

CALIBRATION ET OPTIMISATION
DU MODÈLE QUÉBÉCOIS DE TRANSPORT
À GRANDES DISTANCES
DES POLLUANTS ATMOSPHÉRIQUES

Par

Jean-Pierre Fortin *

Gilles Boulet *

Marius Lachance *

Claude Lelièvre **

Ghislain Jacques **

Rapport scientifique No 224

(rapport final)

INRS-Eau

C.P. 7500

Sainte-Foy (Québec)

G1V 4C7

Pour

Ministère de l'Environnement du Québec

Mars 1987

* INRS-Eau

** Ministère de l'Environnement du Québec

TABLE DES MATIÈRES

	Page
Table des matières	i
Liste des tableaux	ii
Liste des figures	iii
Introduction	1
1. Optimisation du modèle	2
1.1 Introduction	2
1.2 Modifications apportées au modèle	2
2. Calcul des concentrations	8
2.1 Calcul des concentrations des polluants dans l'eau	8
2.1.1 Lessivage d'un polluant particulaire par la précipitation	8
2.1.2 Lessivage d'un polluant gazeux par la précipitation	15
2.1.3 Présentation de la méthodologie retenue	18
2.2 Présentation et discussion des résultats	22
2.3 Conclusion des chapitres 1 et 2	37
3. Synthèses des objectifs de l'étude et du contenu des deux premiers rapports	38
3.1 Objectifs de l'étude	38
3.2 Premier rapport d'étape	38
3.3 Deuxième rapport d'étape	39
Recommandations finales	46
Références bibliographiques	49

LISTE DES TABLEAUX

	Page
Tableau 2.1	Rapport de balayage des sulfates (d'après Chan et Chung, 1986) 15
Tableau 2.2	Rapport de balayage SO ₂ (d'après Chan et Chung, 1986) 18
Tableau 2.3	Valeurs attribuées aux paramètres du modèle pour les simulations relatives à la saison d'été 1982 23
Tableau 2.4	Rapports de balayage r ₂ et r ₄ en fonction du bruit de fond pour la simulation No 3. Les valeurs soulignées sont discutées dans le texte 30
Tableau 2.5	Rapports de balayage r ₂ et r ₄ en fonction du bruit de fond pour la simulation No 4. Les valeurs soulignées sont discutées dans le texte 31
Tableau 3.1	Objectifs spécifiques de l'ensemble du projet 40
Tableau 3.2	Résumé du rapport # 1 41
Tableau 3.3	Résumé du rapport # 2 43

LISTE DES FIGURES

	Page
Figure 1.1 Dépôts de sulfates (kg SO ₄ /ha.sais.) évalués à l'aide du modèle pour l'été 1982 (d'après Fortin <u>et al.</u> , 1986) Markov simple	3
Figure 1.2 Dépôts de sulfates (kg SO ₄ /ha.sais.) évalués à l'aide du modèle pour l'été 1982 (d'après Fortin <u>et al.</u> , 1986) Markov double	3
Figure 1.3 Dépôts de sulfates (kg SO ₄ /ha.sais.) évalués à l'aide du modèle pour l'été 1982. Markov double. Simulation No 1	7
Figure 1.4 Dépôts de sulfates (kg SO ₄ /ha.sais.) évalués à l'aide du modèle pour l'été 1982. Markov double. Simulation No 2	7
Figure 2.1 Illustration du lessivage d'un polluant particulaire par un hydrométéore	9
Figure 2.2 Évaluation théorique du coefficient de lessivage (Λ) normalisé par le taux de précipitation (J) en fonction de la moyenne géométrique du rayon des aérosols. σ_g est la déviation standard de la loi log-normale représentant le spectre de tailles des aérosols (d'après Dana et Hales, 1976)	11
Figure 2.3 Évaluation théorique du rapport de balayage en fonction du taux de précipitation pour différents types de nuages (d'après Scott, 1978)	13
Figure 2.4 Concentrations en sulfates ($\mu\text{eq}/1$ de SO ₄) mesurées dans l'eau de précipitation pour l'été 1982 (d'après Paradis, 1985)	21

	Page
Figure 2.5 Concentrations de SO ₂ (exprimées en µg SO ₄ /m ³) dans l'air évaluées à l'aide du modèle pour les épisodes humides de l'été 1982. Simulation no 3	25
Figure 2.6 Concentrations de SO ₂ (exprimées en µg SO ₂ /m ³) dans l'air évaluées à l'aide du modèle pour les épisodes humides de l'été 1982. Simulation no 4	25
Figure 2.7 Concentrations de SO ₄ (µg SO ₄ /m ³) dans l'air évaluées à l'aide du modèle pour les épisodes humides de l'été 1982. Simulation no 3	26
Figure 2.8 Concentrations de SO ₄ (µg SO ₄ /m ³) dans l'air évaluées à l'aide du modèle pour les épisodes humides de l'été 1982. Simulation No 4	26
Figure 2.9 Concentrations de SO ₂ (exprimées en µg SO ₄ /m ³) dans l'air évaluées à l'aide du modèle pour les épisodes secs de l'été 1982. Simulation No 3	27
Figure 2.10 Concentrations de SO ₂ (exprimées en µg SO ₄ /m ³) dans l'air évaluées à l'aide du modèle pour les épisodes secs de l'été 1982. Simulation No 4	27
Figure 2.11 Concentrations de SO ₄ (µg SO ₄ /m ³) dans l'air évaluées à l'aide du modèle pour les épisodes secs de l'été 1982. Simulation No 3	28
Figure 2.12 Concentrations de SO ₄ (µg SO ₄ /m ³) dans l'air évaluées à l'aide du modèle pour les épisodes secs de l'été 1982. Simulation No 4	28

	Page
Figure 2.13 Concentrations en sulfates ($\mu\text{eq/l}$ de SO_4) mesurées dans l'eau de précipitation pour l'été 1982 (d'après Paradis, 1985)	33
Figure 2.14 Concentrations de SO_4 ($\mu\text{eq SO}_4/\text{l}$) dans l'eau évaluées à l'aide du modèle pour l'été 1982. Simulation No 3	34
Figure 2.15 Concentrations de SO_4 ($\mu\text{eq SO}_4/\text{l}$) dans l'eau évaluées à l'aide du modèle pour l'été 1982. Simulation No 4	34
Figure 2.16 Dépôts de sulfates ($\text{kg SO}_4/\text{ha.sais}$) évalués à l'aide du modèle pour l'été 1982. Simulation No 3	35
Figure 2.17 Dépôts de sulfates ($\text{kg SO}_4/\text{ha.sais}$) évalués à l'aide du modèle pour l'été 1982. Simulation No 4	35
Figure 2.18 Dépôts de sulfates ($\text{kg SO}_4/\text{ha.sais}$) évalués à l'aide des données du REPQ pour l'été 1982 (d'après Fortin <u>et al.</u> 1986)	36



INTRODUCTION

Le présent rapport constitue le rapport final d'une série de trois, portant sur la "calibration et l'optimisation du modèle québécois de transport à grandes distances des polluants atmosphériques", étude subventionnée par le ministère de l'Environnement du Québec et qui a démarré à l'automne 1985.

Le premier de ces rapports a été consacré à l'amélioration de l'étalonnage des paramètres du modèle et à son évaluation à l'aide d'une nouvelle cartographie plus détaillée des régions-sources de pollution et des régions réceptrices.

Quant au second rapport, il porte sur la caractérisation des cycles secs-humides utilisés dans le modèle. On y traite en particulier du regroupement des stations et du prolongement des séries temporelles des données pluviographiques dans le but d'améliorer la représentativité régionale des distributions des cycles secs-humides.

Dans ce dernier rapport, on discute de la méthodologie retenue pour le calcul des concentrations des polluants dans l'eau de précipitations et de l'intégration de ces concentrations aux précipitations observées pour une saison donnée, afin d'obtenir de meilleures estimations de la distribution spatiale des dépôts de sulfates, sur une base saisonnière.

La présentation de ces résultats sera suivie des conclusions propres à cette dernière étude, d'une synthèse des objectifs visés par l'octroi de la subvention, des réalisations, conclusions et recommandations des deux premiers rapports et enfin de recommandations générales basées sur l'ensemble de l'étude.

1. OPTIMISATION DU MODÈLE

1.1 Introduction

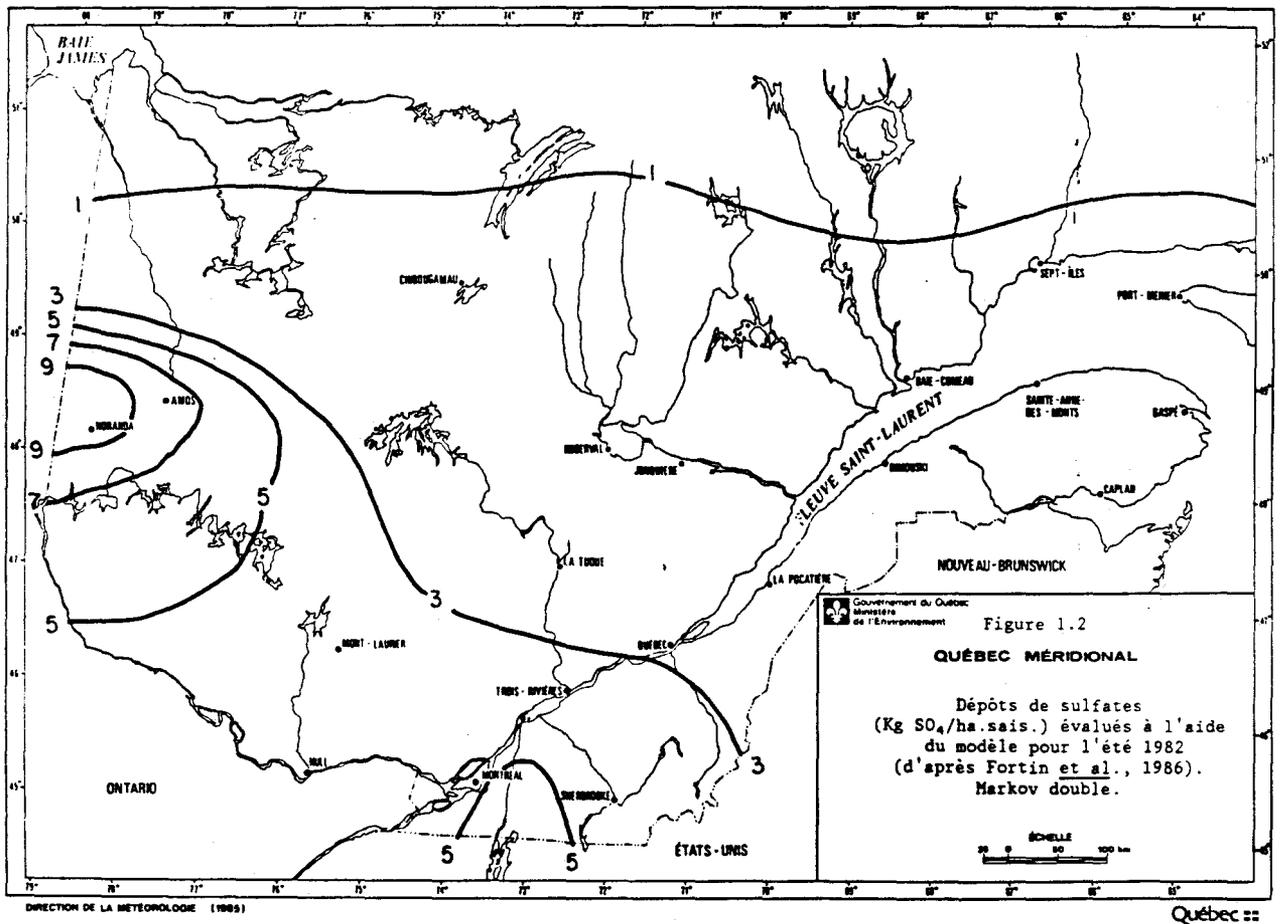
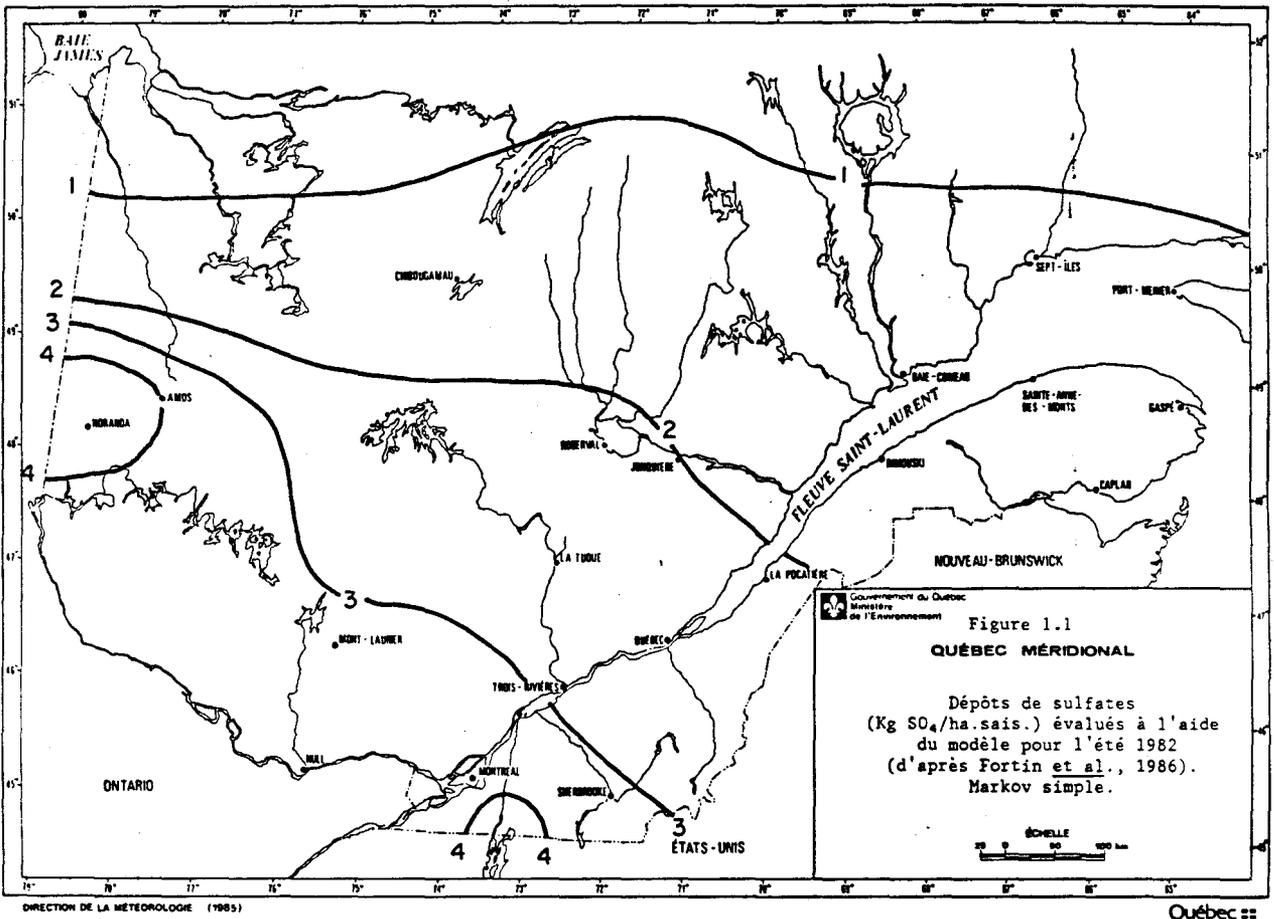
Ce chapitre décrit, dans un premier temps, les différentes modifications qui ont été apportées au modèle de transport à grandes distances des polluants atmosphériques (MTGDPA). Nous présentons ensuite quelques résultats que nous avons obtenus, suite à ces modifications. Enfin, précisons que la présente étude porte uniquement sur la saison d'été 1982.

1.2 Modifications apportées au modèle

Les travaux récents de Fortin et al. (1986) ont permis de constater que l'utilisation dans le MTGDPA de chaînes de Markov doubles pour modéliser les cycles secs-humides avait pour effet de surestimer les dépôts de sulfates près des sources. Les figures 1.1 et 1.2 obtenues par Fortin et al. (1986) illustrent ceci. Ces figures présentent les dépôts de sulfates obtenus lors de deux simulations: l'une a été réalisée avec des chaînes de Markov simples (figure 1.1) et l'autre avec des chaînes de Markov doubles (figure 1.2). Les différences importantes entre les dépôts illustrés par ces figures ont été attribuées, en partie, au lessivage des polluants par les averses. Toutefois, l'origine réelle du problème a été découverte récemment. Il appert en effet que les dépôts n'étaient pas calculés correctement avec les doubles chaînes de Markov. Les paragraphes suivants décrivent les modifications ou correctifs qui ont été apportés au modèle à ce sujet.

Soient,

- t_{hc} : durée moyenne des épisodes humides courts;
- t_{hl} : durée moyenne des épisodes humides longs;
- t_{sc} : durée moyenne des épisodes secs courts;
- t_{sl} : durée moyenne des épisodes secs longs.



Ces paramètres sont ceux que l'on obtient en modélisant les distributions de la durée des épisodes secs et humides à l'aide de chaînes de Markov doubles. Un cycle sec-humide peut donc être représenté par l'une ou l'autre des 4 combinaisons suivantes:

- 1) épisode sec court suivi d'un épisode humide court;
- 2) épisode sec court suivi d'un épisode humide long;
- 3) épisode sec long suivi d'un épisode humide court;
- 4) épisode sec long suivi d'un épisode humide long;

et ces cycles ont des durées moyennes respectives de:

- 1) $t_{sc} + t_{hc} = t_1$
- 2) $t_{sc} + t_{hl} = t_2$
- 3) $t_{sl} + t_{hc} = t_3$
- 4) $t_{sl} + t_{hl} = t_4$

Posons,

D_1^* : taux de variation des dépôts de sulfates par rapport au temps lors du cycle sec-humide # 1;

D_2^* : taux de variation des dépôts de sulfates par rapport au temps lors du cycle sec-humide # 2;

D_3^* : taux de variation des dépôts de sulfates par rapport au temps lors du cycle sec-humide # 3;

D_4^* : taux de variation des dépôts de sulfates par rapport au temps lors du cycle sec-humide # 4.

Les dépôts saisonniers de sulfates s'expriment alors de la façon suivante:

$$D = \frac{1}{t_{total}} \{t_1 A C D_1^* + t_2 (1-A) C D_2^* + t_3 A (1-C) D_3^* + t_4 (1-A) (1-C) D_4^*\} \Delta t \quad (1.1)$$

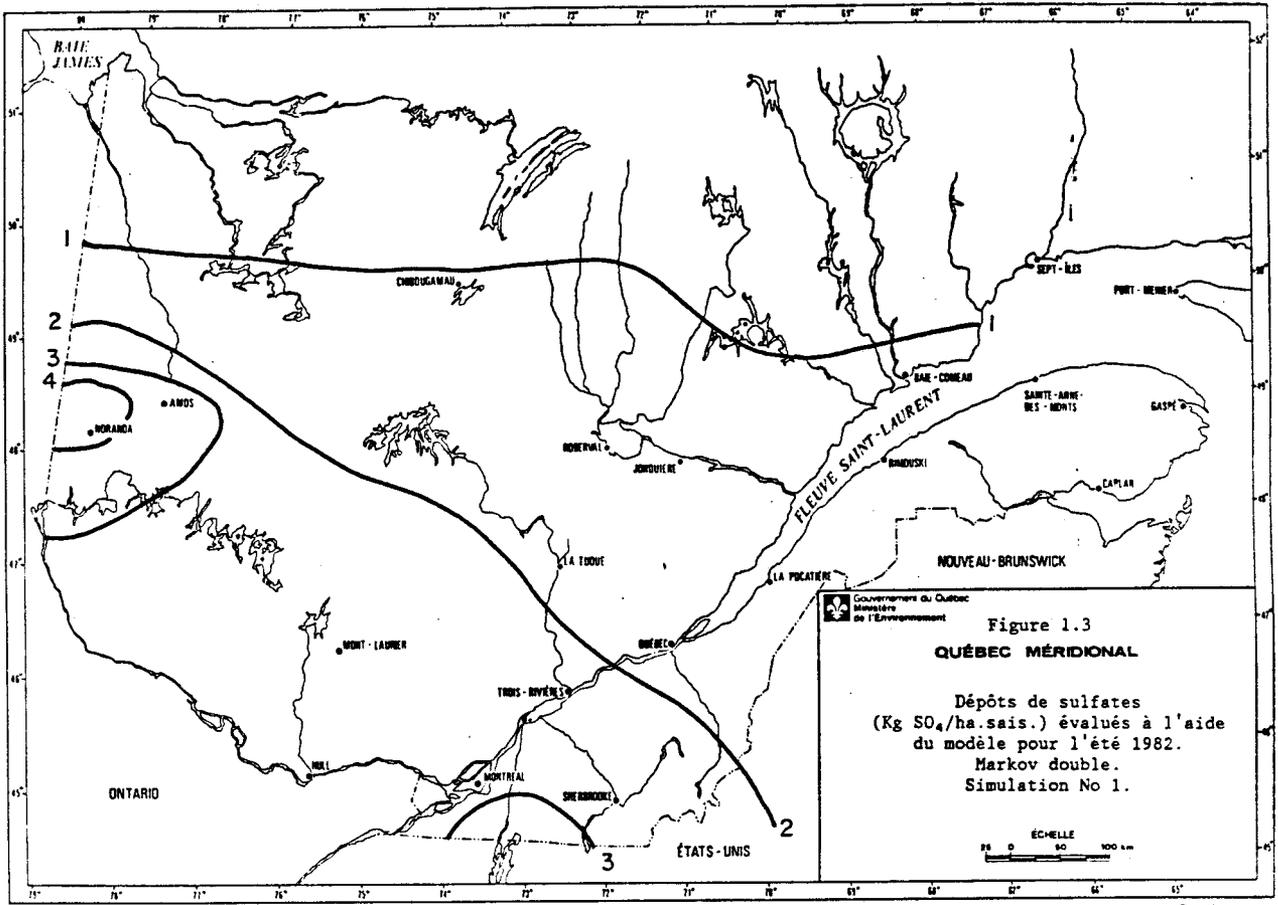
où $t_{total} = t_1 A C + t_2 (1-A) C + t_3 A (1-C) + t_4 (1-A) (1-C)$.

A indique le rapport entre le nombre d'épisodes humides courts et le nombre total d'épisodes humides; C représente le rapport entre le nombre d'épisodes secs courts et le nombre total d'épisodes secs et enfin Δt est la durée d'une saison.

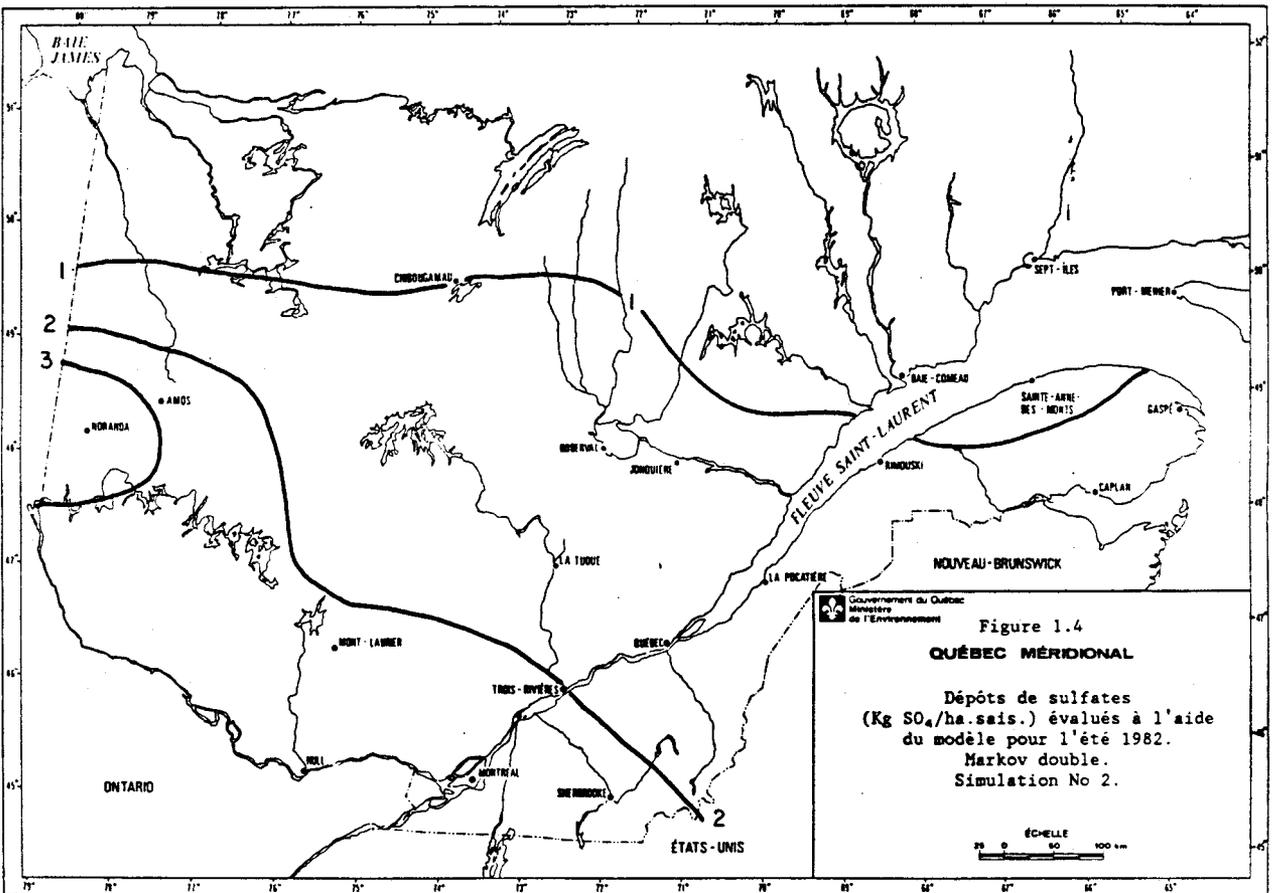
Dans la première version du MTGDPA les dépôts D_i^* n'étaient pondérés que par les facteurs A, 1-A, C et 1-C. Les facteurs de pondération $\frac{t_i}{t_{total}}$ (où $i = 1, 2, 3, \text{ et } 4$) ont donc été omis dans la première version du modèle. Cette omission a conduit, comme nous l'avons mentionné précédemment, à une surestimation des dépôts de sulfates près des sources.

La figure 1.3 présente les dépôts de sulfates obtenus suite à ces modifications. Les dépôts illustrés par cette figure ont été évalués à l'aide de chaînes de Markov doubles (la figure 1.3 corrige donc la figure 1.2). Soulignons que les modifications apportées au modèle n'ont aucun effet sur les dépôts calculés à l'aide de chaînes de Markov simples. L'examen des figures 1.1 et 1.3 révèle maintenant peu de différences entre les dépôts évalués à l'aide des chaînes de Markov simples ou doubles.

D'autre part, il a été recommandé par Fortin et al. (1986) d'utiliser des données de précipitations propres aux saisons pour lesquelles on désire calculer les dépôts. Les résultats présentés jusqu'à maintenant reposent sur les durées d'épisodes secs et humides évaluées sur la période couvrant les années 1968 à 1977. Comme les durées des épisodes secs et humides de l'été 1982 ont été évaluées récemment par Fortin et al. (1987) à plusieurs stations du réseau météorologique du Québec, ces données ont été incorporées au modèle afin de réaliser de nouvelles simulations. Précisons toutefois qu'aucune donnée américaine ou ontarienne de précipitations n'était disponible pour l'été 1982, lorsque nous avons réalisé cette étude. Ainsi, les durées d'épisodes secs et humides observées à Toronto lors de la période 1968 à 1977, ont été associées aux polluants provenant des sources américaines et ontariennes. Notons que les précipitations de cette période ne sont pas nécessairement représentatives de celles de l'été 1982.



Québec ::



Québec ::

La figure 1.4 présente les dépôts de sulfates que nous avons obtenus en associant aux sources québécoises les caractéristiques du régime sec-humide de la saison d'été 1982. Le lecteur remarquera (en comparant les figures 1.3 et 1.4) que ces modifications ont eu peu d'influence sur les dépôts de sulfates au Québec. Il importe de souligner ici que les polluants provenant des sources américaines et ontariennes contribuent substantiellement aux dépôts de sulfates au Québec. Ainsi, l'utilisation, pour ces sources, de données de précipitation non représentatives de l'été 1982 peut avoir des conséquences importantes sur les dépôts au Québec. De plus, il est possible que le régime sec-humide de Toronto ne soit pas représentatif de celui du Mid West américain où, comme on le sait, se retrouvent plusieurs sources de bioxyde de soufre. En somme, une meilleure connaissance du cycle sec-humide affectant les polluants qui proviennent de l'Ontario ou des Etats-Unis serait nécessaire. De même, il serait avantageux de calculer à l'aide du modèle, les concentrations des polluants (SO_2 et SO_4) dans l'eau de précipitation. En utilisant ensuite les précipitations mesurées par le réseau météorologique du Québec, il serait possible d'obtenir une meilleure représentation de la variation spatiale des dépôts de sulfates.

2. CALCUL DES CONCENTRATIONS

2.1 Calcul des concentrations des polluants dans l'eau

Le lessivage (ou balayage) d'un polluant par la précipitation est un problème complexe qui a largement été traité dans la littérature (Chamberlain, 1953; Engelmann, 1968; Slinn 1977, 1984; Hales, 1972). Nous présentons ici les équations de base qui servent à décrire le phénomène.

2.1.1 Lessivage d'un polluant particulaire par la précipitation

Soit C la concentration d'un polluant à une position et à un instant donné. Lorsque le polluant est uniformément mélangé dans l'espace et qu'aucune réaction chimique n'altère sa composition chimique on obtient:

$$\frac{\partial C}{\partial t} = -W \quad 2.1$$

où t est le temps et W est le terme de lessivage (ou balayage) du polluant par la précipitation. Ce terme représente la quantité de polluant par unité de volume qui est lessivée par la précipitation par unité de temps. Lorsque le polluant est constitué d'aérosols ayant un rayon compris entre $a - \frac{da}{2}$ et $a + \frac{da}{2}$, le terme de lessivage peut s'exprimer comme suit:

$$W(a) = \Lambda(a)C \quad 2.2$$

$$\text{où } \Lambda(a) = \int_{R_{\min}}^{R_{\max}} v(R) E(a,R) \pi R^2 N(R) dR \quad 2.3$$

où $\Lambda(a)$ est le coefficient de lessivage des aérosols dont le rayon est compris entre $a - \frac{da}{2}$ et $a + \frac{da}{2}$; $v(R)$ est la vitesse terminale de chute des gouttes (Gunn et Kinzer, 1949); $E(a,R)$ est l'efficacité de collecte (Dana et Hales, 1976) telle que définie à la figure 2.1; enfin $N(R)$ est la distribution de la taille des

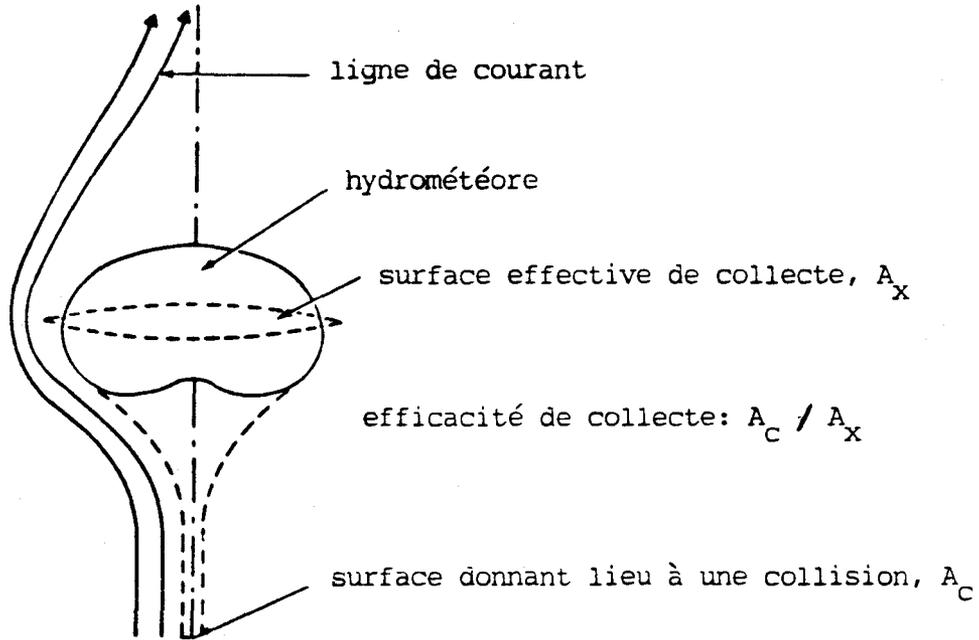


Figure 2.1 Illustration du lessivage d'un polluant particulaire par un hydrométéore.

gouttes: $N(R)dR$ représente le nombre de gouttes par unité de volume qui ont un diamètre compris entre $\frac{R-dR}{2}$ et $\frac{R+dR}{2}$.

Lorsque les aérosols ont un rayon compris entre a_{\min} et a_{\max} , le coefficient de lessivage peut s'écrire sous la forme:

$$\Lambda = \frac{1}{n_t} \int_{a_{\min}}^{a_{\max}} \Lambda(a) n(a) da \quad 2.4$$

où $n(a)$ est la distribution de la taille des aérosols; $n(a) da$ représente le nombre d'aérosols par unité de volume qui ont un diamètre compris entre $\frac{a-da}{2}$ et $\frac{a+da}{2}$; enfin n_t est le nombre total de particules par unité de volume.

En combinant les équations 2.2 à 2.4, nous obtenons finalement:

$$\Lambda = \frac{\pi}{n_t} \int_{a_{\min}}^{a_{\max}} \int_{R_{\min}}^{R_{\max}} R^2 v(R) E(a,R) N(R) n(a) dR da \quad 2.5$$

$$W = \Lambda C \quad 2.6$$

La figure 2.2, extraite de Dana et Hales (1976), montre un exemple de calculs réalisés à l'aide de l'équation 2.5. Cette figure présente le coefficient de lessivage (Λ) normalisé par le taux de précipitation (J) en fonction du rayon moyen a_g (moyenne géométrique) des aérosols. Précisons que ce graphique repose sur l'hypothèse que la distribution $n(a)$ des aérosols est décrite par une loi log-normale:

$$n(a)da = \frac{n_t}{\sqrt{2\pi} \ln(\sigma_g)} \exp \left\{ \frac{-(\ln(a) - \ln(a_g))^2}{2(\ln(\sigma_g))^2} \right\} d(\ln a) \quad 2.7$$

où σ_g est l'écart type de la distribution $n(a)$.

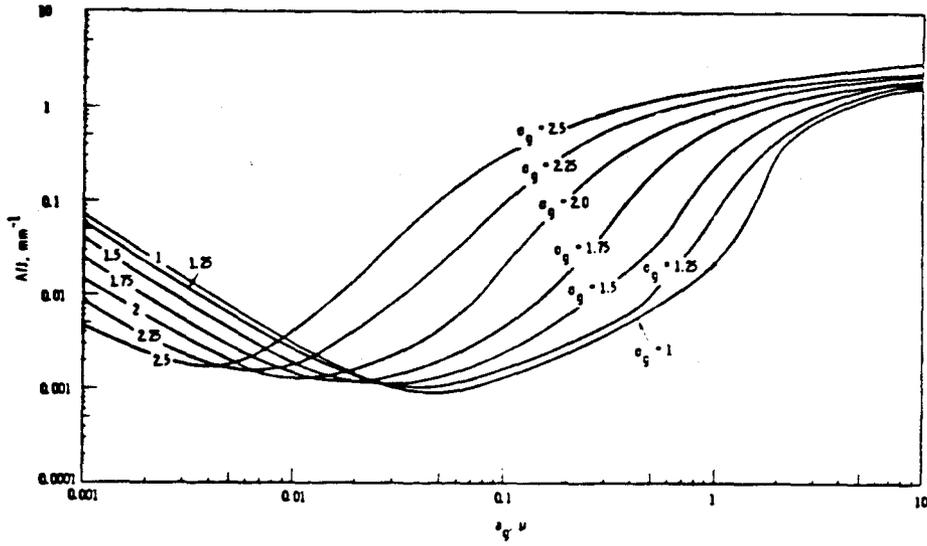


Figure 2.2 Évaluation théorique du coefficient de lessivage (Λ) normalisé par le taux de précipitation (J) en fonction de la moyenne géométrique du rayon des aérosols. σ_g est l'écart type de la loi log-normale représentant le spectre de tailles des aérosols (d'après Dana et Hales, 1976).

L'étude du lessivage des polluants par la précipitation peut également être réalisée à l'aide du rapport de balayage (r) défini comme suit:

$$r = \frac{\text{concentration du polluant dans l'eau}}{\text{concentration du polluant dans l'air}} \quad (2.8)$$

avec les concentrations évaluées normalement au niveau du sol. Partant de la définition précédente, on montre facilement que le rapport de balayage peut être exprimé sous la forme:

$$r = \frac{1}{JC(z=0)} \int_0^h \Lambda(z) C(z) dz \quad (2.9)$$

où C est la concentration du polluant dans l'air; J est le taux de précipitation et enfin h est la hauteur à partir de laquelle le lessivage devient négligeable.

Il est important de souligner ici que l'équation 2.9 n'est, en réalité, qu'une relation approximative qui tient compte uniquement du lessivage des polluants sous la base des nuages (washout). Or, les travaux de Scott (1978) indiquent que l'incorporation des polluants aux gouttelettes de nuages (rainout) est un processus que l'on ne peut négliger. Une description complète du lessivage devrait également tenir compte de la possibilité d'une évaporation partielle ou totale des hydrométéores au cours de leur chute vers le sol.

La figure 2.3, extraite de Scott (1978), illustre quelques résultats obtenus à l'aide d'un modèle complexe qui tient compte de plusieurs des facteurs mentionnés plus haut. Cette figure présente le rapport de balayage en fonction du taux de précipitation. Les courbes numérotées 1, 2 et 3 correspondent à trois situations synoptiques différentes, donnant lieu chacune à un type particulier de nuages:

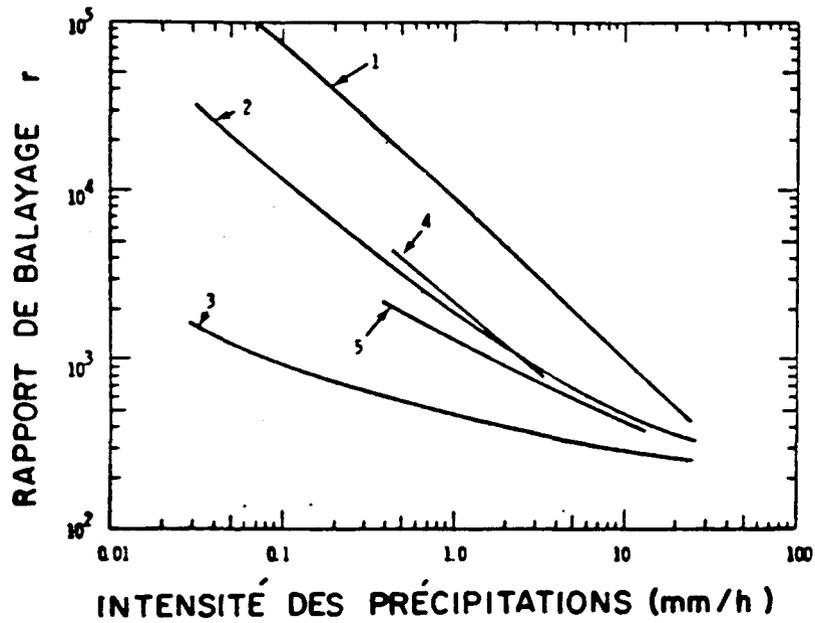


Figure 2.3 Évaluation théorique du rapport de balayage en fonction de l'intensité de précipitation, pour différents types de nuages (d'après Scott, 1978).

- Courbes
- No 1: nuages convectifs,
 - No 2: nuages chauds ou maritimes
 - No 3: nuages froids (processus de Bergeron),
 - No 4 et No 5: ajustements sur des valeurs mesurées.

Courbe No 1 - nuages convectifs: des mouvements verticaux intenses ainsi que les processus de coalescence et de collisions entre les gouttes, favorisent la formation de précipitation à brève échéance.

Courbe No 2 - nuages chauds : un soulèvement modéré (0,1 à 0,5 m/s) de l'air se produisant sur de longues périodes de temps rend possible la formation de précipitation par coalescence et collisions entre les gouttes.
(ou maritimes)

Courbe No 3 - nuages froids : Le processus de Bergeron (croissance des ("Bergeron cristaux de glace) est responsable dans ce clouds") cas du développement de la précipitation.

Enfin, les courbes No 4 et No 5 sont le résultat d'ajustements sur des valeurs mesurées du rapport de balayage (r) et de l'intensité des précipitations (J).

Comme on peut le constater sur la figure 2.3, les processus de formation de la précipitation ont un effet important sur la valeur du rapport de balayage. Les processus régnant au sein des nuages convectifs sont, pour un taux donné de précipitation, les plus efficaces pour lessiver les polluants. Le processus de Bergeron est celui qui est le moins efficace. Précisons ici que les nuages convectifs affectent le Québec presque exclusivement lors de la période estivale, alors que les nuages froids (Bergeron) influencent davantage le Québec lors de la saison hivernale.

En dernier lieu, il est intéressant de mentionner les résultats d'une campagne de mesures réalisée par le ministère ontarien de l'Environnement (Chan et al., 1982). Cette étude a consisté à mesurer les concentrations dans l'air et dans l'eau de plusieurs polluants, dont les sulfates et le bioxyde de soufre. Ces concentrations ont été mesurées sur une base journalière à un ensemble de quatre stations situées en milieu rural. Le tableau 2.1 indique les valeurs du rapport de balayage obtenues pour les sulfates, dans le cas de précipitations sous forme de pluie ou de neige.

L'examen du tableau 2.1 révèle une variation du rapport de balayage du SO_4 d'environ 30% selon que l'on considère la précipitation sous forme de neige (novembre à avril) ou sous forme de pluie (mai à octobre). On constate également que la neige est, en moyenne, plus efficace que la pluie pour lessiver les sulfates. Enfin, il est intéressant de remarquer que les valeurs du rapport de balayage présentées au tableau 2.1 sont supérieures aux valeurs théoriques obtenues par Scott, 1978 (figure 2.3). Il existe en effet un facteur dix ou plus entre les mesures de Chan et Chung (1986) et les résultats théoriques de Scott (1978). Ces écarts importants entre les valeurs observées et simulées s'expliquent, en partie, par les différentes hypothèses sur lesquelles repose le modèle de Scott (1978). Dans cette étude, nous accorderons davantage de poids aux valeurs mesurées du rapport de balayage. Précisons d'ailleurs que ces mesures serviront plus loin dans ce rapport à des fins de comparaison.

Tableau 2.1 Rapport de balayage des sulfates (d'après Chan et Chung, 1986)

TYPE DE PRÉCIPITATION	NOMBRE D'ÉCHANTILLONS	RAPPORT DE BALAYAGE (SULFATES)
Neige (novembre à avril)	180	4.66×10^5
Pluie (novembre à avril)	159	4.31×10^5
Pluie (mai à octobre)	368	3.38×10^5

2.1.2 Lessivage d'un polluant gazeux par la précipitation

Le lessivage d'un polluant gazeux par la précipitation peut être décrit à l'aide de l'équation suivante (Drewes et Hales, 1982):

$$\frac{d C_x}{dt} = \frac{3K}{R} (C_y - H' C_x) - T \quad (2.10)$$

où C_x et C_y représentent respectivement la concentration du polluant en phase aqueuse et en phase gazeuse; K est le coefficient de transfert de masse; R est le rayon des hydrométéores; H' est le paramètre de solubilité et enfin T est un terme qui tient compte des transformations chimiques du polluant en phase aqueuse.

Le lessivage d'un polluant gazeux, exprimé par la relation 2.10, est un processus réversible. En effet, contrairement aux aérosols, un gaz peut d'abord être absorbé par les hydrométéores pour ensuite être rediffusé vers l'atmosphère (dégazage). D'autre part, soulignons que le paramètre de solubilité (H') n'est pas, en général, une constante pour un polluant donné. Ainsi, pour le SO_2 , la valeur de ce paramètre dépend non seulement de la température et du pH de l'eau, mais aussi de la concentration de SO_2 en solution. Quant aux transformations chimiques (terme T de l'équation 2.10), celles-ci peuvent être particulièrement nombreuses et complexes. Par exemple, des études récentes suggèrent que le peroxyde d'hydrogène (H_2O_2) et l'ozone (O_3) seraient responsables de l'oxydation du SO_2 en acide sulfurique. D'autres mécanismes d'oxydation existent également pour le SO_2 en solution. Mentionnons les réactions avec HO et NO_3 , ainsi que des réactions catalytiques avec des ions manganèse et de fer ou avec de la suie.

Une application intéressante de l'équation 2.10 est obtenue en supposant que:

1) aucune transformation chimique n'altère la composition chimique du polluant ($T = 0$);

2) les concentrations en phase gazeuse et aqueuse sont en équilibre

$$\left(\frac{dC_x}{dt} = 0 \right).$$

Dans ce cas particulier, l'équation 2.10 devient:

$$C_y = H' C_x \quad (2.11)$$

Le rapport de balayage peut donc s'exprimer comme l'inverse du paramètre de solubilité:

$$r = \frac{C_x}{C_y} = \frac{1}{H'} \quad (2.12)$$

Il est important de rappeler ici que l'équation 2.12 repose sur l'hypothèse qu'aucune réaction chimique n'altère la composition chimique du polluant. Or, cette hypothèse n'est strictement valide que pour un gaz inerte ce qui n'est évidemment pas le cas du bioxyde de soufre. En ce qui concerne la seconde hypothèse (équilibre entre le polluant en phase aqueuse et gazeuse), les travaux de Hales (1972) justifient l'emploi de cette hypothèse pour modéliser le transport à grandes distances des polluants.

Enfin, le tableau 2.2 présente des valeurs mesurées (Chan et Chung, 1986) du rapport de balayage du SO₂ dans le cas de précipitation sous forme de pluie ou de neige. Précisons que ces mesures ainsi que celles présentées au tableau 2.1 serviront, plus loin dans ce rapport, à des fins de comparaison.

Les résultats présentés au tableau 2.2 révèlent que le rapport de balayage du SO₂ par les flocons de neige est nul. Ceci indique donc que le bioxyde de soufre est très peu soluble dans les cristaux de glace. Enfin, soulignons que le rapport de balayage du SO₂ (tableau 2.2) est inférieur à celui du SO₄ (tableau 2.1).

Tableau 2.2 Rapport de balayage du SO₂ (d'après Chan et Chung, 1986)

TYPE DE PRÉCIPITATION	NOMBRE D'ÉCHANTILLONS	RAPPORT DE BALAYAGE (SO ₂)
Neige (novembre à avril)	180	0.0
Pluie (novembre à avril)	159	1.17 x 10 ⁵
Pluie (mai à octobre)	368	1.84 x 10 ⁵

2.1.3 Présentation de la méthodologie retenue

Nous présentons dans cette section la méthodologie utilisée pour calculer les concentrations de sulfates dans l'eau de précipitation. Définissons d'abord les termes suivants:

$[SO_4]_{eau}^m$: concentration mesurée de SO₄ dans l'eau de précipitation;

$[SO_2]_{air}^c$: concentration calculée de SO₂ dans l'air;

$[SO_4]_{air}^c$: concentration calculée de SO₄ dans l'air;

et enfin,

$[SO_4]_{eau}^c$: concentration calculée de SO₄ dans l'eau de précipitation.

L'équation reliant l'ensemble de ces variables est:

$$[\text{SO}_4]_{\text{eau}}^c = r_4 [\text{SO}_4]_{\text{air}}^c + 1.5 r_2 [\text{SO}_2]_{\text{air}}^c \quad (2.13)$$

où r_4 et r_2 sont respectivement les rapports de balayage du SO_4 et du SO_2 ; le premier et le second terme du membre de droite de cette équation représentent respectivement les concentrations de SO_4 et de SO_2 dans l'eau suite au balayage des polluants (SO_4 et SO_2) par la précipitation; enfin le facteur 1.5 tient compte du poids moléculaire différent du SO_2 et du SO_4 . Nous avons supposé ici que le SO_2 dissout dans l'eau s'oxyde totalement en sulfates. Cette hypothèse est tout à fait réaliste, puisque l'oxydation du SO_2 en sulfates est une réaction particulièrement rapide en milieu aqueux¹.

Les concentrations $[\text{SO}_2]_{\text{air}}^c$ et $[\text{SO}_4]_{\text{air}}^c$ sont évaluées de la façon suivante:

$$[\text{SO}_2]_{\text{air}}^c = \frac{t_h}{t_h+t_s} [\text{SO}_2]_{\text{air h.}}^c + \frac{t_s}{t_h+t_s} [\text{SO}_2]_{\text{air s.}}^c \quad (2.14)$$

$$[\text{SO}_4]_{\text{air}}^c = \frac{t_h}{t_h+t_s} [\text{SO}_4]_{\text{air h.}}^c + \frac{t_s}{t_h+t_s} [\text{SO}_4]_{\text{air s.}}^c \quad (2.15)$$

où t_h et t_s sont respectivement les durées moyennes des épisodes humides et secs; $[\]_{\text{air h.}}^c$ est la concentration de SO_2 ou de SO_4 lors des épisodes humides et $[\]_{\text{air s.}}^c$ est la concentration de ces mêmes polluants lors des épisodes secs. Précisons que les concentrations $[\]_{\text{air h.}}^c$ et $[\]_{\text{air s.}}^c$ sont calculées par le MTGDPA.

Les équations 2.13 à 2.15 permettent de calculer la concentration de SO_4 dans l'eau à partir de la concentration de SO_2 et de SO_4 dans l'air. Pour chaque simulation, nous recherchons les valeurs de r_2 et r_4 qui permettent aux concentrations calculées $[\text{SO}_4]_{\text{eau}}^c$ de reproduire le plus fidèlement possible les

¹ Communication personnelle du professeur G. Jones de l'INRS-Eau.

concentrations mesurées $[SO_4]_{\text{eau}}^m$. En pratique, il s'agit de déterminer les valeurs de r_2 et r_4 qui minimisent l'écart quadratique entre les concentrations mesurées et les concentrations calculées:

$$Q^2 = \sum_{i=1}^N \{ [SO_4]_{\text{eau}}^c - [SO_4]_{\text{eau}}^m \}^2 \quad (2.16)$$

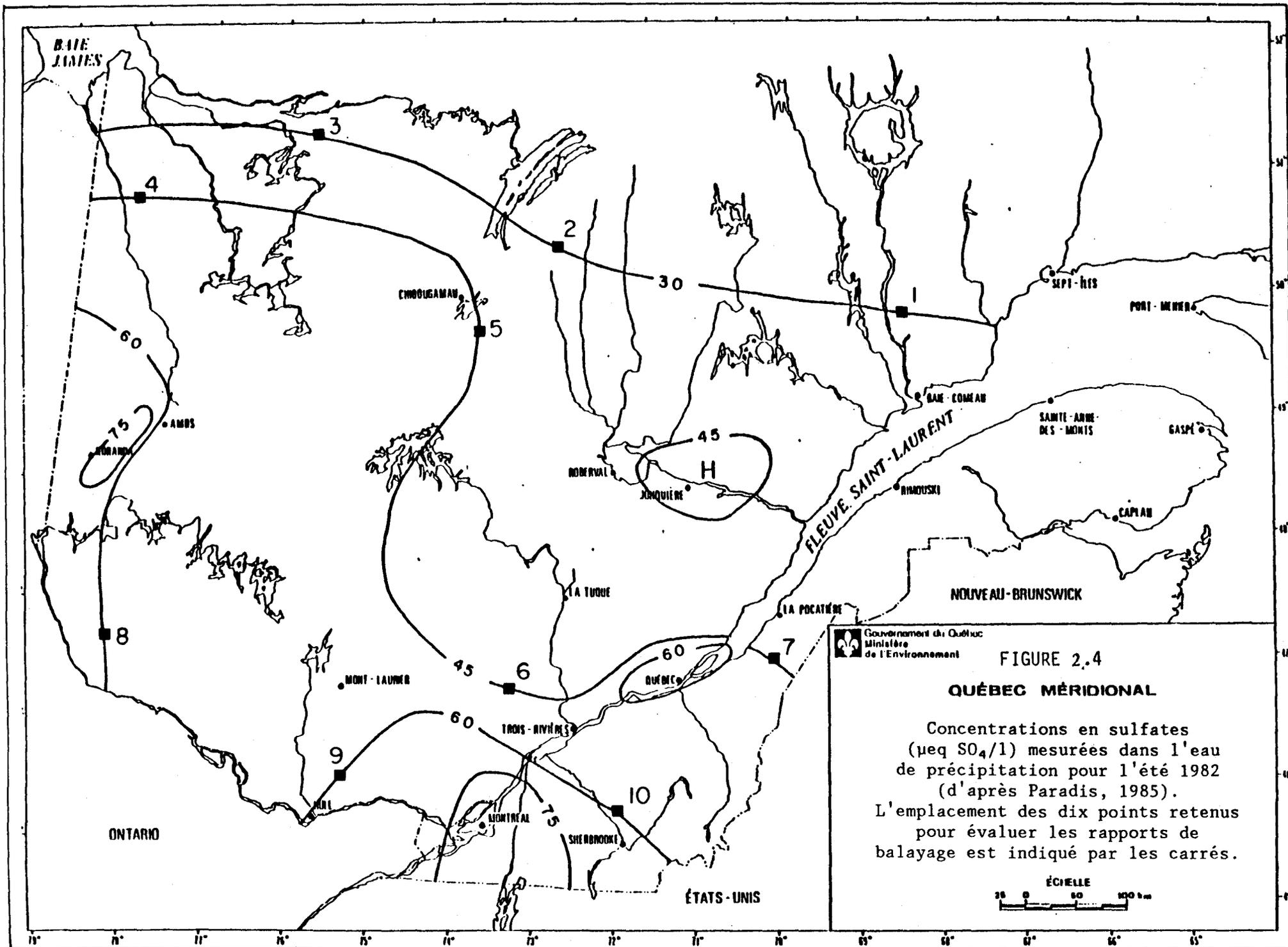
Ceci est réalisé en posant:

$$\frac{\partial Q^2}{\partial r_2} = \frac{\partial Q^2}{\partial r_4} = 0 \quad (2.17)$$

La figure 2.4 indique l'emplacement géographique des dix points (N=10) retenus pour effectuer ces calculs. En chacun de ces points, on dispose des valeurs de:

- $[SO_4]_{\text{eau}}^m$
- $[SO_4]_{\text{air s.}}^c$, $[SO_4]_{\text{air h.}}^c$
- $[SO_2]_{\text{air s.}}^c$, $[SO_2]_{\text{air h.}}^c$

Utilisant ensuite les équations 2.13 à 2.17, il est possible d'évaluer les valeurs optimales des rapports de balayage r_2 et r_4 qui font en sorte qu'on reproduit le plus fidèlement possible les concentrations mesurées $[SO_4]_{\text{eau}}^m$. Notons que les dix points retenus sont situés le plus loin possible des sources québécoises importantes de bioxyde de soufre. Ceci permet d'obtenir des valeurs de r_2 et r_4 qui sont représentatives du transport à longue distance.



Gouvernement du Québec
Ministère
de l'Environnement

FIGURE 2.4
QUÉBEC MÉRIDIONAL

Concentrations en sulfates
($\mu\text{eq SO}_4/\text{l}$) mesurées dans l'eau
de précipitation pour l'été 1982
(d'après Paradis, 1985).
L'emplacement des dix points retenus
pour évaluer les rapports de
balayage est indiqué par les carrés.

ÉCHELLE
0 50 100 km

Enfin, il est important de souligner qu'un bruit de fond a été ajouté aux concentrations de soufre, dans l'air. Nous avons supposé que le soufre contribuant au bruit de fond provient surtout de sources lointaines. Comme les mécanismes d'oxydation se produisent à un taux relativement élevé dans l'atmosphère, ce soufre se transforme totalement en sulfates avant d'atteindre le Québec. Un bruit de fond a donc été ajouté aux concentrations de SO_4 dans l'air calculées à l'aide de l'équation 2.15. De plus, comme nous ne disposions pas de mesures de ce bruit de fond, nous avons choisi d'en faire varier la valeur lors des différentes simulations que nous avons réalisées.

2.2 Présentation et discussion des résultats

Dans cette section, nous présentons les principaux résultats que nous avons obtenus relativement au calcul des concentrations des polluants dans l'eau de précipitation. Précisons d'abord qu'une dizaine de simulations ont été réalisées à l'aide du modèle. Nous nous limiterons à décrire ici les deux simulations qui ont donné les résultats les plus significatifs pour la saison d'été 1982.

Le tableau 2.3 indique les valeurs qui ont été attribuées aux différents paramètres du modèle lors de ces deux simulations. On remarquera que ces valeurs se retrouvent à l'intérieur de la gamme des valeurs que l'on peut trouver dans la littérature (voir à ce sujet le rapport final du groupe de travail États-Unis - Canada, 1982). Ainsi, nous avons posé l'épaisseur de la couche limite égale à 1300 m lors de ces deux simulations. Le taux de transformation chimique a été fixé à 2 %/h et des valeurs de 5 mm/s et 1 mm/s ont été attribuées aux vitesses de déposition du SO_2 et du SO_4 respectivement. En ce qui concerne le coefficient de lessivage, des valeurs de $1.5 \times 10^{-5} \text{ s}^{-1}$ et de $5 \times 10^{-5} \text{ s}^{-1}$ ont été utilisées pour le SO_2 et le SO_4 respectivement. Notons également que des chaînes de Markov doubles et simples ont été utilisées respectivement lors des simulations No 3 et No 4. Précisons que les durées moyennes des épisodes humides (t_h) et secs (t_s) ont été fixées, pour l'ensemble des sources, à 7 heures (t_h) et 56 heures (t_s) lors de la simulation No 4. Ces valeurs sont tirées du Rapport final du groupe de travail États-Unis - Canada (1982) et ont été évaluées par le ministère ontarien de l'Environnement. Enfin des valeurs moyennes de 2 heures et 31 heures (Fortin et al., 1987) ont été

Tableau 2.3 Valeurs attribuées aux paramètres du modèle pour les simulations relatives à la saison d'été 1982.

paramètres	simulation	
	No 3	No 4
Coefficient de diffusivité (m ² /s)	5	5
Épaisseur de la couche limite (m)	1300	1300
Taux de transformation chimique (%/h)	2	2
Vitesse de retombée du SO ₂ (mm/s)	5	5
Vitesse de retombée du SO ₄ (mm/s)	1	1
Coefficient de lessivage du SO ₂ (s ⁻¹)	1.5 x 10 ⁻⁵	1.5 x 10 ⁻⁵
Coefficient de lessivage du SO ₄ (s ⁻¹)	5 x 10 ⁻⁵	5 x 10 ⁻⁵
Précipitation	MD ¹ t _h = 2h; t _s = 31 ³	MS ² t _h = 7h; t _s = 56h

¹ MD : Markov double.

² MS : Markov simple.

³ t_h : durée moyenne des épisodes humides.

t_s : durée moyenne des épisodes secs.

attribuées respectivement à t_h et t_s lors de la simulation No 3.

Les figures 2.5 à 2.12 présentent quelques-uns des résultats que nous avons obtenus. Ces figures montrent la variation spatiale des concentrations de SO_2 et de SO_4 calculées par le MTGDPA. Les concentrations présentées ici sont, dans l'ordre:

- concentrations de SO_2 et de SO_4 dans l'air lors des épisodes humides:

$$[SO_2]_{\text{air h.}}^c, [SO_4]_{\text{air h.}}^c;$$

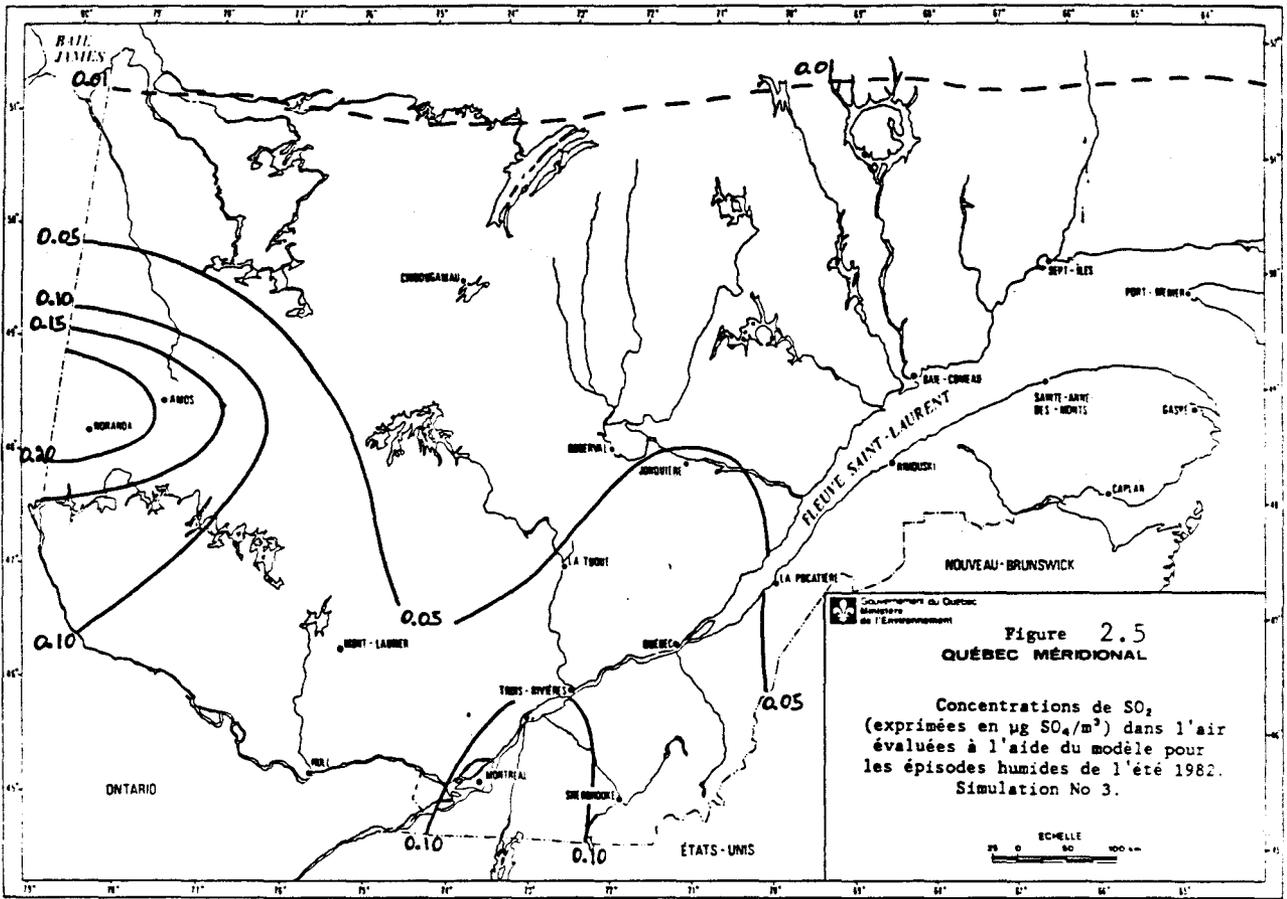
- concentrations de SO_2 et de SO_4 dans l'air lors des épisodes secs:

$$[SO_2]_{\text{air s.}}^c, [SO_4]_{\text{air s.}}^c.$$

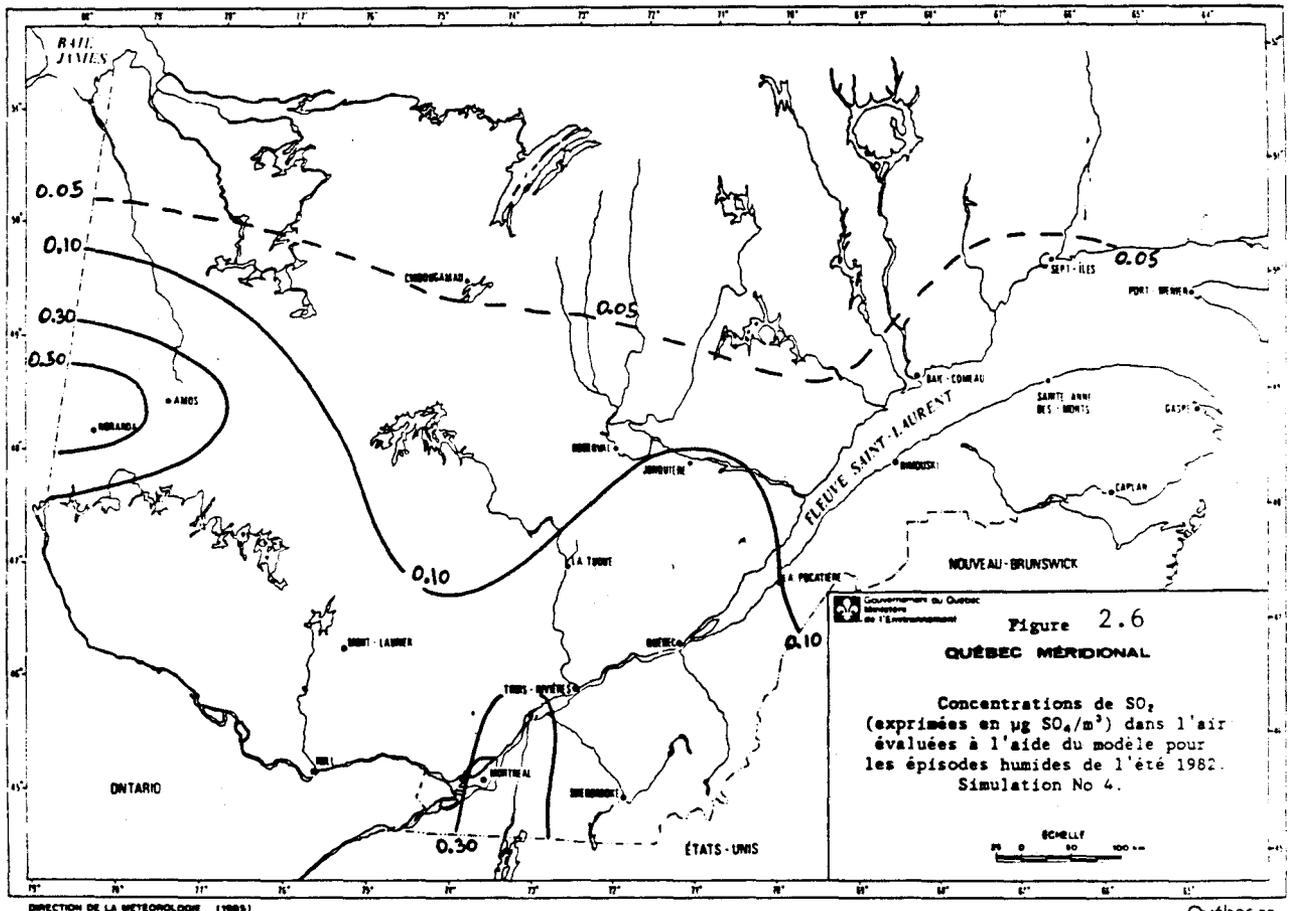
L'examen des figures 2.5 à 2.12 montrent des différences importantes entre la distribution spatiale des concentrations de SO_2 et de SO_4 . Ainsi, on distingue clairement l'influence des émissions québécoises de soufre sur les concentrations de SO_2 (figures 2.5, 2.6, 2.9 et 2.10) alors que cette influence est moins visible sur les concentrations de SO_4 (figures 2.7, 2.8, 2.11 et 2.12). De plus, le gradient des concentrations est plus prononcé pour le SO_2 que pour le SO_4 . Ceci s'explique, en partie, par l'oxydation du SO_2 en sulfates. L'oxydation conduit à une perte de SO_2 et à un gain équivalent en sulfates.

Si on compare maintenant les résultats obtenus lors des deux simulations, on constate que les concentrations de SO_2 et de SO_4 pendant les épisodes humides sont de 1.5 à 3 fois plus élevées lors de la simulation No 4 comparative- ment à la simulation No 3. En ce qui concerne les concentrations de SO_2 et SO_4 pendant les épisodes secs, on remarque que leurs valeurs sont environ 1.3 fois plus élevées lors de la simulation No 3 que lors de la simulation No 4. Il est important de préciser ici que la concentration d'un polluant lors d'un épisode sec ou humide est proportionnelle à la probabilité que cet épisode se produise. La probabilité d'avoir un épisode humide (f_1) ou sec (f_2) est donnée par:

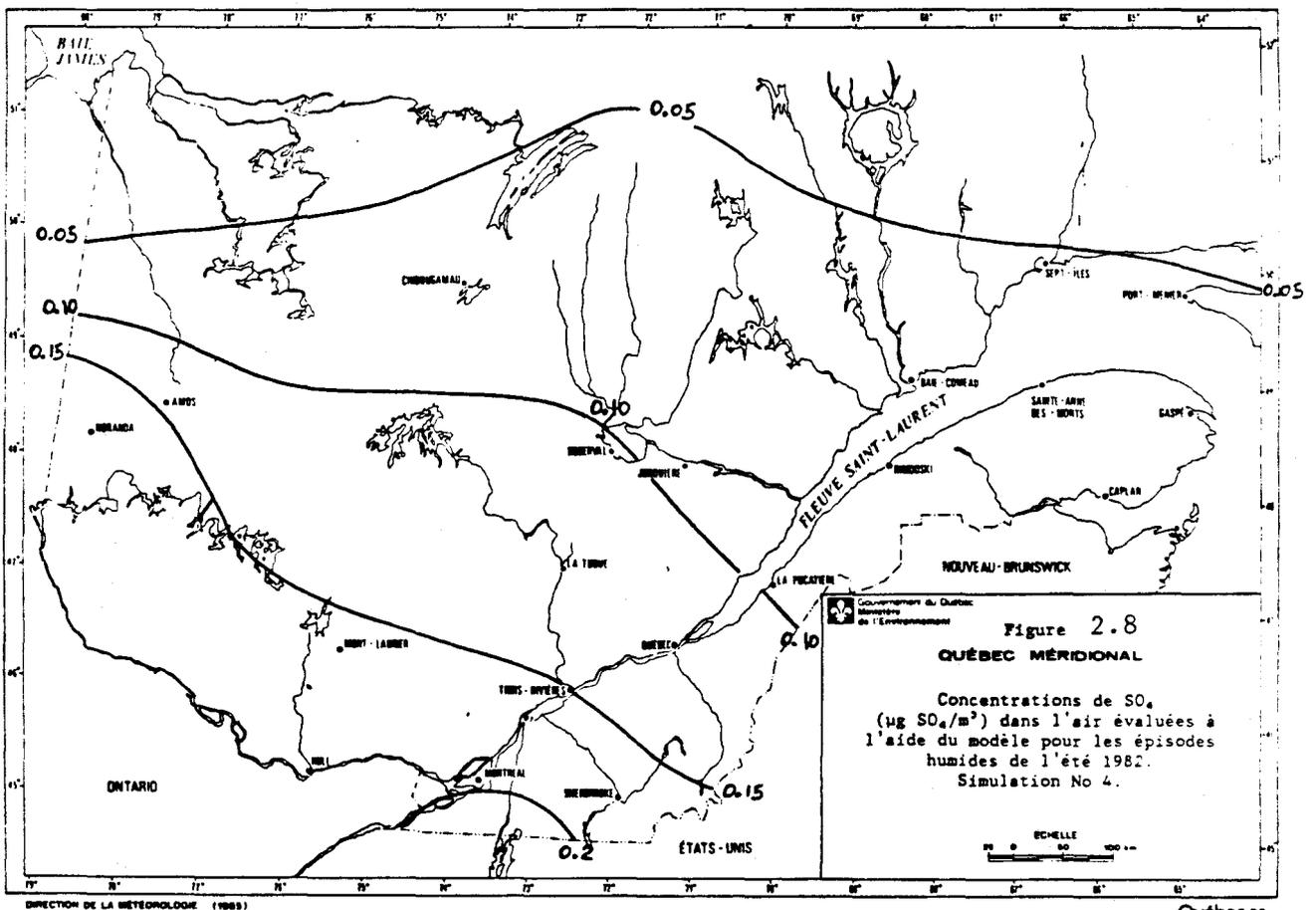
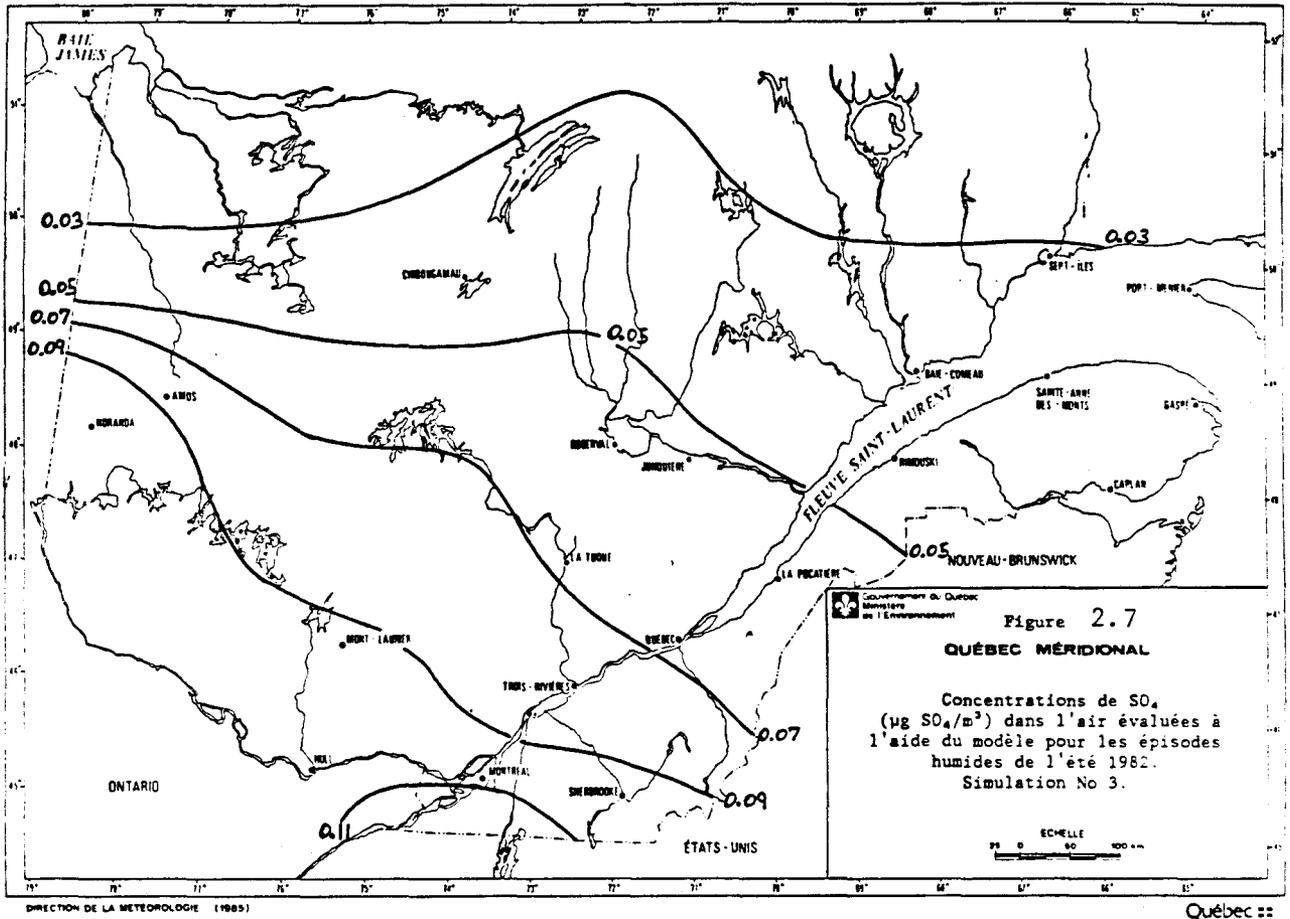
$$f_1 = \frac{t_h}{t_h + t_s} = \begin{array}{l} 6.1\% \text{ (simulation No 3)} \\ 11.1\% \text{ (simulation No 4)} \end{array} \quad (2.18)$$

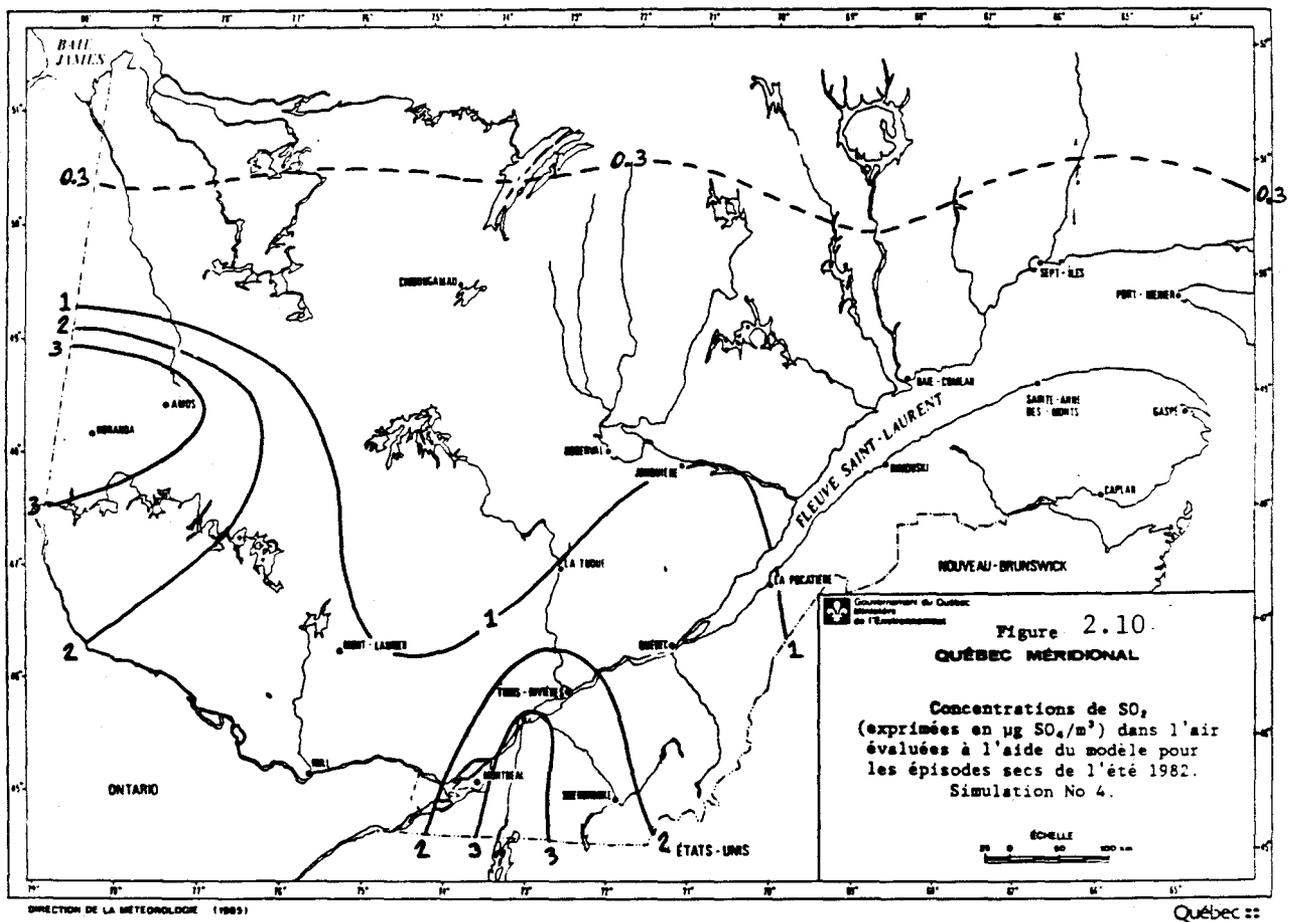
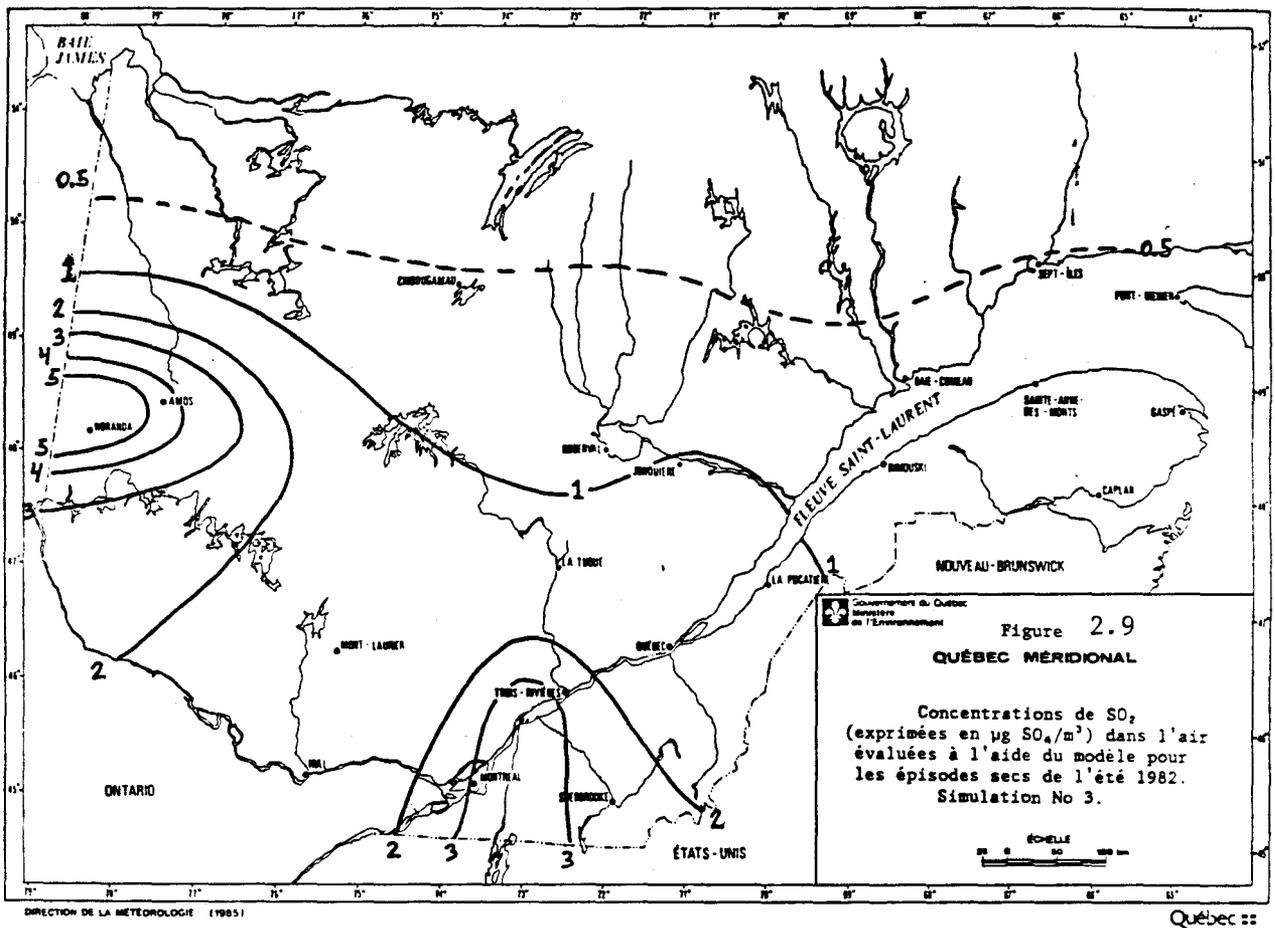


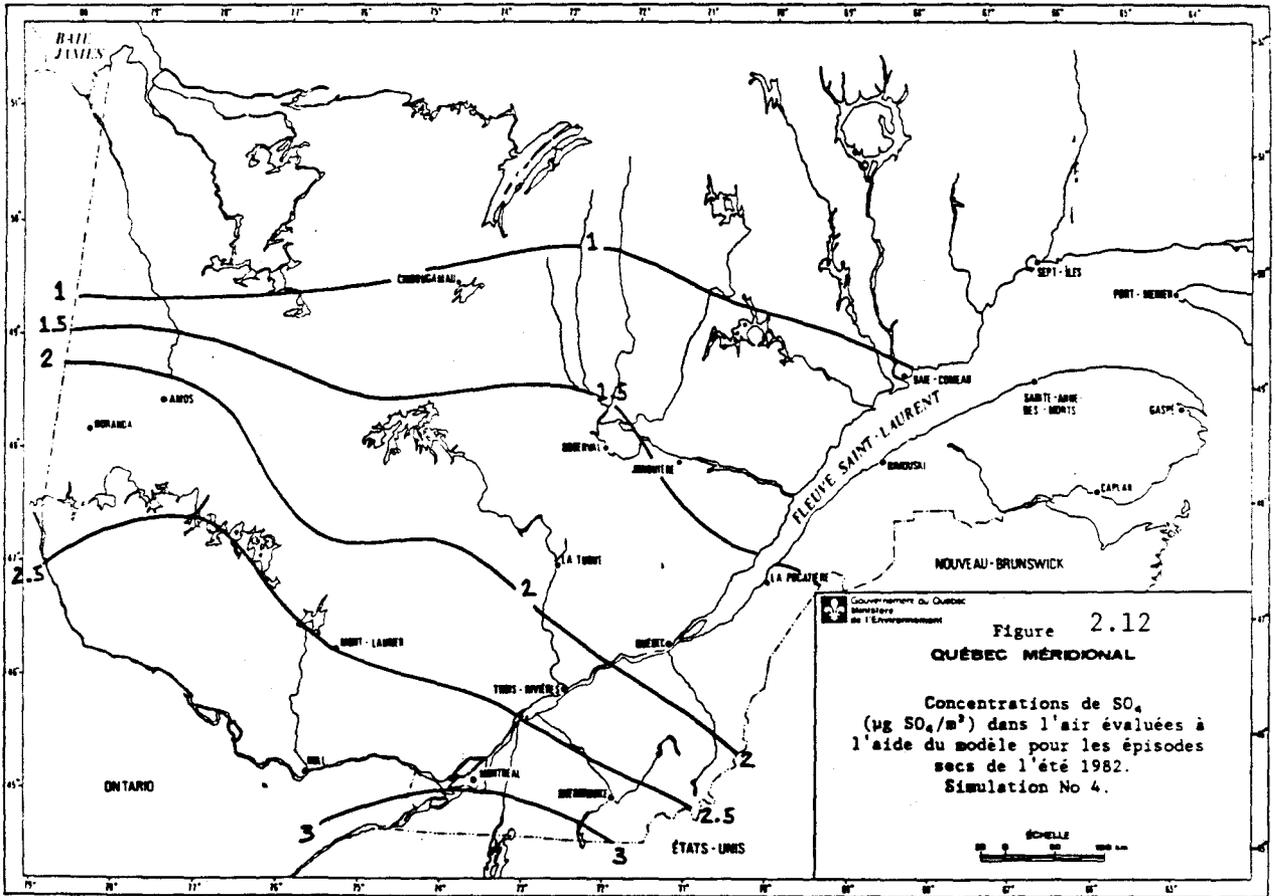
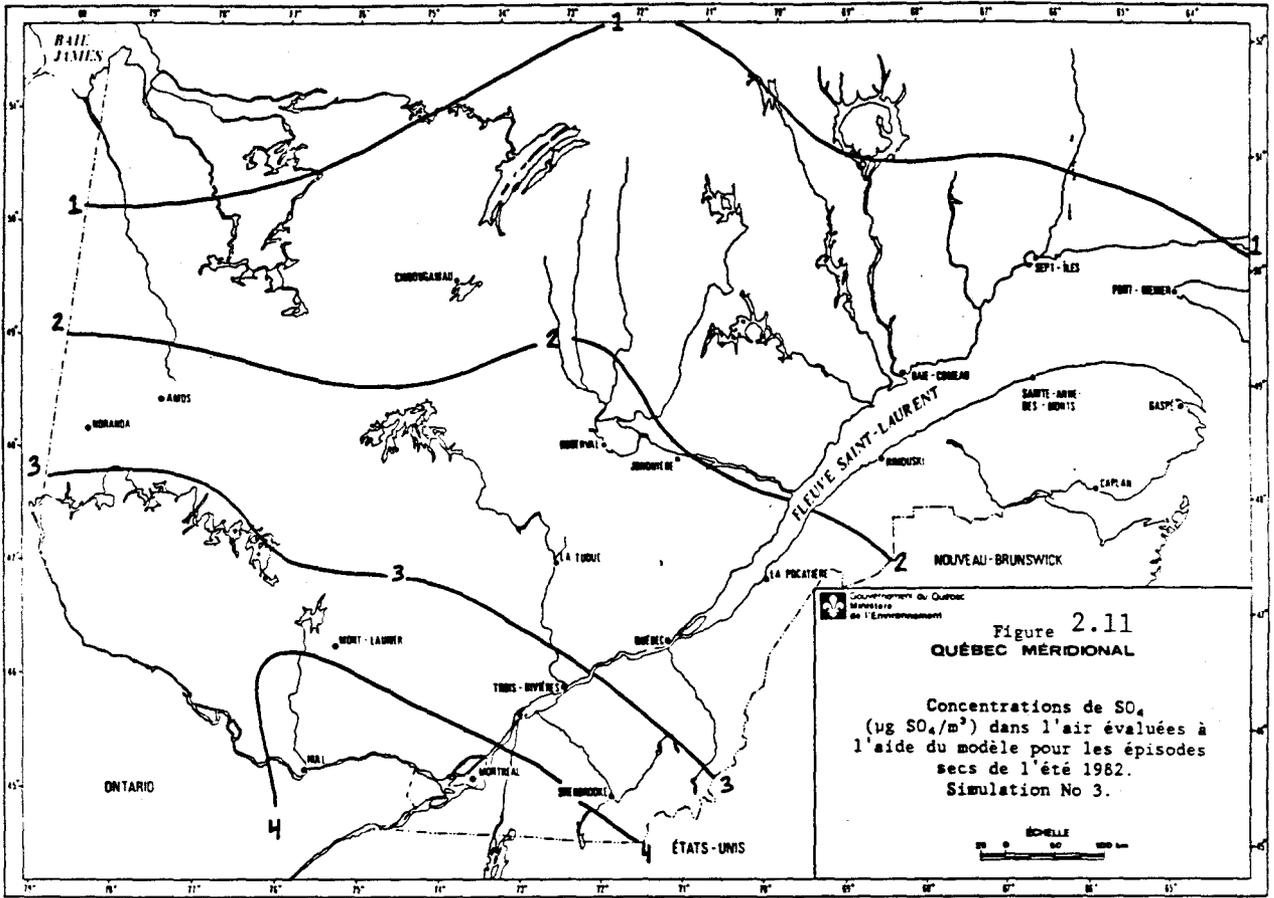
Québec ::



Québec ::







$$f_2 = \frac{t_s}{t_s + t_h} = \begin{matrix} 93.9\% & (\text{simulation No 3}) \\ 88.9\% & (\text{simulation No 4}) \end{matrix} \quad (2.19)$$

On constate que la variation des valeurs de f_1 et f_2 explique, en partie, les résultats différents des simulations No 3 et No 4.

Les tableaux 2.4 et 2.5 présentent les rapports de balayage r_2 et r_4 que nous avons obtenus ainsi que les valeurs de r_2 et r_4 mesurées par Chan et Chung (1986). Notons également que différentes valeurs ont été attribuées au bruit de fond lors de l'évaluation des rapports de balayage r_2 et r_4 .

Les tableaux 2.4 et 2.5 révèlent d'abord une influence très prononcée du bruit de fond sur les rapports de balayage r_2 et r_4 . Il est important de préciser que, dans la suite de ce rapport, nous avons retenu les valeurs de r_2 et r_4 dont le rapport r_4/r_2 est le plus près possible de la valeur de 1.84 choisie ici comme référence (Chan et Chung, 1986). Nous obtenons ainsi pour la simulation No 3:

$$\begin{aligned} r_2 &= 2.05 \times 10^5 \\ r_4 &= 3.85 \times 10^5 \\ \text{bruit de fond} &= 3.2 \mu\text{g SO}_4/\text{m}^3 \text{ d'air} \end{aligned}$$

et pour la simulation No 4:

$$\begin{aligned} r_2 &= 2.84 \times 10^5 \\ r_4 &= 4.99 \times 10^5 \\ \text{bruit de fond} &= 2.6 \mu\text{g SO}_4/\text{m}^3 \text{ d'air} \end{aligned}$$

Notons que ces valeurs de r_2 et r_4 sont légèrement supérieures mais tout de même comparables aux valeurs mesurées par Chan et Chung (1986). Le bruit de fond semble toutefois particulièrement élevé. Pour illustrer ce dernier point, on peut exprimer ce bruit de fond en μeq de $\text{SO}_4/1$ d'eau de pluie en multipliant la valeur en $\mu\text{g SO}_4/\text{m}^3$ d'air par le rapport de balayage (r_4) et ensuite par un facteur (2.0×10^{-5}) qui convertit les μg de SO_4/m^3 d'eau de pluie en μeq de $\text{SO}_4/1$ d'eau de pluie. Ceci donne pour la simulation No 3:

Tableau 2.4: Rapports de balayage r_2 et r_4 en fonction du bruit de fond pour la simulation No 3. Les valeurs soulignées sont discutées dans le texte.

bruit de fond ($\mu\text{g SO}_4/\text{m}^3$)	r_2 ($\times 10^5$)	r_4 ($\times 10^5$)	r_4/r_2
0.0	-3.39	11.3	-3.34
1.0	-2.42	7.89	-3.26
2.0	0.20	5.40	27.6
3.0	1.81	4.04	2.23
<u>3.2</u>	<u>2.05</u>	<u>3.85</u>	<u>1.87</u>
3.4	2.28	3.67	1.61
valeurs de référence (Chan et Chung, 1986)	1.84	3.38	1.84

Tableau 2.5: Rapports de balayage r_2 et r_4 en fonction du bruit de fond pour la simulation No 4. Les valeurs soulignées sont discutées dans le texte.

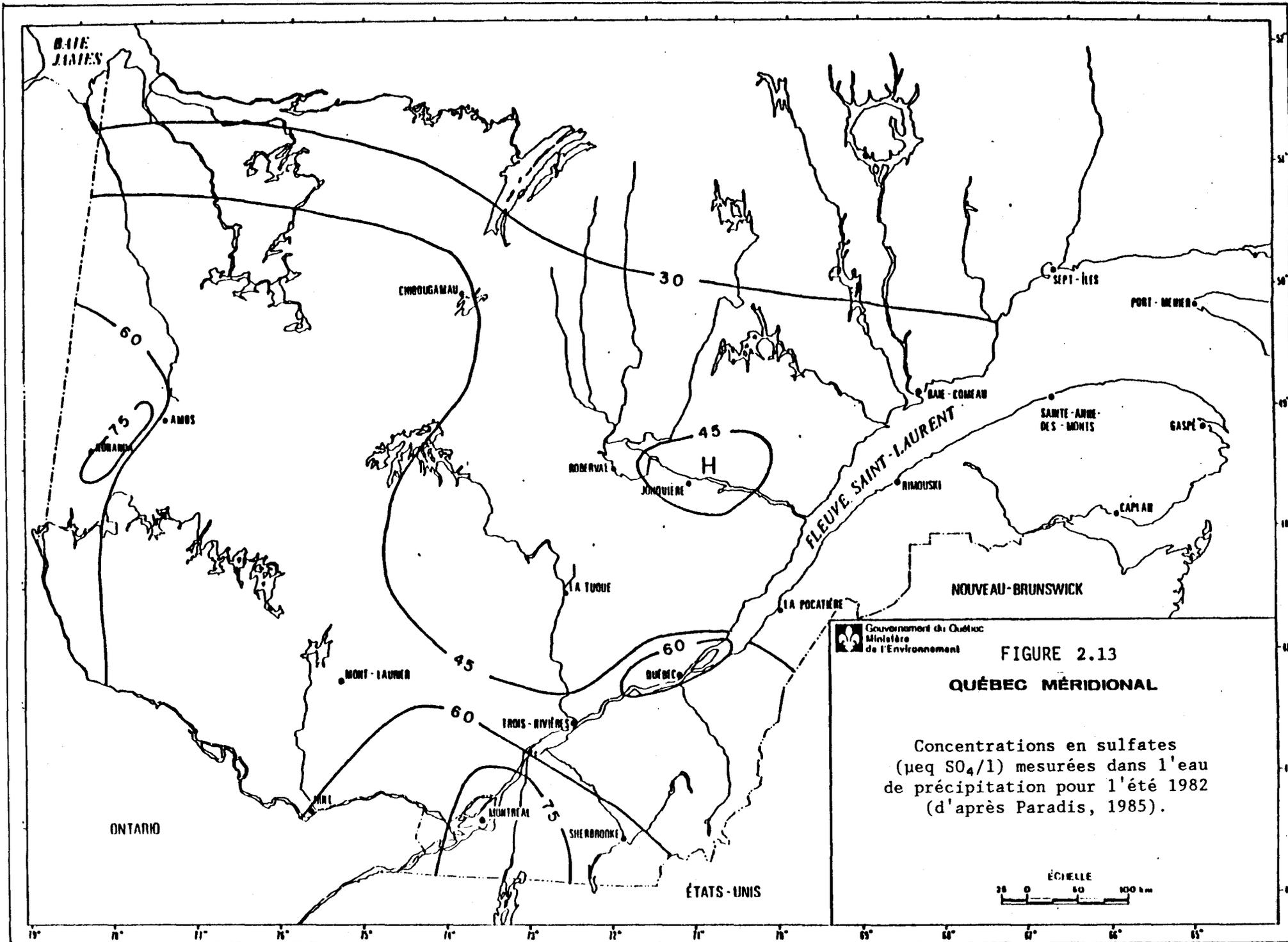
bruit de fond ($\mu\text{g SO}_4/\text{m}^3$)	r_2 ($\times 10^5$)	r_4 ($\times 10^5$)	r_4/r_2
0.0	-2.69	15.7	-5.83
1.0	-1.13	9.52	-8.46
2.0	1.78	6.11	3.43
<u>2.6</u>	<u>2.84</u>	<u>4.99</u>	<u>1.76</u>
3.0	3.37	4.44	1.32
valeurs de référence (Chan et Chung, 1986)	1.84	3.38	1.84

bruit de fond = 25 $\mu\text{eq SO}_4/\text{l}$ d'eau de pluie,

et pour la simulation No 4:

bruit de fond = 26 $\mu\text{eq SO}_4/\text{l}$ d'eau de pluie.

Ce bruit de fond équivaut approximativement aux concentrations de sulfates mesurées par le réseau d'échantillonnage des précipitations sur le nord du Québec (figure 2.13). De plus, si l'on multiplie ces concentrations par la hauteur moyenne des précipitations mesurées lors de l'été 1982 sur le Québec méridional (environ 300 mm) et ensuite par un facteur de conversion (4.8031×10^{-4}) qui tient compte du poids moléculaire des sulfates, on obtient un dépôt de sulfates calculé d'environ 3.6 kg $\text{SO}_4/\text{ha.}/\text{saison}$. Enfin, il est



Gouvernement du Québec
 Ministère de l'Environnement

FIGURE 2.13
QUÉBEC MÉRIDIONAL

Concentrations en sulfates
 ($\mu\text{eq SO}_4/\text{l}$) mesurées dans l'eau
 de précipitation pour l'été 1982
 (d'après Paradis, 1985).

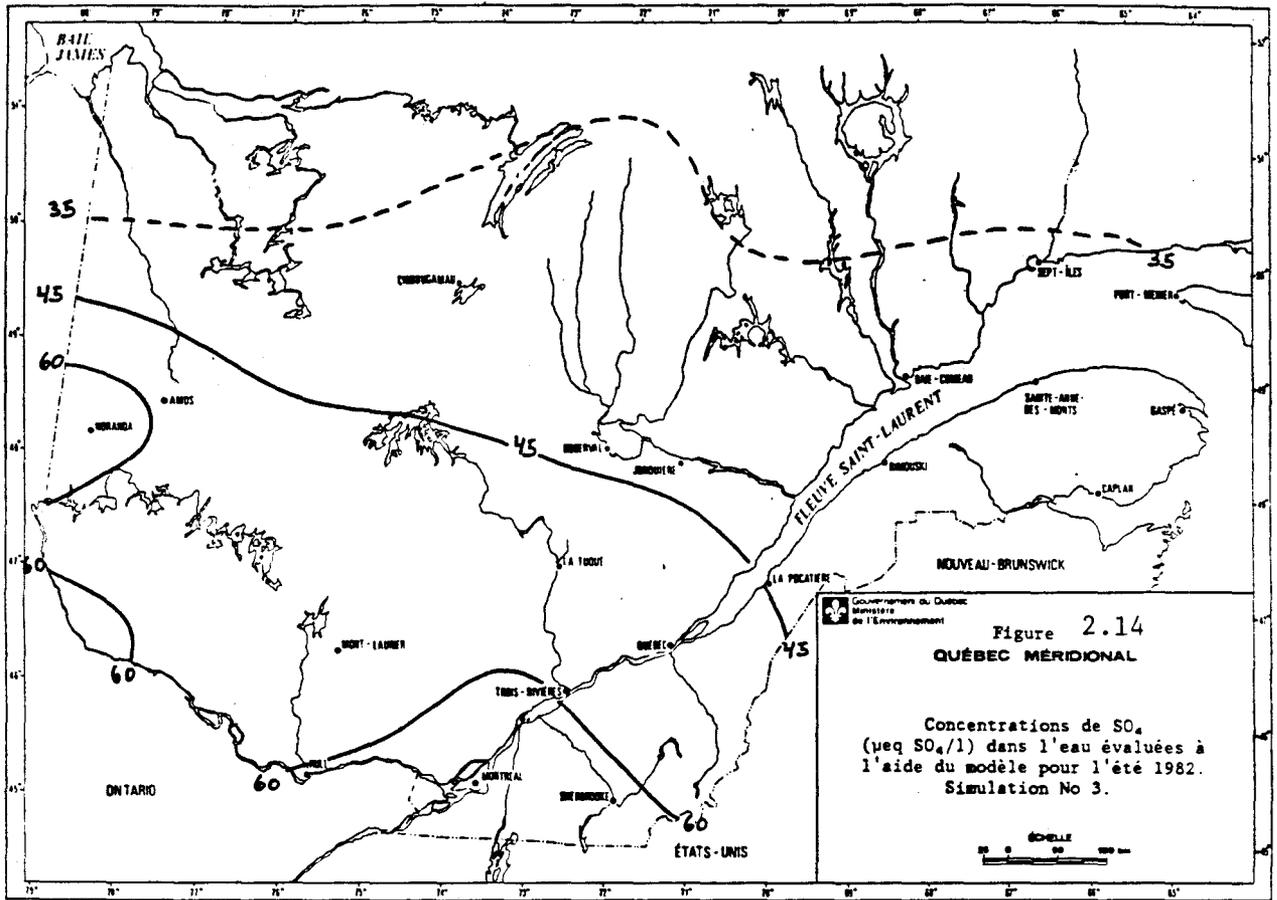
ÉCHELLE
 0 50 100 km

intéressant de comparer ce dépôt à l'objectif environnemental de 20 kg/ha./an. Cet objectif représente le niveau de dépôts humides de sulfates reconnu par les chercheurs du Canada et de la Nouvelle-Angleterre comme valeur au-dessus de laquelle les écosystèmes aquatiques modérément sensibles sont menacés. Comme les dépôts de sulfates de l'été 1982 ont contribué à environ 35% des dépôts de sulfates de l'année 1982, l'objectif environnemental est donc de 7.0 kg/ha./saison pour la saison d'été. On constate que cette valeur est supérieure aux dépôts de sulfates attribués au bruit de fond (3.6 kg SO₄/ha./saison).

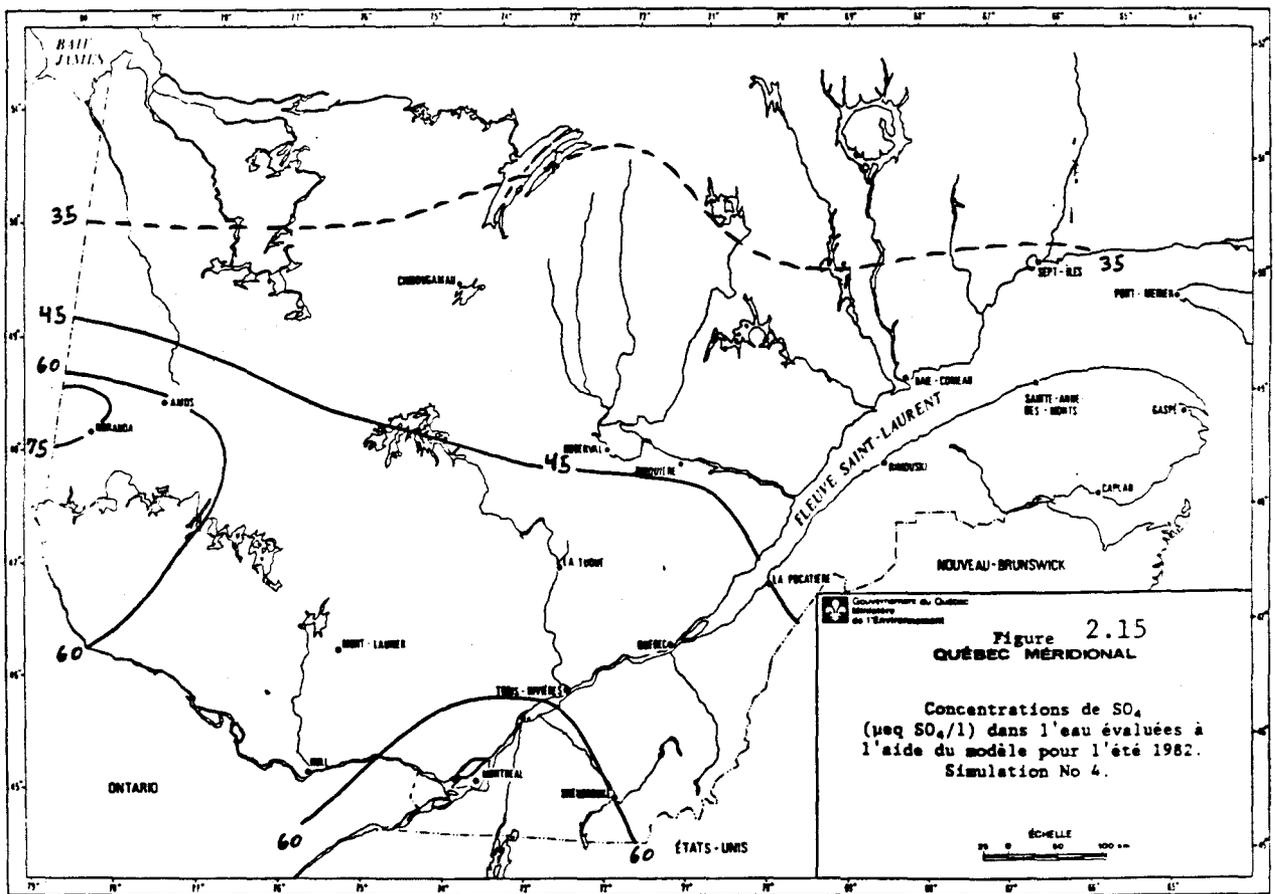
Les figures 2.14 et 2.15 présentent les concentrations $[SO_4]_{\text{eau}}^c$ calculées à l'aide de l'équation 2.13 et des valeurs de r_2 et r_4 obtenues précédemment. On constate que les cartes des concentrations calculées (figure 2.14 et 2.15) reproduisent relativement bien la carte des concentrations mesurées (figure 2.13). Cette conclusion n'a rien de vraiment surprenant puisque nous avons recherché les valeurs de r_2 et r_4 qui permettent aux concentrations calculées $[SO_4]_{\text{eau}}^c$ de reproduire le plus fidèlement possible les concentrations mesurées $[SO_4]_{\text{eau}}^m$. Il serait cependant nécessaire de vérifier si une simulation sur une autre saison d'été donnerait des résultats aussi satisfaisants avec les mêmes valeurs de r_2 et r_4 .

Le calcul des dépôts saisonniers de sulfates a ensuite été réalisé en superposant les cartes d'isolignes de concentrations (figure 2.14 et 2.15) avec la carte d'isolignes de précipitation de l'été 1982 (Fortin et al., 1986). Les valeurs obtenues aux intersections des isolignes de concentration et de précipitation ont été multipliées ensemble. Les résultats ont ensuite été multipliés par un facteur de conversion (4.8031×10^{-4}) qui tient compte du poids moléculaire des sulfates. Les figures 2.16 et 2.17 présentent les dépôts de sulfates calculés de cette façon pour la saison d'été 1982. A titre de comparaison, nous présentons à la figure 2.18 les dépôts de sulfates évalués à l'aide des mesures du REPQ pour l'été 1982.

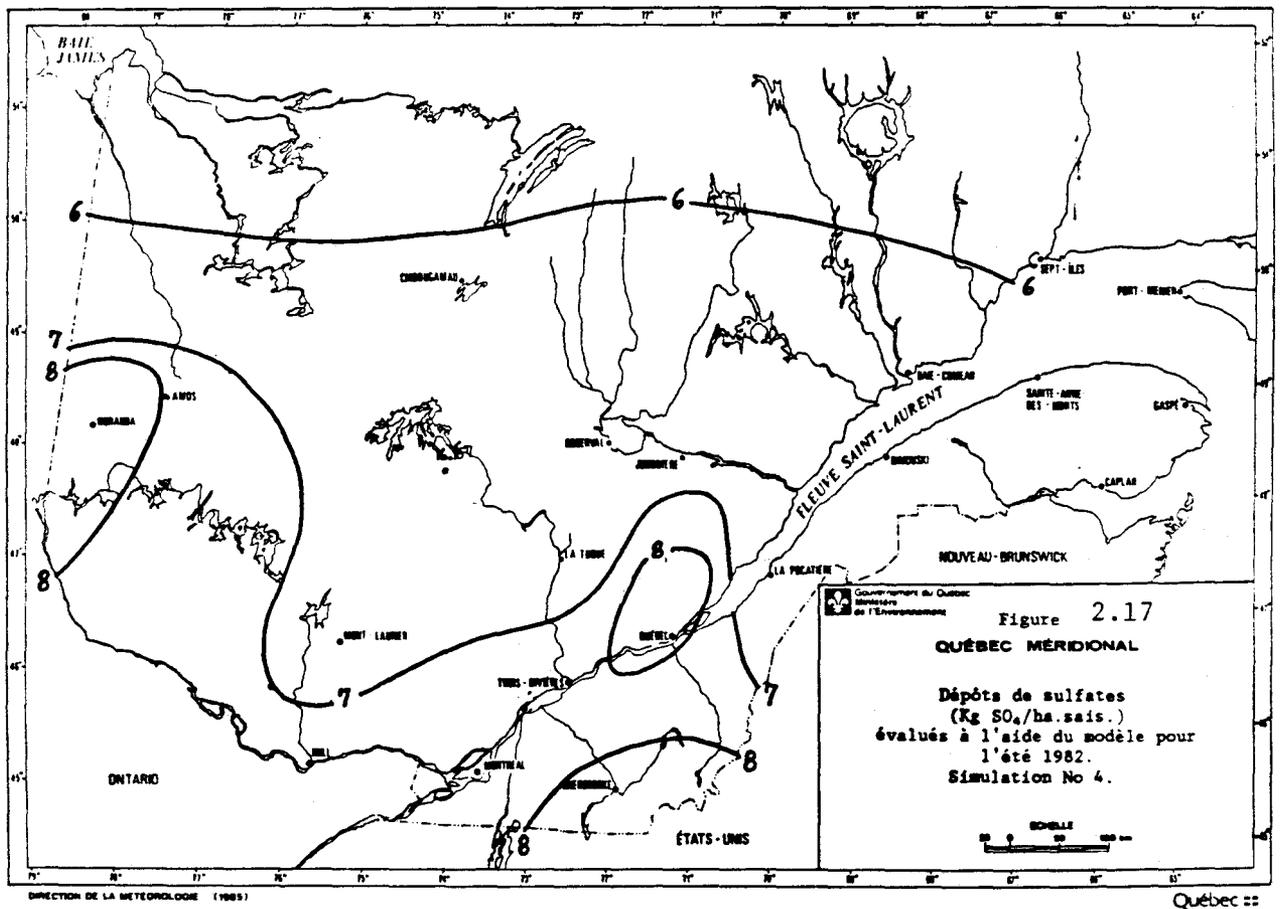
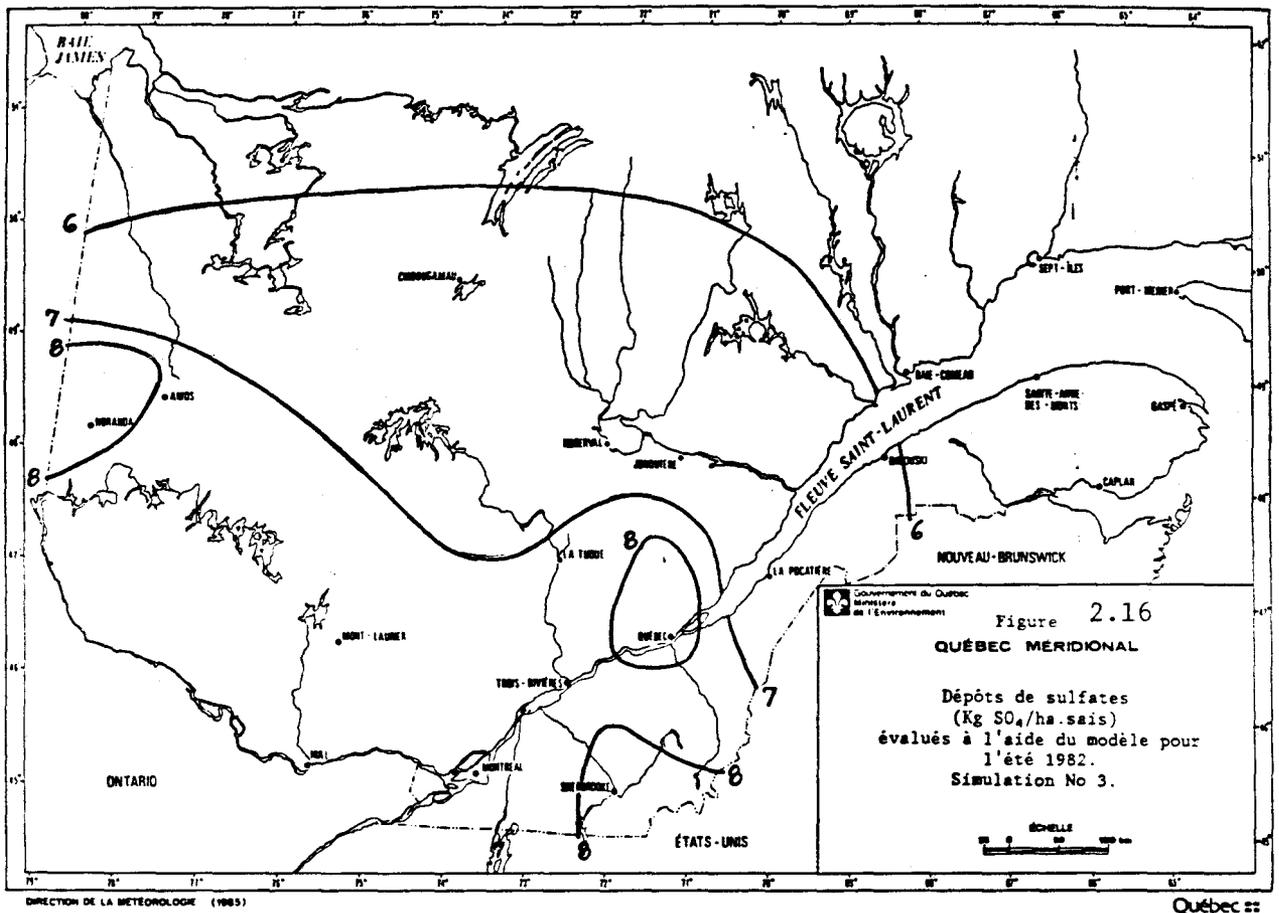
L'examen des figures 2.16 à 2.18 montre peu de différence entre les dépôts calculés et mesurés. Les écarts les plus importants se produisent dans les

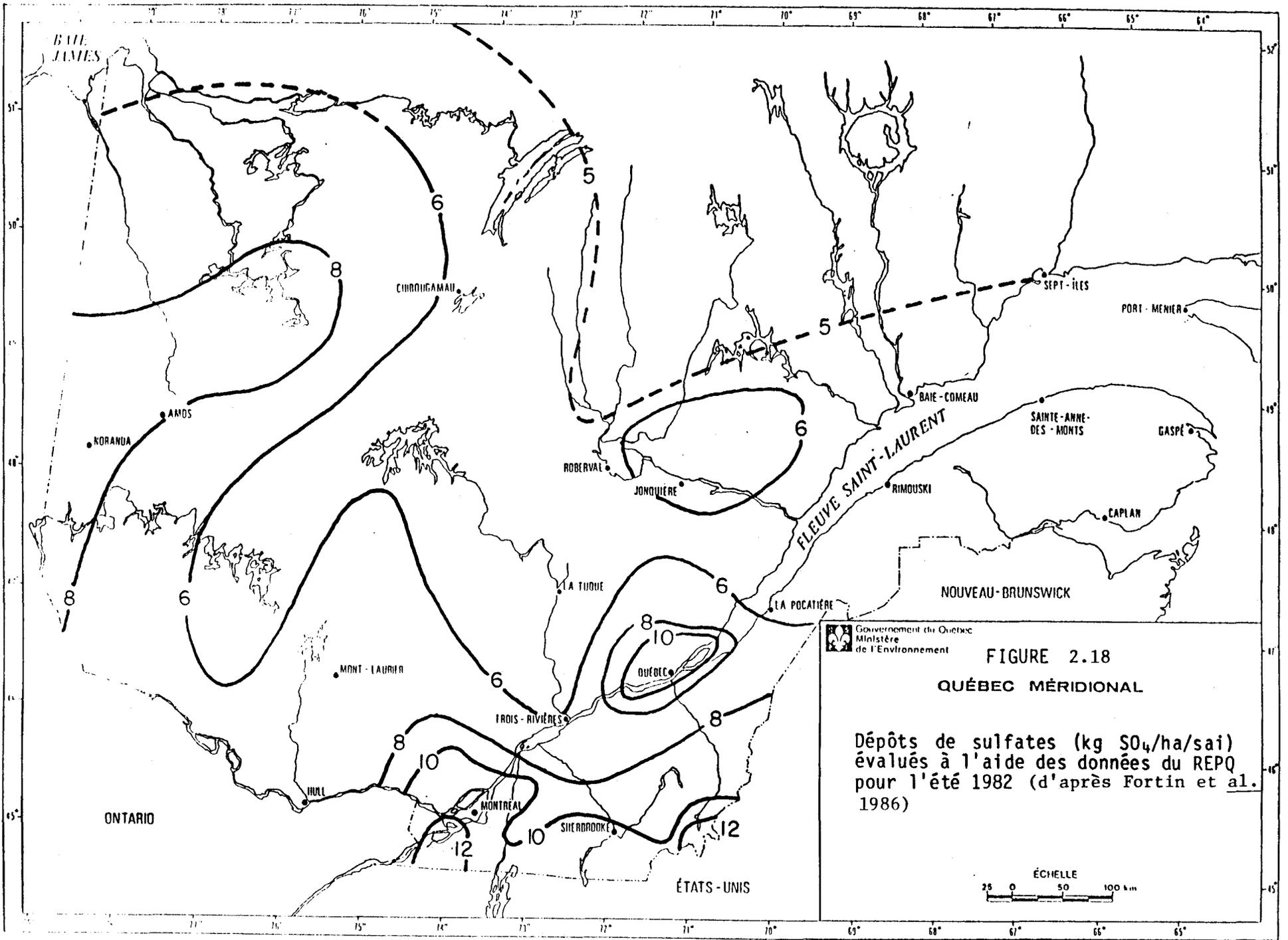


Québec ::



Québec ::





Gouvernement du Québec
Ministère
de l'Environnement

FIGURE 2.18
QUÉBEC MÉRIDIONAL

Dépôts de sulfates (kg SO₄/ha/ai)
évalués à l'aide des données du REPO
pour l'été 1982 (d'après Fortin et al.
1986)

ÉCHELLE
25 0 50 100 km

régions de Québec, de Montréal et de l'Estrie, ainsi qu'au nord est de Noranda. Le modèle sous-estime d'environ 25% les dépôts à ces endroits. Cependant, compte tenu de la résolution spatiale du modèle (127 km x 127 km) et de l'imprécision sur les dépôts évalués à l'aide des données du REPQ (figure 2.18)¹ un tel écart entre les valeurs observées et les valeurs simulées est tout à fait acceptable. D'autre part, il est intéressant de souligner que le modèle donne un maximum de dépôts dans la région de Québec et du massif laurentien situé au nord du Québec. Ce maximum que la première version du MTGDPA ne pouvait reproduire (voir Fortin et al., 1986) est attribuable, en partie, aux précipitations abondantes qui tombent dans ces régions. Ce maximum est d'ailleurs présent sur la carte des dépôts mesurés (figure 2.18).

2.3 Conclusions des chapitres 1 et 2

Quelques modifications ont d'abord été apportées au MTGDPA. Ces modifications ont permis de constater que le type de chaînes de Markov utilisées pour modéliser les cycles sec-humides avait peu d'influence sur les dépôts de sulfates calculés à l'aide du modèle. D'autre part, comme les sources américaines et ontariennes contribuent substantiellement aux dépôts de sulfates au Québec, il est clair que l'utilisation, pour ces sources, de données de précipitation non représentatives de la période ou de la saison qui nous intéresse peut avoir des conséquences importantes sur les dépôts au Québec. Actuellement, le modèle, faute de données adéquates, associe à la majorité des sources américaines le régime sec-humide observé à Toronto lors de la période 1968-1977. Une meilleure connaissance du cycle sec-humide affectant les polluants qui proviennent de l'Ontario ou des Etats-Unis serait nécessaire spécialement pour la période ou la saison sur laquelle on désire opérer le modèle.

Une méthodologie d'estimation des concentrations des polluants a également été développée. Précisons que cette méthodologie pourrait être améliorée en utilisant des techniques d'interpolation plus élaborées telles que le krigeage. Néanmoins, les résultats obtenus sont particulièrement encourageants. Ainsi, il a été possible de reproduire adéquatement à l'aide du MTGDPA les dépôts saisonniers de sulfates de l'été 1982. Les valeurs des rapports de balayage que nous avons obtenues pour cette saison se situent dans la gamme des valeurs que l'on peut trouver dans la littérature. Enfin, précisons qu'un bruit de fond correspondant à environ 25 µeq SO₄/l d'eau de pluie a été ajouté aux concentrations de sulfates calculées à l'aide du modèle.

¹ Une étude récente de Villeneuve et al. (1986) évalue, à l'aide du krigeage, l'écart type sur les dépôts de sulfates observés lors de l'été 1982 à environ 1.5 kg/ha. saison.

3. SYNTHÈSE DES OBJECTIFS DE L'ÉTUDE ET DU CONTENU DES DEUX PREMIERS RAPPORTS

Dans ce chapitre, on présente une synthèse des objectifs généraux visés par l'étude et un résumé des principaux résultats, conclusions et recommandations des deux premiers rapports (Fortin et al., 1986, 1987).

3.1 Objectifs de l'étude

Le tableau 3.1 reproduit les objectifs précisés dans le texte de la subvention de recherche accordée à l'INRS-Eau en août 1985 par le ministère de l'Environnement du Québec. On y constate que l'on devait tout d'abord parfaire l'étalonnage des paramètres du modèle et revoir la cartographie des régions-sources et des régions-réceptrices. Des études spécifiques diverses complétaient cet étalonnage. Quatre rapports, dont trois rapports d'étape, devaient être remis. Ils correspondaient, comme on peut le voir sur le tableau 3.1, aux points 1, 2.1, 2.2 et 2.3.

Les travaux sur le point 1 se sont déroulés comme prévu et un premier rapport a été remis en avril 1986. Par ailleurs, à la suite des résultats obtenus en analysant les données de l'été 1982, une révision des objectifs visés a été convenue entre l'INRS-Eau et le ministère de l'Environnement, de manière à approfondir davantage l'étude des cycles secs-humides. Le nombre de rapports d'étapes est passé de trois à deux, la remise de ce second rapport étant retardée pour y incorporer les résultats de l'analyse plus approfondie des données disponibles.

3.2 Premier rapport d'étape

Le premier rapport d'étape (tableau 3.2) explique tout d'abord, dans les chapitres 1 et 2, les modifications qui ont été apportées aux données (dépôts mesurés, régions-sources, régions-réceptrices) afin de fournir une meilleure base d'étalonnage pour le modèle. Le tableau 3.2 présente également le résumé des conclusions et recommandations découlant de l'estimation des dépôts de sulfates avec le modèle, après étalonnage avec les données disponibles. On y constate que le modèle ayant été conçu initialement pour estimer les dépôts

annuels moyens à long terme, il est difficile de reproduire des dépôts saisonniers. En particulier, il est nécessaire de faire appel aux trajectoires et aux précipitations de la saison étudiée, tout en estimant mieux les cycles secs-humides.

3.3 DEUXIÈME RAPPORT D'ÉTAPE

Le second rapport porte essentiellement sur la caractérisation des cycles humides-secs, comme on peut le constater à la lecture du tableau 3.3. Le chapitre 1 présente et discute les résultats obtenus en utilisant les seules données de l'été 1982, en insistant sur le recours à des regroupements des stations et au lissage des distributions, afin de mieux reproduire les caractéristiques régionales des cycles humides-secs. Les travaux portant sur les saisons d'été de 1980 à 1985, présentés au chapitre 2, permettent de faire ressortir, encore une fois, l'importance de la variation spatiale et saisonnière des précipitations et de l'estimation adéquate de leur durée réelle.

Tableau 3.1 Objectifs spécifiques de l'ensemble du projet

Subvention initiale (27 août 1985)

Addenda (août 1986)

Rapport		Rapport	
R ₁	<p>1. <u>Calibration du modèle de TGDP</u> en tenant compte des aspects suivants:</p> <p>1.1 Hauteur des émissions;</p> <p>1.2 Sources de polluants dans la vallée du Saint-Laurent et dans la région du Saguenay-Lac-St-Jean;</p> <p>1.3 Calage du modèle pour les paramètres suivants:</p> <p>1.3.1 Hauteur de la couche limite (fonction de la saison)</p> <p>1.3.2 Taux de lessivage</p> <p>1.3.3 Taux de transformation</p> <p>1.3.4 Vitesse de déposition sèche</p> <p>1.3.5 Diffusivité des polluants</p>	R ₁	1. inchangé
R ₂	<p>2. <u>Analyses diverses</u></p> <p>2.1 Caractérisation du cycle humide-sec pour une région et une saison données</p>	R ₂	2.1 inchangé
R ₃	<p>2.2 Investigation des possibilités de paramétrisation du cycle humide-sec à l'aide des données aérologiques disponibles à la Direction de la météorologie</p>		2.2 abrogé (pour approfondir davantage l'étape 2.1, à la suite des résultats obtenus pour l'été 1982)
R _F	<p>2.3 Mise au point d'une méthodologie pour le calcul des concentrations des polluants dans les précipitations. Advenant des résultats concluants à l'étape 2.2: élaboration d'une méthodologie pour le calcul des concentrations des polluants dans l'eau de précipitation</p>	R _F	2.3 mise au point d'une méthodologie pour le calcul des concentrations des polluants dans les précipitations et intégration de ladite méthodologie au MTGDPA

Tableau 3.2 Résumé du rapport # 1.

Chapitre	Réalisation	Conclusions	Recommandations
1	<p>Titre: <u>Cartographie des dépôts de sulfates mesurés par le REPQ</u></p> <ul style="list-style-type: none"> . Estimation et cartographie des <u>dépôts saisonniers de sulfates mesurés par le REPQ</u> à l'aide des <u>concentrations et des précipitations observées</u> pour: hiver 81-82, printemps 82, été 82, automne 82, été 83, automne 83 		
2	<p>Titre: <u>Données incorporées dans le modèle</u></p> <ul style="list-style-type: none"> . Nouvelles répartitions des sources de pollution par niveau d'émission et régions de 127, 254 ou 381 km de côté, incluant en particulier les sources de la vallée du St-Laurent, du Saguenay et du Lac St-Jean. . Utilisation des cycles secs-humides obtenus par Fortin et al. (1985). . Vents: données hiver 81/82, printemps 1982 et étés 1982 disponibles. 		

Tableau 3.2 Résumé du rapport # 1. (suite)

Chapitre	Réalisation	Conclusions	Recommandations
3	<p><u>Titre: Calcul des trajectoires et des dépôts</u></p> <ul style="list-style-type: none"> . Définitions de nouvelles régions réceptrices de 127 km de côté (300 au total). . Calcul et interprétation des trajectoires (F(θ)) pour 6 régions-cibles. Discussion du lien complexe avec les dépôts. . Estimation des dépôts de SO₄ lors des périodes humides. . Estimation des valeurs à attribuer aux paramètres du modèle (1) hauteur de la couche limite; (2) taux de lessivage; (3) taux de transformation; (4) vitesse de déposition sèche; (5) diffusivité verticale 	<ul style="list-style-type: none"> . Difficultés de bien reproduire les dépôts mesurés. . Nécessité de remplacer les données moyennes de pluie par des données représentatives de la saison, puisque les écarts sont clairement reliés aux précipitations. . La version analytique du modèle ne permet pas de tenir compte des caractéristiques régionales des précipitations. . La variabilité spatiale des précipitations saisonnières explique une partie des difficultés d'étalonnage du modèle sur des dépôts saisonniers de sulfates. . Le modèle ne favorise pas suffisamment le transport à grande distance des polluants atmosphériques, par suite d'une surestimation de la longueur des épisodes humides. 	<ul style="list-style-type: none"> . Utilisation de la version numérique du MTGDPA. . Amélioration de la connaissance du cycle sec-humide à l'échelle de la grille. . Le modèle a été conçu initialement pour obtenir des statistiques à long terme sur les dépôts de sulfates. Les résultats seraient probablement meilleurs si le modèle était étalonné sur: <ul style="list-style-type: none"> - des dépôts annuels ou - des dépôts moyens de 4 ou 5 années d'une saison donnée. . Amélioration des connaissances portant sur les phénomènes physiques qui influencent les paramètres du modèle, surtout en hiver.

Tableau 3.3 Résumé du rapport #2.

Chapitre	Réalisation	Conclusions	Recommandations
1	<p><u>Titre: Étude des cycles secs-humides de l'été 1982</u></p> <ul style="list-style-type: none"> . Préparation de la banque de données de base pour les pluviographes (53 stations retenues sur 150). Détermination et discussion de la dispersion du rapport pluviomètre/pluviographe en fonction de l'intensité des précipitations. . Détermination de la durée de chaque épisode sec et humide pour l'été 1982 et de la distribution de ces durées, à chaque station. . Regroupement de 15 stations représentatives par couples, triplets et quadruplés à l'intérieur de sous-régions homogènes statistiquement, pour augmenter le nombre d'épisodes considérés dans les distributions. . Lissage des distributions pour filtrer les fluctuations statistiques présentes dans les classes des distributions. Différentes méthodes considérées. 	<ul style="list-style-type: none"> . Le regroupement des stations n'améliore pas nécessairement les ajustements. De plus, à l'occasion, l'ajustement des distributions par une double chaîne de Markov s'est montré peu satisfaisant. . Lissage retenu: classes contenant un nombre minimum de 6 épisodes. . Critère d'ajustement retenu: $E = \sum_{i=1}^N [(\bar{P}_i - O_i)^2 / O_i]$ 	

Tableau 3.3 Résumé du rapport #2. (suite 1)

Chapitre	Réalisation	Conclusions	Recommandations
1 (suite)	<ul style="list-style-type: none"> . Difficile de régionaliser les caractéristiques du régime sec-humide à partir des données pluviographiques d'une seule saison. 		
2	<p>Titre: <u>Étude des cycles secs-humides des saisons d'été 1980-1985</u></p> <ul style="list-style-type: none"> . Méthodologie: <ul style="list-style-type: none"> - sélection des stations avec pourcentage de données manquantes inférieur à 15% - évaluation des distributions pour 1, 2, 4 et 6 saisons - lissage des distributions suivant des classes comptant un nombre minimum d'épisodes fixé à 4, 6, 8 et 12 - ajustement des distributions lissées. . Effet du lissage sur l'ajustement 	<ul style="list-style-type: none"> . Impossibilité d'ajuster un nombre de distributions d'épisodes humides par une chaîne de Markov double, mais nombre diminuant avec le nombre de saisons considérées. . Ajustement des distributions par une chaîne de Markov simple possiblement meilleur pour saisons dominées par un seul type de temps (systèmes synoptiques ou processus convectifs). . Ajustement des distributions d'épisodes secs par une chaîne de Markov double possible dans plus de 90% des cas. . Aucune variation systématique de la valeur des paramètres de la double chaîne de Markov provoquée par le lissage des distributions. 	

Tableau 3.3 Résumé du rapport #2. (suite 2)

	Réalisation	Conclusions	Recommandations
<p>Chapitre</p> <hr/> <p>2 (suite)</p>	<ul style="list-style-type: none"> . Comparaison des distributions lissées et des ajustements. . Estimation de la variabilité spatiale des paramètres A, $\langle T_1 \rangle$, $\langle T_2 \rangle$ et $\langle T \rangle$ 	<ul style="list-style-type: none"> . Paramètre évalué avec le plus de précision: durée moyenne $\langle T \rangle$ des épisodes secs ou humides. . Nombre relativement élevé de distributions (30% à 45%) très bien représentées ($P > 70\%$) par une loi markovienne. . Paramètre le moins variable spatialement: durée moyenne $\langle T \rangle$. . Variabilité spatiale attribuable à des effets locaux, en particulier des épisodes singuliers de très longue durée non enregistrés comme tels aux stations voisines. Causes possibles: découpage horaire des précipitations et sensibilité des appareils. . Soins à apporter au choix des données de base pour éviter le plus possible les effets locaux. . Le regroupement des stations et le prolongement des séries temporelles des données pluviographiques n'ont pas permis de régionaliser convenablement les caractéristiques A, $\langle T_1 \rangle$, $\langle T_2 \rangle$ et $\langle T \rangle$ du régime sec-humide. 	<ul style="list-style-type: none"> . Tests avec le MTGDPA pour évaluer l'importance de la variabilité spatiale du régime sec-humide sur le calcul des dépôts. . Etude des corrections à apporter aux données des pluviographes afin de déterminer la durée "réelle" de chaque épisode pluvieux ou sec.

RECOMMANDATIONS FINALES

Au début des années 1980, des experts de l'extérieur du Québec recommandaient au Ministère de l'Environnement du Québec de se doter d'un modèle de TGDPA afin d'être plus en mesure d'effectuer ses propres estimations de la contribution des différentes régions émettrices aux retombées de sulfates sur l'ensemble du Québec. Les résultats obtenus à date concernant le développement ce modèle s'avèrent prometteurs.

Comme on a pu le constater à la lecture de ce rapport, on ne peut toutefois considérer le développement de ce modèle comme achevé. Ceci est dû en particulier au nombre limité de données qui ont été disponibles jusqu'à maintenant. Par ailleurs, ceci a amené les chercheurs du ministère de l'Environnement et de l'INRS-Eau à noter davantage jusqu'à quel point la distribution spatiale des dépôts saisonniers est tributaire de celle des précipitations.

Un certain nombre de recommandations découlent donc de ses diverses observations des auteurs de ce rapport. Ces recommandations sont divisées en trois parties portant respectivement sur les données et études applicables aux versions analytique et numérique du modèle TGDPA, l'utilisation de la version numérique du modèle, les applications du modèle.

Données et études applicables aux versions analytique et numérique du modèle de TGDPA:

- Se doter d'une banque de données aérologiques de base qui soit complète sur les années 1981 à 1986 et qui soit mise à jour annuellement par la suite.
- Acquérir les données pluviographiques et autres données météorologiques nécessaires, en particulier, à l'estimation des cycles humides-secs au-dessus de l'Ontario et des États-Unis et faire une mise-à-jour annuelle de ces données.
- Le modèle étant très sensible aux durées réelles des épisodes secs et humides, une meilleure estimation de ces durées, en portant une attention

spéciale au seuil de précipitation choisi et à l'intégration temporelle des précipitations sur des durées plus courtes (utilisation du radar éventuellement) est absolument nécessaire.

- Améliorer les méthodes d'interpolation spatiale des paramètres caractérisant les cycles secs et humides.
- Une fois trouvée une meilleure méthode d'estimation des durées réelles des épisodes secs et humides, il faudrait déterminer la fonction théorique la plus apte à décrire la distribution de ces épisodes sur la base d'une ou de plusieurs saisons.
- La méthodologie d'interpolation des concentrations développée dans ce rapport pourrait être améliorée en utilisant des techniques mathématiques d'estimation plus élaborées (le krigeage, en particulier).
- Il est rappelé que le modèle, d'après le désir même du ministère de l'Environnement, a été conçu pour fournir des estimations des dépôts moyens interannuels de sulfates. Compte tenu des données météorologiques disponibles, des estimations ont dû être réalisées sur une saison en particulier (avec peut-être l'espoir de voir le modèle applicable à ce pas de temps).

Effectivement, des résultats satisfaisants ont été obtenus pour l'été 1982 (rapport # 3, chapitre 2). Il serait toutefois nécessaire de vérifier à l'aide des données d'autres saisons, lorsque ces dernières seront disponibles, si le modèle se comporte de façon aussi satisfaisante pour ces nouvelles saisons individuelles. Si des résultats satisfaisants n'étaient pas obtenus pour une majorité de saisons, il faudrait définitivement appliquer le modèle sur une échelle de temps plus longue.

- Une meilleure évaluation du niveau et de la variation spatiale du bruit de fond des dépôts et des concentrations de SO_4 dans les précipitations est très souhaitable.

- La difficulté d'obtenir des résultats satisfaisants au cours de l'hiver 1981-1982, suggère la possibilité que des phénomènes importants ne soient pas pris en compte par le modèle, il est donc souhaitable d'améliorer les connaissances actuelles sur les phénomènes physiques et chimiques influençant les paramètres du modèle (vitesse de transformation, taux de lessivage, diffusivité verticale,...).

Utilisation de la version numérique du modèle

- De par sa nature, la version numérique du modèle de transport permet de tenir compte de la variété des conditions (physiques, chimiques) qui prévalent sur tout le parcours des polluants alors que la version analytique ne permet que de tenir compte de conditions moyennes entre les régions émettrices et les régions réceptrices. De meilleurs résultats devraient être obtenus si l'on utilise la version numérique du modèle après l'avoir complétée en y intégrant les dernières améliorations apportées à la version analytique ainsi que la possibilité de faire varier spatialement les paramètres caractérisant entre autres les cycles secs et humides.

Applications du modèle

- Après s'être assuré d'un étalonnage adéquat du modèle, il serait intéressant de faire l'analyse de la contribution de certaines sources polluantes (NORANDA et INCO) sur les retombées acidifiantes au Québec et analyser divers scénarios en relation avec les politiques de réduction des émissions de soufre.
- Faire une étude de la climatologie des rétro-trajectoires pour des événements particuliers (dépôts hebdomadaires élevés).

RÉFÉRENCES BIBLIOGRAPHIQUES

CHAMBERLAIN, A.C. (1953). Aspects of travel and deposition of aerosols and vapour clouds, AERE Harwell Report R1261, London.

CHAN, W.H., D.H.S. CHUNG (1986). Regional-scale precipitation scavenging of SO_2 , SO_4 , NO_3 and HNO_3 , Atmos. Envir., 20, p 1397-1402.

CHAN, W.H., D.B. ORR, R.J. VET (1982). Acidic Precipitation in Ontario Study, An overview: the event wet/dry deposition network, Ontario Ministry of Environment report ARB-164-83-ARSP.

DANA, M.T., J.M. HALES (1976). Statistical aspects of the washout of polydisperse aerosols, Atmos. Envir., 10, p 45-50.

DREWES, D.R., J.M. HALES (1982). SMICK-A scavenging model incorporating chemical kinetics, Atmos. Envir., 16, p 1717-1724.

ENGELMANN, R.J. (1968). The calculation of precipitation scavenging. Slade, D.H. (ed). Meteorology and Atomic Energy, U.S. Atomic Energy Commission, Oak Ridge, Tenn.

ETATS-UNIS - CANADA (1982). Mémorandum déclaratif d'ientention concernant la pollution atmosphérique transfrontière. Groupe de travail 2 sur les sciences et analyses atmosphériques. Rapport final, rapport No 2F, novembre 1982.

FORTIN, J.P., G. BOULET, C. LELIÈVRE, M. LACHANCE, G. JACQUES (1987). Calibration et optimisation du modèle québécois de transport à grandes distances des polluants atmosphériques (Rapport d'étape No 2), rapport scientifique No 224.

FORTIN, J.P., G. BOULET, M. LACHANCE (1986). Calibration et optimisation du modèle québécois de transport à grandes distances des polluants atmosphériques (Rapport d'étape No 1). INRS-Eau, rapport scientifique No 197, 98 p.

GUNN, K.L.S., G.D. KINZER (1949). The terminal velocity of fall for water droplets in stagnant air, J. Meteor., 6, p 243-248.

HALES, J.M. (1972). Fundamentals of the theory of gas scavenging by rain, Atmos. Envir., 6, p 635-659.

SCOTT, B.C. (1978). Parameterization of sulfate removal by precipitation, J. Appl. Met., 7, p 1375-1389.

SLINN, W.G.N. (1984). Precipitation scavenging, D. Randerson (ed), Atmospheric Science and Power Production, U.S. Department of Energy, p 466-532.

SLINN, W.G.N. (1977). Some approximations for the wet and dry removal of particles and gases from the atmosphere, Water, Air, Soil Pollut., 7, p 513-543.

VILLENEUVE, J.P., K. GUERTIN, S. DESCHESNES, S. HOULE, F. MICHAUD, G. JACQUES, Y. GRIMARD (1986). Analyse de la variabilité spatiale des mesures de composition ionique des précipitations au Québec: Application de la méthode du krigeage aux données de précipitations acides, INRS-Eau, rapport scientifique No 205.