

Échanges en surface dans le modèle de chimie transport multi-échelles MOCAGE

Surface exchanges in the MOCAGE multiscale chemistry and transport model

M. MICHOU*, V.-H. PEUCH

RÉSUMÉ

Les échanges en surface dans le Modèle de Chimie Transport (MCT) multi-échelles MOCAGE de Météo-France comprennent à la fois les flux d'émissions et de dépôt sec d'espèces gazeuses. Une interface 2D a été développée entre MOCAGE et le modèle de prévisions météorologiques opérationnel français ARPEGE dans le but de calculer des flux à la surface réalistes.

Pour les émissions, un inventaire global est employé pour le moment ; cet inventaire a été construit essentiellement à partir des inventaires des programmes IGAC/GEIA (International Global Atmospheric Chemistry/Global Emission Inventory Activity) et EDGAR (Emission Database for Global Atmospheric Research) qui ont des résolutions temporelles annuelles, saisonnières ou mensuelles et une résolution spatiale d'un degré.

Le dépôt sec d'espèces gazeuses, y compris l'ozone, le dioxyde de soufre, les composés azotés, les composés organiques à longue et à courte durée de vie, a été paramétrisé selon (WESELY, 1989). Le modèle calcule la vitesse de dépôt à partir de valeurs de trois résistances en série, les résistances aérodynamique, laminaire et de la surface. Ces résistances sont calculées en utilisant les champs de surface d'ARPEGE. Les champs liés à la végétation, tels l'indice foliaire, sont prescrits avec une résolution d'un degré sur le globe et de cinq minutes sur l'Europe. Un certain nombre de modifications a été apporté à la paramétrisation de (WESELY, 1989), par exemple pour la formulation de la résistance stomatale et celle de la résistance de surface sur les surfaces mouillées. Les valeurs calculées de vitesse de dépôt ont été comparées à des observations et leurs distributions spatiales et temporelles ont été analysées sur deux saisons opposées (hiver et été), sur les différents domaines de MOCAGE, de résolution allant de 2 degrés pour le globe à 0,25 degré pour la France.

Météo-France, Centre National de Recherches Météorologiques, 42, avenue G. Coriolis, 31057 Toulouse cedex, France.

* Correspondance. E-mail : martine.michou@meteo.fr

** Les commentaires seront reçus jusqu'au 30 avril 2003.

Mots clés : *dépôt sec, émissions, résistance de surface, chimie atmosphérique, modèle de chimie transport.*

1 – INTRODUCTION

La paramétrisation des échanges à la surface s'inscrit dans le développement du modèle multi-échelles stratosphérique et troposphérique 3D de Chimie-Transport de Météo-France MOCAGE (Modèle de Chimie Atmosphérique à Grande Échelle). MOCAGE est le successeur du modèle REPROBUS, développé en collaboration avec le NCAR (National Center for Atmospheric Research, États-Unis), et utilisé au CNRM (Centre National de Recherches Météorologiques, Météo-France) depuis 1991 pour étudier la chimie de la stratosphère et son interaction avec le climat (LEFÈVRE *et al.*, 1994).

MOCAGE couvre une large gamme d'objectifs scientifiques, depuis l'étude des interactions entre la chimie et le climat, jusqu'à la modélisation de la chimie troposphérique à l'échelle régionale. MOCAGE utilise généralement le forçage des analyses (archivées toutes les six heures), ou des prévisions (archivées toutes les trois heures) du modèle de prévisions météorologiques opérationnel de Météo-France ARPEGE (COURTIER *et al.*, 1991), modèle global spectral à maille variable, couvrant l'Europe avec une résolution de l'ordre de 20 km. MOCAGE peut considérer plusieurs niveaux de domaines imbriqués à double sens ; la version utilisée ici comporte trois domaines : un domaine global avec une résolution de $2^\circ \times 2^\circ$, un domaine européen de résolution $1^\circ \times 1^\circ$ (20W-40E, 30N-60N) et un domaine centré sur la France de résolution $0,25^\circ \times 0,25^\circ$ (6W-12E, 40N-54N). Une description plus détaillée de MOCAGE est disponible dans PEUCH *et al.* (1999) et JOSSE *et al.* (2001).

L'objectif de cet article est de présenter les premiers résultats se rapportant aux échanges en surface (émissions, dépôt sec) obtenus avec MOCAGE. L'originalité de notre approche a consisté à introduire un schéma d'échanges à la surface plus détaillé que ceux utilisés habituellement dans la modélisation à l'échelle globale (BRASSEUR *et al.*, 1998). Nous avons basé notre paramétrisation du dépôt sec sur le schéma de WESELY (1989). À ce jour, de tels schémas ont été essentiellement utilisés dans des études de qualité de l'air à l'échelle régionale ou continentale, bien que le choix d'hypothèses plus simplistes ait été reconnu comme une source d'erreurs significatives pour la modélisation globale (voir GANZVELD et LELIEVELD, 1995). De plus, nous avons introduit un certain nombre d'améliorations au schéma initial, parmi lesquelles une paramétrisation détaillée de la résistance stomatale qui comprend en particulier l'effet du stress hydrique des plantes, et une nouvelle paramétrisation pour le dépôt sur les surfaces mouillées. Une autre caractéristique intéressante de notre travail est que le modèle de surface est entièrement couplé avec les analyses d'un modèle de prévisions numérique opérationnel ; les résultats présentés sont donc spécifiques à la météorologie réelle des périodes étudiées. Enfin, les capacités de zoom de MOCAGE apportent une information sur la dépendance en fonction de la résolution spatiale des paramétrisations utilisées, et permettent des comparaisons avec des observations *in situ*. Toutes ces caractéris-

tiques ouvrent la voie à une meilleure évaluation des échanges à la surface dans un modèle atmosphérique global et de leur impact.

2 – DESCRIPTION DE L'INTERFACE SURFACE ATMOSPHÈRE

2.1 Émissions

Pour les émissions d'espèces gazeuses nous avons retenu, quand ils étaient disponibles, les totaux annuels d'émissions préconisés par IPCC (1995), et ceci afin de garantir autant que possible homogénéité entre les totaux et consensus à leur sujet. Dans la majorité des cas, les distributions spatiales sont celles des inventaires IGAC/GEIA ou EDGAR¹ — EDGAR venant en complément de GEIA. Dans ces inventaires, des valeurs mensuelles, saisonnières ou annuelles sont fournies sur une grille $1^\circ \times 1^\circ$, pour une année de référence, généralement 1990 ; pour MOCAGE ces cadastres sont interpolés spatialement sur les différents domaines, et des profils temporels peuvent être appliqués (BERNTSEN et ISAKSEN, 1997). Le module de surface de MOCAGE génère des valeurs d'émissions horaires afin de restituer le cycle diurne, important pour la simulation de la qualité de l'air. Le *tableau 1* regroupe les émissions utilisées dans MOCAGE, en distinguant les espèces et les sources.

Les données de N_2O sont disponibles sur le site web GEIA et sont décrites dans BOUWMAN *et al.* (1995) ; les données d'origine différencient neuf sources que nous avons groupées en catégories suivant IPCC (1995).

Les données de NO_x fuel fossile et industrie sont décrites dans BENKOVITZ *et al.* (1996). L'année de référence est 1985, et les données annuelles ont été réparties selon les saisons. Les NO_x sols continentaux sont ceux de YIENGER et LEVY (1995) : ils sont disponibles mensuellement et ont été obtenus par modélisation en tenant compte de la température de surface, des précipitations, des caractéristiques de la végétation, et de l'utilisation de fertilisants. On peut noter que les totaux d'émissions que nous utilisons pour sols continentaux et feux de biomasse (totaux de IPCC, 1995) sont plus importants que ceux utilisés dans d'autres modèles. Par exemple, MÜLLER et BRASSEUR (1995) imposent respectivement 6,7 et 4,3 Tg(N) an^{-1} , DENTENER et CRUTZEN (1993) 4 et 6 Tg(N) an^{-1} , et ROELOFS *et al.* (1997) 5,5 et 6 Tg(N) an^{-1} .

Les totaux d'émissions de NH_3 correspondent à DENTENER et CRUTZEN (1994), cité dans SEINFELD et PANDIS (1998), et la distribution spatiale suit BOUWMAN *et al.* (1997) qui prend en compte 11 sources.

Les distributions de CH_4 proviennent de différents inventaires : fuel fossile et utilisation des sols et traitement des déchets sont décrites dans OLIVIER *et al.* (1996), tandis que marécages vient de MATTHEWS et FUNG (1987) (valeurs mensuelles pour l'année de référence 1985), et termites de FUNG *et al.* (1991). Les

1. International Global Atmospheric Chemistry/Global Emission Inventory Activity, voir <http://weather.engin.umich.edu/geia/>; Emission Database for Global Atmospheric Research, RIVM, voir OLIVIER *et al.* (1996), <http://www.rivm.nl/env/int/coredata/edgar>.

totaux d'émissions, 510 Tg(CH₄) par an (IPCC, 1995), différent de ceux employés dans BERNTSEN et ISAKSEN (1997) (394 Tg(CH₄) an⁻¹), ou MÜLLER et BRASSEUR (1995) (485 Tg(CH₄) an⁻¹).

Les émissions des composés organiques volatils non méthaniques (COVNM) sont celles d'OLIVIER *et al.* (1996) et distinguent 23 COVNM et 18 sources. L'agrégation de catégories de COV EDGAR en espèces pour le schéma chimique RACM (Regional Atmospheric Chemistry Modeling) a été mise en place selon STOCKWELL *et al.* (1997). Pour les autres schémas chimiques optionnels de MOCAGE (e.g., SAPRC99, EMEP, IMAGES, Harvard-GISS, MOGUNTIA) nous utilisons les spéciations décrites dans BROCHETON (1999) afin de répartir les différentes espèces EDGAR émises selon les espèces COV du modèle. Ces spéciations ont été développées en s'appuyant sur deux inventaires à haute résolution, NAPAP pour les États-Unis et GENEMIS pour l'Europe.

Les COVNM biogéniques regroupent les Isoprène, Monoterpènes et autres COV réactifs définis comme constituants dont la durée de vie, dans des conditions troposphériques normales, est inférieure à un jour. Les distributions mensuelles et les totaux d'émissions sont ceux de GUENTHER *et al.* (1995).

Pour ce qui est de CO, la littérature rapporte un large éventail de totaux d'émissions. IPCC (1995) estime les incertitudes des différentes sources. Nous avons choisi de suivre ROELOFS *et al.* (1997) qui donne des valeurs compatibles avec celles du rapport de l'IPCC. La distribution spatiale est celle d'OLIVIER *et al.* (1996).

MOCAGE utilise les données de 1990 pour le CO₂, extraites d'ANDRES *et al.* (1996).

Les données SO₂ fuel fossile et industrie sont décrites dans BENKOVITZ *et al.* (1996). Les valeurs annuelles de 1985 ont été réparties saisonnièrement. La source feux de biomasse vient d'EDGAR, et la source volcans est détaillée dans ANDRES et KASGNOC (1998). Cette dernière représente des observations *in situ* moyennées sur 25 ans. Les totaux d'émissions sont ceux de SEINFELD et PANDIS (1998).

Pour les chlorofluorocarbones enfin les totaux d'émissions suivent OLIVIER *et al.* (1996) (voir *tableau 1* en annexe p. 193).

2.2 Dépôt sec

Le dépôt sec, par lequel les substances sont éliminées de l'atmosphère en l'absence de précipitations, dépend d'un grand nombre de facteurs dont la turbulence atmosphérique, les propriétés chimiques des espèces qui se déposent et la nature de la surface et de la végétation. MÉGIE (1996) indique que le dépôt sec représente 30 % du puits pour l'ozone troposphérique, 12 % du puits pour le monoxyde de carbone et 5 % du puits pour le méthane. La paramétrisation du dépôt sec, tant spatialement que temporellement, apparaît essentielle : GANZVELD et LELIEVELD (1995) décrivent une comparaison entre deux simulations de modèles, la première avec une vitesse de dépôt constante pour l'ozone (0,4 cm·s⁻¹ sur les continents et 0,07 cm·s⁻¹ sur les océans), et la seconde avec une paramétrisation simple de la vitesse de dépôt ; jusqu'à 35 % de différence sont observés entre les flux de dépôt.

Nous avons adopté la paramétrisation dite big-leaf qui suppose que la concentration du gaz trace à la surface est nulle et que le transport turbulent proche et dans la surface peut être représenté par trois résistances en série (voir le *tableau 2* en annexe p. 194 pour une description des symboles).

$$F_{cx} = V_{dx} C_x \text{ et } V_{dx} = \frac{1}{(R_a + R_{bx} + R_{cx})} \quad (1)$$

Le module de surface de MOCAGE détermine les valeurs horaires des vitesses de dépôt d'une centaine d'espèces gazeuses, sur les grilles des domaines MOCAGE. Les résistances sont calculées suivant les paramétrisations détaillées ci-dessous en utilisant les champs de surface et du plus bas niveau des analyses et des prévisions ARPEGE. Le type de surface MOCAGE est celui d'ARPEGE décrit dans GIARD et BAZILE (2000) ; les informations de surface proviennent de deux sources distinctes : les données de WILSON et HENDERSON-SELLERS (1985), résolution 1 degré, sont utilisées par défaut sur le globe. Sur l'Europe, un jeu de Météo-France, plus fin (2 km de maille interpolés à 5') fournit un masque des forêts plus fiable, et une description du cycle annuel de la végétation plus précise (CHAMPEAUX *et al.*, 1999). Des tables donnent les valeurs de la profondeur des racines, de l'albédo de la végétation, de la résistance stomatale minimum, et les valeurs mensuelles de l'indice foliaire (LAI, défini comme étant le rapport entre la surface de feuilles contenues dans une colonne verticale et celle de sa base) et de la fraction de végétation ou pourcentage de sol recouvert de végétation.

2.2.1 Résistances aérodynamique et quasi-laminaire

Contrairement à d'autres MCT dans lesquels la résistance aérodynamique R_a est constante [e.g., $50 \text{ s}\cdot\text{m}^{-1}$ dans MÜLLER et BRASSEUR (1995) et BRASSEUR *et al.* (1998)] nous avons choisi de paramétriser R_a . Nous utilisons une formulation basée sur le coefficient d'échange en surface pour le vent (C_D) et la vitesse du vent (V) au plus bas niveau du modèle. Par cohérence, nous avons adopté pour C_D la paramétrisation d'ARPEGE qui s'appuie sur LOUIS (1979) :

$$R_a = \frac{1}{C_D V} \text{ et } C_D = C_{DN} F_m \text{ et } C_{DN} = \frac{k^2}{\left[\ln \left(1 + \frac{z}{z_0} \right) \right]^2} \quad (2)$$

où :

$$F_m = \frac{1}{1 + \frac{10R_i}{(1 + 5R_i)^2}} \quad \text{si } R_i > 0 \text{ (cas stable)} \quad (3)$$

$$F_m = 1 - \frac{10R_i}{1 + 15 \times c(z_0/z_{0H}) \times C_{DN} \times \left[\left(1 + \frac{z}{z_0} \right) (-R_i) \right]^2} \quad (4)$$

si $R_i < 0$ (cas instable)

Différentes formules pour la résistance quasi-laminaire sont données dans la littérature. Nous avons choisi la suivante, selon HICKS *et al.* (1987) et WESELY (communication personnelle) pour toutes les surfaces recouvertes ou non de végétation :

$$R_{bx} = \frac{2}{ku_*} \times \left(\frac{S_c}{P_r} \right)^{\frac{2}{3}} \quad (5)$$

2.2.2 Résistance de surface

La résistance de surface R_{cx} a été paramétrisée, pour les surfaces continentales et océaniques, selon WESELY (1989) :

$$R_{cx} = [(R_{sx} + R_{mx})^{-1} + R_{lux}^{-1} + (R_{dc} + R_{clx})^{-1} + (R_{ac} + R_{gsx})^{-1}]^{-1} \quad (6)$$

Les résistances de surface des différents gaz sont calculées par rapport à celles de l'ozone et du dioxyde de soufre. Les résistances d'entrée intervenant dans le calcul des différents termes de l'équation 6, sont tabulées suivant la saison et le type de sol (11 types). Cinq saisons sont différenciées :

1. été avec végétation luxuriante ;
2. automne avec récoltes sur pied ;
3. fin de l'automne après les gelées, pas de neige ;
4. hiver avec neige au sol et gelées ;
5. printemps.

Pour une description détaillée du schéma voir WESELY (1989) et WESELY et HICKS (2000).

Nous avons appliqué des conditions grossières pour déterminer quelle saison WESELY sélectionner en un point quelconque du globe : aux latitudes moyennes, cette saison est déterminée par la date et l'occurrence de neige sur le sol ; aux hautes latitudes (au-dessus des cercles polaires) cette saison peut être la saison (3) ou (4) selon la présence de neige au sol ; et entre les tropiques cette saison est toujours la saison (1), excepté pour les déserts où nous appliquons une paramétrisation spécifique, décrite ci-dessous.

Le calcul de la résistance stomatale R_{sx} nécessite le calcul de la résistance stomatale pour la vapeur d'eau R_{swat} ; nous avons formulé R_{swat} selon le schéma de Météo-France ISBA (Interaction Soil Biosphere Atmosphere) employé dans les modèles météorologiques ARPEGE et ARPEGE-Climat (NOILHAN et MAHFOUF, 1996).

$$R_{sx} = R_{swat} \times \frac{D(H_2O)}{D_x} \quad \text{et} \quad R_{swat} = \frac{R_{smin}}{LAI} F_1 F_2^{-1} F_3^{-1} F_4^{-1} \quad (7)$$

où F_1 paramétrise l'effet du rayonnement photosynthétiquement actif, F_2 décrit la disponibilité de l'eau dans les racines pour la transpiration, F_3 représente l'effet du déficit de vapeur d'eau dans l'air, et F_4 autorise une dépendance de la résistance stomatale par rapport à la température. En plus des champs météorologiques classiques (pression, température et humidité) au niveau le plus bas du modèle, d'autres champs tels le flux solaire (calculé dans ARPEGE en utilisant une paramétrisation des nuages), la résistance stomatale minimum, le LAI,

ou le contenu en eau du sol (généralisé dans ARPEGE à l'aide d'équations pronostiques) sont indispensables pour calculer R_{swat} .

Dans le cas de l'ozone, aucune distinction n'est faite entre la pluie et la rosée qui réduisent légèrement la résistance de surface (la résistance cuticulaire mouillée est égale à 75 % de la résistance cuticulaire sèche). Pour le dioxyde de soufre, il est admis que la pluie ou la rosée réduisent la résistance de surface. Nous utilisons maintenant une valeur de $50 \text{ s}\cdot\text{m}^{-1}$ pour les résistances cuticulaire et du sol, pour le dépôt de dioxyde de soufre sur surface mouillée. Ces changements font que les vitesses de dépôt sont en moyenne plus importantes pour le dioxyde de soufre que pour l'ozone (voir le *tableau 3* en annexe). Ceci est en accord avec les observations reportées dans ERISMAN (1994) et MEYERS *et al.* (1998). Il va sans dire toutefois que de plus amples travaux sont nécessaires pour comprendre le dépôt sur surfaces mouillées ainsi que pour mieux estimer l'humidité du sol et détecter la rosée.

Des informations caractéristiques de la végétation, y compris la fraction de végétation (voir le début de la section 2.2), sont attachées à chaque point de grille. Quand cette fraction est inférieure à 0,1, nous associons le type de sol WESELY (8) régions arides, quasiment désertiques au point de grille. Pour ce type de sol, les résistances d'entrée Wesely sont indépendantes de la saison. Si la fraction de végétation est inférieure à 0,4 nous appliquons une interpolation entre la vitesse de dépôt pour la végétation type (8) et celle spécifique du lieu et de l'époque dans l'année.

Nous avons aussi adopté un certain nombre de recommandations en conformité avec WALMSLEY et WESELY (1996) et nos propres tests :

- un maximum de 10^5 est imposé à toutes les résistances ;
- R_{lux} a été reformulée en distinguant une valeur sèche et une valeur mouillée ;
- la résistance de surface de HNO_3 est maintenant traitée à part : quand la température de surface est supérieure à $-2 \text{ }^\circ\text{C}$, R_{chNO_3} est mise à $10 \text{ s}\cdot\text{m}^{-1}$, dans les autres cas elle est calculée en fonction de la température. Avec cette paramétrisation, V_{dHNO_3} est déterminée essentiellement par la turbulence atmosphérique. De plus, comme les observations ont révélé que le transport de H_2O_2 est semblable à celui de HNO_3 (voir HALL et CLAIBORN, 1997), nous avons remplacé la paramétrisation de WESELY (1989) pour H_2O_2 , avec laquelle la moyenne journalière de la vitesse de dépôt sur les continents était d'environ $0,5 \text{ cm}\cdot\text{s}^{-1}$, beaucoup plus faible que celle de HNO_3 ($1,87 \text{ cm}\cdot\text{s}^{-1}$), par la paramétrisation pour HNO_3 (en accord avec une communication personnelle de WESELY).

Nous avons changé la valeur de la résistance du sol pour SO_2 , notée r_{gsS} dans WESELY (1989), de 0 à $10 \text{ s}\cdot\text{m}^{-1}$.

Enfin, nous avons étendu la liste initiale de gaz pris en compte par WESELY (14 gaz) à une liste de 121 gaz, en distinguant leur constante de HENRY spécifique H^* pour une eau à pH quasiment neutre (voir SEINFELD et PANDIS, 1998 et <http://www.mpch-mainz.mpg.de/~sander/res/henry.html>) et un facteur de réactivité (f_0) qui caractérise la réactivité des substances chimiques par rapport à la feuille, 1 pour O_3 ou H_2O_2 , 0,1 pour NO_2 ou HONO, ou 0 pour SO_2 par exemple. Les espèces présentées ici couvrent une partie des espèces du schéma chimique RACM (STOCKWELL *et al.*, 1997).

3 – RÉSULTATS ET DISCUSSION

Nous avons calculé les vitesses de dépôt d'un certain nombre d'espèces chimiques, pour plusieurs mois et sur les trois domaines de MOCAGE. Nos premiers objectifs étaient d'estimer la validité d'ensemble de notre schéma et de caractériser spatialement et temporellement les distributions des vitesses de dépôt. En ce qui concerne une validation plus poussée, on peut noter que les observations ont été faites essentiellement l'été et pour un nombre limité d'espèces, moins de 20.

Le *tableau 3* présente les vitesses de dépôt des espèces chimiques pertinentes pour la chimie de l'ozone dans la couche limite et l'atmosphère libre. Les valeurs statistiques, moyenne et écart type pour l'ensemble du globe, valables pour juillet 2000 sont présentées, ainsi que des vitesses de dépôt observées (en gras). Notre souci n'était pas de comparer quantitativement des valeurs mesurées en des sites spécifiques avec des résultats moyens du modèle calculés sur des points de grille, mais de s'assurer que les vitesses calculées étaient de l'ordre de grandeur des observations.

Les vitesses calculées sur le domaine haute résolution ($0,25^\circ$) sont sensiblement plus élevées, avec des moyennes sur les terres de $0,50 \text{ cm}\cdot\text{s}^{-1}$ pour O_3 , $0,67 \text{ cm}\cdot\text{s}^{-1}$ pour SO_2 , et $2,05 \text{ cm}\cdot\text{s}^{-1}$ pour HNO_3 , et ainsi plus en accord avec certaines observations. Pour information, nous avons aussi inclus dans le *tableau 3* les valeurs constantes utilisées dans d'autres MCT qui ne paramétrisent pas le dépôt sec. Il y a une certaine concordance entre ces constantes et les vitesses moyennes globales de MOCAGE. Toutefois, des différences notables peuvent être soulignées, telles celles pour V_{dSO_2} sur Terre et Océan entre MOCAGE et PHAM *et al.* (1995), pour $V_{\text{dH}_2\text{O}_2}$ sur Terre entre MOCAGE et HAUGLUSTAINE *et al.* (1994), et pour V_{dNO_2} sur Terre et Océan entre MOCAGE et KANAKIDOU *et al.* (1991) (voir *tableau 3* en annexe p. 195).

La *figure 1* en annexe p. 197 présente les vitesses de dépôt calculées pour juillet 2000, moyennées pour chaque heure solaire locale, en distinguant les continents, sans neige ni glace, et les océans, mer libre uniquement. Un cycle diurne apparaît clairement sur les continents pour toutes les espèces, à l'exception de NO , CO et CH_4 dont les vitesses de dépôt sont très faibles et presque constantes ($0,001 \text{ cm}\cdot\text{s}^{-1}$). Les vitesses couvrent une étendue significative, sur les océans de $0,001 \text{ cm}\cdot\text{s}^{-1}$ pour NO et TOL (toluène et aromatiques moins réactifs), à $0,72 \text{ cm}\cdot\text{s}^{-1}$ pour GLY (glyoxal) et MGLY (méthylglyoxal et autres aldéhydes α -carbonés) ; et sur les continents de $0,001 \text{ cm}\cdot\text{s}^{-1}$ pour CH_4 ou CO par exemple, à $2,68 \text{ cm}\cdot\text{s}^{-1}$ pour HNO_3 et $2,87 \text{ cm}\cdot\text{s}^{-1}$ pour H_2O_2 (maximum des moyennes horaires). Sur les continents, les moyennes mensuelles horaires vont de $0,28 \text{ cm}\cdot\text{s}^{-1}$ à 00 heure locale solaire à $0,57 \text{ cm}\cdot\text{s}^{-1}$ à 12 heures locale solaire pour SO_2 , et de $0,21 \text{ cm}\cdot\text{s}^{-1}$ à $0,48 \text{ cm}\cdot\text{s}^{-1}$ pour O_3 . Les espèces solubles telles HNO_3 , H_2O_2 , ou GLY, ont les plus fortes vitesses de dépôt, suivies par les espèces modérément solubles et dont la réactivité f_0 est non nulle, NO_2 , PAN (peroxyacétyle nitrate et autres PAN saturés) ou CH_3OOH par exemple.

Sur les océans aussi le dépôt sec paraît être déterminé par la solubilité, avec des vitesses de dépôt plus élevées pour HNO_3 , H_2O_2 , ou GLY par exemple. Pour ces espèces solubles, dont le dépôt sec est contrôlé par la tur-

bulence atmosphérique, des différences importantes apparaissent quand on modifie la paramétrisation de la longueur de rugosité z_0 . Nous avons mené l'étude de sensibilité suivante : nous avons calculé V_{dSO_2} sur les océans dans un premier cas avec un z_0 constant climatologique, $z_0 = 0,001$ m ; V_{dSO_2} varie alors entre $0,8 \cdot 10^{-3}$ et $2,5$ $\text{cm} \cdot \text{s}^{-1}$ pour un jour donné. Dans un second cas, nous avons paramétrisé z_0 selon la formule de CHARNOCK, $z_0 = 0,021 \times \frac{u_*^2}{g} + 0,00005 \frac{C_D}{C_{DN}}$; z_0 varie alors de $2 \cdot 10^{-5}$ à 10^{-3} , et V_{dSO_2} de $0,7 \cdot 10^{-3}$ à $3,0$ $\text{cm} \cdot \text{s}^{-1}$, avec des vitesses V_{dSO_2} plus faibles dans le second cas entre 30°N et 30°S . La moyenne globale de V_{dSO_2} a diminué dans le second cas d'environ 30 %. Les vitesses de dépôt sur les océans, présentées ici, prennent en compte la paramétrisation de CHARNOCK.

La *figure 2* en annexe p. 198 souligne les variabilités spatiales et temporelles de la vitesse de dépôt de l'ozone. Plusieurs particularités ressortent : une certaine variabilité spatiale et temporelle existe sur les océans, avec des vitesses de dépôt plus faibles ($< 0,045$ $\text{cm} \cdot \text{s}^{-1}$) qui s'étendent dans l'océan austral davantage en janvier, probablement du fait de vents plus faibles. Ceci est en accord avec les résultats obtenus par le modèle de GANZVELD et LELIEVELD (1995). En général toutefois, V_{dO_3} sur les océans reste autour de $0,05$ $\text{cm} \cdot \text{s}^{-1}$. Sur les continents au contraire, une grande variabilité existe avec des vitesses de dépôt contrastées entre janvier et juillet, et entre 00 et 12 UTC : de très faibles valeurs ($< 0,045$ $\text{cm} \cdot \text{s}^{-1}$) apparaissent sur les terres froides, souvent couvertes de neige, en janvier (e.g., Sibérie ou Amérique du Nord). À une longitude ou latitude donnée, les vitesses sont plus faibles sur les déserts, Sahara ou Australie centrale. Un cycle diurne prononcé est visible, avec des vitesses de dépôt dépassant $0,65$ $\text{cm} \cdot \text{s}^{-1}$ sur une grande partie de l'Europe en juillet à 12 UTC.

Les vitesses de dépôt du dioxyde de soufre présentent des variabilités spatiale et temporelle comparables à celles de l'ozone sur les continents (voir *figure 3* en annexe p. 199). On notera toutefois que ces vitesses ont de très faibles valeurs sur les terres froides ($V_{dSO_2} < 0,001$ $\text{cm} \cdot \text{s}^{-1}$), et des valeurs modérées en janvier dans les zones tempérées telles l'Europe où le sol est fréquemment mouillé par la pluie (V_{dSO_2} autour de $0,5$ $\text{cm} \cdot \text{s}^{-1}$). Sur les océans, la variabilité saisonnière est frappante et reflète la distribution des vents ; les vitesses moyennes atteignent $1,5$ $\text{cm} \cdot \text{s}^{-1}$, en janvier dans l'Atlantique Nord et en juillet dans le Pacifique Sud. Ces vitesses sont plus faibles que celles de GANZVELD *et al.* (1998) ($2,0$ $\text{cm} \cdot \text{s}^{-1}$).

La *figure 4* en annexe p. 200 révèle les similarités et les différences obtenues quand nous appliquons le schéma de dépôt sec à différentes résolutions spatiales. Les vitesses de dépôt calculées pour juillet 2000, 12 UTC, à 2, 1 et 0,25 degrés, ont été tracées sur le domaine régional de MOCAGE (cartes a, b, c) : des vitesses supérieures à $0,85$ $\text{cm} \cdot \text{s}^{-1}$ existent de façon similaire en a, b et c sur l'Angleterre, l'ouest de la France, la Belgique et une partie de l'Allemagne. Les vitesses calculées à 0,25 degré ont été moyennées à 2 degrés (carte d) et 1 degré (carte e). Les différences entre a et d d'un côté, et b et e de l'autre indiquent que l'échelle à laquelle la paramétrisation est appliquée importe. Ce point nécessite une validation plus complète ; des flux et vitesses de dépôt de l'ozone ont été mesurés dans le contexte de la campagne ESCOMPTE qui a eu lieu

dans la région de Marseille (sud de la France) durant l'été 2001. Ces mesures devraient permettre une validation locale de notre schéma.

4 – CONCLUSION

Les échanges en surface des espèces gazeuses se rapportant à la chimie de l'ozone ont été paramétrisés dans MOCAGE, le MCT de Météo-France. Si les émissions actuellement prises en compte viennent d'inventaires assez grossiers, le module de dépôt sec paraît être un outil unique : il calcule la vitesse de dépôt sec d'une centaine d'espèces, toutes les heures, sur des mailles dont la taille varie de 2 degrés sur le globe à 0,25 degré sur la France en utilisant les champs météorologiques du modèle de prévision numérique du temps de Météo-France. Les premiers résultats, climatologiques, paraissent satisfaisants : les vitesses de dépôt semblent réalistes quand on les compare aux observations disponibles, et des cycles diurnes et/ou saisonniers apparaissent nettement sur les continents ou sur les océans selon l'espèce considérée. L'utilisation de notre schéma à différentes résolutions spatiales indique que l'échelle à laquelle la paramétrisation est appliquée importe. Pour ce qui est des émissions, ceci plaide en faveur du choix de la fine résolution, les émissions étant alors en meilleur accord avec les observations. Les développements à venir consisteront, pour les émissions, à la prise en compte des émissions EUROTRAC/GENEMIS sur l'Europe (Generation and Evaluation of Emission data). Pour le dépôt sec, nous analyserons de manière plus détaillée nos résultats en distinguant différents types de végétation, puis nous utiliserons une description globale de la végétation plus fine spatialement et temporellement. Une validation sera alors menée en comparant les vitesses calculées à des observations en des sites précis. La publication d'une climatologie, et si possible d'une paramétrisation simplifiée pour les besoins des MCT globaux, sera effectuée dans une étape ultérieure.

REMERCIEMENTS

Nous tenons à remercier E. BAZILE et R. EL KHATIB pour leur aide concernant ARPEGE et les outils de post-traitement. Tous nos remerciements chaleureux vont également à M.L. WESELY pour plusieurs discussions très utiles.