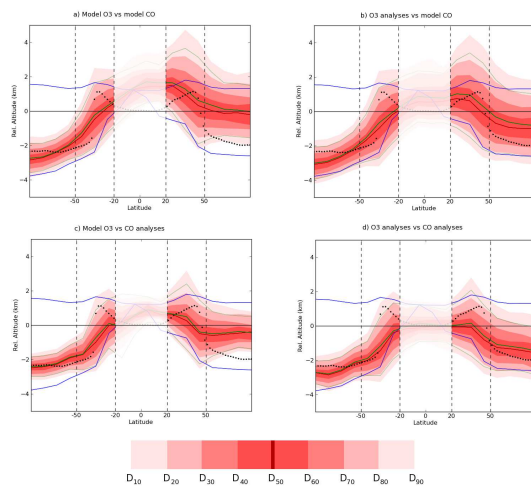


Figure 7 : Latitudinal height variations in altitude coordinates (km) relative to the 360-K level of the ExTL distribution for model O3 vs model CO (a), O3 analyses vs model CO (b), model O3 vs CO analyses (c) and O3 analyses vs CO analyses (d) in August 2007. Red filled contours provide the deciles altitudes of the distribution. Red and green lines are the median and mean altitudes, respectively. Blue lines show the lowermost stratosphere bounds: the lower line provides the 2-PVU contour in absolute value, the upper line provides the 380-K isentropic contour. Black dots show the location of the thermal tropopause. Tropical latitudes are not shown.

## Assimilation d'une espèce à courte durée de vie dans un modèle de chimie-transport à l'échelle continentale: le cas du NO2

E. Emili<sup>1</sup>, A. Piacentini<sup>1</sup>, S. Massart<sup>6</sup>, E. Jaumouillé<sup>5</sup>, O. Pannekoek<sup>5,1</sup>, D. Cariolle<sup>1</sup>

La suite du projet MACC (MACCII, Monitoring Atmospheric Composition and Climate Interim Implementation) prévoit l'assimilation des données de NO2 dans les modèles de qualité de l'air à l'échelle continentale. Ce polluant primaire est produit dans les processus de combustion et a une durée de vie relativement courte (<1 jour en troposphère) par rapport à d'autres polluants secondaires comme l'ozone. Sa distribution spatio-temporelle est par conséquent plus liée aux sources et présente une variabilité significative aux échelles fines (de l'ordre du km). La résolution spatiale des modèles de chimie de l'atmosphère à l'échelle continentale (~20km) et les incertitudes sur les sources posent donc des obstacles dans la modélisation du NO2. Cependant on dispose d'un réseau d'observations in-situ assez dense en Europe (AIRBASE) et d'observations satellitaires de NO2 à cadence journalière. L'objectif du travail ici présenté est donc d'explorer l'assimilation de données de NO2 avec le système MOCAGE-Valentina, déjà utilisé pour l'assimilation de l'ozone dans MACC (Jaumouillé et al. 2012).

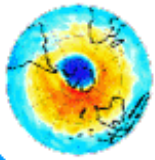
La période du 1-10 Août 2008 a été considérée pour cette analyse. Les observations in-situ sont celles du réseau Européen de qualité de l'air AIRBASE et les observations satellitaires proviennent du capteur OMI (produit DOMINO Ver. 2, Boersma et al., 2007). Les stations considérées sont de type rural, sub-urbain, urbain, selon la classification AIRBASE. Parmi l'ensemble des stations (~1100), un sous-ensemble (~400) est gardé pour une validation indépendante. Les données satellitaires OMI ont une résolution spatiale de 13x24 km au nadir avec des averaging kernels qui montrent un maximum de sensibilité du capteur dans la troposphère libre (Huijnen et al., 2010).

Le modèle direct a été d'abord comparé aux observations de type in-situ. La distribution spatiale et l'évolution temporelle des écarts modèle direct-observations sont montrées en Fig. 8. On observe i) un biais négatif systématique (~5ppbv, ~50% des valeurs observées) pour les sites de type urbain ii) une sous-estimation du NO2 durant la journée (6-18 UTC) aussi bien pour les sites ruraux que pour les sites urbains. Le biais pour les sites urbains est

<sup>1</sup> CERFACS/SUC CNRS-URA 1875, Toulouse, France

<sup>6</sup> ECMWF, Reading, UK

<sup>5</sup> CNRM-Game, Météo-France/CNRS-URA 1357, Toulouse, France



imputé à la mauvaise représentativité de la grille modèle de 0.2x0.2 degré pour des stations situées à proximité des sources.

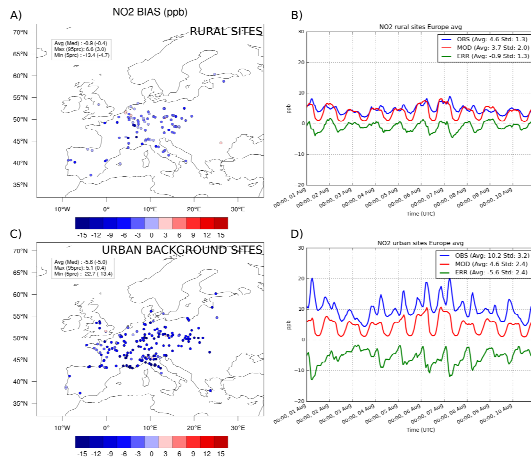


Figure 8 : distribution spatiale du biais NO<sub>2</sub> (modèle direct-obs) pour les stations de validation AIRBASE rurales (A) et urbaines (C) dans la période 1-10/8/2008. Évolution temporelle moyenne pour les valeurs de NO<sub>2</sub> modèle (rouge), observations (bleu) et leurs écarts pour les sites ruraux (B) et urbains (D).

La comparaison avec les données OMI (Fig. 9) confirme une sous-estimation de la colonne troposphérique de NO<sub>2</sub> au passage du satellite (~12 UTC), déjà remarquée dans plusieurs modèles en été (Huijnen et al. 2010).

Une expérience d'assimilation des données in-situ a été faite avec un 3D-FGAT sur des fenêtres d'une heure. On a utilisé une erreur modèle de 40% et une erreur pour les observations de 25% pour mieux corriger les biais du modèle. Une variance de 4/6 ppb (correspondant environ au biais des observations par rapport au modèle) a été sommée pour les sites de type sub-urbain/urbain en raison de leur erreur de représentativité. Après assimilation, les statistiques de validation (corrélation R et déviation standard STD) s'améliorent d'environ 10% pour tous les types de stations (Ranalysis~0.5, STDanalysis~60%). L'assimilation des données OMI avec la même configuration ne parvient pas à modifier les statistiques de validation à la surface parce que le nombre d'observations est souvent limité par les nuages (Fig. 9) et les incréments de NO<sub>2</sub>, étant apportés une fois par jour et distribués dans la troposphère par les averaging kernels, disparaissent trop rapidement.

Ce type d'exercice montre les problématiques de l'assimilation du NO<sub>2</sub> par rapport à celle de l'ozone: la présence des biais significatifs dans les modèles directs (soit liés à la représentativité, soit à la chimie diurne, soit au cadastre des émissions) et les limitations dues à la seule optimisation de l'état initial pour une espèce à courte durée de vie est très dépendante des émissions. On envisage de travailler sur une estimation plus précise des variances d'erreur d'ébauche et d'observations, sur les possibles améliorations du modèle direct, et sur le

développement d'un système d'assimilation qui permette d'optimiser les émissions et l'état initial au même temps (Elbern et al., 2007). Cela permettra également de gagner en capacité de prévision.

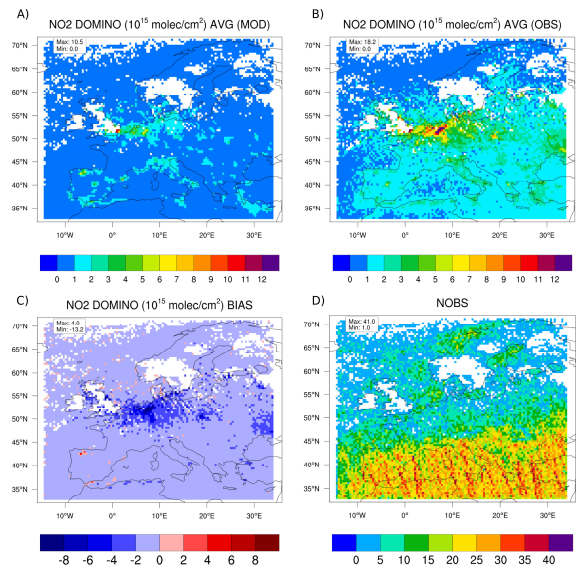


Figure 9 : A) moyenne temporelle des colonnes NO<sub>2</sub> troposphériques du modèle direct correspondant aux observations OMI dans la période 1-10/8/2008 et pondérées par les averaging kernels ; B) moyenne des observations OMI dans la même période ; C) différence (modèle-obs) ; D) nombre d'observations OMI. Les valeurs ont été agrégées sur une grille 0.4x0.4 degré.

#### Références :

Boersma, K.F., H.J. Eskes, J.P. Veefkind, E.J. Brinksma, R.J. van der A, M. Sneep, G.H.J. van den Oord, P.F. Levelt, P. Stammes, J.F. Gleason and E.J. Bucsela, Near-real time retrieval of tropospheric NO<sub>2</sub> from OMI, *Atm. Chem. Phys.*, 2013-2128, sref:1680-7324/acp/2007-7-2103, 2007

Huijnen, V., Eskes, H. J., Poupkou, A., Elbern, H., Boersma, K. F., Foret, G., Sofiev, M., Valdebenito, A., Flemming, J., Stein, O., Gross, A., Robertson, L., D'Isidoro, M., Kioutsioukis, I., Friese, E., Amstrup, B., Bergstrom, R., Strunk, A., Vira, J., Zyryanov, D., Maurizi, A., Melas, D., Peuch, V.-H., and Zerefos, C.: Comparison of OMI NO<sub>2</sub> tropospheric columns with an ensemble of global and European regional air quality models, *Atmos. Chem. Phys.*, 10, 3273-3296, doi:10.5194/acp-10-3273-2010, 2010

Jaumouillé, E., Massart, S., Piacentini, A., Cariolle, D., and Peuch, V.-H.: Impact of a time-dependent background error covariance matrix on air quality analysis, *Geosci. Model Dev.*, 5, 1075-1090, doi:10.5194/gmd-5-1075-2012, 2012

Elbern, H., Strunk, A., Schmidt, H., and Talagrand, O.: Emission rate and chemical state estimation by 4-dimensional variational inversion, *Atmos. Chem. Phys.*, 7, 3749-3769, doi:10.5194/acp-7-3749-2007, 2007

#### Lien ADOMOCA sur ETHER :

<http://ether.ipsl.jussieu.fr>

#### Contact

elodie.jaumouille@meteo.fr

Prochaine lettre : Mars 2013