



**HAL**  
open science

# Caractérisation de la tropopause extratropicale avec les données aéroportées MOZAIC : zone de mélange et d'échange

Jérôme Brioude

► **To cite this version:**

Jérôme Brioude. Caractérisation de la tropopause extratropicale avec les données aéroportées-MOZAIC : zone de mélange et d'échange. Océan, Atmosphère. Université Paul Sabatier - Toulouse III, 2006. Français. NNT : . tel-00116649

**HAL Id: tel-00116649**

**<https://theses.hal.science/tel-00116649v1>**

Submitted on 27 Nov 2006

**HAL** is a multi-disciplinary open access archive for the deposit and dissemination of scientific research documents, whether they are published or not. The documents may come from teaching and research institutions in France or abroad, or from public or private research centers.

L'archive ouverte pluridisciplinaire **HAL**, est destinée au dépôt et à la diffusion de documents scientifiques de niveau recherche, publiés ou non, émanant des établissements d'enseignement et de recherche français ou étrangers, des laboratoires publics ou privés.

UNIVERSITE TOULOUSE III - PAUL SABATIER

## THESE

*Pour obtenir le grade de*

DOCTEUR DE L'UNIVERSITE PAUL SABATIER

*Spécialité :*

Physique et Chimie de l'Atmosphère

*Présentée et soutenue publiquement par*

**Jérôme Brioude**

*le 26 Septembre 2006*

**Titre :**

**Caractérisation de la tropopause  
extratropicale avec les données aéroportées  
MOZAIC : zone de mélange et d'échange.**

**Jury :**

Gilles BERGAMETTI	DR CNRS	Rapporteur
Jean-Pierre CAMMAS	Physicien	Directeur de thèse
Robert DELMAS	Professeur	Président
Alain HAUCHECORNE	DR CNRS	Examineur
Didier HAUGLUSTAINE	CR CNRS	Rapporteur

---

---

Mes remerciements s'adressent en premier lieu à Jean-Pierre Cammas qui a encadré ce travail de thèse. Je lui suis reconnaissant pour son appui scientifique, d'être là au bon moment, et de m'avoir donné tous les moyens pour être efficace en recherche durant 3 ans : matériel, données, collaborations diverses.

Je remercie Robert Delmas, directeur du laboratoire d'aérodynamique, de m'avoir accueilli dans son laboratoire. Je le remercie également pour avoir accepté de présider le jury, Didier Hauglustaine et Gilles Bergametti pour m'avoir fait l'honneur de rapporter ce travail et Alain Hauchecorne pour avoir accepté de participer au jury.

Coté données, l'équipe MOZAIC : beaucoup de données de qualités un peu partout sur Terre, beaucoup de collaborations : il m'a suffi de me baisser pour piocher quelques cas d'étude. Merci à l'équipe, Gilles Jean-Marc Philippe Régina Valérie pour leur travail et nos collaborations passées et actuelles ...

Coté modélisation, je commence par MESONH : Merci à Patrick et Jacqueline de m'avoir aidé à initialiser les simulations, et vérifier leur bon fonctionnement. Jacqueline m'a été d'une aide capitale dans le traitement des traceurs de François pour travailler sur les échanges STE convectif. Un proverbe Méso-NHien : quand diaprolog ne peut pas t'aider, Jacqueline reste la clé. Merci à François pour ses conseils sur les traceurs, Jean-Pierre Chaboureau pour les scripts satellites.

pour FLEXPART : merci à Owen Cooper pour le stage de 3 mois durant lesquels j'ai appris l'utilisation du modèle, et apprécié la vie à Boulder.

Une thèse de modélisation et de traitement de données de masse n'est rien sans programmation et matériel informatique : je tiens à remercier le service informatique du LA pour leur efficacité. Grâce aux installations de Serge, Laurent et Jérémy (et les financements qui vont derrière), j'ai pu travailler avec du bon matos. Je remercie également Didier et Juan qui m'ont fait faire un bon en avant en informatique. ça switch et ça splatch dans le hub, comme dirait lol et jéjé.

Et puis pour la bonne ambiance, merci à : les amis olive (alias el mujer), nico (alias le nick) et jean-pierre (alias JP) pour les discussions qui allaient des raz des paquerettes (très bas même) jusqu'au vide cosmique intersidérale thermonucléaire ou proche du paradis de l'uml. je me suis bien marré! amandine, ana, nath pour les discussions sur toupie, la gastonmobile, le chorrizo. marco et carlos pour rigoler à mes aneries. Ludo pour la bonne ambiance à Boulder.

De manière générale je remercie tout le LA pour la bonne ambiance qui y règne.

Et qu'est ce que serait une thèse sans des géniteurs pour faire le thésard : merci à mes parents. J'ai pu faire des études grâce à eux. Et puis Béa et Pascale pour s'occuper du frero depuis 26 ans. La grand mère qui me souhaite le plus grand bien. C'est grâce à eux que j'ai pu dire il y a quelques temps "popo" et à l'heure actuelle "échanges stratosphère-troposphère dans la zone de divergence en altitude". 8 ans d'étude servent à ça.

Et la petite steph qui m'a fait découvrir la bringelle, titus, et beaucoup d'autres choses.





# Table des matières

<b>Introduction</b>	<b>9</b>
<b>1 Zone UTLS aux moyennes latitudes</b>	<b>13</b>
1.1 Introduction . . . . .	13
1.2 Caractéristiques de la tropopause extratropicale . . . . .	14
1.2.1 Définition . . . . .	14
1.2.2 La tropopause en tant que couche . . . . .	15
1.3 Revue des processus STE aux moyennes latitudes . . . . .	17
1.3.1 Circulation générale . . . . .	18
1.3.2 Déferlement d'Ondes de Rossby . . . . .	19
1.3.3 Intrusions stratosphériques . . . . .	20
1.3.4 Gouttes Froides et convection . . . . .	21
1.3.5 Echanges dans les anticyclones . . . . .	21
1.3.6 Echanges dans les dépressions . . . . .	22
1.4 Représentation du bilan chimique dans les modèles . . . . .	24
1.4.1 Bilan radiatif et bilan d'ozone . . . . .	24
1.4.2 Faiblesses des modèles globaux . . . . .	24
1.5 Mise en évidence des STE : Les traceurs atmosphériques . . . . .	26
1.5.1 Historique . . . . .	26
1.5.2 Utilisation de l'ozone et CO en tant que traceurs atmosphériques . . . . .	26
1.5.3 Techniques de mesure . . . . .	28
1.5.4 Mesures In-situ MOZAIC . . . . .	29
<b>2 STE par mélange convectif : cas d'étude</b>	<b>33</b>
2.1 Analyse du cas d'étude . . . . .	33
2.1.1 Synthèse de l'article . . . . .	33
2.1.2 Stratosphere-Troposphere exchange in a summertime extratropical low : Analysis . . . . .	36
2.2 Caractérisation des processus de mélanges . . . . .	54
2.2.1 Introduction . . . . .	54
2.2.2 Présentation du modèle FLEXPART . . . . .	54
2.2.3 Outils diagnostiques . . . . .	56
2.2.4 Résultats . . . . .	58

2.2.5	Résultats avec des boites définies en pression . . . . .	62
2.2.6	Conclusion . . . . .	71
2.3	Analyse des Echanges Stratosphère Troposphère par mélange convectif dans le WCB . . . . .	72
2.3.1	Introduction . . . . .	72
2.3.2	Présentation du modèle MESONH . . . . .	73
2.3.3	Validation de la simulation . . . . .	75
2.3.4	Résultats . . . . .	78
2.3.5	Conclusion . . . . .	92
2.4	Discussion . . . . .	93
2.4.1	Modélisation des processus d'échanges STE . . . . .	93
2.4.2	Spécificité du cas d'étude . . . . .	95
<b>3</b>	<b>Stratification troposphérique</b>	<b>97</b>
3.1	Introduction . . . . .	97
3.2	Situation synoptique et mesures MOZAIC . . . . .	99
3.3	Etude lagrangienne . . . . .	101
3.4	Clusters et ozone synthétique . . . . .	104
3.5	Temps de résidence des couches stratosphériques . . . . .	109
3.6	Conclusion . . . . .	111
3.7	Perspective . . . . .	111
<b>4</b>	<b>Couche de mélange</b>	<b>113</b>
4.1	Introduction sur le transport et le mélange . . . . .	113
4.2	Approche chimique à l'aide des données MOZAIC . . . . .	116
4.2.1	Relation entre traceurs atmosphériques . . . . .	116
4.2.2	Description des données MOZAIC-3 . . . . .	121
4.2.3	Variations régionales et saisonnières des observations MOZAIC . . . . .	122
4.2.4	Traitement des données . . . . .	125
4.2.5	Caractérisation des mélanges récents . . . . .	131
4.2.6	Lignes de mélange synthétiques . . . . .	137
4.2.7	Conclusion . . . . .	141
4.3	Approche Dynamique . . . . .	142
4.3.1	Description de la méthode . . . . .	143
4.3.2	Diagrammes angle/PV . . . . .	147
4.3.3	Caractérisation de la couche de mélange . . . . .	152
4.3.4	Différences zonales . . . . .	155
4.3.5	Différences chimiques dans les thalwegs . . . . .	156
4.3.6	Perspective à l'aide d'une approche Lagrangienne . . . . .	159
4.3.7	Conclusion . . . . .	164
	<b>Conclusion</b>	<b>167</b>

TABLE DES MATIÈRES

---

Glossaire

171



# Introduction

Les liens entre la chimie atmosphérique et le climat ont reçu une attention accrue depuis plusieurs années. Une région de l'atmosphère où les deux sont étroitement liés est la zone haute troposphère/basse stratosphère (UTLS en anglais) comprise entre 8 et 16km d'altitude suivant la latitude à laquelle on se place. Cette région est la zone de transition du transport vertical entre les émissions anthropiques de surface et la moyenne atmosphère. Depuis la découverte du trou de la couche d'ozone dans la stratosphère en 1984, cette région UTLS a été l'enjeu de plusieurs programmes internationaux.

Les effets anthropiques sur l'environnement, tels que la diminution de la couche d'ozone stratosphérique, l'impact radiatif des gaz à effet de serre, la pollution des basses couches atmosphériques, entraînent une prise de conscience croissante des lourds enjeux sur la santé publique. La zone UTLS fait l'objet de beaucoup d'activités de recherche car elle focalise des études importantes comme la distribution verticale d'ozone, la destruction d'ozone stratosphérique, la capacité oxydante de l'atmosphère qui influence les temps de vie des composés chimiques troposphériques, l'impact de l'aviation dans l'atmosphère, le transport vertical, les processus dynamiques d'échanges à travers la tropopause, etc ... Les perturbations dans la distribution des gaz traces dans la région UTLS peuvent mener à un forçage radiatif indirect sur le climat. En retour, des changements de température ou des perturbations sur le flux de transport par la machine climatique peuvent affecter la composition chimique de l'UTLS, et in fine la composition chimique de la troposphère et de la stratosphère.

Le transport dans cette région, et en particulier les échanges à travers la tropopause, se fait à l'aide d'une combinaison de processus. Ils incluent la convection aux tropiques et des systèmes à l'échelle synoptique aux latitudes extratropicales, les deux phénomènes étant liés à la circulation à grande échelle de Brewer-Dobson (Holton et al., 1995 [80]). Dans la région UTLS aux moyennes latitudes, il existe un flux net de la stratosphère vers la troposphère, sous le contrôle de la dynamique à grande échelle. Cependant, ce flux net ne peut pas expliquer à lui seul plusieurs aspects importants de la distribution chimique de l'UTLS. Il faut donc estimer les flux à travers la tropopause dans les deux sens pour une meilleure représentation de la distribution chimique, de son évolution saisonnière, et les interactions qui existent entre chimie et dynamique.

Des observations récentes et des modélisations ont mis en évidence une grande complexité dans les processus dynamiques de l'UTLS qui régissent la distribution chimique. Or cette connaissance est essentielle pour les bilans de gaz traces dans les modèles glo-

baux de chimie-transport. Ces modèles sont utilisés pour quantifier le bilan de l’ozone troposphérique et ainsi fournir des informations aux décideurs. Un rapport de l’IPCC de 2001 (Intergovernmental Panel on Climate Change, Third Assessment Report, Chapitre 4, 2001) montre que les termes individuels du bilan d’ozone varient fortement. La différence importante de la source stratosphérique d’ozone constatée entre les différents modèles, de  $400 \text{ Tg}(\text{O}_3) \text{ an}^{-1}$  (Hauglustaine et al., 1998 [74]) à  $1000 \text{ Tg}(\text{O}_3) \text{ an}^{-1}$  (Crutzen et al., 1999 [42]), conduit à des conclusions allant d’une production à une destruction chimique de l’ozone troposphérique. Cependant des travaux récents sur le sujet (Stevenson et al., 2006 [161]; Grewe, 2006 [71]) montrent que les bilans des modèles de chimie-transport convergent actuellement vers les valeurs les plus basses de la fourchette pour la source d’ $\text{O}_3$  stratosphérique. Tous ces modèles indiquent alors une source nette photochimique d’ozone dans la troposphère.

Ainsi l’incertitude sur l’estimation des échanges stratosphère-troposphère, que ce soit au niveau d’un cas d’étude ou au niveau global saisonnier, reste grande. A cet égard, la difficulté de disposer d’un bilan précis de l’ozone troposphérique demeure un frein à la quantification de l’impact des processus photo-chimiques sur la production d’ozone.

De ce point de vue, les mesures in situ jouent un rôle clé dans la résolution des questions scientifiques et dans l’amélioration de notre compréhension de la composition et la structure de l’atmosphère terrestre. Les mesures de traceurs chimiques atmosphériques ont par exemple permis de trouver la majorité des circulations atmosphériques secondaires. Par ailleurs, les mesures in situ offrent une résolution temporelle et spatiale très bonnes, mais de manière générale leur couverture spatiale est faible.

Ce travail de thèse porte sur l’étude des échanges stratosphère-troposphère aux moyennes latitudes à l’aide des mesures in situ du programme MOZAIC. MOZAIC possède la meilleure base de données d’ozone, d’humidité relative, de CO et de  $\text{NO}_y$  dans la région UTLS. La couverture spatiale et temporelle des 5 avions de ligne équipés permet des études climatologiques des variations zonales ou saisonnières de ces gaz.

Ce manuscrit se présente de la façon suivante :

- Dans un premier chapitre, on présentera les différents mécanismes d’échanges à travers la tropopause aux moyennes latitudes, et leur représentation dans les modèles. L’intérêt d’utiliser des traceurs chimiques atmosphériques en dynamique sera montré, ainsi qu’une présentation du programme MOZAIC.

- Le deuxième chapitre portera sur un cas d’étude d’échanges stratosphère-troposphère dans une cyclogénèse d’été documenté par deux avions MOZAIC.

Dans une première partie, une étude synoptique et lagrangienne basée sur le modèle lagrangien LAGRANTO est présentée. Cette étude a fait l’objet d’une publication acceptée au journal ACP.

Puis le modèle dispersif lagrangien FLEXPART est utilisé pour approfondir la première partie et quantifier les échanges dans la zone de divergence en altitude de la ceinture de transport d’air chaud (Warm Conveyor Belt en anglais).

Dans une troisième partie, le modèle non-hydrostatique MESO-NH est utilisé pour caractériser l’impact des mélanges convectifs sur la distribution chimique mesurée par l’avion MOZAIC dans la zone UTLS.

– Le troisième chapitre présentera un cas d'étude de stratification en couches de la troposphère sur un profil MOZAIC en hiver. L'origine de quatre couches issues de deux systèmes dépressionnaires est déterminée à l'aide du modèle dispersif lagrangien FLEX-PART. L'estimation des temps de résidence dans la troposphère de deux intrusions stratosphériques est présentée.

– Enfin, un quatrième chapitre portera sur une étude climatologique de l'impact des échanges stratosphère-troposphère sur les distributions d'ozone et de CO dans la zone UTLS.

Dans ce dernier chapitre, une première partie exposera les caractéristiques d'une couche de mélange au dessus de la tropopause par une analyse globale de la base de données MOZAIC.

Une approche dynamique sera présentée dans une seconde partie. En particulier nous verrons comment l'établissement d'un nouveau repère dynamique a permis un remplacement cohérent des observations le long des dorsales et des thalwegs d'altitude. La formation d'une couche de mélange au dessus de la tropopause, et les variations chimiques saisonnières sont analysées dans ce repère. Enfin, une analyse lagrangienne des variations zonales est abordée.

Une conclusion générale sera donnée à la fin du manuscrit, et un glossaire des acronymes sera donné en annexe.





# Chapitre 1

## Zone UTLS aux moyennes latitudes

### 1.1 Introduction

Dans l'atmosphère, la distinction entre stratosphère et troposphère est une nécessité au regard des différences qui existent entre ces deux régions telles que l'échelle de temps caractéristique du mélange vertical ou la composition chimique. Cependant, ces réservoirs sont fortement couplés entre eux dynamiquement et chimiquement. Les échanges stratosphère-troposphère (Stratosphere-Troposphere Exchange en anglais, noté STE par la suite) jouent un rôle majeur sur la dynamique et la composition chimique de l'atmosphère dans son ensemble. Par exemple, l'extrême sécheresse de la stratosphère est en partie le résultat d'un transport convectif à travers la tropopause tropicale. A ce niveau l'air est fortement asséché puisqu'il traverse la tropopause à une température très froide à 17 km d'altitude en moyenne. Les échanges STE peuvent aussi avoir un impact indirect sur la santé humaine. En effet, les produits chimiques destructeurs de l'ozone stratosphérique (eg, les CFC), émis à la surface par les activités humaines sont transportés dans la stratosphère au niveau des tropiques, puis se dirigent vers le pôle sous l'action de la circulation générale de Brewer-Dobson où se produit la destruction photochimique de la couche d'ozone. La destruction de cette couche entraîne une augmentation du flux de radiation ultraviolet au sol, ce qui potentiellement augmente les risques de cancer de la peau. De manière générale, les échanges STE jouent un rôle important sur l'équilibre radiatif du système atmosphérique, par son impact sur le bilan chimique des espèces traces (par exemple l'ozone).

Malgré une recherche intensive, il existe encore de larges incertitudes sur plusieurs aspects qualitatifs et quantitatifs de ces échanges. Une connaissance plus approfondie de leur distribution spatiale et temporelle est par exemple essentielle pour modéliser l'impact humain sur la chimie atmosphérique et l'évolution du climat à cause de l'hétérogénéité spatiale et temporelle des émissions anthropogéniques de surface. La compréhension des processus dynamiques à l'origine des échanges STE nécessite une modélisation des phénomènes, mais aussi une évaluation de leur impact sur les bilans chimiques. Des études récentes tentent d'améliorer les méthodes (diagnostiques ou lagrangiennes) de quantification de ces échanges. Pour cela, les mesures in situ sont indispensables pour confronter les observa-

tions aux simulations. De ce fait, les échanges STE ont reçu une importance particulière de la communauté scientifique comme exprimé par plusieurs études d’observation et de modélisations à l’échelle régionale et globale. (Price and Vaughan, 1993 [139], Holton et al. 1996 [80], Marenco et al., 1998 [114], Newell et al., 1999 [123], Law et al. 2000 [103]). L’évolution des échanges STE à travers des changements de circulation à l’échelle globale peut influencer dans le futur le climat et la composition chimique de l’atmosphère. Butchart and Scaife (2001) [33] ont prédit une augmentation des échanges STE de 3% par décennie en raison d’une augmentation de la concentration des gaz à effet de serre. Une amélioration de la représentation des échanges STE dans les modèles est indispensable pour réduire les incertitudes de scénario futur et améliorer la confiance portée aux résultats. A méso-échelle, les échanges STE et plus généralement la dynamique de la tropopause ont une importance pour la prévision des précipitations dans les cyclogénèses (Holton et al., 1996 [80]). Dans ce chapitre, nous allons présenter les caractéristiques de la tropopause extratropicale, une revue des processus d’échanges STE et une synthèse de l’utilisation des traceurs atmosphériques ozone et CO pour l’étude dynamique des échanges STE.

## 1.2 Caractéristiques de la tropopause extratropicale

C’est en 1902 que le météorologiste français Léon Teisserenc de Bort fit officiellement part de la découverte d’une zone isotherme au dessus de la basse atmosphère. Il baptisa cette enveloppe la stratosphère, car les mouvements de l’air s’y effectuent par couches horizontales ”en strates”, en raison de la forte stabilité verticale.

### 1.2.1 Définition

De façon conventionnelle, la tropopause est définie selon l’organisation mondiale de météorologie (WMO) comme étant le niveau le plus bas où la température décroît au plus de  $2^\circ\text{K}/\text{km}$  sur une couche de 2km. Alternativement, la tropopause est définie chimiquement comme étant le niveau où la concentration d’ozone atteint environ 80 ppbv (Bethan et al., 1996 [25]; Thouret et al., 2006 [170]). En effet, la concentration d’ozone croît généralement fortement dans la stratosphère à cause de l’effet de barrière de la tropopause, tandis que sa concentration dans la troposphère est relativement constante suivant la hauteur.

Cependant, lorsque l’on considère les flux de masse des échanges STE, il est plus pratique d’utiliser une définition dynamique de la tropopause, basée sur le tourbillon potentiel d’Ertel (Potential Vorticity en anglais, PV) (Hoskins et al., 1985 [82]) mesure du rapport du tourbillon absolu sur la profondeur effective du vortex.

$$PV = -g(\zeta_\theta + f) \frac{\partial \theta}{\partial P}$$

$g = 9.81\text{ms}^{-2}$  constante d’accélération gravitationnelle

$f = 2\Omega \sin(\phi)$ , le paramètre de Coriolis ou tourbillon planétaire

$\zeta_\theta$ , composante verticale du rotationnel du vent, sur une surface isentrope. Elle représente le tourbillon relatif.

$\frac{\partial\theta}{\partial P}$ , terme de stabilité thermique de l'atmosphère.

La définition dynamique de la tropopause avec le PV permet de décrire les foliations de tropopause comme des repliements de cette dernière. Elle permet de définir une surface à travers laquelle calculer des flux de masse et d'ozone pour étudier les échanges STE (eg Danielsen, 1968 [45], Haynes and McIntyre, 1990 [75]). Elle permet également de dissocier les processus dynamiques et diabatiques des échanges STE dans le calcul de flux de masse à travers la tropopause (Wirth, 1995 [174]). Cependant son utilisation peut être limitée pour le calcul de flux dans les systèmes convectifs, où les champs de tourbillon potentiel sont fortement perturbés. L'utilisation de paramètres dynamiques tels que la température potentielle équivalente est alors plus efficace (eg Mullendore et al., 2005 [120])

Il est maintenant conventionnel de définir la tropopause dynamique par une valeur particulière de PV (eg, Holton et al., 1995 [80]). Différentes valeurs seuil ont été utilisées comme définition. Celles-ci sont de 1 pvu (Shapiro, 1978 [155]), 2pvu (Appenzeller et al., 1996 [16]), 3pvu (Spaete et al., 1994 [157]) et 3.5 pvu (Hoerling et al., 1991, 1993 [79]). Actuellement, la valeur la plus fréquemment utilisée est celle correspondant à 2pvu, qui est notamment adoptée par le CEPMMT (Grewe et Dameris, 1996 [72]; Blonsky et Speth, 1998 [151]).

Une étude récente de Haynes et Shuckburgh (2000) [77] a montré en utilisant le paramètre de diffusivité effective que la tropopause ne peut pas être associée à une valeur de PV précise. Dans cette étude, la tropopause correspond au minimum de diffusivité effective sur chaque surface isentrope. Le paramètre de diffusivité effective est calculé à partir de l'équation d'advection diffusion à l'aide de champs de vent isentropiques et sur un système de coordonnées de latitude équivalente. La diffusivité effective est représentative de la facilité du transport et du mélange s'opérant sur les surfaces isentropes. La valeur de PV associée au minimum de diffusivité effective varie en fonction de la surface isentrope et de la saison. La valeur moyenne de PV du minimum de diffusivité effective tourne autour de 2pvu aux moyennes latitudes.

### 1.2.2 La tropopause en tant que couche

La troposphère est caractérisée par un faible tourbillon potentiel et une faible stabilité statique, et la stratosphère par un fort tourbillon potentiel et une forte stabilité statique. A l'interface entre ces deux régions, la tropopause agit comme une barrière dynamique et chimique (Ambaum, 1997 [12]).

La forte stabilité de la stratosphère réduit les mélanges verticaux qui se font à une échelle temporelle de l'ordre du mois. Le mélange dans la troposphère est plus rapide avec un temps caractéristique de l'ordre de quelques heures à quelques jours. Les processus de transport à travers la tropopause se font le long des surfaces isentropes à grande échelle (transport adiabatique), ou à travers les surfaces isentropes à petite échelle (transport diabatique). Ainsi les processus dynamiques à l'échelle synoptique et à méso-échelle doivent être pris en

compte dans l'optique de décrire précisément les processus de transport et de mélange à travers la tropopause.

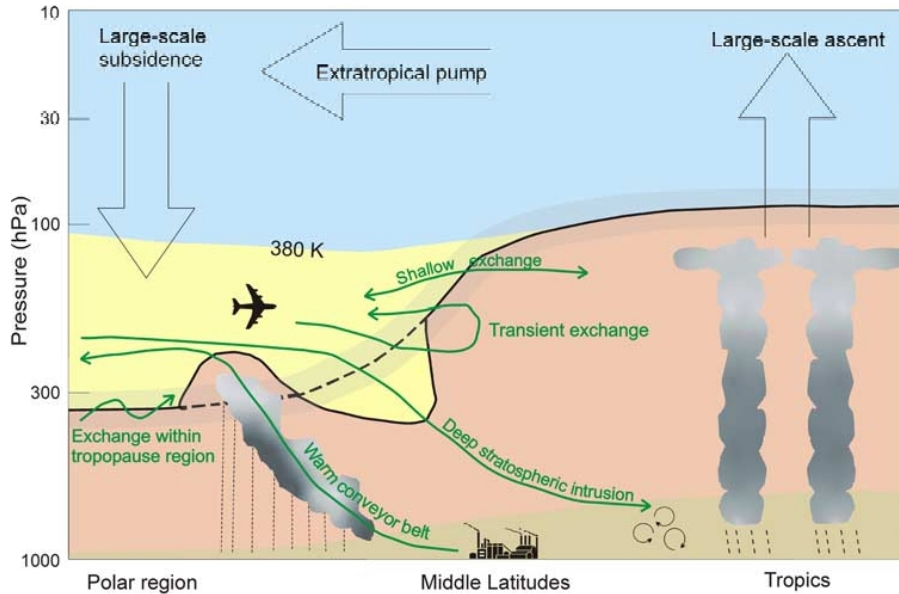


FIG. 1.1 – Circulation générale de Brewer Dobson (Holton et al., 1995). La ligne noire représente la tropopause. La zone bleue représente le "overworld", la zone rose le "underworld", la zone jaune le "lowermost stratosphere", et la zone marron la couche limite planétaire. Les flèches vertes illustrent les différents échanges transitoires ou profonds à travers la tropopause (Stohl et al., 2003).

Pour une clarté dans la classification des échanges STE, il est nécessaire de subdiviser autrement la troposphère et la stratosphère à l'aide de trois couches :

- Le monde du dessus ou overworld.
- Le monde du milieu ou middleworld.
- Le monde du dessous ou underworld.

Le monde du dessus est la partie de la stratosphère où les surfaces isentropiques ne coupent jamais la tropopause. Quant au monde du dessous, il correspond à la partie de la troposphère où les surfaces isentropiques ne coupent jamais la tropopause. Le cas contraire se produit dans le monde du milieu.

La partie stratosphérique du monde du milieu est appelée la plus basse stratosphère (ou lowermost stratosphere en anglais). La limite entre le monde du milieu et le monde du dessus coïncide plus ou moins avec la surface isentropique 380K.

Pour atteindre la troposphère, les masses d'air dans le monde du dessus doivent descendre à travers les surfaces isentropiques et donc subir des processus diabatiques de refroidissement qui durent pendant plusieurs mois.

De même, les masses d'air dans le monde du dessous ne peuvent atteindre la stratosphère

qu'en traversant les surfaces isentropiques. Ces processus diabatiques dans la troposphère prennent quelques heures à quelques jours. Dans le monde du milieu, l'air peut être transporté de la basse stratosphère vers la troposphère et inversement par transport adiabatique le long des surfaces isentropiques.

La composition chimique de la basse stratosphère dans le monde du milieu est donc un mélange entre de l'air stratosphérique qui descend diabatiquement du monde du dessus (faiblement chargé en CO et humidité, chargé en ozone) et de l'air troposphérique qui traverse la tropopause extratropicale par un transport adiabatique (potentiellement chargé en CO et humidité, faiblement chargé en ozone). La basse stratosphère aux moyennes latitudes se caractérise donc par des structures chimiques compliquées, suivant l'action des processus de transport et de mélange aux échelles globales, synoptiques et méso-échelle.

## 1.3 Revue des processus STE aux moyennes latitudes

Traditionnellement, le couplage dynamique entre la troposphère et la stratosphère était vu comme une influence de la troposphère sur la stratosphère, la troposphère agissant comme une source d'ondes de Rossby et d'ondes de gravité se propageant verticalement dans la stratosphère. Cependant, les preuves par l'observation et la modélisation montrent que la stratosphère ne joue pas un rôle passif dans ce couplage mais peut agir sur les conditions de surface.

Alors que dans la prévision météorologique et la modélisation du climat il est habituel de désaccentuer le rôle de la stratosphère, il existe maintenant des preuves d'une influence dynamique de la stratosphère vers la troposphère. Les quantités d'aérosol injectés par éruption volcanique dans la stratosphère agissent sur le temps et le climat de surface (Robock 2000 [148]). L'opérateur d'inversion de PV montre également qu'une évolution du PV dans la basse stratosphère modifie les champs de vent et de température dans la troposphère (Hartley et al., 1998 [73]; Ambaum and Hoskins, 2002 [13]; Black, 2002 [27]).

A travers la structure verticale du mode annulaire de l'hémisphère nord (NAM en anglais), Baldwin et Dunkerton (1999 [20], 2001 [21]) montrent une propagation des perturbations de la haute stratosphère vers la troposphère. Baldwin et al. (2003) [22] montrent également que l'échelle de temps des variations troposphériques est plus grande lorsqu'il existe une forte propagation des ondes de Rossby dans la stratosphère. La prise en compte dans les modèles de ces liens dynamiques entre stratosphère et troposphère permettrait d'augmenter les scores en prévision du temps et d'étendre les échéances des prévisions dans le temps (Baldwin et al., 2003 [22]).

Les échanges STE sont une autre manifestation de ce couplage. Depuis les années 90, de nombreuses études ont porté sur les échanges à travers la tropopause en raison de leur impact sur les concentrations chimiques troposphériques. Les changements de concentration de l'ozone stratosphérique (la couche d'ozone) impliquent des changements sur la quantité d'UV reçue au sol, mais aussi sur la quantité d'ozone stratosphérique reçue dans la troposphère. Ce flux stratosphérique d'ozone peut même contribuer à la concentration d'ozone en surface (eg Danielsen, 1968 [45]; Zeng and Pyle, 2003 [190]). Les processus

d'échanges de la stratosphère vers la troposphère ont été fortement documentés, tandis que les échanges de la troposphère vers la stratosphère n'ont pas eu la même attention du fait du manque d'observation de ces phénomènes. Cependant les flux massiques du transport de la troposphère vers la stratosphère (Troposphere to Stratosphere Transport, TST) et du transport de la stratosphère vers la troposphère (Stratosphere to Troposphere Transport, STT) sont d'un ordre de grandeur plus important que le flux net stratosphérique (c'est-à-dire la différence des deux flux STT-TST), et donc il est important d'en connaître les 2 composantes pour estimer au mieux le bilan chimique troposphérique. Nous allons à présent aborder une revue des principaux processus d'échange.

### 1.3.1 Circulation générale

La circulation générale de Brewer-Dobson consiste en une ascendance dans la stratosphère tropicale, puis d'un mouvement en direction du pôle dans l'hémisphère d'hiver, et enfin d'une subsidence dans la stratosphère extratropicale. Comme décrit par Holton et al. (1995) [80], cette circulation est forcée par la pompe extratropicale dans la stratosphère. Elle est contrôlée par le déferlement des ondes de gravité et des ondes de Rossby. Ces dernières se propagent vers l'Ouest dans la stratosphère relativement au flux moyen. Lorsque ces ondes déferlent, elles induisent une force vers l'ouest, ce qui provoque un flux méridien vers le pôle.

A cause de la conservation de la masse, ce mouvement vers le pôle agit comme une pompe sur l'air des tropiques, causant une ascendance entre  $15^{\circ}\text{N}$  et  $15^{\circ}\text{S}$ . Toujours en raison de la conservation de la masse, une subsidence se produit dans les latitudes extratropicales et les régions polaires.

La circulation stratosphérique aux moyennes latitudes est donc gouvernée par la trainée associée aux déferlements d'ondes de Rossby dans l'hémisphère d'hiver, avec une contribution des ondes synoptiques dans la basse stratosphère. L'intensité de cette circulation dépend de la force des courants jet, elle-même dépendante du gradient de température entre l'équateur et le pôle dans la troposphère. Avec un jet intense, les ondes de Rossby peuvent déferler plus facilement, et ainsi la circulation de Brewer Dobson vers le pôle sera plus forte. Le gradient de température moyen entre équateur et pôle dans la troposphère est plus grand en hiver qu'en été. Il est également plus fort dans l'hémisphère nord que dans l'hémisphère sud. Ces deux traits expliquent que la circulation de Brewer Dobson est plus forte en hiver et qu'elle soit plus marquée dans l'hémisphère nord. La relative faiblesse du gradient de température dans l'hémisphère sud entre l'équateur et le pôle sud résulte d'une superficie totale des océans plus grande que dans l'hémisphère nord. De ce fait il existe une inertie thermique plus grande qui nivelle le gradient de température.

Quant à la trainée des ondes de gravité, bien que constituant le premier forçage dans la mésosphère, elle est de seconde importance dans la stratosphère. La contribution dominante dans cette zone, venant des ondes à grandes échelles de Rossby, est concentrée dans la région "surf zone" (McIntyre and Palmer, 1983 [118]) de l'hémisphère d'hiver aux moyennes latitudes. La région "surf zone" possède deux frontières bien délimitées :

- Une limite vers le pôle qui constitue la frontière avec le vortex polaire (McIntyre and Palmer, 1983 [118]).
- L'autre aux latitudes subtropicales (McIntyre, 1990 [117]) marquée par de forts gradients de distribution de traceurs à  $10^{\circ}$ – $20^{\circ}$  de latitude (e.g., Murphy et al., 1993 [112]; Randel et al., 1993 [143]; Grant et al., 1996 [17]).

Malgré la dynamique induite par la pompe extratropicale, une distinction nette existe dans le overworld tropical et l'extratropical. Les observations montrent que beaucoup d'espèces chimiques dans l'overworld ont un rapport de mélange différent aux tropiques et aux latitudes extratropicales (Randel et al., 1993 [143]). Ceci suggère que le mélange isentropique dans l'overworld extratropical ne s'étend pas à l'overworld tropical (Plumb, 1996 [5]). Cette barrière aux échanges est qualifiée de barrière subtropicale.

Cette circulation globale est le processus qui détermine les flux globaux entre la stratosphère et la troposphère. Cependant, à l'échelle locale, les échanges à travers la tropopause sont forcés par la distribution spatiale et temporelle des processus dynamiques dans la région de la tropopause (e.g. ceux qui conduisent aux foliations de tropopause). Ceci n'implique pas qu'à chaque instant le flux descendant dans la plus basse stratosphère doit être égal au flux à travers la tropopause extratropicale. Ils ne doivent être égaux qu'à une grande échelle de temps. Dans ce cas, les flux à travers la surface 380K et la tropopause doivent être les mêmes, en supposant qu'il n'y ait aucune source ou destruction chimique dans la plus basse stratosphère.

#### 1.3.2 Déferlement d'Ondes de Rossby

Les Ondes de Rossby se développent dans une atmosphère barotrope (e.g. Kiladis, 1998 [96]) et doivent leur existence à la conservation du tourbillon absolu lors des variations de la force de Coriolis avec la latitude (effet  $\beta$ ). Ces ondes se propagent linéairement le long des jets d'ouest, et ont été largement décrites dans la stratosphère par McIntyre et Palmer (1984) [118]. On appelle les ondes de Rossby les ondes planétaires ayant lieu même dans une atmosphère barocline. Dans ce cas, les ondes de Rossby conservent le PV sur une surface isentrope, et doivent leur existence aux gradient méridiens isentropique de PV. Elles peuvent déferler lorsqu'elles atteignent une amplitude suffisamment large, en association avec un affaiblissement du jet qui entraîne une propagation méridienne rapide (environ 1 jour) de l'onde, associée à une déformation méridienne irréversible des contours de PV sur les surfaces isentropes (Polvani et Plumb, 1992 [136]).

Le déferlement des ondes de Rossby près de la tropopause entraîne essentiellement un renversement du gradient horizontal de PV isentropique avec des masses d'air stratosphériques qui viennent se positionner au sud des masses d'air troposphériques dans l'hémisphère nord (e.g. Holton et al., 1995 [80]; Peters and Waugh, 1996 [134]; Vaughan et Timmis, 1998, 1996 [175]). Des processus de STE, par filamentation par exemple, peuvent se greffer par la suite à ce phénomène. Ces filaments peuvent être vus comme des langues d'air stratosphériques (ou troposphériques) étirées hors de leur couche d'origine. Ces derniers présentent une haute résolution horizontale, mais peuvent également être étendus sur



la verticale.

Par conséquent les ondes de Rossby peuvent entraîner des échanges de masses d'air entre la stratosphère et la troposphère dans les deux sens et cela de manière plus ou moins intense, par un transport quasi-horizontale des masses d'air le long des isentropes. Si la propagation de ces ondes s'effectue à l'échelle synoptique, le mélange des masses d'air qui en découle en revanche s'effectue par des structures pouvant atteindre de très fines échelles horizontales (filament), mais qui peuvent s'introduire profondément dans la couche voisine (e.g. Waugh et Polvani, 2000 [181]).

### 1.3.3 Intrusions stratosphériques

Les intrusions stratosphériques sont associées dans la troposphère à une couche ayant un fort PV, de l'air sec et riche en ozone. Elles peuvent également affecter certains aspects dynamiques troposphériques (e.g. Vaughan and Worthington, 2000 [176]). Leur présence peut être vue comme des courants d'air sec sur les images satellites dans le canal vapeur d'eau (Appenzeller and Davies, 1992 [14]; Wimmers and Moody, 2004a [185] et 2004b [186]).

Les intrusions stratosphériques aux moyennes latitudes sont principalement associées aux foliations de tropopause (Danielsen, 1968 [45]). Une intrusion d'air stratosphérique qui descend dans la zone barocline sous le courant jet troposphérique est appelée une foliation de tropopause. Elles se forment sous la partie la plus pentue de la tropopause dynamique au coeur du jet. Les foliations de tropopause sont les processus les plus dominants et les plus efficaces de STE aux moyennes latitudes. Les foliations se forment le long des zones d'accélération des courants jets (entrée des rapides) et de préférence dans la partie ouest des ondes baroclines où l'entrée des rapides en advection froide favorise la frontogénèse d'altitude (Keyser et Shapiro, 1986 [95]).

Le transport irréversible de la stratosphère vers la troposphère dans les intrusions stratosphériques dépend du degré de filamentation de ces structures à fine échelle (Vaughan et al., 1994 [66]; Appenzeller et al., 1996 [16]; Langford and Reid, 1998 [102]; Karpetchko et al., 2003 [93]). La filamentation commence à proximité du courant jet par advection différentielle et cisaillement de vent (Appenzeller et Holton, 1997 [15]). Les filaments sont en particulier créés par l'étirement des masses d'air suite au déferlement des ondes de Rossby aux moyennes latitudes (McIntyre, 1993 [116]; Polvani et Plumb, 1992 [136]; Postel et Hichman, 1999 [137]). Suite aux déferlements les langues d'air déformées sur les isentropes se trouvent étirées irréversiblement. Elles peuvent s'étendre méridionalement sur plusieurs milliers de kilomètres, avec des largeurs inférieures à 200km. Par contre, ces filaments peuvent avoir une extension verticale importante, permettant des intrusions stratosphériques profondes dans la troposphère (e.g. Stohl et Trickl, 1999 [168]) pouvant entraîner de forts vents de surface et développer des perturbations intenses (Browning et Reynolds, 1994 [32]; Goering et al., 2001 [69]).

L'observation d'épisodes d'intrusions profondes, et leur reproduction dans les modèles sont nécessaires pour une bonne estimation des flux à travers la tropopause dans les modèles de chimie-transport.

### 1.3.4 Gouttes Froides et convection

Les gouttes froides sont des dépressions d'altitude formées par un méandre du courant-jet polaire qui s'est séparé du flux principal. Elles sont généralement associées à des situations de blocage. La majorité des gouttes froides sont formées l'été et peuvent durer plusieurs jours. En général, elles se forment quand le courant jet ondule avec un thalweg qui s'étire méridionalement. Comme le système est dissocié du flux principal, cette masse d'air isolée conserve des caractéristiques de sa région polaire. Elle contient de l'air froid, un fort tourbillon potentiel, et des concentrations de gaz traces caractéristiques des hautes latitudes. Les gouttes froides sont issues des mécanismes de transport et déformation horizontaux et donc potentiellement importantes pour les STE. Elles peuvent aussi déclencher des systèmes convectifs de grande échelle (ie des fronts froids secondaires avec présence de systèmes convectifs de méso-échelle).

Au dessus des tours convectives, (lieux des fortes ascendances nuageuses) des overshoots peuvent éventuellement déformer ou passer à travers la tropopause, induisant du transport de la troposphère vers la stratosphère. Ceci peut éventuellement éroder la tropopause, créant une région d'air troposphérique et stratosphérique mélangée verticalement. De façon radiative, la tropopause peut ensuite se recréer à une altitude plus grande, au-dessus de la zone de mélange, et interrompre ainsi l'échange de la stratosphère vers la troposphère.

### 1.3.5 Echanges dans les anticyclones

Dans un anticyclone à l'échelle synoptique, la stabilité statique est plus importante dans la troposphère, ce qui supprime les événements de convection profonde au centre des anticyclones. Les phénomènes radiatifs sont donc les processus diabatiques principaux dans ces situations d'anticyclone. Wirth (1994) [187] montre que les effets radiatifs dans un anticyclone peuvent constituer un processus important pour le transfert de masse de la troposphère vers la stratosphère. L'anomalie positive de température dans la troposphère associée à l'anticyclone induit un réchauffement radiatif au niveau de la tropopause. Ce réchauffement crée un flux net de la troposphère vers la stratosphère (Zierl and Wirth, 1997 [191]). Cette échange TST reste cependant dans les basses couches de la stratosphère.

### 1.3.6 Echanges dans les dépressions

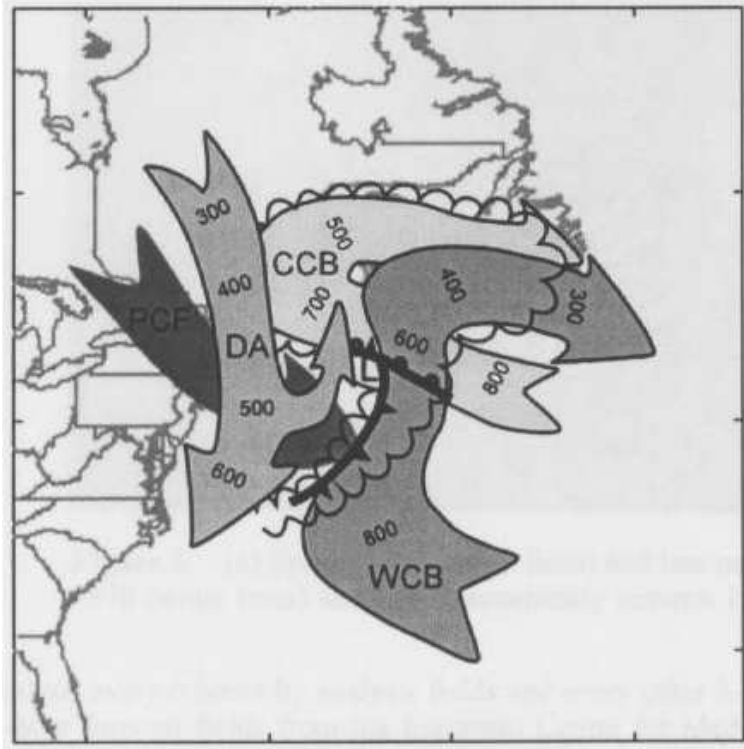


FIG. 1.2 – Schéma des flux isentropes dans une dépression à maturité aux moyennes latitudes, figurant la Cold Conveyor Belt (CCB), le Warm Conveyor Belt (WCB), et la Dry Air Intrusion (DA) avec les niveaux de pressions correspondants en hPa. Les fronts de surface chaud, froid et occlus sont représentés avec les symboles standards. Les nuages formés par les CCB et WCB sont aussi représentés. D’après Carlson, (1980) [35]; Bader et al., (1995) [19]; Cooper et al., (1998 [39], 2001 [41]).

Les foliations de tropopause font partie intégrante du courant d’air sec ou Dry Airstream en anglais (DA) des dépressions des moyennes latitudes (Reed, 1955 [146]; Browning, 1997 [1]; Carlson, 1998 [121]). Le DA est un courant cohérent qui descend de l’UTLS sur le côté polaire de la dépression extratropicale. Cette descente se produit de manière isentropique dans la moyenne et basse troposphère, à l’Ouest du front froid de surface. Ce mouvement se fait généralement dans une direction équatoriale, bien que des portions peuvent être advectées vers le pôle dans la même direction que la ceinture de transport d’air chaud de la dépression ou Warm Conveyor Belt (WCB). L’occurrence moyenne du transport STT dans les DA est documentée par Johnson and Viezee (1981) [18] qui ont détecté les intrusions d’ozone stratosphérique associées à chaque thalweg d’altitude observé au-dessus du centre des Etats-Unis au Printemps et Automne 1978. De façon similaire, les intrusions d’ozone stratosphérique sont hautement caractéristiques des courants DA durant la campagne AEROCE (Cooper et al., 1998 [39]). La relation entre foliation de tropopause

et courant DA a été étudiée par Cooper et al. (2001 [41], 2002a [140], 2002b [40]). Dans cette étude, l'analyse de la composition en gaz traces (cf figure 1.2) des courants DA et autres courants caractéristiques (WCB, CCB) a permis l'élaboration d'un modèle conceptuel procurant la signature typique des dépressions des moyennes latitudes. La foliation de tropopause est alors la partie du front d'altitude qui conduit à un transport de la stratosphère vers la troposphère. Le courant d'air sec provient de la zone UTLS et subsiste au Nord-Ouest de la dépression, généralement derrière le front froid de surface. Il englobe généralement la foliation de tropopause.

Le transport dans la branche principale ascendante d'une dépression extratropicale, le Warm Conveyor Belt (Browning, 1990 [30]), a été récemment caractérisé comme étant le principal mécanisme de transport de la couche limite vers la haute troposphère aux moyennes latitudes (Stohl, 2001 [163]; Cooper et al., 2001 [41]).

Des études récentes ont montré que les courants ascendant d'air chaud peuvent constituer des éléments importants pour le transport à grande échelle de masses d'air polluées, comme par exemple le transport intercontinental de sulfures (Arnold et al., 1997 [62]), d'ozone (Stohl and Trickl, 1999 [168]), et de précurseurs d'ozone (Stohl et al., 2003b [167]). Les WCB transportent ces substances jusqu'au niveau de la tropopause et ainsi peuvent augmenter les effets de forçage radiatif de cette région.

Il existe plusieurs études de modélisation concentrées sur le transport par les circulations frontales, basées sur le schéma idéal du cycle de vie d'ondes baroclines (Wang and Shallcross, 2000 [89]; Stone et al., 1999 [54]) et sur des événements observés (Chaumerliac et al., 1992 [37]; Donnell et al., 2001 [3]). La dernière étude se focalise sur la circulation frontale rencontrée durant un vol de la campagne DCFZ (Dynamics and Chemistry around Frontal Zones). Elle montre que la circulation à grande échelle de transport advectif dans le WCB est le mécanisme principal de transport de la couche limite vers la troposphère libre. La convection et le mélange turbulent jouent un rôle significatif, mais moindre. La convection a été caractérisée comme étant le mécanisme le plus fort dans la région à l'arrière du front froid, où l'air de la couche limite est soulevé à une altitude de 3 à 4km, ce qui est nettement plus bas que par l'air transporté par le WCB.

Ce transport vertical est important pour les échanges profonds entre la couche limite et la basse stratosphère. Il amène de l'air issu de la couche limite, potentiellement pollué en Composés Volatils Organiques (COV) ou autres composés chimiques à faible durée de vie, jusqu'à la tropopause en moins d'un jour (e.g. Stohl et al., 2003 [167]). Le point de départ dans la couche limite se situe fréquemment près de zones fortement polluées (Eckhardt et al., 2004 [55]) c'est à dire préférentiellement sur la côte est des Etats-Unis, et la côte asiatique. Environ 5% de l'air des WCB entre dans la plus basse stratosphère. Néanmoins les processus qui font pénétrer de l'air du WCB dans la basse stratosphère ne sont pas encore bien compris. Une hypothèse serait que l'augmentation de PV par diabatisme se produit avec les processus radiatifs dans la zone de divergence du WCB en altitude, caractérisée par un fort gradient vertical d'humidité et par la présence de nuages (Zierl and Wirth,

1997 [191]).

Les cellules convectives dans le WCB peuvent aussi jouer un rôle significatif par un transport convectif profond dans la basse stratosphère. Ce type de transport sera discuté en détails dans la section 3 du chapitre 2.

## 1.4 Représentation du bilan chimique dans les modèles

### 1.4.1 Bilan radiatif et bilan d’ozone

L’une des motivations de cette thèse porte sur le bilan d’ozone troposphérique. Un rapport récent (European Assessment on Ozone-Climate Interactions, 2003) montre que l’incertitude actuelle sur le flux net de la stratosphère vers la troposphère aux moyennes latitudes est à l’origine d’une incertitude encore plus grande sur la fermeture du bilan d’ozone troposphérique. Celui-ci comprend trois termes :

- Le flux net stratosphérique.
- La production nette troposphérique par la photochimie.
- La déposition au sol.

Pour un ensemble représentatif de modèles actuels de chimie-transport globaux, ce rapport indique que le terme de flux stratosphérique varie d’un facteur 3, et que par suite le terme de production photochimique troposphérique varie de 70 à 600Tg  $O_3$ /an. Cette incertitude affecte considérablement la validité des interprétations menées avec ces modèles quand ils sont utilisés pour des études de sensibilité et pour des prévisions à long terme. De plus, la zone haute troposphère- basse stratosphère (UTLS en anglais) est très importante du point de vue du bilan radiatif global (Fosters and Shine, 1997 [108]). Ainsi, l’ozone qui est classé troisième gaz à effet de serre a un impact radiatif maximum sur la température de la surface terrestre quand les perturbations de son profil vertical se situent près de la tropopause (Fosters and Shine, 1997 [108]). Il est donc important d’analyser et de reproduire correctement les variations des traceurs atmosphériques comme l’ozone dans la région UTLS, tant du point de vue de la photochimie troposphérique que du point de vue du bilan radiatif.

La complexité des processus de transport à toutes les échelles de temps et d’espace rend cette tâche difficile.

### 1.4.2 Faiblesses des modèles globaux

Les simulations d’échanges STE pour la plupart des modèles et des méthodes montrent la même évolution temporelle et le même comportement géographique mais avec des amplitudes généralement différentes (jusqu’à un facteur 4), et parfois similaires. La résolution horizontale a été caractérisée comme étant une cause importante de ces différences. La diffusion numérique des modèles eulériens joue un rôle important dans la simulation de

la distribution des traceurs stratosphériques dans la troposphère. Son impact est très sensible au niveau de la tropopause où les gradients chimiques sont très prononcés. Pour simuler les processus STE et leur impact sur l'équilibre d'ozone troposphérique, on doit être capable de simuler correctement la chimie stratosphérique, le transport subsident vers la troposphère, et la distribution spatio temporelle des événements STE. Cependant, les manques de connaissances, de données empiriques, et les limitations informatiques rendent la modélisation des STE difficile.

Le traitement de la chimie stratosphérique dans les modèles globaux est connu comme étant une faiblesse de ces modèles (IPCC, 1999). De plus, le flux d'ozone stratosphérique dans la troposphère est traité dans de nombreux modèles comme une simple condition aux limites. Typiquement, une condition aux limites de Dirichlet est utilisée, c'est à dire que l'ozone et d'autres espèces chimiques sont imposés à une certaine altitude dans la stratosphère, habituellement à 10hPa (Lawrence et al., 1999 [65]). Alternativement, une condition aux limites de Neumann est utilisée, c'est à dire que le flux de masse à travers la tropopause est imposé, basé sur des observations (Wang and Jacob, 1998 [180]). Des modèles récents ont une dynamique et une chimie troposphérique et stratosphérique avec lesquels il est possible de faire des études des échanges STE (e.g. LMDz-INCA, Hauglustaine et al., 2004 [4]). Les limites des paramétrisations des processus de transport, particulièrement le transport vertical près de la tropopause où les gradients des variables dynamiques (e.g. PV) et chimiques (e.g. ozone) sont forts, augmentent les incertitudes des modélisations d'échanges STE. La limitation de la résolution en est une cause, particulièrement pour les modèles globaux. A cela il faut ajouter le manque de précision des schémas d'advection et de turbulence utilisés par ces modèles (e.g., Mahowald et al, 1997 [110]; Brasseur et al, 1999 [127]).

La description des échanges STE requiert une description réaliste des perturbations aux échelles synoptiques et méso-échelles (e.g., gouttes froides et foliations de tropopause). Les modèles numériques de prévision météorologique sont maintenant capables de simuler correctement les perturbations synoptiques. Des prévisions de temps sur une période d'une semaine dans l'hémisphère nord peuvent être faites, l'assimilation de données étant le point clé d'une bonne prévision (Bengtsson, 1999 [98]).

Les modèles à zone limitée souffrent des mêmes problèmes que les modèles globaux, mais ils requièrent des conditions aux limites sur les bords du domaine pour les variables dynamiques et chimiques, dont les valeurs peuvent causer des biais numériques. L'avantage des modèles à zone limitée est que leur meilleure résolution permet des paramétrisations de processus physiques plus détaillées (par exemple la convection et le mélange turbulent à petite échelle) ce qui induit une meilleure simulation des processus STE.

Law et al. (2000) [103] montre que la distribution d'ozone des modèles globaux peut être raisonnablement en accord avec les observations dans les régions où notre connaissance des processus dynamiques et les observations in situ sont bonnes (en Europe par exemple). Cependant, les zones où ces observations et les connaissances sont limitées réduisent la précision des résultats. Les tests des modèles globaux reproduisant les variations intra-saisonnières et inter-annuelles ne font que débiter.

Tandis qu'il existe un large éventail d'estimation du flux d'ozone dans les différents

modèles de chimie transport (IPCC, 1999), cette variabilité est encore plus large quand il s'agit d'estimations sur une période de temps donnée et une région particulière. De ce fait, il est crucial d'estimer l'aspect régional des STE pour une meilleure cohérence des résultats. Pour cela, les mesures in situ de traceurs atmosphériques sont nécessaires pour une évaluation des champs de traceurs simulés.

## 1.5 Mise en évidence des STE : Les traceurs atmosphériques

### 1.5.1 Historique

Des circulations atmosphériques secondaires ont pu être découvertes à l'aide de mesures de traceurs atmosphériques. Brewer en 1949 a mis en évidence la circulation à grande échelle qui porte son nom à partir de mesure d'hélium et de vapeur d'eau. Les théories élaborées sur les circulations atmosphériques à grande échelle ne peuvent pas être testées en laboratoire. Les traceurs atmosphériques jouent alors le rôle de traceurs lagrangiens.

Les premières estimations de flux entre la stratosphère et la troposphère ont pu être faites à l'aide (ou à cause) des résidus radioactifs des essais nucléaires stratosphériques. Durant la période comprise entre les années 1950 et 1960, une large quantité de produit radioactif fut injectée dans la stratosphère (par exemple, une multiplication par 2 de la quantité de carbone 14 en 1963). La mesure de la radioactivité en surface a montré un maximum au printemps (eg. Fry et al., 1960 [64]). Cette variation saisonnière en radioactivité pouvait être liée à un cycle saisonnier des échanges STE (eg, Staley, 1962 [49]). Danielson (1968) [45] montre que les événements baroclines tels que les foliations de tropopause agissent de façon importante sur la quantité de masse échangée. Cependant, des études statistiques plus récentes sur les gouttes froides (Price and Vaughan, 1992 [139]) et sur les foliations de tropopause (Beekmann et al., 1996 [24]) n'ont pas montré de fréquence d'observation différente au printemps, suggérant que d'autres facteurs que le nombre d'événements doivent être pris en compte pour expliquer le maximum apparent au printemps et le minimum en automne des échanges STE. Appenzeller et al. (1996) [16] montre que le flux à travers la limite haute à 380K de la basse stratosphère a un maximum en hiver, et un minimum en été.

### 1.5.2 Utilisation de l'ozone et CO en tant que traceurs atmosphériques

Malgré le fait que seulement 10% de l'ozone atmosphérique est contenu dans la troposphère libre, l'ozone a un rôle important dans la photochimie troposphérique. L'ozone est la première source des radicaux OH, produits lors de la photolyse de l'ozone par les radiations UV en présence de vapeur d'eau. OH est responsable de la destruction du monoxyde de carbone, du méthane, des NOx et des hydrocarbures dans l'atmosphère. Par l'absorption de la radiation thermique à 9.6  $\mu\text{m}$ , l'ozone joue également un rôle important dans le bilan énergétique de la troposphère. La concentration en ozone dans la troposphère est déterminée par la combinaison d'une production photochimique in situ, des proces-

sus de déposition et d'un transport venant de la stratosphère et de la couche limite. La stratosphère est caractérisée par un air sec, pauvre en CO, riche en ozone. Les intrusions stratosphériques dans la troposphère sont donc identifiables par des mesures de traceurs. Elles apparaissent dans un profil comme une couche étant sèche, riche en ozone et avec une forte stabilité statique au début du cycle de vie.

La couche limite marine est généralement pauvre en CO et ozone et riche en humidité, tandis que la couche limite continentale polluée est généralement relativement humide, riche en CO et hydrocarbure. La concentration en ozone de la couche limite polluée est très variable à cause de la position des sources, de la saison, et dépend de l'efficacité de la production photochimique et des processus de déposition.

### **Production et destruction de l'ozone stratosphérique**

L'ozone stratosphérique est principalement produit dans les régions équatoriales où le rayonnement solaire est suffisamment intense pour produire l'ozone par un mécanisme qui fait intervenir la photodissociation de l'oxygène moléculaire par le rayonnement ultraviolet solaire, suivie de la recombinaison entre les atomes d'oxygène formés et l'oxygène moléculaire. La destruction de l'ozone stratosphérique fait intervenir des catalyseurs atmosphériques tels que H, OH, NO et Cl.

La colonne totale d'ozone est maximale près des pôles, loin de sa région de production. Ceci vient du fait que la distribution spatiale et temporelle de l'ozone dans la stratosphère n'est pas simplement déterminée par l'équilibre photochimique entre sa production et sa destruction, mais surtout par la dynamique de la circulation générale qui redistribue l'ozone de l'équateur vers les pôles.

Par sa durée de vie photochimique élevée (de quelques jours à quelques mois) dans la basse stratosphère et jusqu'à 30km d'altitude, la distribution d'ozone est surtout influencée par le transport. Dans la basse stratosphère, la dynamique à l'échelle synoptique (e.g. déferlement de Rossby) et méso-échelle crée des structures laminaires vues comme des minima et maxima secondaires d'ozone sur les sondages d'ozone (Appenzeller et Holton, 1997 [15]; Lemoine, 2004 [141]). Dans la troposphère, les intrusions stratosphériques sont caractérisées par des couches riches en ozone. L'ozone est ainsi un traceur de la dynamique stratosphérique.

### **Production et destruction du CO**

Le monoxyde de carbone (CO) est formé par la combustion incomplète de combustible fossiles, bois, etc, et de processus chimique atmosphérique, comme l'oxydation d'hydrocarbures (Kanakidou and Crutzen, 1999 [92]). C'est un polluant toxique qui se trouve typiquement dans les zones urbaines fortement polluées. (Molina and Molina, 2002 [111]). Le CO est d'une importance considérable pour la chimie de l'atmosphère pour plusieurs raisons. D'une part, c'est le principal réactif aux radicaux OH, qui sont responsables de la destruction de plusieurs composés chimiques naturels ou anthropogéniques dans la troposphère. D'autre part, du fait que la réaction avec le CO est responsable de plus de la moitié de la



perte d'OH (Crutzen and Zimmermann, 1991 [43]), les changements de concentration en CO peuvent affecter considérablement les taux de mélange de constituants qui sont oxydés par les radicaux OH, par exemple le méthane. Le CO joue donc un rôle majeur dans la chimie de l'atmosphère vu qu'il contrôle le taux de radicaux OH, qui en retour détermine la capacité oxydante de l'atmosphère (e.g., Crutzen and Zimmermann, 1991 [43]). Par son influence indirecte sur le pouvoir oxydant de la troposphère, et donc sur les destructions photochimiques du méthane, le CO est qualifié de gaz à effet de serre indirect.

En plus de son rôle sur les radicaux OH, la réaction  $\text{CO} + \text{OH}$  mène à la formation de  $\text{HO}_2$  qui, dépendant de la concentration de  $\text{NO}_x$ , peut mener à la production (fort  $\text{NO}_x$ ) ou la destruction (faible  $\text{NO}_x$ ) d'ozone. Sous la condition de fortes concentrations de  $\text{NO}_x$ , cette réaction est un facteur majeur de la photochimie au sol.

A travers son rôle actif dans la chimie atmosphérique, le CO joue aussi un rôle important dans le cycle du carbone global. La plupart des composés organiques, naturels ou anthropogéniques, sont oxydés dans l'atmosphère et produisent, en passant par les molécules de CO, des molécules de  $\text{CO}_2$  stables.

A cause des fortes sources d'émission en surface et de son temps de vie photochimique, entre quelques semaines à quelques mois, le CO troposphérique possède des variabilités spatiales et temporelles très marquées.

Le CO est fréquemment utilisé comme un traceur des pollutions anthropogéniques (e.g., Derwent et al, 1998 [46] ; Parrish et al, 1998 [132] ; Stohl et al, 1999 [168] ; Stehr et al, 2002 [88]).

### 1.5.3 Techniques de mesure

La composition atmosphérique peut être estimée par deux types de mesures : in situ et à distance. Ces mesures peuvent se faire au sol ou sur des plateformes mobiles comme les trains, les bateaux, les avions et les satellites.

Les mesures à distance des concentrations chimiques sont dérivées indirectement par le changement de radiation atmosphérique qui résulte de la présence d'un composé chimique. Le capteur détecte des changements dans le spectre d'IR thermique, ou des ondes visibles et UV. Un algorithme convertit ensuite le signal radiatif en concentration, avec des erreurs sur la position et la valeur en elle-même.

Les techniques de mesure satellite sont basées sur la réception passive de la lumière solaire transmise ou diffusée, ou de la radiation thermique et micro-onde : la technique de diffusion ultraviolette, la technique d'occultation, la technique d'émission au limb, et la technique de diffusion au limb. Chaque technique induit une vue géométrique différente, ce qui requiert un algorithme d'acquisition spécifique qui convertit les mesures radiatives en paramètres atmosphériques (comme la concentration d'ozone).

Dans cette thèse, des mesures du satellite GOES canal vapeur d'eau et canal infra rouge seront présentées.

## 1.5.4 Mesures In-situ MOZAIC

### Présentation du programme

Le programme européen MOZAIC (Measurement of ozone and water vapour by airbus in-service aircraft) résulte d'une collaboration depuis 1990 entre scientifiques et industriels de l'aéronautique qui se sont associés dans le but d'évaluer l'impact subsonique sur l'atmosphère, et plus particulièrement sur l'ozone troposphérique. Il a été lancé en Janvier 1993, grâce à un financement de la Communauté Européenne, pour répondre à un besoin de mesures expérimentales, afin de valider les modèles permettant d'estimer l'impact de la flotte avionique sur la troposphère.

Pendant la première phase de MOZAIC (MOZAIC I, Janvier 1993- Juin 1996), des outils de mesures automatiques d'ozone et de vapeur d'eau ont été développés, et installés à bord de cinq Airbus A340 commerciaux. A partir d'août 1994, des mesures régulières d'ozone et de vapeur d'eau ont été réalisées à bord d'Airbus A340 commerciaux instrumentés à long rayon d'action, à une échelle spatio-temporelle quasi globale (Marenco et al., 1998 [114]). En septembre 1996, plus de 4300 vols avaient été réalisés, soit plus de 31000 heures de vols, sur la majeure partie du globe, et principalement dans le couloir Nord-Atlantique. La seconde phase MOZAIC II, a débuté en octobre 1996, et a été étendue jusqu'en septembre 1999. Son but était de continuer les mesures d'ozone et d'humidité et leur interprétation scientifique (climatologies, études d'ozone et de vapeur d'eau, étude des échanges stratosphère-troposphère, modélisation et validation), et de préparer les instruments de mesure de CO et NO<sub>y</sub>. En janvier 1999, 6000 vols supplémentaires avaient été réalisés pendant cette seconde phase, soient 42000 heures de vols. La troisième phase, MOZAIC III, a débuté en février 2000 et été soumise au 5ème programme de travail de la Communauté Européenne, avec pour buts :

1. Installer et obtenir la certification et opérer des vols avec les nouveaux instruments de mesures (CO, NO<sub>y</sub>, nouveaux systèmes d'acquisitions des mesures).
2. Continuer et étendre les études, en particulier sur la zone UTLS.
3. Valider et améliorer des modèles de transports et chimie globaux (CTM).
4. Améliorer notre connaissance sur l'impact environnemental des avions subsoniques.

Récemment (fin 2001), le CO (Nédélec et al., 2003 [125]) et les NO<sub>y</sub> (Volz-Thomas et al., 2005 [178]) se sont rajoutés à l'ozone et à la vapeur d'eau.

A ce jour, plus de 20000 vols ont été réalisés (145000 heures de vols), sur la majeure partie du globe (Europe, Amérique du Nord, Asie, Amérique du Sud, Afrique). 90% des mesures correspondent à l'altitude de vol croisière des avions, soit 9-12km. Le reste correspond aux atterrissages et décollages près des 200 villes fréquentées par les avions MOZAIC.

Le programme MOZAIC a été reconnu comme un service d'observation par l'organisation française INSU/CNRS en 1997.

MOZAIC a vite dépassé sa finalité initiale, pour s'affirmer comme un vaste programme d'observation de l'atmosphère terrestre avec pour objectif une amélioration de notre connaissance des processus physico-chimiques qui la régissent. En effet, les bilans d'ozone, de CO

et de vapeur d'eau troposphérique sont encore incertains et nécessitent un grand nombre de mesures à l'échelle globale. Les mesures in-situ sont nécessaires pour aider à la validation et à l'amélioration des modèles globaux. Les avions sont ainsi une plate-forme bien adaptée pour fournir de telles mesures. Le programme MOZAIC est actuellement le seul capable de construire une base de données étendue. Il a ainsi permis d'établir des climatologies quasi globale des distributions à grande échelle d'ozone et de vapeur d'eau (Thouret et al., 1998a [173], 1998b [172]; Helten et al., 1998 [109]; Thouret et al., 2006 [170]) des distributions verticales et temporelles en différents sites continentaux, au voisinage des aéroports (Zbinden et al., 2006 [189]). En ce sens, il s'inscrit dans un réseau d'observation global.

### Qualité des mesures

L'analyseur d'ozone est un appareil à absorption UV à double colonne (Thermo-Electron, Model 49-103). Certifié par l'EPA américaine, son temps de réponse est de 4 secondes et la concentration est automatiquement corrigée en pression et température. Les caractéristiques des mesures d'ozone sont les suivantes : limite de détection 2ppbv, précision de  $\pm[2\text{ppbv}+2\%]$ . Ceci correspond à la limite supérieure de l'erreur de mesure, et les données MOZAIC ont en fait montré de meilleures qualités. Le traitement est réalisé par le LA/CNRS.

L'analyseur de monoxyde de carbone est une amélioration d'un instrument commercial, modèle 48CTL fabriqué par Thermo Environmental Instruments. Des modifications ont été effectuées par le LA/CNRS au cours de MOZAIC :

- Mise en place d'un détecteur PbSe à IR, avec un refroidisseur à deux compartiments thermoélectriques pour maintenir la température sous 30°C.
- Pressurisation de la cellule d'absorption à 2.5bars pour accroître le rapport signal/bruit d'un facteur 2.
- La vapeur d'eau étant dans la haute troposphère sujette à interférer sur la mesure de CO à des niveaux du ppb, une membrane Nafion (Perma Pure Inc) a été installée pour assécher l'air avant la mesure.

La précision obtenue est de  $\pm[5\text{ppbv}+5\%]$ , pour un temps de réponse de 30 secondes. Le dépouillement est aussi réalisé au LA/CNRS.

La mesure de vapeur d'eau dans l'air extérieur est réalisée par un dispositif Vaisala Aerodata, associant détection de l'humidité relative et de la température, adapté par le laboratoire allemand du KFA (Jülich). De façon à augmenter la précision du capteur H<sub>2</sub>O dans les faibles gammes d'humidité relative, une calibration précise est réalisée dans un caisson de simulation au KFA, avant et après la mise en service sur avion (toutes les 500 heures de vols). Les calibrations ont montré que le capteur d'humidité était fiable pour la mesure d'humidité relative depuis le sol jusque dans la haute troposphère.

Une étude réalisée par Thouret et al. (1998) [172] a montré une grande qualité (précision, reproductibilité) des données collectées par les 5 avions MOZAIC. En effet, l'intercomparaison de mesures d'ozone entre différents avions MOZAIC et des radiosondages d'ozone (Thouret et al., 1998 [172]) a montré une grande fiabilité sur les distributions verticales (0.9

ppbv d'écart moyens entre vols différents) et horizontales, et sur les radiosondages (1ppbv d'écart sur des concentrations troposphériques). En effet la vitesse verticale de l'avion étant de 5 à 7  $m.s^{-1}$ , la résolution verticale des données est de 20 à 28m. Les profils de montée et descente des avions MOZAIC peuvent donc être considérés comme des profils verticaux d'ozone, comme le confirme l'étude de Thouret et al. (1998) [172] sur des comparaisons avec des radiosondages, notamment grâce à la grande résolution verticale des vols.

Une étude réalisée par Nédelec et al. (2003) [125] a montré également la qualité des mesures de CO.



# Chapitre 2

## Echanges stratosphère-troposphère par mélange convectif : cas d'étude d'une cyclogénèse d'été

### 2.1 Analyse du cas d'étude

#### 2.1.1 Synthèse de l'article

L'article paru à ACP (Brioude et al., 2006) [29] est inclus à la prochaine section. On en trouve ici une synthèse en français.

#### Introduction

Les échanges STE associés aux foliations de tropopause sont connus pour leur grande influence sur le bilan d'ozone troposphérique aux moyennes latitudes. La connaissance précise de ces processus de transport est d'une grande importance pour les bilans des gaz traces dans les modèles globaux de chimie-transport, car l'incertitude sur le flux net stratosphérique réduit la validité du bilan chimique d'ozone troposphérique. L'évolution de ces modèles globaux passe par une connaissance affinée des échanges STE dans les cas d'études. Une étude récente de Stevenson et al. (2006) [161] montre que l'écart type du flux stratosphérique entre différents modèles de chimie-transport reste encore grand. La reproduction de la variabilité inter-annuelle du bilan d'ozone dans la haute troposphère est particulièrement difficile pour les modèles de chimie-transport, notamment en saison d'été où le pic d'ozone dans la haute troposphère peut être la conséquence d'une accumulation d'une production photochimique et du flux stratosphérique. Le papier présenté ici porte sur un cas d'intrusion stratosphérique en été et contribue aux études limitées en nombre faites sur des observations de cette saison (Cooper et al., 2002 [40]; Beuermann et al., 2002 [26]). Des progrès récents dans les techniques d'assimilation 4D-VAR ont amélioré la qualité et la cohérence dynamique des analyses opérationnelles (Rabier et al., 2000 [142]; Mahfouf and Rabier, 2000 [113]). En conséquence, les analyses basées sur

une approche lagrangienne sont plus pertinentes que celles par interpolation objective ou celles avec un schéma 3D-VAR, car moins sujet aux problèmes d'interpolation spatiale et temporelle des paramètres dynamiques pour calculer les termes d'advection. Les progrès dans le développement d'outils lagrangiens pour diagnostiquer les échanges STE (Stohl, 2001 [163]; Wernli and Bourqui, 2003 [182]; James et al., 2003a [87], b [86]; Sprenger et al., 2003 [158]) montrent la nécessité d'études lagrangiennes sur les échanges STE pour estimer l'impact des intrusions stratosphériques sur le bilan chimique de la haute troposphère, et notamment pour distinguer les échanges irréversibles des échanges transitoires.

Cette étude présente les résultats d'une analyse lagrangienne basée sur la technique RDF (Reverse Domain Filling) dans une dépression des moyennes latitudes en été, ayant un potentiel important d'échanges STE en raison d'une structure frontale dite de "split front" (Browning and Monk, 1982 [31]). Le courant DA et le WCB de la dépression ont été échantillonnés par deux avions MOZAIC. Le premier avion a traversé une foliation de tropopause dans la basse troposphère lors de son atterrissage à New-York. Le second, en traversant la tête nuageuse et la zone de divergence en altitude de la dépression, a échantillonné de l'air du DA et du WCB.

## Présentation du cas d'étude et Méthodologie

La situation synoptique implique le développement barocline d'une dépression des moyennes latitudes en été entre le 16 et 17 Juillet 2002 le long de la côte Est des USA. Les éléments dynamiques essentiels sont un précurseur d'altitude venant du Nord du Canada et une tempête tropicale marine venant de la côte Est (Figure 2, Article). Le courant sec DA et le WCB de la dépression ont été documentés par deux avions MOZAIC.

La preuve de l'existence d'une intrusion stratosphérique dans le DA est portée par le profil vertical mesuré par le premier avion MOZAIC (Figure 4, Article). Une couche sèche et riche en ozone se situe entre 700hPa et 600 hPa. L'humidité est de quelques pourcents tandis que l'ozone atteint 100 ppbv. Ce cas d'étude est d'une importance particulière parce que les foliations de tropopause observées sous les 4km d'altitude en été ne sont pas documentées, et parce que des trajectoires en avant dans le temps initialisées dans la foliation impliquent un échange irréversible de la stratosphère vers la troposphère.

L'observation par un second avion MOZAIC (figure 5, Article) porte sur une portion entre 50°W et 56°W dans laquelle l'ozone croit continuellement de 40 à 200ppbv tandis que le CO croit de 80 à 100 ppbv. Un objectif de cette étude est d'expliquer cette corrélation positive apparente entre l'ozone et le CO. Est-elle liée à une production photochimique de l'ozone, ou est-elle due à un mélange entre de l'air stratosphérique et de l'air troposphérique? Une seconde question porte sur l'origine de la diminution soudaine d'ozone à 200ppbv dans une partie où l'avion traverse une structure stratosphérique.

Pour répondre à ces questions, une étude lagrangienne par rétro-trajectoires et la technique de reconstruction de champs (technique RDF) est employée pour comprendre les effets du transport sur la composition chimique mesurée par les avions. Les trajectoires lagrangienne sont faites à l'aide du modèle lagrangien LAGRANTO (Wernli and Davies, 1997 [183]). Nous utilisons les fichiers d'analyses et de prévisions de l'ECMWF disponibles

toutes les 3 heures. Chaque fichier possède une résolution de  $0.5^\circ$  en latitude et longitude, et 60 niveaux verticaux. L'utilisation de fichiers toutes les 3 heures associés avec une bonne résolution spatiale est essentielle pour que les trajectoires lagrangiennes soient les plus précises possible (Stohl, 1998 [162]). Pour initialiser les trajectoires le long des vols MOZAIC, les champs de vent de l'ECMWF sont interpolés linéairement en espace et en temps. Cette méthode suppose que la vitesse d'advection varie linéairement dans le temps.

Nous utilisons la technique RDF pour reconstruire des structures méso-échelle d'origine stratosphérique. La technique RDF (Sutton et al., 1994 [169]) consiste, à partir d'une grille régulière, à calculer des rétrotrajectoires sur plusieurs échéances consécutives et à remplacer la valeur d'un paramètre supposé conservatif (par exemple, le PV) de l'instant initial par celle d'une échéance choisie. En remplaçant ainsi le champ d'un paramètre issu directement de l'analyse par un champ qui tient compte des propriétés lagrangiennes du flux, on obtient une meilleure description de la structure et de la variabilité de ce paramètre à méso-échelle.

### Résultats et Discussion

La technique RDF est efficace pour identifier l'origine stratosphérique des masses d'air riches en ozone associées à la foliation de tropopause (Figure 8, Article). Cette technique montre que les dépressions d'été peuvent être associées à des transports STT profonds. La foliation est mesurée 2 fois dans son cycle de vie. Elle est mesurée une première fois dans la basse troposphère ( $O_3 \simeq 100$  ppbv ;  $CO \simeq 90$  ppbv à 650 hPa) de la partie Ouest du thalweg d'altitude, dans le courant DA de la dépression.

La méthode RDF a également permis de retrouver l'origine stratosphérique de la foliation de tropopause dans un segment de la haute troposphère ( $O_3 \simeq 200$  ppbv ;  $CO \simeq 90$  ppbv à 215 hPa) dans la zone de divergence en altitude, coté Est du thalweg (Figure 11 de l'article). Pour cela, j'ai procédé en deux étapes : (i) les rétrotrajectoires sont lancées à partir de la position de l'avion pour choisir une position d'une coupe verticale en amont du thalweg d'altitude, (ii) la technique RDF est ensuite appliquée avec les rétrotrajectoires lancées à partir de la coupe verticale choisie. Cette procédure donne une image plus claire de l'origine stratosphérique du segment que d'autres méthodes qui appliquent la technique RDF avec des rétrotrajectoires commençant le long du vol MOZAIC ou en aval du thalweg d'altitude. La raison est que la validité de la technique RDF est réduite là où la conservation du PV est incertaine, particulièrement en aval du thalweg d'altitude où les processus diabatiques accompagnant le front froid sont significatifs.

Une comparaison avec les observations de l'expérience NARE a été faite. Beaucoup plus d'ozone a été trouvé dans la foliation de tropopause comparé aux valeurs en saison d'été dans le DA de l'expérience NARE (Cooper et al., 2002 [40]), i.e. 100 ppbv contre 56 ppbv pour NARE en moyenne troposphère, et 200 ppbv contre 76 ppbv pour NARE dans la haute troposphère. La concentration de CO observée dans la foliation est comprise entre 90 et 100 ppbv, similaire aux valeurs de CO des DA données par Cooper et al. (2002).

Au regard des différentes masses d'air mesurées dans ce cas d'étude, la concentration en CO dans la foliation est (i) équivalente au niveau de CO de fond de la moyenne troposphère continentale (90–110 ppbv), (ii) plus grande que le niveau de CO typique de la



basse troposphère issu du WCB au dessus de l'Atlantique (80–90 ppbv) et (iii) plus grande que le niveau de CO typique dans la basse stratosphère ( $\leq 80$  ppbv). Un mélange turbulent en ciel clair (Shapiro, 1980) au voisinage de la foliation peut être un mécanisme possible de l'enrichissement en CO de la foliation au dessus du continent lorsqu'elle a traversé le Nord Est des USA.

La technique RDF et une trajectographie ont été utilisées pour analyser les observations chimiques dans la zone de divergence en altitude du WCB. Malgré le manque de paramétrisation des processus sous-maille (convection, turbulence, ...) un bon degré de confiance est donné aux trajectoires qui suivent la partie anticyclonique de la zone de divergence du WCB (Figure 7 de l'article). En accord avec le développement maritime de la dépression, ce courant correspond aux mesures les plus faibles d'ozone (40 ppbv) et de CO (85 ppbv) dans la haute troposphère.

Ainsi la caractérisation de l'échantillonnage successif d'Est en Ouest de l'air du WCB, pauvre en ozone et en CO, et l'air de la foliation de tropopause, riche en ozone et enrichi en CO par mélange turbulent en ciel clair au dessus du continent, explique la corrélation positive rencontrée dans la zone de divergence en altitude de la dépression par le second avion MOZAIC.

Cependant, cette méthode ne permet pas de retrouver l'origine du segment de mesure de 100km avec un fort ozone (200 ppbv) et une concentration de CO relativement faible (80 ppbv) observées sur la partie nord ouest de la dépression. Le courant décrit par les rétro-trajectoires initialisées le long du vol serait la partie cyclonique de la zone de divergence du WCB. Le processus qui enrichit en ozone cette portion dans le WCB n'est pas identifié par les techniques lagrangiennes employées.

L'analyse de ce cas d'étude a montré que la contribution des dépressions en été sur le bilan d'ozone peut fausser l'estimation que l'on a sur le bilan de production photochimique d'ozone durant cette saison. Bien que cette contribution soit plus faible qu'en hiver, son estimation est encore incertaine à cause notamment du rôle significatif que peut jouer la convection profonde en été le long des fronts sur le bilan chimique de la zone UTLS.

La suite de cette étude est d'estimer le rôle de la convection à l'aide du modèle dispersif lagrangien FLEXPART, et du modèle méso-échelle MESO-NH.

### **2.1.2 Stratosphere-Troposphere exchange in a summertime extratropical low : Analysis**

# Stratosphere-troposphere exchange in a summertime extratropical low: analysis

J. Brioude<sup>1</sup>, J.-P. Cammas<sup>1</sup>, and O. R. Cooper<sup>2</sup>

<sup>1</sup>Laboratoire d'Aérodologie, UMR5560, Observatoire Midi-Pyrénées, Toulouse, France

<sup>2</sup>Cooperative Institute for Research in Environmental Sciences (CIRES), University of Colorado/NOAA Earth System Research Laboratory, Boulder, USA

Received: 16 September 2005 – Published in Atmos. Chem. Phys. Discuss.: 29 November 2005

Revised: 28 February 2006 – Accepted: 3 May 2006 – Published: 22 June 2006

**Abstract.** Ozone and carbon monoxide measurements sampled during two commercial flights in airstreams of a summertime midlatitude cyclone are analysed with a Lagrangian-based study (backward trajectories and a Reverse Domain Filling technique) to gain a comprehensive understanding of transport effects on trace gas distributions. The study demonstrates that summertime cyclones can be associated with deep stratosphere-troposphere transport. A tropopause fold is sampled twice in its life cycle, once in the lower troposphere ( $O_3 \simeq 100$  ppbv;  $CO \simeq 90$  ppbv) in the dry airstream of the cyclone, and again in the upper troposphere ( $O_3 \simeq 200$  ppbv;  $CO \simeq 90$  ppbv) on the northern side of the large scale potential vorticity feature associated with baroclinic development. In agreement with the maritime development of the cyclone, the chemical composition of the anticyclonic portion of the warm conveyor belt outflow ( $O_3 \simeq 40$  ppbv;  $CO \simeq 85$  ppbv) corresponds to the lowest mixing ratios of both ozone and carbon monoxide in the upper tropospheric airborne observations. The uncertain degree of confidence of the Lagrangian-based technique applied to a 100 km segment of upper level airborne observations with high ozone (200 ppbv) and relatively low CO (80 ppbv) observed northwest of the cyclone prevents identification of the ozone enrichment process of air parcels embedded in the cyclonic part of the upper level outflow of the warm conveyor belt. Different hypotheses of stratosphere-troposphere exchange are discussed.

## 1 Introduction

Stratosphere-to-troposphere transport processes associated with tropopause folding are known from pioneer observational studies (e.g. Danielsen, 1968) to be major contributors to the tropospheric ozone budget at mid-latitudes. An accu-

Correspondence to: J. Brioude  
(brij@aero.obs-mip.fr)

rate knowledge of transport processes is of great importance for trace gas budgets in global chemistry-transport models (CTMs). These models are the tools used to quantify the tropospheric ozone budget and to provide information to policy makers. An updated survey of global tropospheric CTM  $O_3$  budgets (Intergovernmental Panel on Climate Change, Third Assessment Report, Chapter 4, 2001) shows that the individual components vary greatly. Large differences in the stratospheric source, from  $400 \text{ Tg}(O_3) \text{ yr}^{-1}$  (Hauglustaine et al., 1998) to  $1000 \text{ Tg}(O_3) \text{ yr}^{-1}$  (Crutzen et al., 1999), were the driving force behind whether a model calculates a chemical source or sink of tropospheric  $O_3$ . A more recent study of individual CTMs (Stevenson et al., 2005) gives tropospheric ozone budgets with an ensemble mean and standard deviation. Mean chemical production, chemical loss, surface deposition fluxes and the stratospheric source are 5060, 4560, 1010, and  $520 \text{ Tg}(O_3) \text{ yr}^{-1}$  respectively, with inter-model standard deviations of 11, 16, 22 and 38%. Still, the stratospheric source has a large standard deviation. The reproduction of the inter-annual variability of upper tropospheric (UT)  $O_3$  is a challenging task for CTMs, especially for the summer seasonal peak maximum that possibly accumulates  $O_3$  from photochemical and stratospheric sources. Improvements of modeling tools should come with further knowledge of stratosphere-troposphere exchange processes as revealed by case studies. This paper examines a stratospheric intrusion episode and contributes to the very limited number of summertime observational studies (e.g. Cooper et al., 2002; Beuermann et al., 2002). Hereafter, the general term STE will refer to stratosphere-troposphere exchange processes in both directions, while specific terms STT and TST will refer to stratosphere-to-troposphere and troposphere-to-stratosphere transport, respectively.

Recent progress in 4D-VAR assimilation techniques has enhanced the quality and the dynamical coherence of operational global-scale analyses, individually and in time series (Rabier et al., 2000; Mahfouf and Rabier, 2000). As a

**Table 1.** Sum up of the origin of each group defined in Fig. 5.

Air Mass	Origin	Degree of confidence
1, 2	Lowermost Troposphere	Good
A	Subtropical Jet	Uncertain
TF, C	Tropopause Fold	Good
B	Lower Stratosphere	Uncertain
S1, S3	Stratospheric Umbilical Cord	Good
S2	Stratospheric Upper Level Precursor	Good
3	Lowermost Troposphere	Uncertain

consequence, the relevance of Lagrangian-based analyses is less hampered by problems of spatial and temporal interpolations of analysed parameters to compute advection terms. Progress in developing Lagrangian tools to diagnose STE with modeled analyses (Stohl, 2001; Wernli and Bourqui, 2003; James et al., 2003a, b; Sprenger et al., 2003) has demonstrated the necessity to investigate air streams crossing the tropopause with regard to the impact of stratospheric intrusions on the chemistry of the upper troposphere (UT). To have a large impact on the seasonal cycle of UT O<sub>3</sub>, cross-tropopause fluxes should be associated with irreversible exchange. According to James et al. (2003b), 90% of air parcels in cross-tropopause transport may return to their initial reservoir within 6 h. A large sensitivity of such results should be expected, depending on the scales of motion described and the technique used to build modeled analyses.

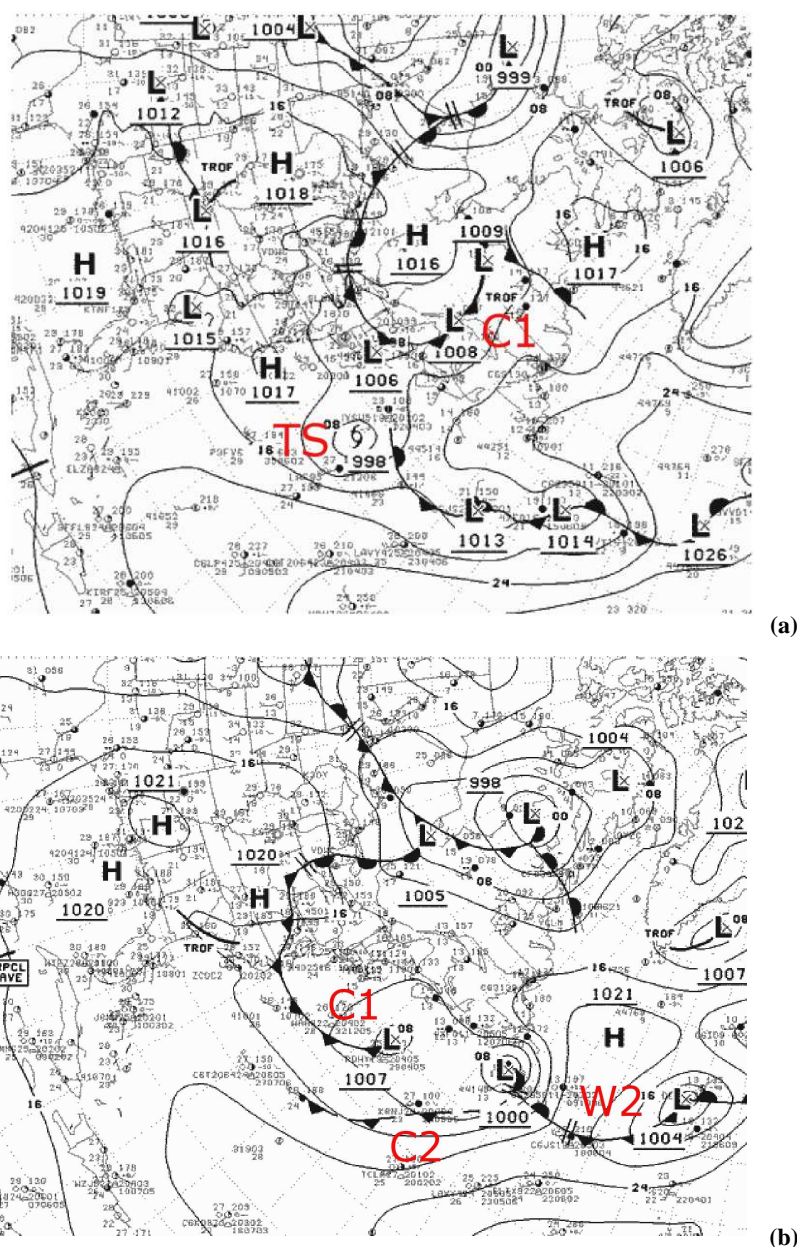
This paper presents the results of a Lagrangian-based reverse domain filling (RDF) analysis of STE among the airstreams in a midlatitude cyclone. Specifically, the cyclone developed a split cold front, a phenomenon that evolves from the classical front when dry air aloft overruns the layer of warm, moist air ahead of the surface cold front. Examples of split cold fronts are discussed in Browning and Monk (1982), Hobbs et al. (1990) and Bader et al. (1995). This combination of warm, moist air at low levels (called the shallow moist zone) and dry air aloft renders the air potentially unstable. In a trajectory analysis combined with a satellite imagery of a wintertime split front, Parrish et al. (2000) show that the instability associated with a split cold front leads to convective mixing of the boundary layer air into the dry intrusion. Bethan et al. (1998) demonstrate that well-defined chemical signatures exhibited by coherent flows in developing baroclinic waves can be used to show that interleaving of the dry intrusion and the warm conveyor belt may occur in the vicinity of the occluded front. Here, the synoptic setting involves the baroclinic development of a mid-latitude summertime cyclone on 16–17 July 2002 over the East Coast of the United States formed by an upper level disturbance coming from northern Canada and by a maritime tropical depression off-shore of the East Coast. The dry airstream (DA) and the warm conveyor belt (WCB) of the storm were sampled

by two commercial aircraft of the MOZAIC program (Measurements of Ozone, Water Vapour, Nitrogen Oxides and Carbon Monoxide by Airbus In-service Aircraft, Marengo et al., 1998 <http://www.aero.obs-mip.fr/mozaic/>). During descent to New York City the first MOZAIC aircraft transected a tropopause fold in the lower troposphere. While above northeastern Canada and heading towards Boston, the second MOZAIC aircraft flew through the cloud head and the upper level divergent outflow portion of the system and captured air masses processed by the WCB and by the DA. Section 2 presents the calculation of the backward trajectories and the RDF technique. Section 3 presents the case study of the summertime extratropical low and the aircraft measurements. Section 4 presents the Lagrangian analysis of airborne observations and details the structures of coherent airstreams in the storm. The section ends with a discussion on convective and turbulent mixing processes possibly involved in the case study. Conclusions are drawn in Sect. 5.

## 2 Method

### 2.1 Backward trajectories

We used analyses of the European Centre for Medium-Range Weather Forecasts (ECMWF) available on 60 vertical levels from the surface up to 0.01 hPa for the description of the meteorological situation, analysis of the dynamical processes and calculation of backward trajectories. The 6-hourly analyses were complemented by intermediate 3-h forecasts. Using 3-hourly wind fields with the best available resolution (about 0.5° latitude-longitude) is essential for calculating trajectories as accurately as possible (Stohl, 1998). Sequences of three-dimensional wind fields from ECMWF analyses with a 0.5° latitude-longitude grid are used for the calculation of the trajectories with the Lagrangian Analysis Tool (LAGRANTO) (Wernli and Davies, 1997). Intermediate fields, valid at 03:00 UTC and 09:00 UTC (issued from forecasts started on the analysis at 00:00 UTC) and at 15:00 UTC and 21:00 UTC (issued from forecasts started on the analysis at 12:00 UTC) are added between the 6 hourly analyses at 00:00, 06:00, 12:00, and 18:00 UTC. Archived ECMWF fields are used to characterize the physical properties of air parcels along the trajectory paths. A set of 5-day back trajectories initialized along the flight track at 1-km intervals (approximately corresponding to the spatial resolution of the MOZAIC data) was calculated. To initialize backward trajectories at the exact location and time along the aircraft path, the wind fields were interpolated linearly in space and time using the two nearest ECMWF fields. This method assumes that the advection speed of features varies linearly in time. The degree of accuracy of the wind fields in either time (a few minutes) or in space (a few tenths of a degree in latitude or longitude) may impact the interpretation. Back trajectories of air parcels for the groups defined in MOZAIC



**Fig. 1.** Surface synoptic analysis (NCEP) on: (a) 16 July 2002, 00:00 UTC; (b) 17 July 2002, 00:00 UTC. TS is for the Tropical Storm Arthur evolving to an extratropical low with cold front C2 and warm front W2. C1 is for the continental cold front that moves over Atlantic.

observations in Fig. 5 are displayed on Fig. 7. Table 1 sums up the associated origins and our degree of confidence, which will be discussed below.

## 2.2 Reverse Domain Filling

We use Lagrangian techniques to retrieve the origin of air parcels, either with back trajectories initialized along the aircraft path with the LAGRANTO model (Wernli and Davies, 1997) or applying a Reverse Domain Filling (RDF) technique to reconstruct 2-D fields of potential vorticity and other parameters. The RDF technique was used for the

first time by Sutton et al. (1994) and by Schoeberl and Newman (1995) to study the dynamics of the polar vortex and the formation of filaments along its edge. Using additional retrieved parameters like the pressure of air parcels, other recent applications of the RDF technique have focused on stratosphere-troposphere exchange (Morgenstern and Carver, 2001; Beuermann et al., 2002; Hegglin et al., 2004; D'Aulerio et al., 2005), on airstream identification (Hannan et al., 2003; Purvis et al., 2003) and on mixing processes (Methven et al., 2003). The RDF technique calculates the field at time  $t$  of an artificial conserved tracer that is

assumed to coincide with potential vorticity (calculated from ECMWF analyses at some previous time  $t - \delta t$ ). The values of the tracer are reconstructed using a set of back trajectories launched on a regular grid and here calculated with LAGRANTO. From here, potential vorticity derived from ECMWF analyses will be denoted PV and potential vorticity derived from the RDF technique will be denoted rPV. In this paper the grid resolution used is  $0.05^\circ$  in latitude and longitude and 5 hPa in the vertical. The large-scale deformation accompanying the wind fields and the non-diffusive character of the advection scheme in the trajectory model (in our case LAGRANTO uses a fourth-order Runge-Kutta scheme) reveal fine scale structures in the reconstructed PV (rPV) field. In agreement with a sensitivity study using different trajectory lengths, we choose the backward integration time  $\delta t$  equal to 30 h. It determines the degree of fine scale structure of the rPV field that correlates the best with ozone measurements in stratospheric parts of the flights. No additional useful information on the rPV field was gained with longer trajectory lengths. Results of this sensitivity study agree with Beuermann et al. (2002). The dynamical tropopause in large scale analyses, such as the ones produced by the system of the ECMWF, generally appears to vertically span a layer with PV ranging from about 2 to 4 pvu. In this paper, we imply that the tropopause demarcation is the 2 pvu surface in 2D rPV fields as an intrinsic property of the RDF technique is to tighten the potential vorticity gradient at the tropopause. At the same time, the classification of the origin of air masses is done using the 2-pvu threshold for rPV as the results are not sensitive to other values in the range 2–4 pvu.

### 3 Presentation of the case study

#### 3.1 Synoptic situation

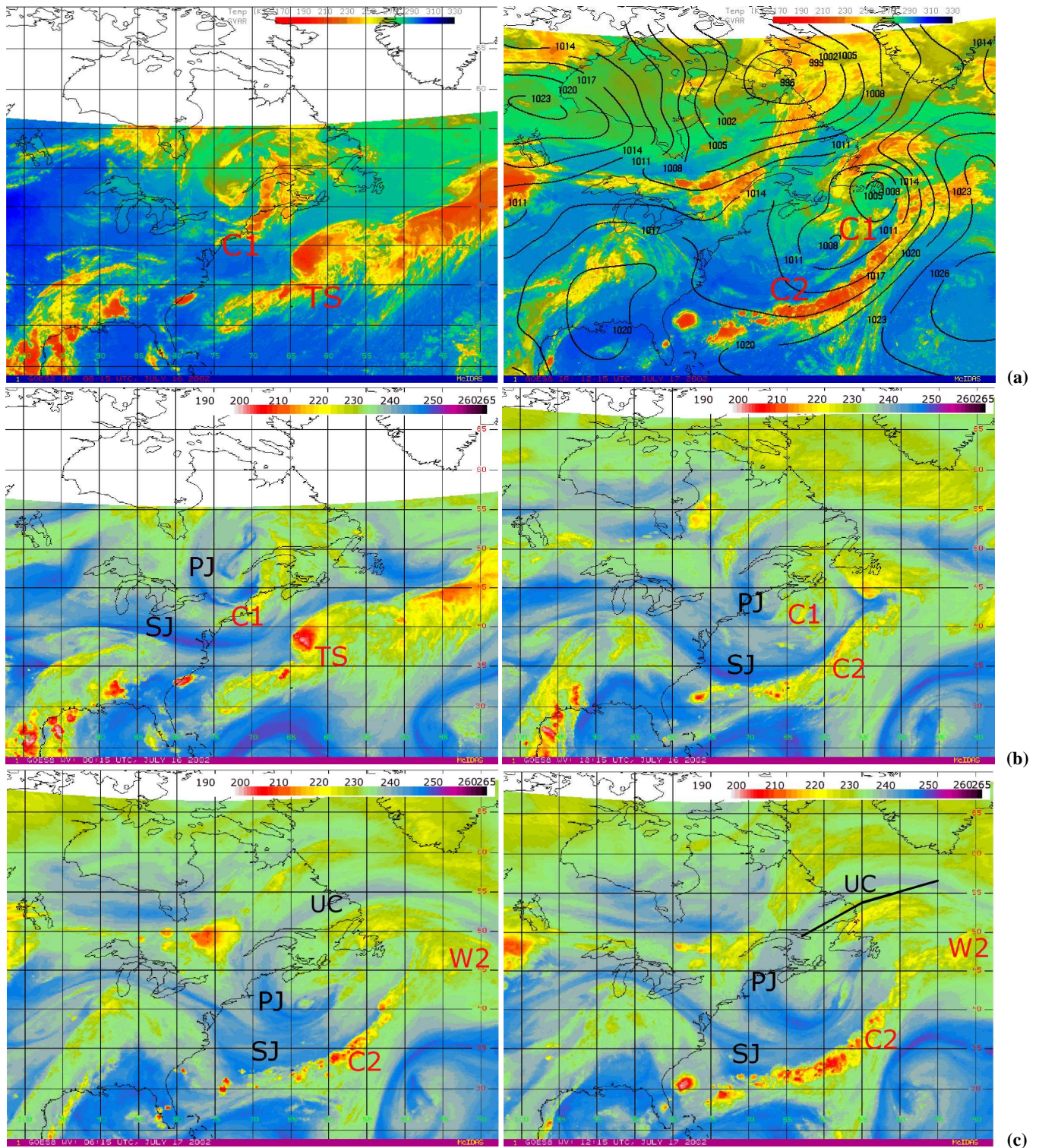
The surface synoptic situation on 16 July 2002, 00:00 UTC (Fig. 1a) involves a train of surface lows stretching across the western North Atlantic. At the southernmost position, tropical storm (TS) Arthur contains deep convective cells (Fig. 2a – left). Over the northeastern USA, a cold front (noted C1) is moving towards the east coast. On 17 July, 00:00 UTC (Fig. 1b) the TS has evolved into an extratropical low with a well-developed warm front (noted W2) and a cold front (noted C2) southeast of Newfoundland. On 17 July, 12:00 UTC (Fig. 2a – right), deep convective cells are embedded along the WCB ahead of cold front C2. East of Newfoundland, extended clouds develop over the warm front at the place where conceptual models (e.g., Carlson, 1980) indicate that the divergent outflow of the WCB rotates anticyclonically. Further northeastward over Newfoundland, other high level clouds revolve cyclonically and form a hook cloud pattern. As dry air intrusions produce a strong signal in the GOES water vapor channel at about 300–400 hPa further information on the upper level dynamics is revealed by

a sequence of water vapor images (Fig. 2b–c). Two bands of dry air with brightness temperatures in excess of 240 K, noted PJ and SJ, are associated with stratospheric air along the tropopause break on the cyclonic-shear side of the upper-level polar and subtropical jet-front systems, respectively. The PJ and SJ bands delimit upper-level potential vorticity disturbances, vertically tilted to the west of the main extratropical low, that likely trigger and govern their baroclinic development. South of Newfoundland on 16 July, 18:00 UTC (Fig. 2b – right), the SJ band overlaps the cold surface front C2, and further extends northeastwards to the north of the warm front W2 on 17 July, 12:00 UTC (Fig. 2c – right). To the south, the PJ and SJ bands merge together on 17 July, 06:00 UTC and form a broad dry airstream (DA) west of the cold front C2 in good agreement with conceptual models (Carlson, 1980, Fig. 9; Bader et al., 1995, Figs. 3.1.24 and 3.1.27b; and Cooper et al., 2001, Fig. 12). Meanwhile, the northern part of the PJ band has merged with another dry feature east of Newfoundland on 16 July, 00:00 UTC (Fig. 2b – left) leading (Fig. 2c – right) to the formation of a filament (noted UC) that cyclonically wraps up from south of Greenland to south of Newfoundland on 17 July, 12:00 UTC. Hereafter the latter filament will be termed the umbilical cord with regard to its connection to a large stratospheric reservoir over the eastern Atlantic. The overlapping of the surface cold front by the upper-level front seen on GOES WV channel was also captured by MODIS (Moderate Resolution Imaging Spectroradiometer) on board the Terra and Aqua satellites on 16 July 15:00 UTC (Fig. 3). Based on the reflective and radiative properties of small liquid water drops, snow and small ice crystals in the visible and short-wave infrared parts of the spectrum, the combination of bands 3, 6 and 7 (479 nm, 1652 nm, 2155 nm) distinguishes low level clouds (liquid water, white) from high level clouds (ice crystals, peach). Along the southern part of the cold front, the band of high level cirrus clouds piles up over the low level clouds. Northward, it narrows and reveals low level frontal clouds to the west. This indicates that the dry airstream (free of cirrus) overlaps the lower portions of the WCB and forms a shallow moist zone in the lower troposphere, like in the conceptual model of the split front described by Browning and Monk (1982). As a result, deep convective cells may be triggered in the edge of the shallow moist zone by the release of potential instability.

#### 3.2 MOZAIC observations

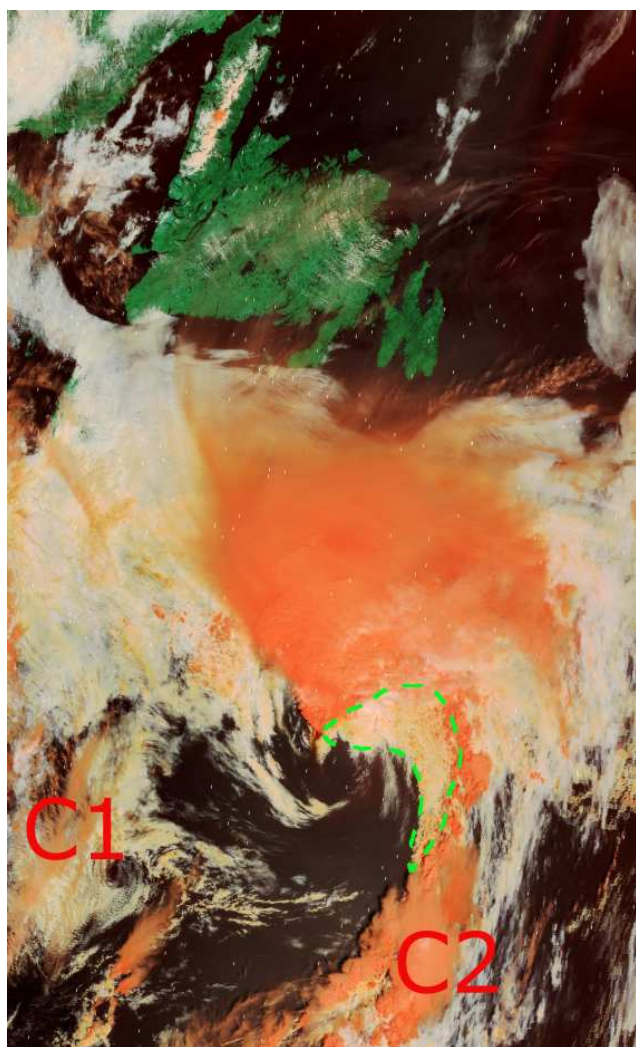
Since 1994 the MOZAIC program (Marengo et al., 1998) has equipped 5 commercial airliners with instruments to measure ozone, water vapour, and carbon monoxide (since 2001). One aircraft carries an additional instrument to measure total odd nitrogen (since 2001). Measurements are taken from take-off to landing. Based on the dual-beam UV absorption principle (Thermo-Electron, Model 49-103), the ozone measurement accuracy is estimated at  $\pm [2 \text{ ppbv} + 2\%]$  for a 4 s





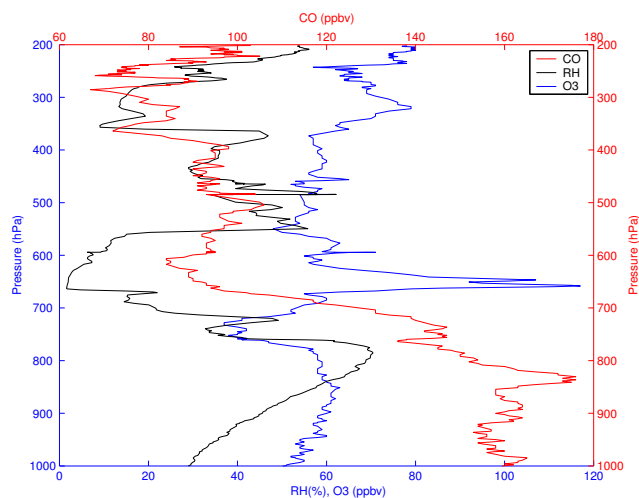
**Fig. 2.** GOES-East satellite radiance temperatures (K): **(a)** Infrared channel on 16 July 2002, 00:00 UTC (left) and 17 July, 12:00 UTC (right); **(b)** Water vapour channel on 16 July, 00:00 UTC and 18:00 UTC ; **(c)** As for (b) but on 17 July, 06:00 UTC and 12:00 UTC. The black line is the aircraft path corresponding with the time series of Fig. 5. Abbreviations are explained in the text.





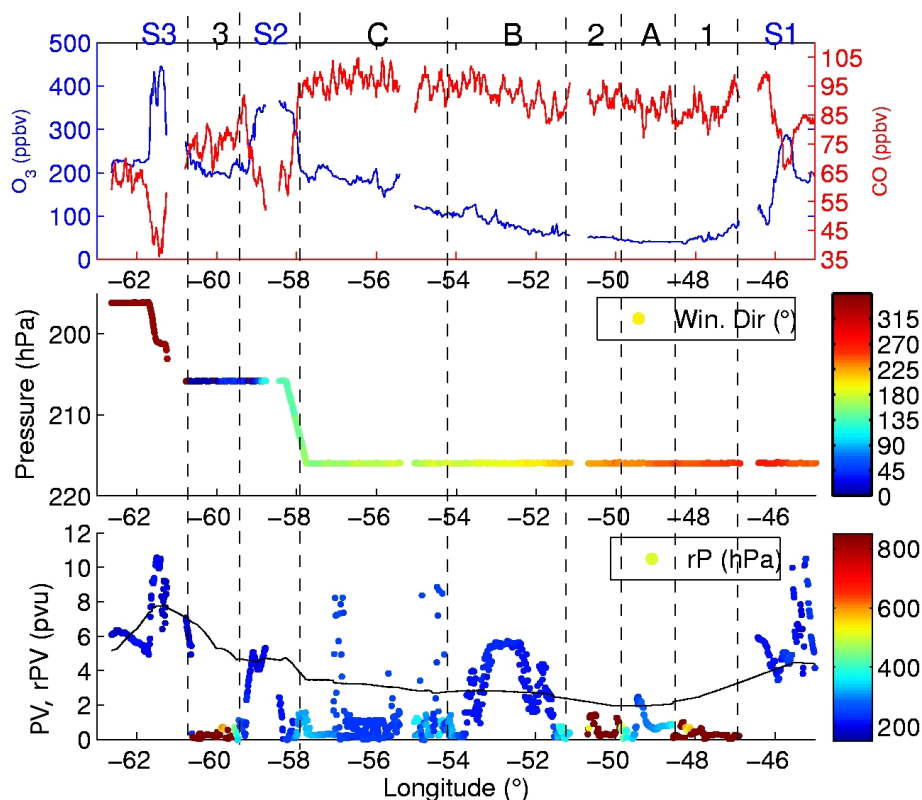
**Fig. 3.** MODIS satellite image with a combination of the bands 3, 6 and 7 on 16 July 14:50 UTC (image courtesy of MODIS Rapid Response Project at NASA/GSFC, <http://modis.gsfc.nasa.gov/>) It shows liquid water clouds (white) and ice clouds (peach). Near the developing depression along the cold front the white area, delimited by the green dashed line, indicates that dry air of the upper level front is over running a shallow moist zone, like in the conceptual model of the split front (Browning and Monk, 1982).

response time (Thouret et al., 1998). Based on an infrared analyser, the carbon monoxide measurement accuracy is estimated at  $\pm 5$  ppbv  $\pm 5\%$  (Nédélec et al., 2003) for a 30 s response time. For water vapor, a special airborne humidity sensing device is used for measuring relative humidity and temperature of the atmosphere (Helten et al., 1998). Measurements of total odd nitrogen (not used here) are described in Volz-Thomas et al. (2005). Measurements for more than 26 000 long-haul flights are recorded in the MOZAIC data base (<http://www.aero.obs-mip.fr/mozaic/>, Scientific use is free of charge). Evidence of a stratospheric intrusion in this case study is shown by anticorrelations between ozone and



**Fig. 4.** MOZAIC vertical profile of ozone (blue line, ppbv), carbone monoxide (red line, ppbv) and relative humidity (black line, %) over New-York on 16 July 2002, 18:00 UTC.

relative humidity, and between ozone and carbon monoxide, along the vertical profiles measured by a MOZAIC aircraft descending into New York City (NYC) on 16 July 2002, at about 18:00 UTC (Fig. 4). A very dry and ozone-rich layer lies between 700 hPa and 600 hPa ; relative humidity decreases to a few percent, while ozone mixing ratio exceeds 100 ppbv. Carbon monoxide is only 85–90 ppbv in this layer, the lowest values sampled between the surface and approximately 400 hPa. The tropopause fold observed over NYC forms the bottom part of the dry intrusion airstream, the upper part of which is depicted on water vapor images (Fig. 2a–b). This case study is of particular importance because tropopause folds observed below 4 km altitude during summer are not documented and because forward trajectories initialised in the fold (not shown) involve irreversible STT. Observations by a second MOZAIC aircraft flying west over the northeast Atlantic and Canada on 17 July 2002, are shown on Fig. 5 (see flightpath on Fig. 7). The comparison between PV and rPV values along the flightpath (Fig. 5c) shows that in the tropopause region the potential vorticity interpolated from the ECMWF analyses (PV) does not bring meaningful information and we will rely from here on the rPV field. The aircraft sampled three stratospheric air masses with ozone mixing ratios exceeding 200 ppbv and denoted S1 (at about  $46^\circ$  W and flight level 215 hPa), S2 (at about  $58.5^\circ$  W when ascending to the flight level 205 hPa), and S3 (at about  $61.5^\circ$  W when ascending to the flight level 195 hPa). In the three stratospheric air masses carbon monoxide mixing ratios decrease below 70 ppbv. Consistent with the tracer observations, S1, S2 and S3 are associated with typical stratospheric values of potential vorticity (i.e. rPV in excess of 2 pvu, see Fig. 5c). Of interest is the portion from group 2 ( $50^\circ$  W) to group C ( $56^\circ$  W) in which ozone mixing ratios

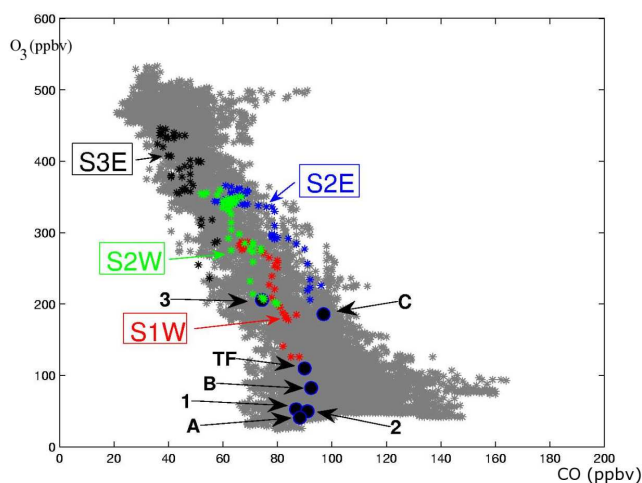


**Fig. 5.** MOZAIC measurements of flight Frankfurt-Boston on 17 July 2002, from 13:30 UTC to 15:30 UTC. The abscissa is the longitude. The flight time progresses from right to left. Aircraft path is shown in Fig. 7. (a) Ozone mixing ratio (blue line, ppbv), carbon monoxide mixing ratio (red line, ppbv). (b) Pressure level of the flight (hPa) color-coded with wind direction (degrees, colorbar). (c) Potential vorticity from the interpolation of ECMWF analyses (PV, solid line, units are pvu on left axis). Potential vorticity from the RDF technique (rPV, points, units are pvu on left axis) color-coded by pressure levels (hPa, colorbar), the backward trajectory length is 48 hours (see text for details). The three stratospheric events are denoted S1, S2, and S3. Time intervals delimited by vertical dashed lines and corresponding with the six groups of parcels discussed in the text are denoted 1, 2, 3 and A, B, C.

steadily increase from 40 to 200 ppbv while carbon monoxide also increases from 80 to 100 ppbv. An objective of the study is to explain this apparent positive correlation of ozone and carbon monoxide from groups 2 to C. Is it related to photochemical production of ozone in a polluted air mass, or to the mixing of stratospheric with tropospheric ambient air? Another puzzling feature of this set of observations is the sudden decrease of ozone down to 200 ppbv in group 3 at about 59° W while the aircraft remains at the 205 hPa level west of the S2 stratospheric-origin air mass. What could be the origin of air parcels in group 3? The wind direction measurements (Fig. 5b) show southwesterly winds at longitudes 48° W–52° W and southeasterly winds at longitudes 54° W–58° W, which confirms that the aircraft has flown along the deformation axis of the wind field from the eastern outflow region to the western hook cloud (see Figs. 2a–c – right). The southwesterly winds carry low concentrations of ozone and CO. In the latter airstream, air masses noted 1 and 2 may have been transported along the WCB and would therefore originate from the lowermost troposphere as suggested by physi-

cal properties that air parcels had after 48-hours of backward trajectory transport, i.e. rPV values below 2 pvu and pressure levels of 950 hPa (Fig. 5c). However, the higher rPV and lower pressure values along back trajectories from air mass A, imply a partial stratospheric origin. This contradiction between measurements and trajectories shows that the accuracy of back trajectories needs to be critically examined. Southeasterly winds carry more and more O<sub>3</sub> and CO as the easterly component strengthens. Particles embedded within air masses B and C may belong to the dry airstream and may have a stratospheric origin as suggested by large rPV values for B and large variability of rPV values for C. One notes that trajectories from air mass 3 come from the lowermost troposphere with similar characteristics as group 1 and 2. But how could this air mass contain 200 ppbv of ozone? Again, this is where the validity of backward trajectories will be examined. The O<sub>3</sub>-CO scatterplot (Fig. 6) provides a characterization of the chemical composition of stratospheric and tropospheric reservoirs involved in the case study. The background (grey color) indicates all UTLS MOZAIC observations during July





**Fig. 6.** Scatterplot  $O_3/CO$  (ppbv). Grey stars represent MOZAIC measurements in the UTLS during July 2002 between  $100^\circ$  W and  $30^\circ$  W. Colored stars represent data sampled in cross-tropopause gradients on the eastern (E) and western (W) edges of stratospheric air masses S1 to S3 (Fig. 5). Air parcels for groups 1, 2, 3, A, B, C and TF are represented by black full circles.

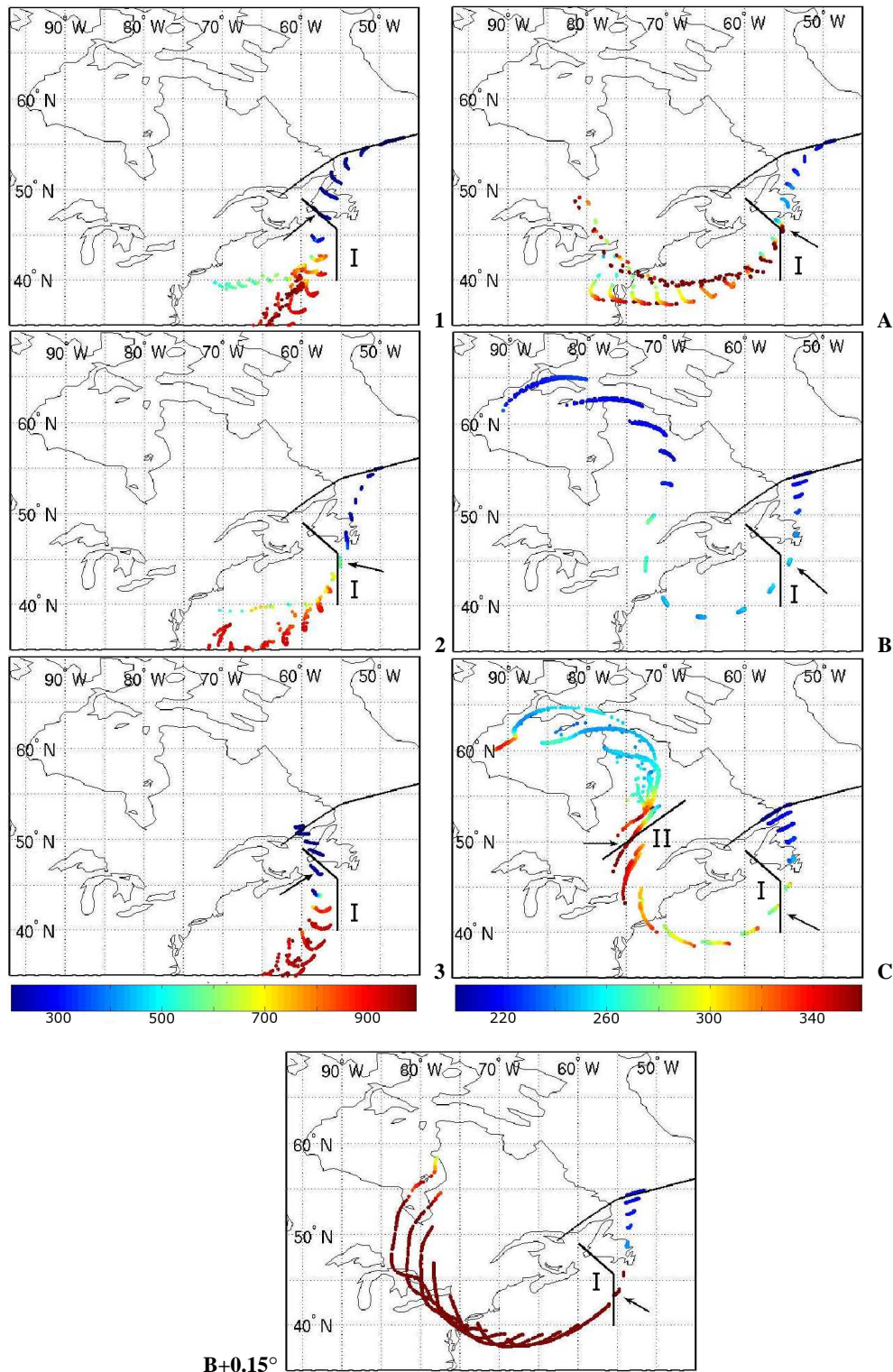
2002 between  $30^\circ$  W and  $100^\circ$  W to emphasize the envelope of the chemical composition of the UTLS in the North America/North Atlantic region. Air parcels of groups 1, 2, 3 and A, B, C of the second MOZAIC flight and of the tropopause fold (noted TF) in the first MOZAIC flight are displayed at the coordinates of their mean  $O_3$  and CO mixing ratios. Data sampled in cross-tropopause gradients on the eastern (E) and western (W) edges of stratospheric air masses S1 to S3 (colored stars) display linear mixing lines connecting the stratospheric and tropospheric reservoirs (Hoor et al., 2002). The  $O_3$ -CO scatterplot does not support the hypothesis that the aircraft is sampling a single atmospheric airmass from group 2 to group C at different levels of photochemical ozone production with CO as a precursor. Indeed, the slope of  $O_3$  versus CO between groups 2 and C is too large, about 10, i.e. one order of magnitude larger than slopes observed in pollution transport events (e.g. Parrish et al., 1998). Furthermore, the airmass would shear apart from atmospheric motion before an appreciable amount of ozone could result from the slow production from CO. The  $O_3$ -enrichment from group 2 to C is more likely due to a sequence of air masses gradually mixing with stratospheric-origin air while the background value of CO slightly increases. Supporting evidence is derived from the position of the tropopause fold (TF) near the line joining groups B and C on the scatterplot. A tropospheric reservoir contains groups B, TF, marked by a gradual influence of the stratosphere towards C, with C connected to the stratospheric reservoir by the mixing line S2E. A second tropospheric reservoir involves groups 1 and 2, connected to the stratosphere by the mixing lines S1W and S2W. With the position of group 3 along these lines, we suggest that group 3

is a mixture of air from the stratosphere and the second tropospheric reservoir. MOZAIC observations (Figs. 4 and 5) in the outflow region of this extratropical low challenge our basic knowledge of the composition of principal airstreams associated with summer cyclogenesis and of the possible impact of stratosphere-troposphere exchange processes in this season. It will be interesting to see how results of this study agree with the seasonal composition of airstreams observed by Cooper et al. (2002) in the NARE experiment.

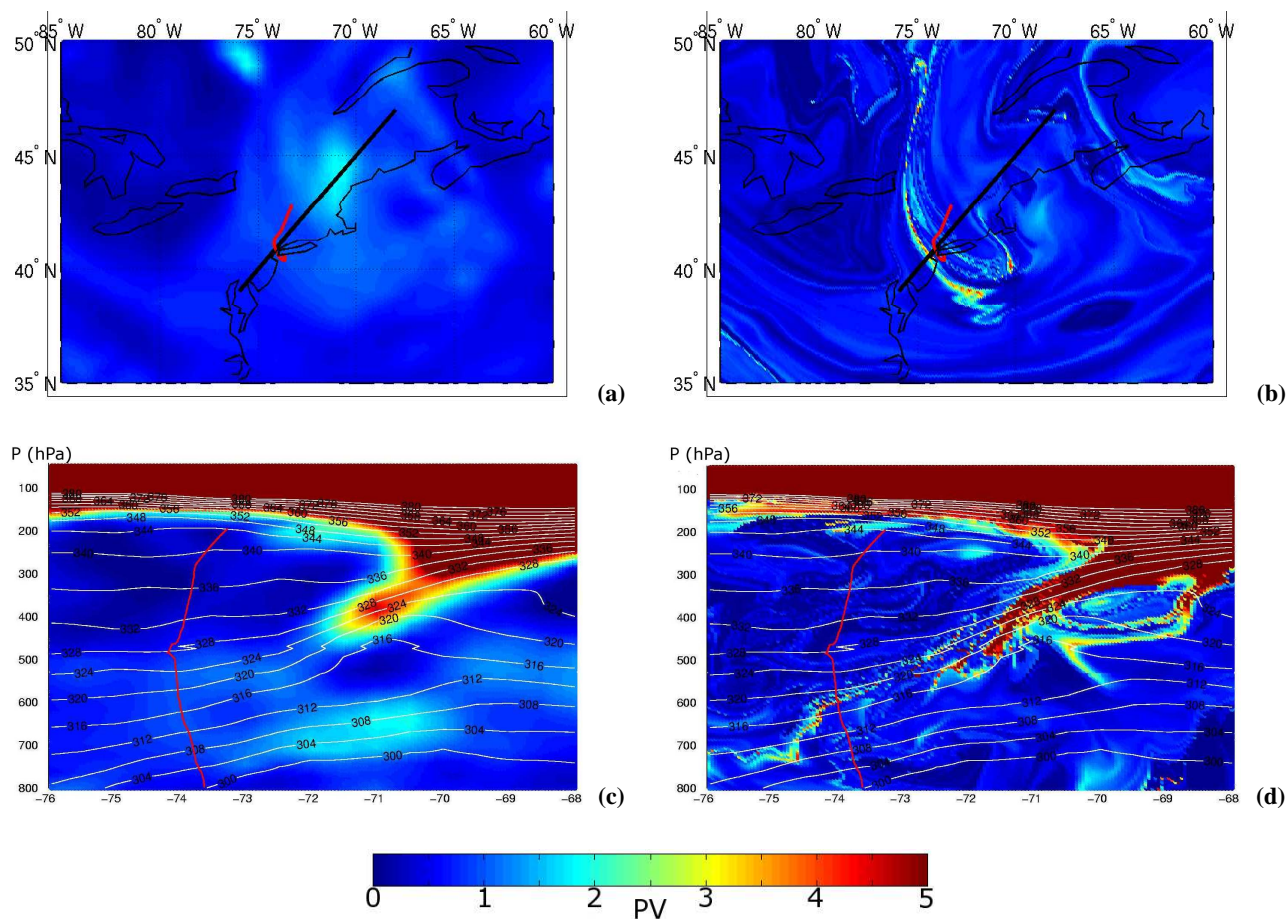
## 4 Results

### 4.1 Lagrangian analysis

According to 72-hours backward trajectories, most air parcels in groups 1 and 2 come from the lowermost troposphere at about 950 hPa over the western North Atlantic (Fig. 7). Ten-day backward trajectories for these groups show that air parcels were moving south of the Azores high along the easterly trade winds. Both ozone and carbon monoxide are known to exhibit low mixing ratios for such specific origins in the maritime lowermost troposphere during summer (McMillan et al., 1997). Air parcels of group 1 and 2 then travel along the WCB ahead of the cold front of the maritime cyclone, rapidly rise into the upper troposphere south of Newfoundland (between 15:00 UTC and 18:00 UTC on 16 July), and finally diverge in the outflow region aloft. Groups 1 and 2 follow the anticyclonic upper level flow to join the eastern part of the aircraft path. Group 3 has a similar origin in the lowermost troposphere, but it follows the cyclonic upper level flow to join the western part of the aircraft path. However, the lack of evidence of stratospheric influence in the origin of group 3, which would be suitable to high ozone measurements, weakens the degree of confidence in backward trajectories of this group. A weak degree of confidence also applies for backward trajectories from group A located between groups 1 and 2. All three groups have very similar ozone and CO mixing ratios but the backward trajectories show group A has a source region along the subtropical jet (see Sect. 3.1 and Fig. 2b) with rPV values reaching as high as 2 pvu (Fig. 5) which indicates some stratospheric influence. Yet the ozone values are no higher than in Groups 1 and 2. Air parcels of group C travel around an upper level high over Hudson Bay in the lowermost stratosphere (above 250 hPa, rPV values in excess of 4 pvu, not shown). Then, they enter the flow associated with the upper level disturbance seen on water-vapour channel images (Fig. 2) and take a cyclonic curved trajectory from NYC to Newfoundland. The air parcels subside below 300 hPa during transport from the high to the trough and then converge as they are pulled into the upper level frontogenesis on the western part of upper level disturbances. On the eastern side of the trough, air parcels ascend and diverge before reaching the aircraft path at 215 hPa. Their association with tropopause



**Fig. 7.** 72-h backward trajectories of air parcels in groups of Fig. 5. Positions of air parcels are reported every 3 h from the aircraft path (black line north of New-Ffoundland) and are color-coded with the pressure level (hPa, colorbar). Other black lines mark vertical cross sections presented in Figs. 11 and 12. The black line I composed of two segments south of New-Foudnland is the vertical cross section displayed on Fig. 12. The black line II over Canada across positions of air parcels of the group C is the vertical cross section displayed on Fig. 11. Black arrows show positions of air parcels at the time when they are the closest to the vertical cross section of Fig. 12.



**Fig. 8.** Potential Vorticity (pV, colorbar) field on 16 July, 18:00 UTC: (a) at 650 hPa from the ECMWF analysis, (b) at 650 hPa from the RDF technique, (c) in vertical cross section from the ECMWF analysis (abscissa is longitude in degrees), (d) in vertical cross section from the RDF technique (abscissa is longitude in degrees). The black line in (a) and (b) marks the vertical cross section. The red line in all panels displays the MOZAIC aircraft path when landing to New-York. White lines on vertical cross-sections are potential temperature contours from the ECMWF analysis.

folding will be discussed in the following section. Notably, the RDF technique will be used to reconstruct the PV field in the vertical cross-section displayed northeast of the Great Lakes when air parcels of group C have the strongest descent rate. The reconstructed PV field will be interpreted with regard to the observation of the tropopause fold over NYC (Fig. 4). Air parcels of group B have similar dynamics to group C, but with a stronger stratospheric origin that does not match the moderate ozone mixing ratio observed in group B (about 100 ppbv) if compared to group C (about 200 ppbv). A strong sensitivity to the initialization of air parcel trajectories has been found for group B. An example is shown on Fig. 7-B and -B+0.15° which compares backward trajectories of group B and of group B shifted northward of 0.15° latitude, respectively. Such an error of position is small compared to the grid resolution (0.5°) of the analyses and much smaller than the distance representative of observations used to transform the guess field into the analysis field. Yet, B+0.15° backward trajectories no longer share the same dy-

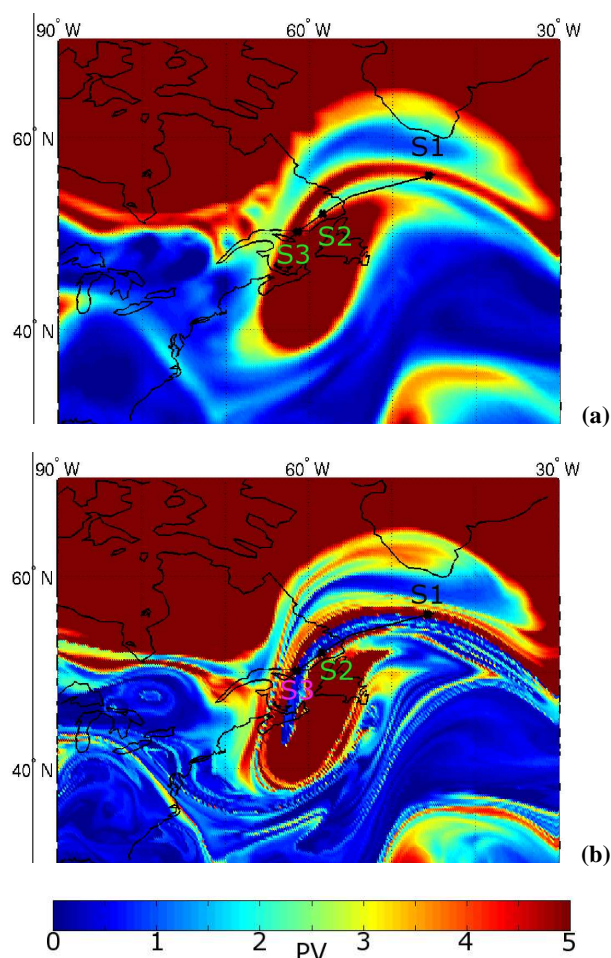
namics, they originate from the upper troposphere with lower rPV values (not shown) in the region south of Hudson Bay. As confirmed in the following section, the history of B+0.15° air parcels is more consistent than the B air parcels with regard to their moderate ozone mixing ratio.

#### 4.2 Reconstructed potential vorticity structures

The RDF technique is first applied to the tropopause fold observed over NYC at about 650 hPa (Fig. 4). PV and rPV fields are displayed at 650 hPa and in a vertical cross-section across the tropopause fold (Fig. 8). The 650-hPa PV field (Fig. 8a) does not show any feature of interest in the vicinity of the aircraft path. In contrast, the 650-hPa rPV field (Fig. 8b) shows a fine-scale filament of high values (in excess of 2 pV) close to the aircraft path near NYC, and corresponding to the lower part of the tropopause fold. The vertical cross section of PV (Fig. 8c) outlines a typical structure of a tropopause fold above 400 hPa. However, the fold does not extend down to the level of the descending aircraft

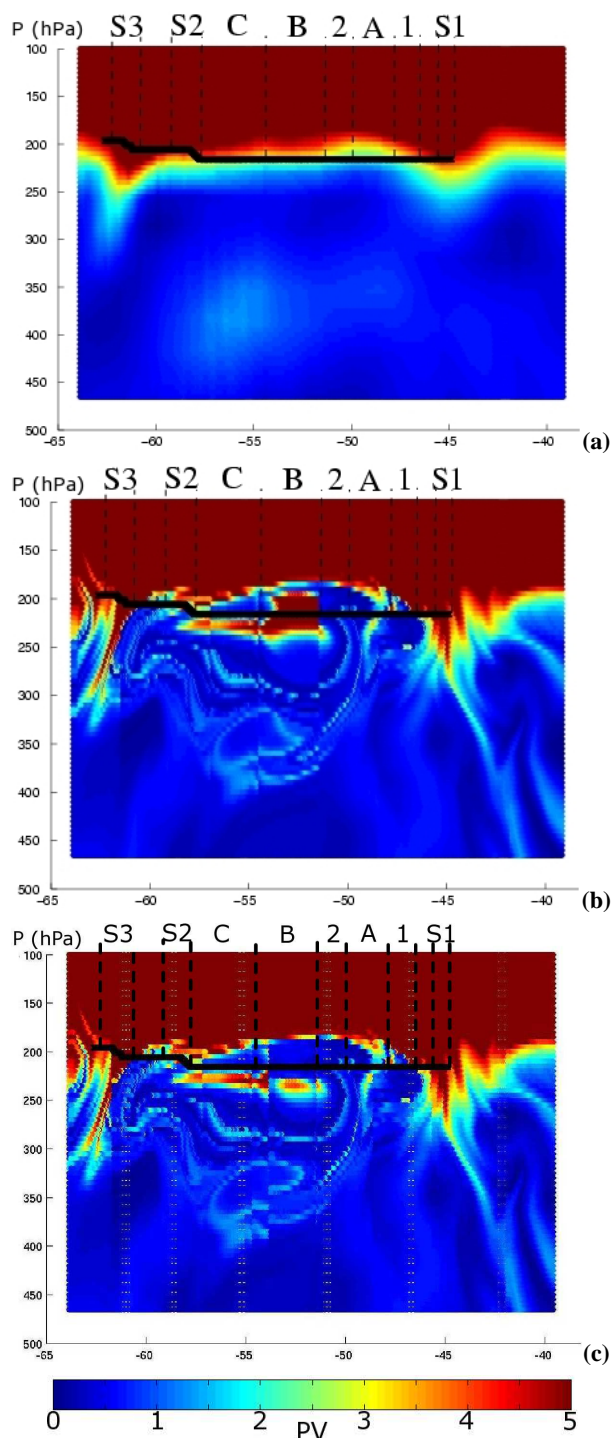


path. In contrast, the rPV field (Fig. 8d) extends the stratospheric intrusion roughly along isentropic surfaces down to the aircraft path at 650 hPa. The RDF technique is therefore able to trace back the stratospheric origin of ozone-rich air parcels observed by the MOZAIC aircraft in the lower troposphere. The circumstances of the case study are interesting because forward trajectories of air parcels initialized in the fold do not return to the stratosphere (not shown), i.e. the transport from stratosphere to troposphere in this case is irreversible. With regard to the observations by the second MOZAIC aircraft, Fig. 9a shows the PV field interpolated to the flight level pressure (215 hPa) and to the beginning of the MOZAIC measurements (14:00 UTC). The upper-level disturbance associated with the cyclogenesis is clearly visible over Nova Scotia and Newfoundland. This disturbance is linked to the stratospheric reservoir further east by an umbilical cord of high PV (Hoskins et al., 1985). The convex shape of the umbilical cord follows the leading edge of the divergent outflow (see Fig. 2a – right) associated with strong latent heat release above the warm front. Stratospheric ozone maxima S1 and S3 (Fig. 5) correspond to the crossings of the umbilical cord over the Atlantic and Canada, respectively. Between S1 and S3, the aircraft follows the northern edge of the upper level disturbance and samples the second stratospheric ozone maximum S2 during the ascent from 215 hPa to 205 hPa. Figure 9a suggests that the relative ozone minimum observed in group 3 is associated with the western tip of the band of relatively low PV values ( $\leq 2.5$  pvu) located between the umbilical cord and the upper level disturbance. The rPV field (Fig. 9b) displays comparable large-scale structures, but two fine-scale features of interest have emerged. First, the band of air situated between the umbilical cord and the upper level disturbance has a clear tropospheric origin with low rPV values ( $\leq 0.5$  pvu) and extends further south towards Nova Scotia. This result is comparable to the conclusion drawn from individual backward trajectories associated with group 3 that we granted a weak degree of confidence. However, the GOES water vapor image on 17 July, 12:00 UTC (Fig. 2c) indicates that this air-band is relatively moist, which still allows a tropospheric contribution for group 3 to exist. The second small-scale structure of interest is the considerably modified northern part of the upper level disturbance along the aircraft path. A fine scale filament of high rPV appears just south of the aircraft path and is separated from the main body of the upper level disturbance. With the RDF technique, the steady increase of ozone from group B to C (Fig. 5) is attributed to the proximity of the aircraft path to a fine scale rPV filament rather than its proximity to the northern gradient of potential vorticity of the main upper level disturbance as indicated by the ECMWF analysis. S2 coincides with the ascent of the aircraft into the western tip of the fine-scale rPV filament. Below we show that the fine scale filament of rPV belongs to the tropopause fold captured at an earlier point in its life cycle by the first MOZAIC aircraft over NYC.

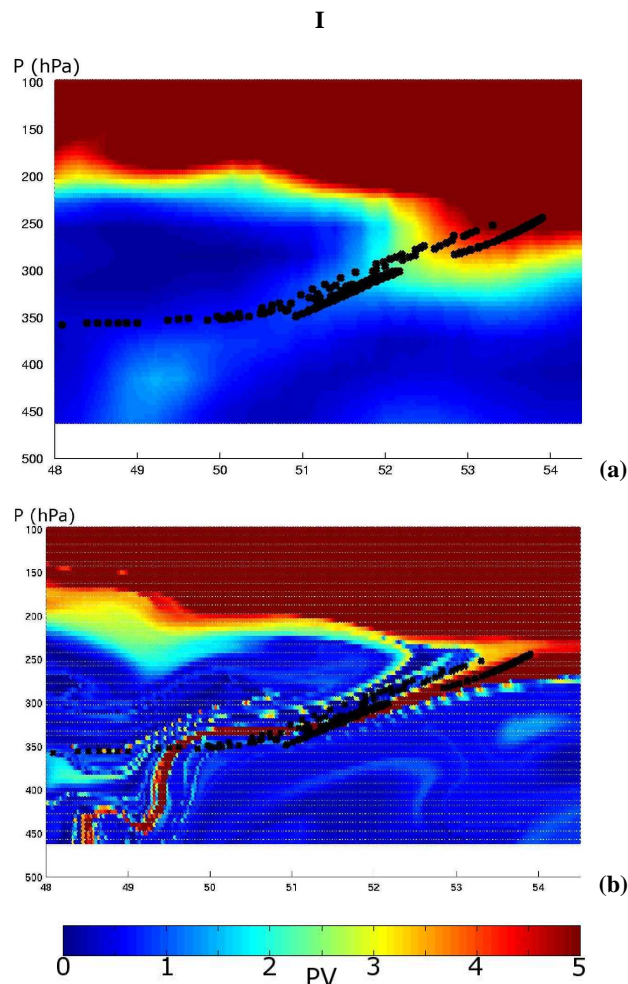


**Fig. 9.** Potential Vorticity (pvu, colorbar) field on 17 July, 14:00 UTC at 215 hPa: **(a)** interpolated from ECMWF fields valid at 12:00 UTC and 15:00 UTC, **(b)** reconstructed with the RDF technique (integration time 30 hours). The black line is the aircraft path corresponding with the time series of Fig. 5. S1, S2, S3 are stratospheric ozone maxima observed on Fig. 5. The pressure level coincides with the aircraft flight level at the beginning of the time series.

The structure of PV and rPV fields in a vertical cross-section phased in time with the aircraft motion is now examined. Figure 10a shows that aircraft path is very close to the dynamical tropopause (2–3 pvu) and that the tropopause is locally depressed along the umbilical cord in S1 and S3. The rPV structure (Fig. 10b) differs considerably with regard to mesoscale features. The tropopause is far above the aircraft in the middle part of the cross section. The umbilical cord in S1 and S3 has a rich structure with folds reaching down to 350 hPa. An upper tropospheric rPV anomaly appears below the elevated tropopause, with the aircraft crossing it in region B and flying above it in region C. The sandwich of air masses coming from the subtropical jet (group A) and from the lowest troposphere (groups 1 and 2) is reconstructed as well. The vertical rPV structure in the vicinity of groups 3 and



**Fig. 10.** Potential Vorticity (pV, colorbar) in the vertical cross section along the aircraft path on 17 July, 14:00 UTC: (a) with spatial and temporal interpolation of ECMWF fields, (b) with the RDF technique (integration time 30 h), (c) same as (b) but for latitudes of air parcels in group B moved  $0.15^\circ$  further north. Abscissa is longitude in degrees. The black line is the aircraft path. Labels are indicated for some groups of air parcels identified in Fig. 5, group 3 is in-between groups S2 and S3.



**Fig. 11.** Potential Vorticity (pV, colorbar) in the vertical cross section I along the tracks of air parcels of group C on 16 July, 03:00 UTC (see Fig. 7 for location): (a) with spatial and temporal interpolation of ECMWF fields, (b) with the RDF technique (integration time 30 h), Abscissa is latitude in degrees. Black points mark air parcel of group C.

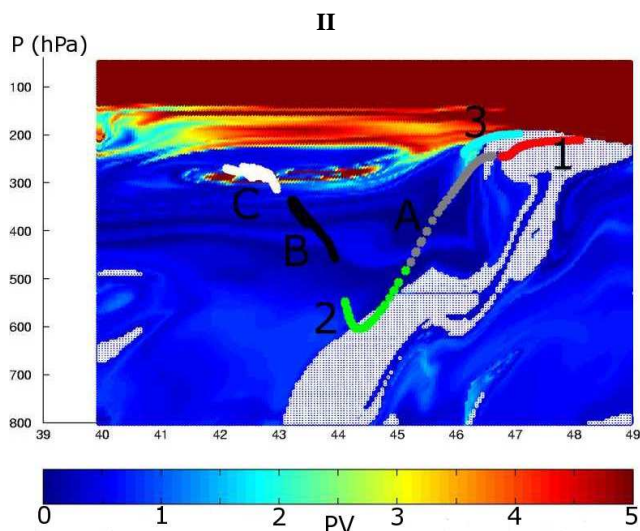
S3 mirrors the one described in the regions of groups 1 and S1. This symmetry adds credit to the scenario of the common formation of these mesoscale structures by deformation in the outflow region. Like for Fig. 5 there is an inconsistency between the moderate ozone mixing ratio sampled in group B (about 100 ppbv) and the high rPV values retrieved with back trajectories. As previously detailed (see Sect. 4.1), the strongest sensitivity to interpolation uncertainties using back trajectories has been found for air parcels in group B. A modified vertical rPV structure taking into account this sensitivity for group B is calculated by starting back trajectories on the two-dimensional longitudinal band taken by group B on new gridpoints shifted  $0.15^\circ$  further north, as was done for back trajectories along the aircraft path (see Fig. 7). As expected, this results (Fig. 10c) in the suppression of the rPV anomaly visible in Fig. 10b in region B near the flight level.



The new rPV structure now extends all along the segment from group B to S2 just below the aircraft. Therefore, the major difference of interpretation brought by the RDF technique comparing Figs. 10a and c is that the steady increase of ozone mixing ratio in regions B and C should be associated with the decreasing distance between the aircraft path and the rPV structure below, rather than the vertical vicinity of the lower stratosphere above. A proof that the rPV structure just below the aircraft in regions B and C is associated with the tropopause fold is now given by looking at the history of air parcels of group C. The structure of the rPV is examined in a vertical cross section at a date when the tropopause folding occurred and at a location where air parcels of group C are present. As discussed with Fig. 7, air parcels of group C experience confluence and subsidence before entering the circulation associated with the polar upper level disturbance. The location of the vertical cross section is chosen along the vertical line drawn on Fig. 7 (see plot for group C) at the beginning of this time period of upper level frontogenesis, on 16 July, 03:00 UTC, i.e. 36 h before interception by the aircraft. Rather than being exactly parallel to the track of air parcels of group C, the orientation of the vertical cross section is chosen to be transverse to the synoptic flow to be consistent with classical two-dimensional views of tropopause folds. We proceed with a two step process: (i) back trajectories starting from the aircraft path are used to choose the location of the vertical cross section upstream of the upper level trough, (ii) the RDF technique is applied with back trajectories starting from the chosen vertical cross section. This procedure gives a much clearer picture of the stratospheric origin of group C than other methods that apply the RDF technique with back trajectories starting from the aircraft path or downstream of the upper level trough (not shown). The reason is that the reliability of the RDF technique deteriorates where potential vorticity conservation is uncertain, especially downstream of the upper level trough where cloud diabatic processes accompanying the front are significant. Application of the RDF technique in this vertical cross section involves 30-h back trajectories which puts the retrieval date of the rPV at 14 July, 21:00 UTC, i.e. 66 h before sampling by the aircraft. With the vertical PV structure interpolated with ECMWF fields (Fig. 11a), the overall structure of a tropopause fold where air parcels of group C are embedded is distinguishable. The rPV field (Fig. 11b) identifies the tropopause fold much better and indicates that it could be much thinner than displayed by the ECMWF field. Most air parcels of group C are embedded in the fold, the other being in the vicinity of the fold or in the dry airstream.

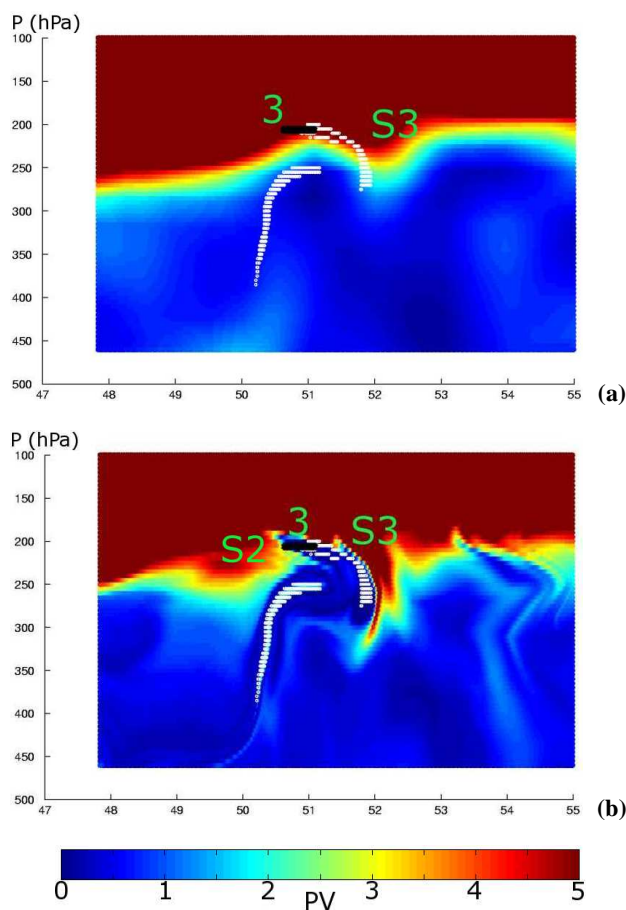
### 4.3 Discussion

MOZAIC measurements over NYC and at cruise level over Canada (Figs. 4 and 5) show that the tropopause fold (groups TF and C) contains large mixing ratios of ozone (160–200 ppbv) and relatively large CO mixing ratios (90–



**Fig. 12.** Reconstructed Potential Vorticity (pV, colorbar) in the vertical cross section II displayed on Fig. 7 on 16 July, 21:00 UTC. Abscissa is latitude in degrees. The white shaded region shows air parcels that come from the lower troposphere (pressure larger than 800 hPa) 30 h ago. Colored points identify different groups of air parcels: group 1 in red, group A in grey, group 2 in green, group B in black, group C in white, and group 3 in cyan.

110 ppbv) in comparison with lowermost tropospheric origin air masses (groups 1 and 2) with low ozone mixing ratios (40–50 ppbv) and relatively low CO mixing ratios (80–90 ppbv). The RDF technique has individually identified all these airmasses in the deformation field of the outflow region. It implies that the part of the tropopause fold that has been observed (air parcels of group C) has not yet been strongly mixed with lowermost troposphere-origin air. As a consequence, the CO enrichment of the air within the tropopause fold could have occurred over North America where the upper tropospheric CO background is enhanced by surface emissions. Turbulent-scale mixing (Shapiro, 1980) in the vicinity of the fold is a possible mechanism for the CO enrichment. The large fine-scale variability of ozone mixing ratio observed in group C supports the latter hypothesis. This case study challenges meso-scale chemistry models with state-of-the-art parameterization of turbulence to reproduce the mixing of the tropopause fold with ambient upper level tropospheric air. The remaining unresolved question of the origin of the large ozone mixing ratios in air parcels of group 3 compared to groups 1 and 2 is now examined, with regard to influence from the split frontal band and from upper level turbulence. To estimate the importance of mixing processes that the fold may experience in the region downstream of the upper level trough, the RDF technique is applied in a vertical cross section (Fig. 12) where the dry intrusion comes close to the WCB (see Fig. 7 for location of the vertical cross section). The vertical cross section is not a single plane but is composed of two vertical sections in order to capture groups



**Fig. 13.** Potential Vorticity (pvu, colorbar) in a vertical cross section intercepting air parcels of groups S2, 3 and S3 (see location on Fig. 9): (a) with spatial and temporal interpolation of ECMWF fields, (b) with the RDF technique (integration time 18 h). Abscissa is latitude in degrees. The black points stand for air parcels of group 3. White shaded regions show air parcels that come from the lower troposphere (pressure larger than 800 hPa) 30 h ago.

1, 2, 3, A, B, and C. The structure of the fold is represented by the rPV filament where group C lies at about 300 hPa. The broken aspect of the fold, compared to its continuous structure on the western side of the upper level trough (Fig. 11), may be due either to failures of the RDF technique to retrieve the stratospheric origin of air parcels in some places, or to strong explicit ascending vertical velocities along the WCB implying the disruption and mixing of the fold. The fold overruns the ascending moist airstream of the WCB made visible by the envelope of air parcels with reconstructed pressures larger than 800 hPa (white area). The envelope of air processed in the WCB explicitly takes into account the transport by resolved ascending motions from ECMWF fields, but misses transport by sub-grid convective and turbulent vertical motions owing to the lack of corresponding parameterisation schemes in the LAGRANTO tool. These processes may

have a large importance with regard to mixing in this shallow moist zone where the air is potentially unstable. The analogy between Fig. 12 and the conceptual model of the split front by Browning and Monk (1982) is further investigated. The northern part of the vertical cross section (Fig. 12) captures air parcels of groups 1, 2 and 3. All these air parcels have been processed by the WCB (even if they are not all inside the white area in that particular cross-section). Groups 1 and 3 are very close to each other at this time, though a noticeable difference is that group 3 is closer to the junction of the tropopause fold to the lowermost stratosphere. With regard to the O<sub>3</sub> enrichment of group 3, a first hypothesis is that it occurred before the time at which the cross section is valid. Therefore, group 3 would have been subject to mixing with the tropopause fold by turbulence and convection along the WCB in the shallow moist zone. A second hypothesis is that the enrichment occurred after this time, when group 3 followed the cyclonic branch of the upper level outflow. In that case turbulent mixing between group 3 and either the tropopause fold or the tropopause disturbances S2 and S3 would explain the O<sub>3</sub> enrichment. In support of the latter hypothesis is the structure of the rPV field in a vertical cross section transverse to the aircraft path (Fig. 13, see location on Fig. 9). Differences between the PV and rPV structures are interpreted as signatures of mesoscale three-dimensional movements of deformation near the tropopause. Here, we use a shorter time integration (18 h) to select deformation fields associated with vertical ascent and diverging winds in the upper level outflow. The PV structure offers a smoothed view of the tropopause for which some of the lowermost troposphere-origin air parcels, (group 3), are in the lowermost stratosphere. With the rPV structure, the tropopause fits the arc-shaped print of lowermost troposphere-origin air parcels striking the southern side of the umbilical cord S3. Here, group 3 is in a tropospheric-origin air mass below the tropopause and above the S2 disturbance, reinforcing the hypothesis of ozone enrichment by turbulent mixing processes with nearby stratospheric features. Owing to the fine scale structure of the tropospheric-origin filament in which group 3 is embedded and its deep intrusion into the upper level precursor (Fig. 9), group 3 would serve as an example of irreversible TST. At this point, limitations of the trajectory analysis prevent further speculation on the two hypotheses. A third hypothesis would also be that group 3 is an aged lower stratospheric air mass that had CO mixed in several days or weeks earlier and that the trajectories are probably in error.

## 5 Conclusions

Ozone and carbon monoxide measurements sampled during two commercial flights in airstreams of a summertime mid-latitude cyclone developing over the western North Atlantic have been investigated. The cyclone presented strong

potential for stratosphere-troposphere exchange and the development of a split cold front like in the conceptual model of Browning and Monk (1982). A Lagrangian-based study based on backward trajectories, and a Reverse Domain Filling technique, has been conducted to gain a comprehensive understanding of transport effects on trace gas distributions. This technique is successfully applied to identify the stratospheric-origin of relatively high O<sub>3</sub> measurements associated with a tropopause fold. The fold is sampled twice in its life cycle. It is sampled once in the lower troposphere upstream of the upper level trough when embedded within upper level frontogenetic processes in the dry airstream of the cyclone. It is sampled again in the upper troposphere, downstream of the upper level trough on the northern side of the large scale potential vorticity feature associated with baroclinic development. Besides the irreversible character of the stratosphere-troposphere transport associated with the fold, of interest is its chemical composition. Much larger ozone mixing ratios in the tropopause fold were found compared to late summer seasonal values in dry airstreams for the NARE experiment (Cooper et al., 2002), i.e. 100 ppbv versus 56 ppbv for NARE at mid-tropospheric levels, and 200 ppbv versus 76 ppbv for NARE in the upper troposphere. CO mixing ratios observed in the fold range from 90 to 100 ppbv, similar to CO seasonal values of dry airstreams given by Cooper et al. (2002). In the larger context of other air masses sampled in the case study, CO mixing ratios in the fold are (i) equivalent to the background CO of the continental mid-troposphere (90–110 ppbv), (ii) larger than typical CO mixing ratios of lowermost troposphere-origin air in the WCB over the Atlantic (80–90 ppbv) and (iii) larger than typical CO mixing ratio in the lowermost stratosphere ( $\leq 80$  ppbv). Turbulent-scale mixing (Shapiro, 1980) in the vicinity of the fold is suggested as a possible mechanism for the CO enrichment of the stratospheric-origin air of the fold up to the continental background value when crossing northeastern America. The Lagrangian-based technique is also applied to analyse observations of the chemical composition of the outflow of the WCB. Despite the lack of a parameterisation for sub-grid scale processes (convection, turbulence, ...) a good degree of confidence is given to trajectories that follow the anticyclonic part of the upper level outflow of the WCB. In agreement with the maritime development of the cyclone, this airstream corresponds to the lowest mixing ratios of both ozone (40 ppbv) and carbon monoxide (85 ppbv) in upper tropospheric airborne observations. The Lagrangian-based technique fails to retrieve the origin of a 100-km segment of upper level airborne observations with high ozone (200 ppbv) and relatively low CO (80 ppbv) observed northwest of the cyclone. The airstream described by back trajectories initialised along this segment would be the cyclonic part of the upper level outflow of the WCB. Yet, the ozone enrichment process of such air parcels embedded in the WCB was not identified. Speculation leads to the hypothesis of ozone enrichment by mixing processes, either associated with poten-

tial instability release where the upper level front runs ahead of the cold surface front (i.e. split frontal bands), or associated with turbulent mixing near the tropopause. It could also be that the air mass in question is an aged lower stratospheric air mass that had CO mixed in several days or weeks earlier and that the trajectories are probably in error.

The potential of wintertime cyclones for stratosphere-troposphere exchange processes has long been demonstrated. This case study is of particular interest because it suggests that the contribution of summertime cyclones to the tropospheric ozone budget may confuse the assessment we have of the net chemical production in that season. Though this contribution is expected to be lesser (weaker surface lows, and less ozone in the lowermost stratosphere during summer) and located further north (northern summer storm-track), it is also likely more difficult to identify because of the role of deep frontal convection. The discussion on the origin of group 3 suggests that deep frontal convection offers other pathways than the ones evidenced with relative flows on isentropic surfaces (Danielsen et al., 1968) for stratospheric intrusions to be irreversibly mixed in the upper troposphere. Other case studies and modelling work on the role of deep convection on the fate of stratospheric summertime intrusions will be needed to further reduce the uncertainty on the relative contributions of the net photochemical production and the stratospheric source in tropospheric ozone budget studies.

*Acknowledgements.* We thank H. Wernli for providing the source code of LAGRANTO and for helpful comments on an earlier version of the paper. We thank the support of Programme National de Chimie atmosphérique and Programme Atmosphère et Océan à Moyenne Echelle. The authors acknowledge the strong support of the European Communities, EADS, Airbus and the airlines (Lufthansa, Austrian, Air France) who carry free of charge the MOZAIC equipment and perform the maintenance since 1994.

Edited by: P. Haynes

## References

- D'Aulerio, P., Fierli, F., Congeduti, F., and Redaelli, G.: Analysis of water vapor LIDAR measurements during the MAP campaign: evidence of sub-structures of stratospheric intrusions, *Atmos. Chem. Phys.*, 5, 1301–1310, 2005.
- Bader, M. J., Forbes, G. S., Grant, J. R., Lilley, R. B. E., and Waters, A. J.: Images in weather forecasting, A practical guide for interpreting satellite and radar imagery, Cambridge University Press, 1995.
- Bethan, S., G. Vaughan, C. Gerbig, A. Volz-Thomas, H. Richer, and D. A. Tiddeman: Chemical air mass differences near fronts, *J. Geophys. Res.*, 103, 13 413–13 434, 1998.
- Buermann, J., Konopka, P., Brunner, D., Bujok, O., Gunther, O., McKenna, D. S., Lelieveld, J., Muller, R., and Schiller, C.: High-resolution measurements and simulation of stratospheric and tropospheric intrusions in the vicinity of the polar jet stream, *Geophys. Res. Lett.*, 29(12), 1577, doi:10.29/2001GL014162, 2002.



- Browning, K. A. and Monk, G. A.: A simple model for the synoptic analysis of cold fronts, *Quart. J. Roy. Meteor. Soc.*, 108, 435–452, 1982.
- Carlson, T. N.: Airflow through mid-latitude cyclones and the comma cloud pattern, *Mon. Wea. Rev.*, 108, 1498–1509, 1980.
- Cooper, O. R., Moody, J. L., Parrish, D. D., Trainer, M., Holloway, J. S., Ryerson, T. B., Hübler, G., Fehsenfeld, F. C., Oltmans, S. J., and Evans, M. J.: Trace gas signatures of the airstreams within North Atlantic cyclones: Case studies from the NARE'97 aircraft intensive experiment, *J. Geophys. Res.*, 106, 5437–5456, 2001.
- Cooper, O. R., Moody, J. L., Parrish, D. D., Trainer, M., Holloway, J. S., Hübler, G., Fehsenfeld, F. C., and Stohl, A.: Trace gas composition of midlatitude cyclones over the western North Atlantic Ocean: A seasonal comparison of O<sub>3</sub> and CO, *J. Geophys. Res.*, 107(D7), 4057, doi:10.1029/2001JD000902, 2002.
- Crutzen, P., Lawrence, M., and Pöschl, U.: On the background photochemistry of tropospheric ozone, *Tellus*, 51, 123–146, 1999.
- Danielsen, E. F.: Stratospheric-Tropospheric exchange based on radioactivity, ozone and potential vorticity, *J. Atmos. Sci.*, 25, 502–518, 1968.
- Hannan, J. R., Fuelberg, H. E., Crawford, J. H., Sachse, G. W., and Blake, D. R.: Role of wave cyclones in transporting boundary layer air to the free troposphere during the spring 2001 NASA/TRACE-P experiment, *J. Geophys. Res.*, 108(D20), 8785, doi:10.1029/2002JD003105, 2003.
- Hauglustaine, D. A., Brasseur, G. P., Waters, S., Rasch, P. J., Müller, J.-F., Emons, L. K., and Carroll, M. A.: MOZART, A global chemical transport model for ozone and related chemical tracers. Part 2: Model results and evaluation, *J. Geophys. Res.*, 103, 28 291–28 335, 1998.
- Hegglin, M. I., Brunner, D., Wernli, H., Schwierz, C., Martius, O., Hoor, P., Fischer, H., Parchatka, U., Spelten, N., Schiller, C., Krebsbach, M., Weers, U., Staehelin, J., and Peter, Th.: Tracing troposphere-to-Stratosphere transport above a mid-latitude deep convective system, *Atmos. Chem. Phys.*, 4, 741–756, 2004.
- Helten M., Smit H., Strater W, Kley D., Nedelec P., Zoger M., and Busen R.: Calibration and performance of automatic compact instrumentation for the measurement of relative humidity from passenger aircraft, *J. of Geophys. Res.*, 103, 25 643–25 652, 1998.
- Hobbs, P. V., Locatelli, J. D., and Martin, J. E.: Cold fronts aloft and the forecasting of precipitation and severe weather east of the Rocky Mountains, *Wea. Forecasting*, 5, 613–626, 1990.
- Hoor, P., Fischer, H., Lange, L., Lelieveld, J., and Brunner, D.: Seasonal variation of a mixing layer in the lowermost stratosphere as identified by the O<sub>3</sub>-CO correlation from in-situ measurements, *J. Geophys. Res.*, 107, 4044, doi:10.1029/2000JD000289, 2002.
- Hoskins, B. J., McIntyre, M. E., and Robertson, A. W.: On the use and significance of isentropic potential vorticity maps, *Quart. J. Roy. Meteor. Soc.*, 111, 877–946, 1985.
- James, P., Stohl, A., Forster, C., Eckhardt, S., Seibert, P., and Frank, A.: A 15-year climatology of stratosphere-troposphere exchange with a Lagrangian particle dispersion model, Part 1: Methodology and validation, *J. Geophys. Res.*, 108(D12), 8519, doi:10.1029/2002JD002637, 2003a.
- James, P., Stohl, A., Forster, C., Eckhardt, S., Seibert, P., and Frank, A.: A 15-year climatology of stratosphere-troposphere exchange with a Lagrangian particle dispersion model, Part 2: Mean climate and seasonal variability, *J. Geophys. Res.*, 108(D12), 8522, doi:10.1029/2002JD002639, 2003b.
- Mahfouf, J.-F. and Rabier, F.: The ECMWF operational implementation of four dimensional variational assimilation. Part II: Experimental results with improved physics, *Quart. J. Roy. Meteor. Soc.*, 126, 1171–1190, 2000.
- Marengo, A., Thouret, V., Nédélec, P., Smit, H., Helten, M., Kley, D., Karcher, F., Simon, P., Law, K., Pyle, J., Poschmann, G., Von Wrede, R., Hume, C., and Cook, T.: Measurement of ozone and water vapor by Airbus in-service aircraft: The MOZAIC airborne program, An overview, *J. Geophys. Res.*, 103, 25 631–25 642, 1998.
- McMillan, W. W., Strow, L. L., Smith, W. L., Revercomb, H. E., Huang, H. L., Thompson, A. M., McNamara, D. P., and Ryan, W. F.: Remote sensing of carbon monoxide over the continental United States on September 12–13, 1993, *J. Geophys. Res.*, 102, 10 695–10 710, 1997.
- Methven, J., Arnold, S. R., O Connor, F. M., Barjat, H., Dewey, K., Kent, J., and Brough, N.: Estimating photochemically produced ozone throughout a domain using flight data and a Lagrangian model, *J. Geophys. Res.*, 108(D9), 4271, doi:10.1029/2002JD002955, 2003.
- Morgenstern, O. and Carver, G. D.: Comparison of cross-tropopause transport and ozone in the upper troposphere and lower stratosphere region, *J. Geophys. Res.*, 106, 10 205–10 221, 2001.
- Nédélec, P., Cammas, J. -P., Thouret, V., Athier, G., Cousin, J. -M., Legrand, C., Abonnel, C., Lecoœur, F., Cayez, G., and Marizy, C.: An improved infrared carbon monoxide analyser for routine measurements aboard commercial Airbus aircraft: technical validation and first scientific results of the MOZAIC III programme, *Atmos. Chem. Phys.*, 3, 1551–1564, 2003.
- Parrish, D. D., Trainer, M., Holloway, J. S., Yee, J. E., Warshawsky, M. S., Fehsenfeld, F. C., Forbes, G. L., and Moody, J. L.: Relationships between ozone and carbone monoxide at surface sites in the North Atlantic region, *J. Geophys. Res.*, 103, 13 357–13 376, 1998.
- Parrish, D. D., Holloway, J. S., Jakoubek, R., Trainer, M., Ryerson, T. B., Hübler, G., Fehsenfeld, F. C., Moody, J. L., and Cooper, O. R.: Mixing of anthropogenic pollution with stratospheric ozone: A case study from the North Atlantic wintertime troposphere, *J. Geophys. Res.*, 105(D19), 24 363–24 374, 2000.
- Purvis, R. M., Lewis, A. C., Carney, R. A., et al.: Rapid uplift of nonmethane hydrocarbons in a cold front over central Europe, *J. Geophys. Res.*, 108(D7), 4224, doi:10.1029/2002JD002521, 2003.
- Rabier, F., Jarvinen, H., Klinker, E., Mahfouf, J.-F., and Simmons, A.: The ECMWF operational implementation of four-dimensional variational assimilation. Part I: Experimental results with simplified physics, *Quart. J. Roy. Meteor. Soc.*, 126, 1143–1170, 2000.
- Schoeberl, M. R. and Newman, P. A.: A multiple-level trajectory analysis of vortex filaments, *J. Geophys. Res.*, 100, 25 801–25 815, 1995.
- Shapiro, M. A.: Turbulent mixing within tropopause folds as a mechanism for the exchange of chemical constituents between the stratosphere and troposphere, *J. Atmos. Sci.*, 37, 994–1004, 1980.
- Sprenger, M., Croci Maspoli, M., and Wernli, H.: Tropopause folds and cross-tropopause transport: A global investigation based upon ECMWF analyses for the time period March

- 2000 to February 2001, *J. Geophys. Res.*, 108(D12), 8518, doi:10.1029/2002JD002587, 2003.
- Stevenson, D. S., Dentener, F. J., Schultz, M. G., et al. : Multimodel ensemble simulations of present-day and near-future tropospheric ozone, *J. Geophys. Res.*, 111, D08301, doi:10.1029/2005JD006338, 2006.
- Stohl, A.: Computation, accuracy and application of trajectories—a review and bibliography, *Atmos. Environ.*, 32, 947–966, 1998.
- Stohl, A.: A 1-year Lagrangian climatology of airstreams in the Northern Hemisphere troposphere and lowermost stratosphere, *J. Geophys. Res.*, 106, 7263–7279, 2001.
- Stohl, A., Bonasoni, P., Cristofanelli, P., Collins, W., Feichter, J., Frank, A., Forster, C., Gerasopoulos, E., Gaggeler, H., James, P., Kentarchos, T., Kreipl, S., Kromp-Kolb, H., Kruger, B., Sopotulos, Land, C., Meloen, J., Papayannis, A., Priller, A., Seibert, P., Sprenger, M., Roelofs, G. J., Scheel, E., Schnabel, C., Siegmund, P., Tobler, L., Trickl, T., Wernli, H., Wirth, V., Zanis, P., and Zerefos, C.: Stratosphere-troposphere exchange a review, and what we have learned from STACCATO, *J. Geophys. Res.*, 108(D12), 8516, doi:10.1029/2002JD002490, 2003.
- Sutton, R. T., Maclean, H., Swinbank, R., O'Neill, A., and Taylor, F. W.: High resolution stratospheric tracer fields estimated from satellite observations using Lagrangian trajectory calculations, *J. Atmos. Sci.*, 51, 2995–3005, 1994.
- Thouret, V., Marenco, A., Nédélec, P., and Grouhel, C.: Ozone climatologies at 9–12 km altitude as seen by the MOZAIC airborne program between September 1994 and August 1996, *J. Geophys. Res.*, 103, 25 653–25 679, 1998.
- Volz-Thomas, A., Berg, M., Heil, T., Houben, N., Lerner, A., Petrick, W., Raak, D., and Pätz, H.-W.: Measurements of total odd nitrogen (NO<sub>y</sub>) aboard MOZAIC in-service aircraft: instrument design, operation and performance, *Atmos. Chem. Phys.*, 5, 583–595, 2005.
- Wernli, H. and Davies, H. C.: A Lagrangian-based analysis of extratropical cyclones. I: The method and some applications, *Quart. J. Roy. Meteor. Soc.*, 123, 467–489, 1997.
- Wernli, H. and Bourqui, M.: A Lagrangian 1-year climatology of (deep) cross-tropopause exchange in the extratropical Northern Hemisphere, *J. Geophys. Res.*, 107(D2), 4021, doi:10.1029/2001JD000812, 2002.

## 2.2 Caractérisation des processus de mélanges

### 2.2.1 Introduction

Le chapitre précédent a mis en évidence des échanges stratosphère troposphère dans une dépression des moyennes latitudes en été à l'aide du modèle Lagrangien LAGRANTO.

De manière générale, les modèles Lagrangiens sont utiles pour étudier les processus dynamiques dans l'atmosphère tels que le transport de gaz traces. Différentes méthodes de calcul de trajectoires ont été développées à partir de diverses approximations numériques ou d'hypothèses dynamiques formulées. Une étude complète de Stohl (1998) [162] sur les différentes méthodes de calculs a montré qu'en moyenne, une erreur de position de 20% par rapport à la distance totale est à considérer dans les trajectoires. A la section 2.1, le modèle Lagrangien LAGRANTO a été utilisé à l'aide de fichiers d'analyses et de prévisions de l'ECMWF disponibles toutes les 3 heures. Ils présentent une résolution de  $0.5^\circ/0.5^\circ$ , les paramètres diagnostiques étant disponibles sur 60 niveaux verticaux sigma. Ces caractéristiques ont réduit au maximum les erreurs de position dans les trajectoires, et ont permis l'étude d'échanges STE sur le coté Ouest dans la troposphère libre et à l'Est d'un thalweg d'altitude, dans la zone de divergence en altitude d'un WCB.

Des processus de mélange ont été mis en avant dans cette étude. Un mélange turbulent en ciel clair est supposé être responsable d'un enrichissement en CO de la foliation de tropopause dans la haute troposphère. La baisse d'ozone entre le cordon ombilical stratosphérique et le précurseur d'altitude peut être due à un relâchement d'instabilité potentielle dans le front d'altitude en avant du front de surface. Les trajectoires ont également positionné des masses d'air du WCB à coté de masses d'air issues de la foliation de tropopause, dans la zone de divergence en altitude de la dépression. Or la représentativité de trajectoires lancées en un point, soumises à des phénomènes de mélange est limitée.

Il est nécessaire de confirmer ces hypothèses de mélange à l'aide d'un modèle dispersif lagrangien tel que FLEXPART. Ce type de modèle permet de décrire le transport dans des fluides turbulents ainsi que des processus de mélange par la dispersion d'une grande quantité de parcelles d'air. L'utilisation de sorties diagnostiques basées sur une statistique de ces parcelles d'air permet de caractériser des zones de divergence ou de mélange.

Dans cette section, en premier lieu, une présentation succincte de FLEXPART sera fournie.

Puis, l'utilisation de ce modèle sur l'intrusion stratosphérique profonde mesurée par le profil MOZAIC ainsi que son emploi dans la zone de divergence en altitude seront présentés avec différentes techniques.

### 2.2.2 Présentation du modèle FLEXPART

Le modèle Flexpart a été développé en 1999 à l'Institut de Météorologie et de Physique de l'Université des Sciences de l'Agriculture à Vienne. Il s'agit d'un modèle de dispersion de polluants, gaz et particules qui fut récemment mis au point pour répondre à certaines situations d'urgence ainsi que pour des applications en recherche. Il simule le transport

à longue distance, la diffusion, les dépôts sec et humide et la décroissance radioactive des polluants dans l'air émis à partir de sources. Une description extensive du modèle et des paramétrisations utilisées est donnée dans Stohl et al. (2005) pour la version 6.2 de FLEXPART, version utilisée ici.

Les champs d'analyses disponibles aux échéances 00, 06, 12, 18h TU, et de prévisions à 03h, 09h, 15h, 21h TU de l'ECMWF avec 60 niveaux verticaux sigma et une résolution de  $0.5^\circ$  par  $0.5^\circ$  sont utilisés pour le calcul des trajectoires et des paramètres diagnostiques de FLEXPART. Ces paramètres réduisent au maximum les erreurs d'interpolations des champs de vent inhérentes à tous les modèles lagrangiens (Stohl, 1998).

Le modèle utilise la méthode numérique du Kernel qui associe une quantité de substance à des particules. La modélisation de la turbulence dans la couche limite est basée sur le calcul de la longueur de Monin-Obukhov. Les mouvements turbulents sont calculés à partir de l'équation de Langevin. De plus une paramétrisation de Hanna du mouvement turbulent dans la couche limite est utilisée. Une diffusivité turbulente horizontale est paramétrisée dans la troposphère (fixée à  $50m^2/s$ ) et une diffusivité turbulente verticale est paramétrisée dans la stratosphère (fixée à  $0.1m^2/s$ , cf Legras et al., 2003 [104]). Un schéma convectif 1D de Emanuel et Zivkovic-Rothman (1999) [56] est également utilisé pour paramétriser les processus convectifs sous-maille. Ce schéma de convection est déclenché lorsque :

- $T_{vp}^{LCL+1} \geq T_v^{LCL+1} + T_{limite}$
- $T_{vp}^{LCL+1}$  : Température virtuelle d'une masse d'air soulevée au niveau supérieur du niveau de saturation par soulèvement adiabatique.
- $T_v^{LCL+1}$  : Température virtuelle à ce niveau.
- $T_{limite}$  : Température limite choisie à 0.9K

Le modèle FLEXPART fonctionne avec des niveaux verticaux définis à hauteur constante. Les champs diagnostiques de l'ECMWF disponibles sur 60 niveaux sigma sont interpolés sur ces 60 niveaux pour chaque point de maille en latitude/longitude. .

Pour cela, FLEXPART définit les hauteurs des niveaux à partir du point ayant la pression la plus forte au sol, et calcule ensuite les hauteurs successives pour chaque niveau k à partir de la formule :

$$H(k) = H(k-1) + \frac{\rho_{air}}{ga} \log\left(\frac{P(k-1)}{Ps}\right) \frac{Tv(k) - Tv(k-1)}{\log\left(\frac{Tv(k)}{Tv(k-1)}\right)}$$

où :

- . H(k) est la hauteur du niveau à hauteur constante k.
- .  $\rho_{air}$  est la densité de l'air.
- . ga est le champ de pesanteur.
- . P(k) est la pression du niveau sigma k.
- . Ps est la pression de surface.
- . Tv(k) est la température virtuelle du niveau sigma k.

Les particules relâchées dans le modèle sont placées à l'instant initial dans des boîtes définies en longitude/latitude sur l'horizontale, et dont la base et le sommet sont définis soit en mètre soit en pression suivant la verticale.

Lorsque les boîtes sont définies en fonction d'une altitude en mètre, les champs de vent sont interpolés linéairement à partir des niveaux à hauteur constante calculés précédemment sur la position des particules dans la boîte.

Si l'altitude des boîtes est définie en pression, l'altitude de la boîte en mètre est calculée à partir d'un profil de pression suivant l'altitude à l'aide de l'équation d'état  $P = \rho R_{air} T$  ( $R_{air}$  étant la constante pour l'air sec égal à  $287.05 \text{ J.Kg}^{-1}.\text{K}^{-1}$ ) calculé à partir des champs de température  $T$  et de densité  $\rho$  de l'ECMWF. La position en hauteur de la boîte est alors redéfinie entre les niveaux verticaux à hauteur constante.

Ces deux types de définition de hauteur de boîte auront un rôle significatif dans les résultats qui suivent. Le rôle des erreurs d'interpolation verticale sera discuté par la suite.

### 2.2.3 Outils diagnostiques

Une simulation FLEXPART consiste à relâcher des particules disposées aléatoirement dans des boîtes définies en longitude/latitude/hauteur. Les particules sont soumises aux schémas d'advection et de turbulence au cours du temps. Les particules au bout d'un certain temps présentent la forme d'un nuage de particules représentatif de la dispersion de la boîte dans l'atmosphère dans le cas d'un mode "forward", ou d'un processus de mélange dans le cas d'un mode "backward".

Différents traceurs passifs et paramètres dynamiques peuvent être utilisés en sortie de FLEXPART pour interpréter les résultats des simulations. Ils sont disponibles à des temps de sortie déterminés pour chaque boîte où les particules ont été initialisées.

Un traceur passif stratosphérique est disponible pour chaque boîte. Il représente le pourcentage de particules ayant un tourbillon potentiel supérieur à 2 pvu, seuil généralement utilisé pour définir la tropopause dynamique aux moyennes latitudes.

De même un traceur passif couche limite est également disponible. Il représente le pourcentage de particules ayant une hauteur inférieure à la hauteur de la couche limite, celle-ci étant calculée à partir d'un nombre de Richardson critique (Vogelezang et Holrslag, 1996 [177]).

Différents paramètres dynamiques moyens sont disponibles à partir de la moyenne des paramètres en chaque particule dispersée au cours de la simulation. Ces valeurs n'ont que peu de signification lorsque le panache est trop dispersé, et dès lors que les moyennes mettent en jeu des particules avec des propriétés complètement différentes. Une alternative est d'utiliser le calcul de centres mobiles nommés clusters disponibles dans FLEXPART (Stohl et al., 2002 [166]). Durant les simulations, dix centres mobiles ont été définis, on les désignera sous le nom de clusters par la suite.

L'analyse en clusters est une méthode dite "semi-objective" (Kalkstein et al., 1987 [91]) employée ici pour déterminer les différentes positions qui caractérisent au mieux la position et la forme d'une rétroplume dans son ensemble. Cette technique constitue donc un bon moyen de réduire autant que possible les fichiers de taille conséquente de FLEXPART tout en maintenant le maximum d'information nécessaire. Les clusters sont équivalents à un

ensemble de trajectoires mais permettent une vision plus objective et moins arbitraire. L'analyse en clusters réduit la distance au sens des moindres carrés entre les particules d'un même cluster et la distance entre ces mêmes particules et le centre de leur cluster respectif. Elle maximise en revanche la distance entre les différents centres des clusters.

L'idée d'utiliser des clusters est qu'à partir de centres mobiles positionnés à chaque pas de temps dans le panache de particules associé à chaque boîte de départ, on peut étudier l'ensemble du nuage de particules à l'aide de paramètres mesurés en dix positions particulières, représentatives de la distribution spatiale des particules. On calcule en chaque centre de masse en plus de la position en  $x, y$  et  $z$ , la fraction de particules associées au cluster, son tourbillon potentiel, son humidité relative, et la hauteur de la couche limite en ce point.

Un autre type de sortie est basé sur une statistique des particules relâchées sur une grille de sortie pré-définie. Ces paramètres peuvent être par exemple un temps de résidence des particules dans chaque maille de la grille, ou la concentration d'un composé chimique.

Les valeurs de temps de résidence représentent les temps de résidence de l'ensemble des particules sur un laps de temps donné. Elles permettent de juger les zones de plus grande influence sur le mélange qu'a subi un panache de particules. Un maximum de temps de résidence dans une certaine zone traduira le fait que la concentration chimique d'une boîte aura une origine particulièrement localisée, tandis que des temps de résidence globalement homogènes signifieront que la boîte initiale a subi un mélange de plusieurs masses d'air, et ceci de façon homogène.

Depuis la version 6.2, FLEXPART permet de simuler le transport d'ozone stratosphérique à partir d'une relation linéaire entre l'ozone et le PV. Dans la simulation d'ozone stratosphérique, nous avons utilisé une relation  $O_3/PV=51\text{ppbv/pvu}$ . Cette relation linéaire est basée sur une statistique des données MOZAIC dans la stratosphère englobant une période de temps de 15 jours autour du cas d'étude choisi ici.

Le calcul d'ozone synthétique est fait sur une grille de  $0.75^\circ$  par  $0.75^\circ$  sur 31 niveaux verticaux. A l'instant initial de la simulation, l'ensemble de la stratosphère ( $PV \geq 2\text{pvu}$  et  $altitude \geq 3000\text{m}$ ) est remplie de 3 000 000 de particules. Chaque particule en chaque maille se voit associer une fraction de la quantité d'ozone déterminée à partir de la relation linéaire. Au fur et à mesure de la simulation, les particules chargées en ozone sont advectées dans le domaine, en subissant les mouvements d'advection et des différentes paramétrisations du modèle. Au cours de la simulation, de l'ozone est créé sur les bords s'il y a un flux entrant, et une disparition s'il y a un flux sortant du domaine. En sortie, une concentration moyenne d'ozone sur un laps de temps est disponible en chaque maille de la grille.

Par ailleurs il est possible d'utiliser une technique de "Reverse Domain Filling" sur le champ d'ozone stratosphérique de FLEXPART. Si les temps de résidence des particules initialisées dans une boîte sont calculés sur la même grille que la simulation d'ozone stratosphérique, alors il suffit de multiplier les concentrations d'ozone moyenne de chaque maille par le temps de résidence normalisé (unité en  $\text{sm}^3\text{kg}^{-1}$ ), et de sommer l'ensemble (cf Seibert and Franck, 2002 [153]).

On obtient ainsi une concentration reconstruite d'ozone à partir de n'importe quel temps de rétrotrajectoire. Le fait d'utiliser les rétrotrajectoires des particules permet de quali-

fier cette technique comme une technique de reconstruction de champ d'ozone, que l'on appellera ozone RDF.

## 2.2.4 Résultats

### Traceurs passifs

Sur la figure 2.1, le profil d'ozone MOZAIC au dessus de New York est représenté en vert. Le traceur stratosphérique est représenté en noir, et le traceur couche limite en bleu. Au début de la simulation FLEXPART, les particules sont initialisées dans des boites d'une taille de 100m de hauteur, et de  $0.5^\circ$  par  $0.5^\circ$  en longitude/latitude le long du vol MOZAIC. FLEXPART confirme ici l'origine stratosphérique de l'intrusion profonde associée au pic d'ozone de 110ppbv à 3500m d'altitude. Le traceur stratosphérique voit son maximum de concentration coïncider avec le pic d'ozone à la même altitude, preuve d'une bonne représentation de la foliation dans ce modèle. FLEXPART associe au pic d'ozone un mélange entre 70% d'air troposphérique et 30% d'air stratosphérique, ce qui correspond à une foliation de tropopause fortement mélangée avec l'air troposphérique environnant.

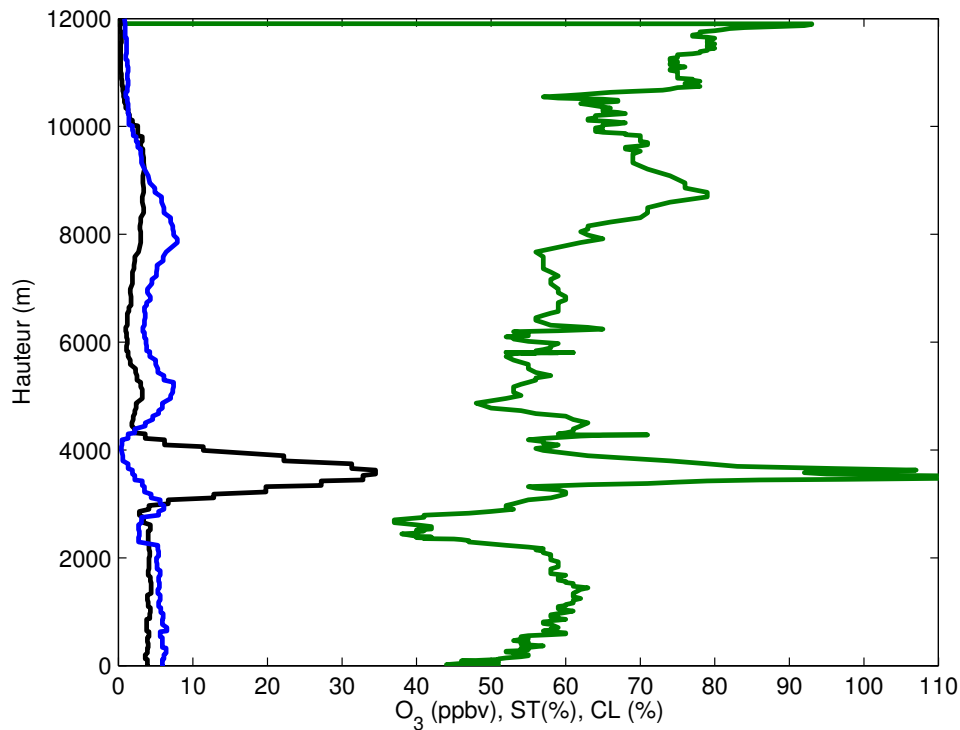


FIG. 2.1 – Profil d'ozone (en vert) du vol MOZAIC au dessus de New York. La valeur du traceur stratosphérique (en noir) et couche limite (en bleu) est obtenue après 48h de rétrotrajectoires.

## 2.2 Caractérisation des processus de mélanges

La série en longitude sur la figure 2.2 du second avion MOZAIC mesurée dans la zone de divergence du WCB est représentée avec l’ozone (ppbv, en vert), l’humidité spécifique (mg/Kg multiplié par un facteur 2, en noir), et les traceurs stratosphériques (en rouge) et couche limite (en bleu) de FLEXPART après 48h de rétrotrajectoires calculées en utilisant le schéma convectif. Les traceurs stratosphériques et couche limite dans le cas d’une simulation sans schéma convectif sont représentés par les lignes pointillées.

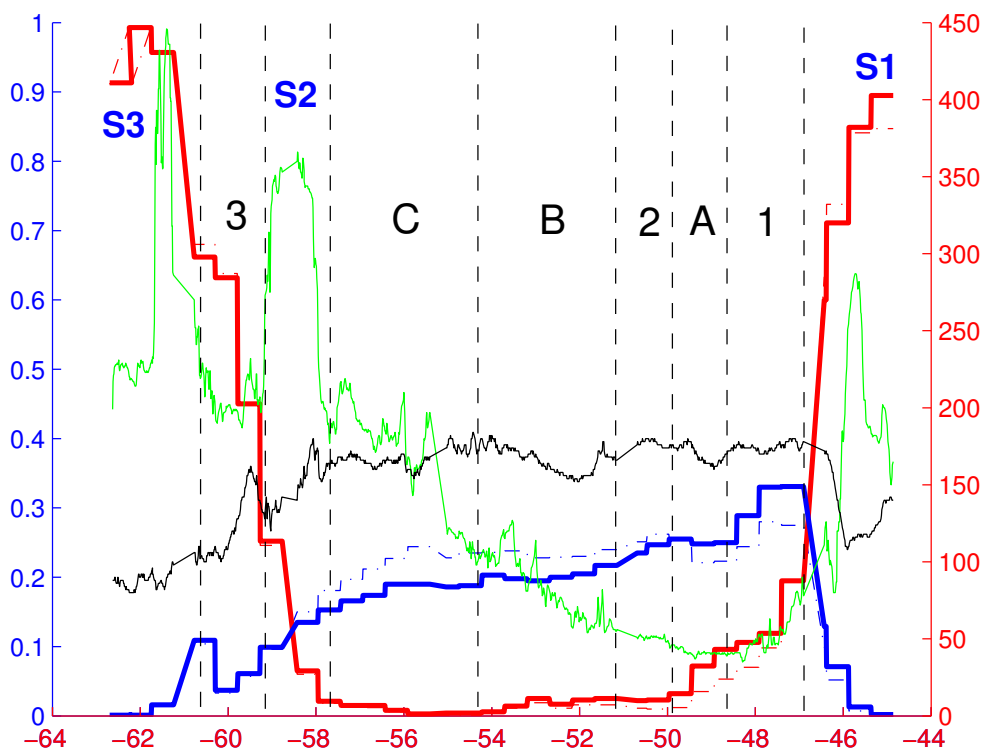


FIG. 2.2 – Mesures d’ozone (en vert) et d’humidité relative (en noir) du vol MOZAIC en altitude dans la zone de divergence du WCB. Les traceurs stratosphériques (en rouge) et couche limite (en bleu) sont représentés après 48h de rétrotrajectoire. Les particules sont initialisées dans des boîtes d’une hauteur de 500m. Les lignes continues sont associées aux valeurs des traceurs obtenues par une simulation avec schéma convectif, tandis que les lignes en pointillés sont associées à une simulation sans schéma convectif. Les groupes de points définis au chapitre 2.1 sont représentés sur la figure.

Au début de la simulation FLEXPART, les particules sont initialisées dans des boîtes d’une taille de 500m en hauteur et de  $0.5^\circ/0.5^\circ$  en longitude/latitude le long de la trajectoire de l’avion MOZAIC.

Une comparaison des conclusions sur les origines des masses d’air obtenue par l’analyse des trajectoires du modèle LAGRANTO et le pourcentage des traceurs passifs de



FLEXPART est synthétisée par le tableau 2.1.

TAB. 2.1 – Synthèse de l'origine des groupes obtenue par LAGRANTO et FLEXPART.

Groupe	LAGRANTO	FLEXPART
1	Basse troposphère	10% ST , 30% CL
2	Basse troposphère	3% ST , 20% CL
A	Jet subtropical	8% ST, 25% CL
C	Foliation de tropopause	2% ST, 20% CL
B	Haute troposphère	3%ST, 20% CL
S1, S3	Cordon ombilical stratosphérique	100% ST
S2	Précurseur d'altitude	25%ST, 15%CL
3	Basse troposphère	50%ST, 10%CL

Les pics d'ozone S1 et S3 d'origine stratosphérique sont bien vus par le traceur stratosphérique avec une bonne relation entre maximum de concentration d'ozone et maximum du pourcentage de traceur stratosphérique.

Au niveau du pic S2, le traceur stratosphérique est à 25%. Il sous-estime l'origine stratosphérique de ce pic d'ozone. Le pallier de concentration d'ozone à 200ppbv dans le groupe 3 est associé à une diminution continue du traceur stratosphérique. La structure du groupe 3 et du pic S2 n'est donc pas vue par le modèle. Cependant, il existe un pic de 10% du traceur couche limite entre S3 et le groupe 3, sur le bord du cordon ombilical. En comparant ces premières observations avec les résultats de LAGRANTO, on constate que le groupe 3 n'a pas une origine couche limite clairement définie mais plutôt un mélange entre des masses d'air stratosphérique et troposphérique. Une partie couche limite de 10% existe, mais n'explique pas à elle seule la diminution d'ozone enregistrée par l'avion.

Entre le groupe 3 et le groupe 1, le traceur couche limite croit de 5% à 30%. Le fait que le traceur couche limite augmente vers l'Est est en accord avec le fait que le mouvement de divergence en altitude du WCB en altitude suit préférentiellement un mouvement anticyclonique (eg, Cooper et al., 2002 [40]).

Entre le groupe C et le groupe A, dans la zone de décroissance de l'ozone, FLEXPART voit un signal de 3% d'air stratosphérique dans le groupe C, et de 4% dans les groupes B et 2. Au delà, une augmentation croissante du traceur stratosphérique dans le groupe 1 et S1 est associée à une augmentation continue d'ozone à proximité du cordon ombilical coté Est.

En contraste avec l'analyse obtenue avec LAGRANTO, l'origine stratosphérique du groupe C n'est que très faiblement retrouvée. Une deuxième différence entre les deux modèles vient de l'origine couche limite de l'ordre de 20% des groupes B et C. Cette origine couche limite est en accord avec la forte humidité mesurée par l'avion.

La valeur des traceurs couche limite et stratosphérique varie peu si l'on relâche les particules sans schéma convectif dans la simulation (lignes pointillées). Le traceur couche

limite est de 5% plus important sans schéma convectif dans les groupes C et B, et plus faible de 5% dans le groupe 1. Le schéma convectif a donc un impact limité sur le transport vertical dû au WCB. Il n'explique pas à lui seul les différences d'origine obtenues sur les traceurs couche limite et stratosphérique de FLEXPART et les trajectoires de LAGRANTO. Cette méthode d'utilisation de FLEXPART est inadaptée et donne des résultats décevants.

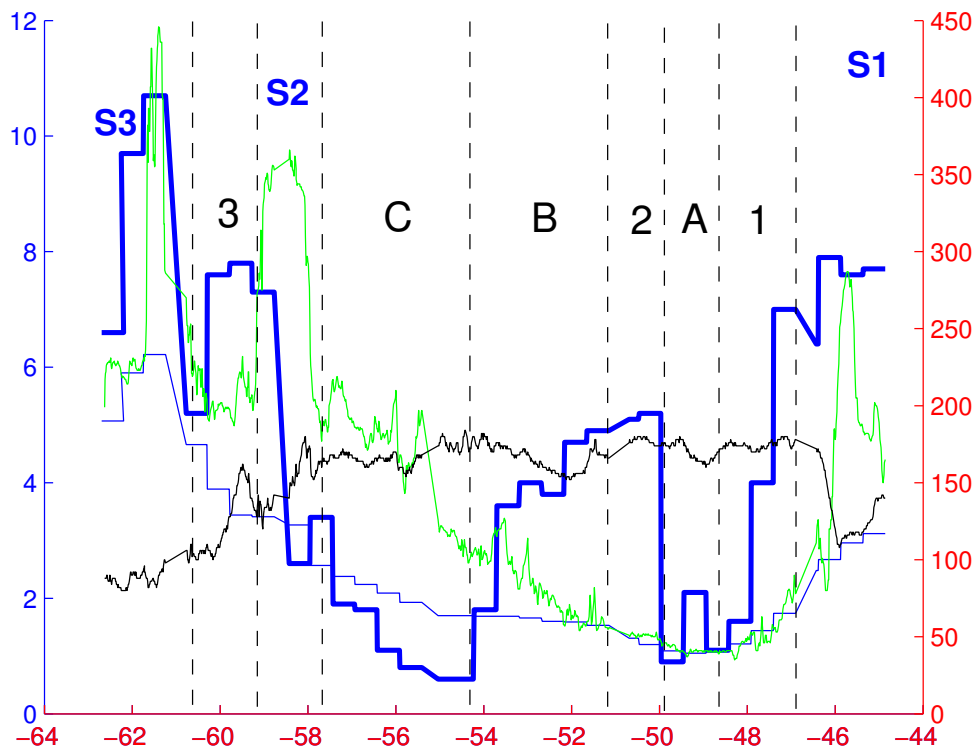


FIG. 2.3 – Mesures d’ozone (en vert) du vol MOZAIC en altitude dans la zone de divergence du WCB. Le PV issu de l’analyse est représenté par la ligne bleue fine, tandis que le PV maximum obtenu par les clusters après 35h de rétrotrajectoires est représenté en ligne bleue épaisse.

Le PV de l’analyse est supérieur à 2pvu entre S3 et le groupe C, puis est inférieur à 2pvu entre le groupe B et 1. Les variations du PV de l’analyse suivent le même comportement que le PV calculé par le modèle LAGRANTO, si ce n’est que la valeur de PV issu de FLEXPART est de 1 pvu plus faible.

le PV maximum calculé sur les dix clusters après 35h de rétrotrajectoires représente la portion du nuage de particules pour chaque boîte ayant le plus fort tourbillon potentiel. Un test sur l’humidité relative  $\leq 60\%$  est appliqué pour éviter une prise en compte d’un tourbillon potentiel généré dans une cellule convective par relachement de chaleur latente. Le comportement du PV issu des clusters est plus conforme aux résultats issus de LA-

GRANTO. On retrouve des fortes valeurs de PV au niveau des pics S1 et S3. On remarque aussi un maximum de PV qui peut être associé au pic S2, mais décalé vers l'Ouest. Le groupe B obtient un maximum de PV de 4pvu, ce qui est en rapport avec un résultat préliminaire de LAGRANTO qui donnait une origine stratosphérique au groupe B à cause d'une erreur d'interpolation des champs de vent (cf l'article). Le groupe C obtient un PV entre 1 et 2pvu.

Les valeurs de PV dans les groupes B et C sont associées à un cluster n'ayant qu'environ 4% de particules (valeurs non montrées). Ces valeurs ne sont donc pas représentatives de l'ensemble du panache de particules.

On peut donc conclure qu'avec la méthode des clusters de FLEXPART, des particules issues des segments B et C peuvent avoir été soumises à la frontogénèse d'altitude et peuvent être d'origine stratosphérique, comme l'indiquait les runs de LAGRANTO. Cependant, le faible pourcentage de particules concernées (4%) ne permet pas d'expliquer l'augmentation croissante d'ozone entre B et C par une origine stratosphérique.

Les schémas convectif ou de diffusion n'expliquent pas la différence importante entre LAGRANTO et FLEXPART sur l'origine stratosphérique des groupes C et B.

L'explication peut venir soit de l'interpolation des champs sigma sur les champs à hauteur constante dans le modèle FLEXPART, soit d'une erreur de la hauteur barométrique de l'avion MOZAIC, qui est calculée à partir de la mesure de pression et d'une atmosphère standard.

Les avions MOZAIC volent à pression constante. L'altitude barométrique dans les fichiers MOZAIC est une altitude calculée par intégration de l'hydrostatique sur une atmosphère standard. Dans notre cas, le niveau de vol est à 215 hPa, et l'altitude barométrique est de 11300m. L'altitude barométrique calculée par FLEXPART en se basant sur l'atmosphère décrite par les analyses du ECMWF est de 11560m. L'humidité rencontrée par l'avion fausse le calcul de hauteur barométrique à partir d'une atmosphère standard. Il est donc nécessaire d'initialiser les boîtes de FLEXPART avec la pression mesurée par MOZAIC. La section suivante montre des résultats obtenus à partir de boîtes définies en pression

## 2.2.5 Résultats avec des boîtes définies en pression

La possibilité de définir des boîtes en fonction de la pression n'est possible que depuis la version 6.2, version disponible depuis Mai 2005.

Dans cette section, les boîtes ne sont plus sur une hauteur de 500m, mais de 30hPa.

La figure 2.4 est définie de la même façon que la figure 2.2 mais avec des boîtes avec une hauteur de 30hPa définies en pression. On constate des différences significative entre les figures 2.4 et 2.2 uniquement pour la portion de vol comprise entre les groupes S2 et 1, portion de vol associée à des concentrations en humidité importante.

Le traceur stratosphérique dans les groupes B et C atteint 10%, mais n'explique toujours pas l'augmentation croissante de l'ozone. On constate un minimum de valeur à la frontière entre les deux groupes. Le traceur stratosphérique atteint un niveau de 35% dans le groupe 1. Ceci vient d'une surestimation de la largeur du pic S1.

## 2.2 Caractérisation des processus de mélanges

Le traceur couche limite chute à 15% dans le groupe B et C. Le traceur couche limite voit sa valeur augmenter plus faiblement d'Ouest en Est sur la figure 2.4 que sur la figure 2.2. La corrélation avec l'humidité spécifique est de ce fait meilleure.

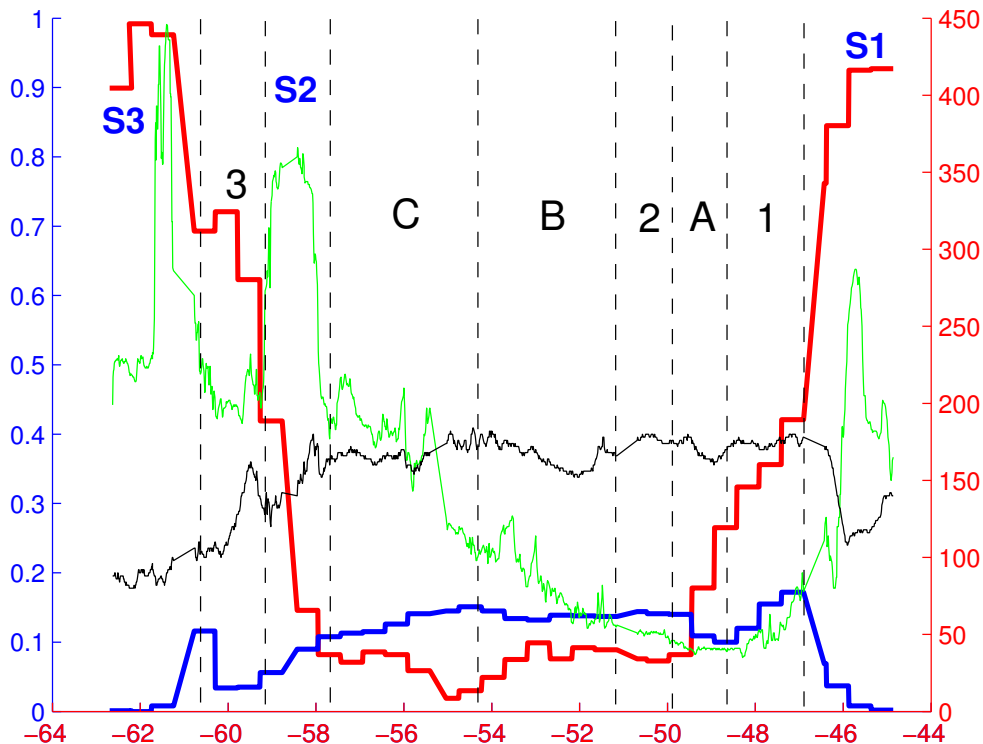


FIG. 2.4 – Même chose que pour la figure 2.2 sauf que les boîtes FLEXPART sont définies sur une hauteur de 30hPa. Les valeurs des traceurs passifs sans schéma convectif ne sont pas représentées.

La figure 2.5 représente les résultats obtenus avec les clusters. On constate que la valeur de PV de l'analyse a augmenté significativement, et est proche des valeurs obtenues par LAGRANTO. Entre les groupes S2 et 1, la valeur de PV après 35h de rétrotrajectoire a augmenté également.

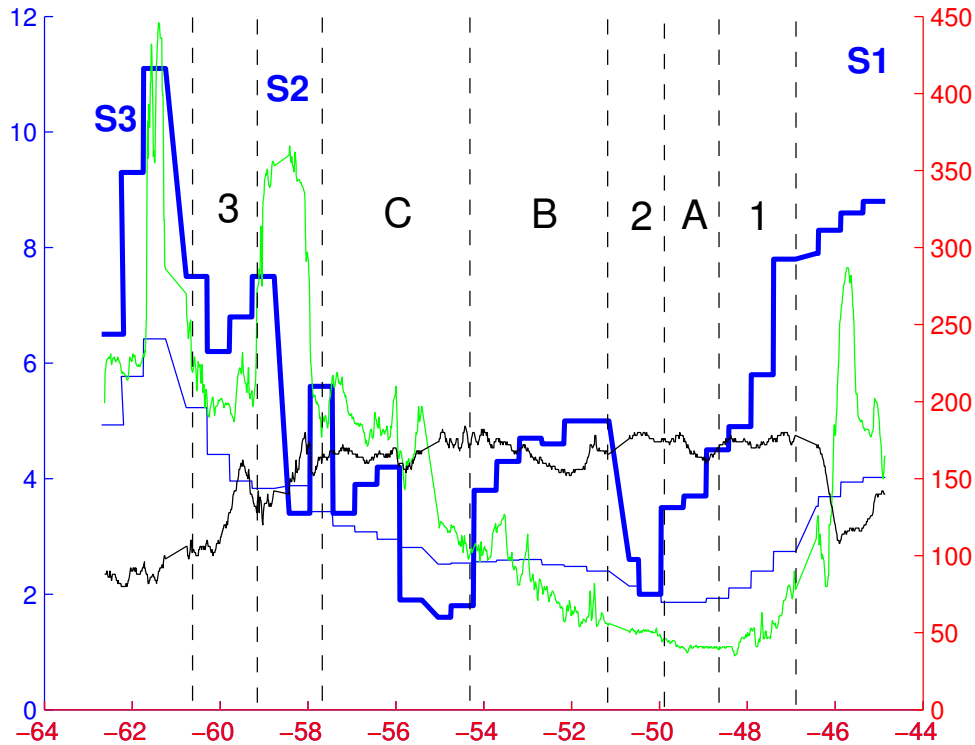


FIG. 2.5 – Même chose que pour la figure 2.3 sauf que les boîtes FLEXPART sont définies sur une hauteur de 30hPa.

Les résultats à partir de boîtes définies par la pression sont nettement améliorés. Ceci vient du fait que l'altitude en mètre des boîtes définies en pression est calculée à partir des champs diagnostiques de l'ECMWF. Ce calcul est donc fait à partir d'une atmosphère plus proche de la réalité qu'un profil atmosphérique standard. L'étude de LAGRANTO a montré que l'avion vole à proximité de la tropopause. Une erreur de position de 250m en altitude dans la région traversée peut alors avoir des conséquences importantes sur les résultats obtenus par FLEXPART.

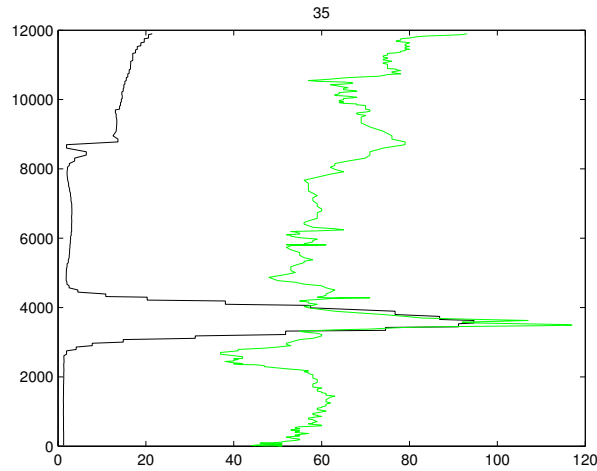
Les figures qui suivent sont toutes obtenues en utilisant des boîtes avec des hauteurs définies en pression.

### Ozone reconstruit

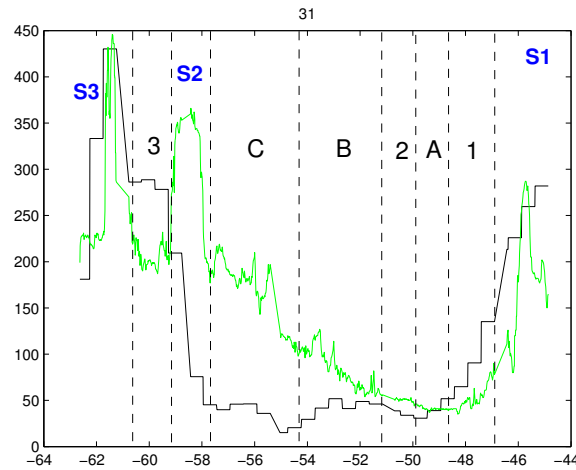
Sur la figure 2.6a est représenté le profil d'ozone MOZAIC (en vert) au dessus de New York, et l'ozone RDF de FLEXPART (en noir) calculé par RDF sur des champs d'ozone synthétique. On constate que la technique fonctionne bien, avec un pic d'ozone synthétique à la même altitude que le pic d'ozone MOZAIC, et des valeurs de concentration d'ozone comparable.

## 2.2 Caractérisation des processus de mélanges

Sur la figure 2.6b, les pics S1 et S3 sont bien représentés par l'ozone RDF. L'ozone RDF donne 50ppbv d'ozone à la partie du groupe B, et 50ppbv au groupe C. Malgré les bons résultats de la technique d'ozone RDF sur les pics stratosphérique S1, S3 et sur l'intrusion stratosphérique profonde, FLEXPART ne permet pas d'expliquer clairement l'augmentation croissante de l'ozone entre le groupe B et C.



(a)



(b)

FIG. 2.6 – Ozone reconstruit RDF (ppbv, en noir) calculé à partir d'un run synthétique d'ozone flexpart en mode forward. La valeur d'ozone est calculée après 35h de rétrotrajectoire le long (a) du profil MOZAIC et (b) le long du vol croisière. L'ozone (ppbv) MOZAIC est représenté en vert sur ces 2 figures

### Origine des Rétroplumes

Les temps de résidence des particules permettent de retrouver en mode backward les zones de plus forte influence sur la composition chimique de chaque boîte initiale.

Sur la figure 2.7 est représenté le pourcentage du maximum de temps de résidence entre 0 et 500m des particules associées aux groupes 1, B, C et 3 calculé sur une période de 10 jours.

Sur la figure 2.7a et b, les groupes 1 et 3 suivent un mouvement caractéristique du WCB. Le groupe 1 a une partie issue de la Floride, mais ne représente pas une part importante du transport général. Les parties troposphériques des groupe 1 et 3 suivent donc la même dynamique dans le WCB, ce qui rejoint les résultats déjà obtenus avec LAGRANTO. Ils ont un maximum de temps de résidence localisé au sud de Terre Neuve, preuve d'une stagnation dans la couche limite dans cette région.

Sur la figure 2.7c et d, les groupes B et C suivent une dynamique légèrement différente des groupes 1 et 3. Le maximum de temps de résidence est plus homogène le long de la trajectoire du WCB. Il n'existe pas de stagnation particulière dans la couche limite subie par ces 2 groupes. Une partie du panache vient du continent, mais ne peut expliquer la différence en ozone car le groupe B a une part plus importante sur le continent que le groupe C, ce qui contredit une origine photochimique de l'augmentation d'ozone.

Finalement, les groupes B et C ont une même origine au sol selon FLEXPART, ce qui n'explique pas l'augmentation en ozone enregistrée.

## 2.2 Caractérisation des processus de mélanges

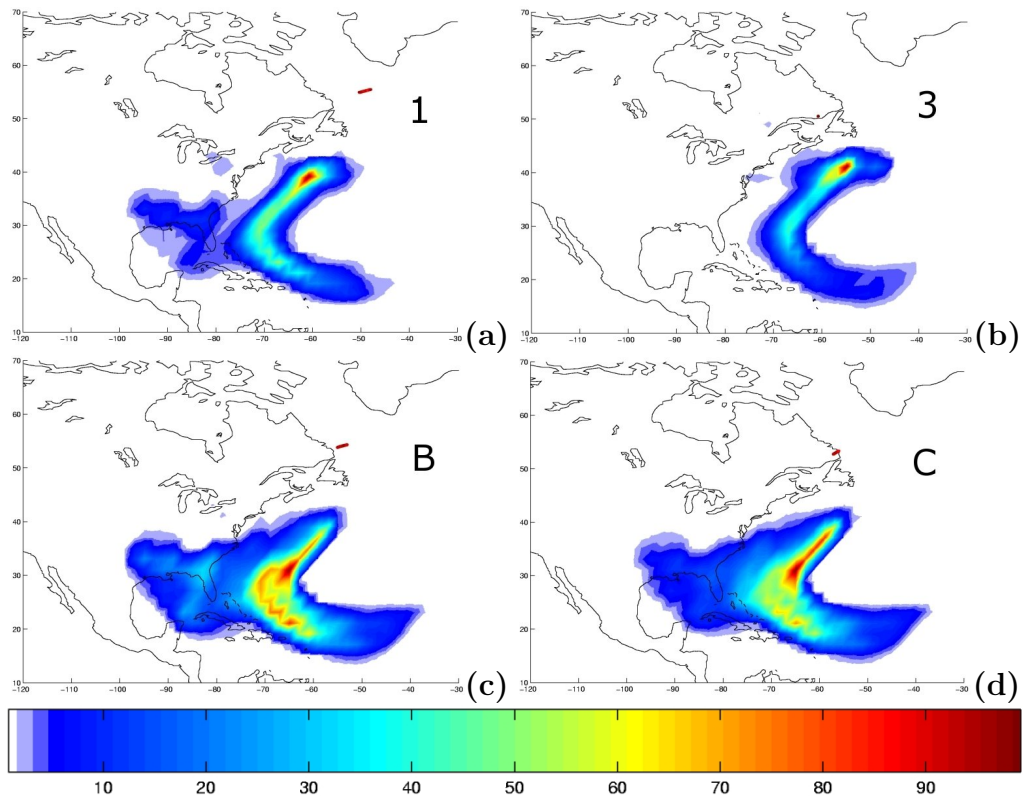


FIG. 2.7 – Temps de résidence entre 0 et 500m des groupes (a) 1, (b) 3, (c) B, (d) C. La couleur représente le pourcentage du temps de résidence par rapport au maximum de temps de résidence.



## Images satellites

Le fait que FLEXPART ne puisse pas expliquer cette augmentation d'ozone entre les groupes B et C signifie qu'un processus sous-maille, donc méso-échelle, a généré cette augmentation d'ozone.

Le panel de figures 2.8 représente la position des 3 clusters les plus bas pour 4 boîtes représentatives des groupes 3 (en vert), c (en bleu), b (en noir) et 1 (en rouge) sur les images satellites GOES canal Infrarouge.

A l'instant initial les clusters sont à environ 11km d'altitude. A ce moment leurs positions coïncident avec les zones de température de brillance les plus basses sur les images satellites. Or l'analyse des images satellites dans le domaine infra-rouge permet l'identification des nuages associés à la convection profonde. Ces nuages se développent généralement jusqu'à la tropopause, leur sommet se caractérise par des températures de brillance basses. De ce fait, en sélectionnant les clusters les plus bas il est possible d'obtenir une estimation de la position des ascendances subies par chacun des groupes.

Sur l'ensemble des figures, trois tailles de rond associées à la position des clusters sont visibles. Le rond le plus large représente un cluster avec une hauteur  $h \geq 9\text{Km}$ . Le rond d'une taille intermédiaire représente un cluster à une hauteur entre  $6\text{Km} \leq h \leq 9\text{Km}$ . Le rond de plus petite taille représente un cluster d'une hauteur  $h \leq 6\text{km}$ .

Sur la figure 2.8a, le 17/07 à 15h, les clusters sont disposés dans les boîtes de  $0.5^\circ$  par  $0.5^\circ$  à l'instant initial.

Sur la figure 2.8b, le 17/07 à 04h, les clusters du groupe 1 suivent un mouvement anticyclonique, tandis que les clusters du groupe 3 suivent un mouvement cyclonique. Les clusters des groupes C et B convergent vers la même zone.

Sur la figure 2.8c, le 17/07 à 01h, les clusters du groupe 1 et 3 sont dans la tête nuageuse. Les clusters du groupe C et B sont maintenant à une hauteur comprise entre 6 et 9Km.

Sur la figure 2.8d, le 16/07 à 23h, deux clusters du groupe B et ceux du groupe C sont sous 6Km d'altitude. Un cluster du groupe B est entre 6 et 9Km d'altitude, et se situe à la périphérie d'une zone de split front. La zone de split front est délimitée par la zone noire, positionnée à partir des température de brillance de l'image Infra-Rouge (au niveau de nuages bas) et de l'image canal vapeur d'eau (par une zone sèche, image non montrée) du satellite GOES. Les clusters du groupe B sont plus proche de la zone de split front que ceux du groupe C.

Les clusters des groupes 1 et 3 suivent un mouvement cyclonique et restent en altitude.

Sur la figure 2.8e, le 16/07 à 20h, les clusters du groupe C et B sont à une altitude inférieure à 6Km tandis que les clusters des groupes 1 et 3 restent à une hauteur  $h \geq 9\text{km}$ . Quelques clusters du groupe B et C sont dans la zone de split front. Le système convectif est intense avec une température de brillance la plus basse à 210K.

Sur la figure 2.8f, le 16/07 à 16h, le système convectif de la tempête tropicale est intense. Les clusters des groupes C, B et 3 ont une hauteur inférieure à 6Km. Les 3 clusters du groupe 1 sont à 3 niveaux d'altitude différents.

Deux différences existent entre l'analyse des résultats de LAGRANTO et les résultats obtenus à l'aide des clusters de FLEXPART. Contrairement aux trajectoires obtenues par

## 2.2 Caractérisation des processus de mélanges

---

LAGRANTO, les groupes 1 et 3 ne subissent pas une ascendance dans le système convectif intense associé à la tempête tropicale, mais prennent l'ascendance du front froid C1 en arrière du premier front C2 (références utilisées dans la section 2.1).

De plus, tandis que l'analyse de LAGRANTO montre que les groupes B et C suivent la dynamique du front d'altitude, on constate ici que ces 2 groupes suivent une ascendance dans le WCB. Le 16 à 23h, un cluster du groupe B se trouve entre 6 et 9km d'altitude dans une zone de split front, ce qui suppose des échanges STE potentiels subis par ce groupe.

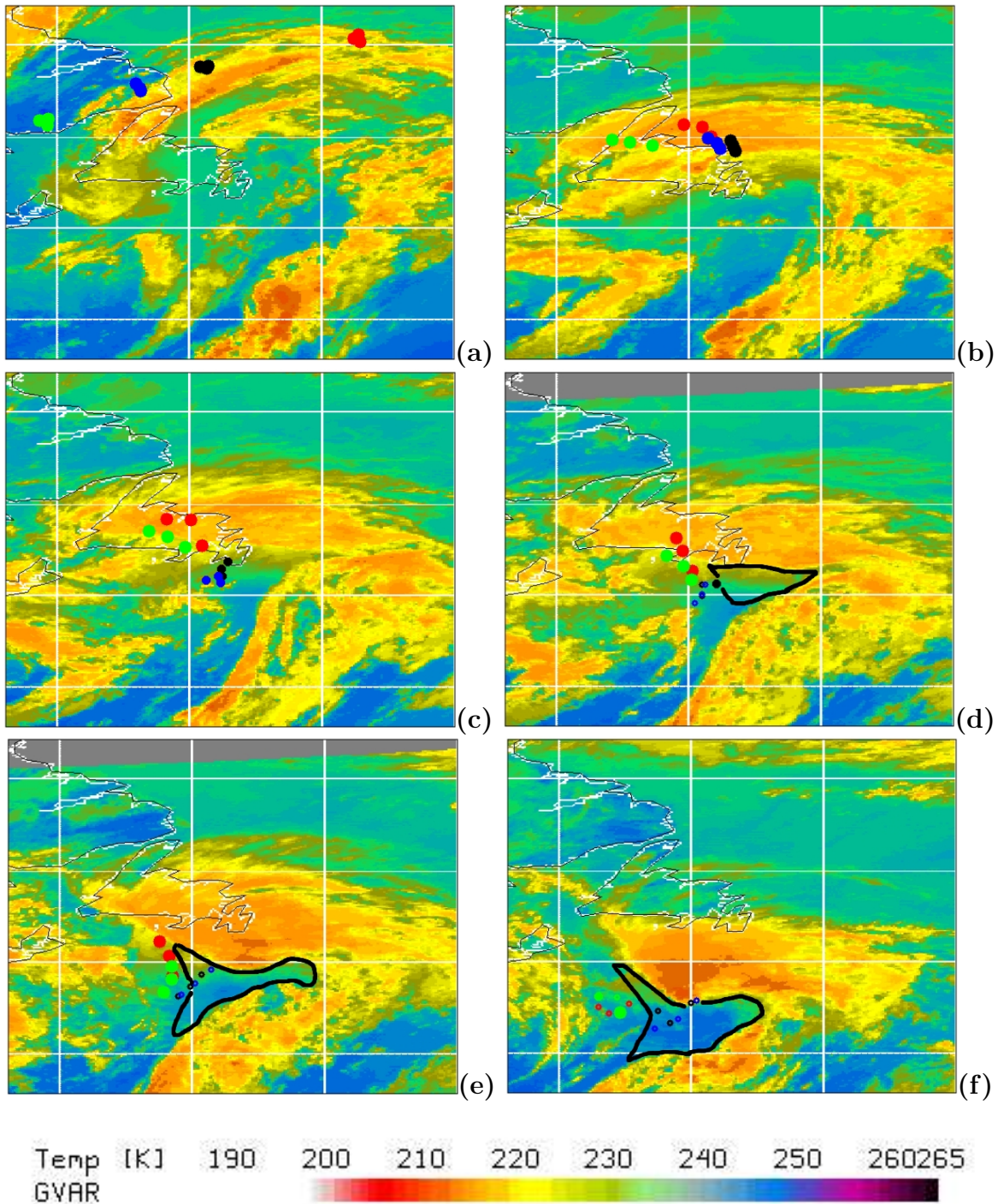


FIG. 2.8 – Positions des 3 clusters les plus bas associés aux groupes 1 (en rouge), B (en noir), C (en bleu), 3 (en vert) valable (a) le 17/07 à 15h, (b) le 17/07 à 04h, (c) le 17/07 à 01h, (d) le 16/07 à 23h, (e) le 16/07 à 20h, (f) le 16/07 à 16h. Les images satellites associées aux dates sont issues du canal infrarouge du satellite GOES. La "shallow moist zone" du schéma conceptuel de split front est délimitée en noir lorsque le cas est applicable.

### 2.2.6 Conclusion

L'utilisation d'un modèle dispersif tel que FLEXPART a montré son efficacité dans l'étude de l'origine stratosphérique de l'intrusion profonde mesurée au dessus de NewYork. La méthode d'ozone RDF obtient de bons résultats sur l'estimation de la concentration en ozone.

Un problème de définition de l'altitude en mètre des boites a été posé dans la zone humide du WCB. Ceci vient d'une erreur de la hauteur barométrique des mesures MOZAIC définie à partir d'une atmosphère standard, et peut être à cause d'une erreur d'interpolation verticale dans cette zone due à une erreur d'estimation de FLEXPART des hauteurs des champs diagnostiques de l'ECMWF sur surface sigma. L'utilisation d'une définition de boite en pression obtient de meilleurs résultats.

Le traceur passif stratosphérique de FLEXPART donne un mélange de 10% d'air stratosphérique et de 15% d'air couche limite entre les groupes B et C. La partie stratosphérique de la concentration en ozone est caractérisée, mais FLEXPART n'explique pas l'augmentation croissante enregistrée d'Est en Ouest dans la zone de divergence du WCB. Il est possible que cet échec vienne de l'utilisation successive de champs d'analyses et de prévisions de l'ECMWF qui peuvent induire une surestimation du mélange turbulent le long des trajectoires (Stohl et al., 2004). Cependant, ces résultats montrent que la zone de divergence du WCB en altitude est le lieu d'observations de concentrations chimiques issues d'échanges STE importants.

Dans la zone comprise entre le cordon ombilical et le précurseur d'altitude (groupe 3), FLEXPART obtient 10% d'air d'origine couche limite. Il confirme le résultat obtenu avec LAGRANTO. Cependant, l'ozone RDF de FLEXPART donne une valeur 100ppbv au dessus de la valeur mesurée par l'avion MOZAIC. Ceci vient du fait que les fichiers d'analyses de l'ECMWF représentent mal la structure stratosphérique traversée par l'avion à travers les groupes 3 et S2.

La position de clusters sur des images satellites GOES a montré que des masses d'air issues de la partie Ouest (groupe B) de la zone de divergence en altitude du WCB se situaient dans une zone de split front. Ce type de situation météorologique peut provoquer des mélanges convectifs méso-échelle entre de l'air stratosphérique et de l'air couche limite.

L'utilisation d'une simulation méso-échelle de la situation est alors nécessaire pour aller plus loin dans l'étude.

## 2.3 Analyse des Echanges Stratosphère Troposphère par mélange convectif dans le WCB

### 2.3.1 Introduction

Les résultats de FLEXPART ont montré qu'il existait des zones de mélange entre des masses d'air stratosphérique et des masses d'air couche limite dans la zone de divergence en altitude du WCB. Ces résultats indiquent clairement le rôle important que peuvent jouer les cellules convectives des WCB sur les échanges à travers la tropopause.

Le transport de la troposphère vers la stratosphère est moins fréquemment observé que le transport de la stratosphère vers la troposphère aux moyennes latitudes, et donc moins documenté dans la littérature scientifique. Les études de Stohl et al. (2001) [163] et Wernli and Bourqui (2002) [182] ont montré le rôle majeur des WCBs dans ces processus. Dans ces courants, un fort relachement de chaleur latente génère des transferts rapides de la basse troposphère vers la basse stratosphère. Des simulations sur des systèmes convectifs intenses ont montré des intrusions profondes troposphériques dans la stratosphère (Wang, 2003 [179], Mullendore, 2005 [120]). Le transport TST le plus intense se produit au niveau de la zone d'impact des courants ascendant les plus intenses sur la tropopause d'un système convectif (zone appelée overshooting top en anglais). Wang (2003) attribue des plumes de vapeur d'eau dans la basse stratosphère à des déferlements d'ondes de gravité au niveau de "l'overshooting top". Ces transports intenses génèrent un transfert de masse négligeable vis à vis du transport annuel total aux moyennes latitudes, mais peuvent injecter des composés chimiques à courte durée de vie dans la stratosphère, et perturber fortement la chimie locale. Les observations in-situ d'un transport TST par convection profonde aux moyennes latitudes qui atteint la basse stratosphère sont assez rares (Poulida et al., 1996 [138], Fischer et al., 2003 [63], Hegglin et al., 2004 [78]). Dans un système convectif intense des moyennes latitude, Fischer et al. (2003) ont mesuré des composés chimiques à courte durée de vie dans une couche à 200 ppbv d'ozone au dessus de l'enclume d'un cumulonimbus. Des échanges STE par mélange convectif avec une foliation de tropopause peuvent se produire également à l'arrière d'un front froid (Reid and Vaughan, 2004 [147]). Ce mélange est accentué par la turbulence due au cisaillement de vent au niveau de la foliation.

Dans cette partie, nous nous focalisons sur l'interprétation des mesures du vol MOZAIC dans la zone de divergence en altitude du WCB. Les résultats obtenus par le modèle méso-échelle MESONH sont présentés. Une description du modèle et des outils employés est faite. Une première étude sur le transport TST dans le système convectif intense de la tempête tropicale est décrite. Une deuxième étude porte sur le transport TST au niveau de la zone de split front.

## 2.3.2 Présentation du modèle MESONH

### Présentation générale

MESONH est un modèle développé conjointement par le CNRM (Centre National de Recherche Météorologiques) et le Laboratoire d'Aérodynamique [Lafre et al., 1998 ; <http://www.aero.obs-mip.fr/mesonh/>]. Ce modèle méso-échelle tridimensionnel et non-hydrostatique est destiné à simuler les mouvements atmosphériques depuis l'échelle méso- $\alpha$  (échelle des grandes perturbations atmosphériques) jusqu'à la micro-échelle (échelle de la turbulence). Des simulations à différentes échelles peuvent être réalisées avec la technique "two-way grid-nesting" (Stein et al., 2000 [160]). Le modèle est initialisé et couplé toutes les 3 heures aux limites latérales aux analyses des modèles opérationnels et de prévision de l'ECMWF.

Le système d'équations de MESONH est anélastique (approximation anélastique de Durran [1989]), ce qui permet une discrétisation temporelle explicite et de filtrer les ondes acoustiques.

Le calcul de pression est effectué par la fonction d'Exner :

$$\Pi = (P/P_o)^{R_d/C_{pv}}$$

avec :

- . P pression absolue.
- .  $P_o$  1000hPa valeur de référence de la pression absolue.
- .  $R_d$  constante des gaz parfaits pour l'air sec.
- .  $C_{pv}$  chaleur spécifique de l'air sec à pression constante.

Le schéma d'advection pour les variables scalaires est le MPDATA (Multidimensional Positif Definite Advection Transport Algorithm, Smolarkiewicz and Grabowski, 1990), schéma défini positif dérivé du schéma à flux de transport corrigé (FCT) (Zalesak, 1979 [188]), également disponible dans MESO-NH. C'est un schéma défini positif, centré spatialement et temporellement, dont les flux advectés sont corrigés si nécessaire par un facteur limitant, afin d'assurer la positivité du rapport de mélange. L'advection des quantités scalaires (particulièrement sensible pour l'analyse semi-lagrangienne) est faite au deuxième ordre.

La turbulence sous-maille est paramétrée par un modèle d'ordre 1.5 (Cuxart, 2000 [44]) avec une équation prognostique pour l'énergie cinétique turbulente et une fermeture par la détermination d'une longueur de mélange (Bougeault et Lacarrère, 1989 [28]). Ce schéma représente la turbulence dans la couche limite et dans la troposphère.

Le schéma microphysique correspond à celui de Kessler (1969) [94] qui inclue la phase glace de l'eau. L'eau est représentée par 3 phases : vapeur, vapeur nuageuse et précipitante. La convection sous-maille suit la paramétrisation basée sur les tendances des profils de température potentielle et de contenu en vapeur d'eau de Kain-Fritsch-Bechtold (Kain et Fritsch, 1993 [90] ; Bechtold et al., 2001 [23]).

Le code radiatif est celui du CEPMMT (Morcrette, 1991 [119]). Il tient compte du transfert radiatif dans les domaines infrarouge et visible en atmosphère claire et nuageuse.

Le schéma de surface (Mascart et al., 1995 [115]) est basé sur le modèle d'interaction sol-atmosphère ISBA (Interactions between the Soil, Biosphere and Atmosphere, Noilhan et Planton, 1989 [124]) pour les processus d'échange sur les continents. Sur les océans, la température de surface est fournie par les analyses du CEPMMT.

### Traceurs passifs et lagrangiens

Un traceur stratosphérique passif tri-dimensionnel est initialisé dans la simulation. Il est initialisé à 1 pour des tourbillons potentiels supérieurs à 2pvu, ce qui permet de discriminer l'air troposphérique de l'air stratosphérique. Pour éliminer l'initialisation du traceur dans les zones troposphériques où le relâchement de chaleur latente opère pour redistribuer le tourbillon potentiel (Haynes et McIntyre, 1987 [76] et 1990 [75]), la valeur est fixée à 0 lorsque :

- l'humidité relative est supérieure à 100% (cas de sursaturation)
- la température potentielle est inférieure à 340K
- la pression est supérieure à 700hPa

L'évolution du rapport de mélange du traceur passif est gouvernée par le schéma d'advection et par les schémas de turbulence et de convection.

Un traceur couche limite passif tri-dimensionnel est également initialisé dans la simulation et sera réinitialisé toutes les 3 heures. Il est égal à 1 sous la hauteur de couche limite calculé par MESO-NH, et à 0 partout ailleurs.

Dans l'analyse des processus de transport et de mélange, les rétro-trajectoires ont montré leur efficacité. Dans la majorité des modèles lagrangiens, comme LAGRANTO et FLEXPART, le calcul de rétro-trajectoires implique des problèmes d'interpolation spatio-temporelle des champs de vent issus des sortie de modèle. Cette inconvénient est souligné par Gheusi et Stein (2002) [68] qui proposent une alternative développée dans le modèle Meso-NH.

Les trajectoires lagrangiennes dans Méso-NH sont obtenues à partir de la simulation méso-échelle du transport de parcelles d'air lors de la simulation météorologique. En plus d'être advectées à chaque pas de temps du modèle, les parcelles d'air sont redistribuées par les processus sous-maille comme la turbulence et la convection. Les traceurs sont initialisés en chaque point de grille du domaine et durant la simulation, la position initiale de chaque parcelle d'air est connue. Durant la simulation, un champ des coordonnées initiales des parcelles d'air est ajouté dans la simulation eulérienne. Cette approche semi-lagrangienne permet ensuite de reconstruire une rétro-trajectoire à partir de la position initiale et de champs de sortie des positions des parcelles d'air à un instant  $t$ . Un problème peut se poser lorsque deux particules d'origine différente arrivent au même point. Ceci conduit à un mélange, et lors de la construction de la rétrotrajectoire, le modèle en déduit une position au centre de masse des deux parcelles d'air. Ceci peut fausser l'interprétation dès lors que les processus de mélange mettent en jeu des parcelles d'air d'origine très différente. Cette limitation sera discutée durant le chapitre.

### 2.3.3 Validation de la simulation

La spécificité et la complexité du cas d'étude (une tempête tropicale qui rejoint la cyclogénèse, et un cas de split front) nécessite l'utilisation d'un domaine de simulation à l'échelle synoptique pour pouvoir prendre en compte la dynamique de la tempête tropicale partant du Sud, et du front froid partant du continent. L'emploi d'un domaine imbriqué permet de descendre à une fine échelle et permet l'étude des différents processus méso-échelle mis en jeu dans ce cas d'étude.

La simulation du domaine principal a une taille de 5 500km par 5 500km. La résolution horizontale est de 28.6 km avec une grille de 192x192 points. La grille verticale composée de 101 niveaux présente une résolution de 300m avec une zone de stretching vertical dans les basses couches. La simulation est effectuée avec un pas de temps de 30 secondes, sur une durée totale de 72 heures.

Une seconde simulation imbriquée est utilisée avec une résolution de 14.3km pour une grille de 142x192 points. Le pas de temps est de 15 secondes et la période de simulation est de 24 heures.

Ces simulations ont été évaluées en comparant les sorties d'images satellites synthétiques du modèle avec les images satellites GOES en canal vapeur d'eau et infrarouge (Chaboureau et al., 2002 [36]). Sur la figure 2.9a et b, on voit que le front froid de la simulation n'a pas de décalage spatial avec la position du front sur l'image satellite. Le développement frontal a une bonne extension méridienne. Le cortège de nuages associé à la position du WCB a la même extension zonale dans la simulation et l'image satellite. Il existe cependant une sous-estimation dans la simulation de la hauteur des nuages convectifs le long du front froid. Ceci est dû à la taille de la maille du domaine principal de 28km qui ne permet pas une représentation explicite de la convection à petite échelle. De plus la tête nuageuse dans la zone de divergence du WCB est bien structurée. Enfin les intrusions sèches à l'arrière du front froid sont assez bien représentées.



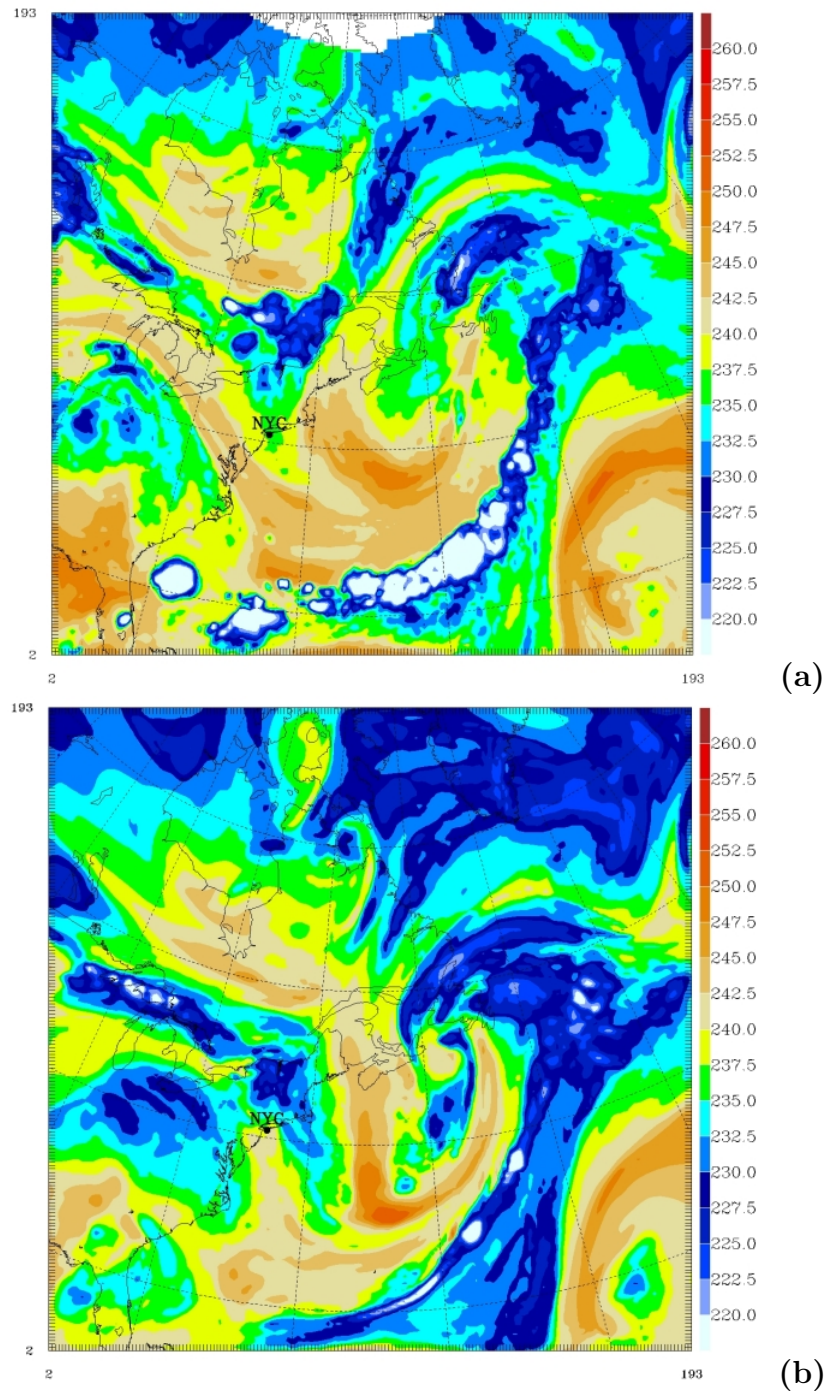


FIG. 2.9 – Images satellite GOES dans le canal vapeur d'eau (en haut) et image satellite synthétique de MESO-NH sur le domaine père (en bas). Le 17 Juillet à 12h.

Sur la figure 2.10 les valeurs de température simulées et observées par l'avion MOZAIC montrent une bonne concordance. Les valeurs de vent méridien et zonale suivent le même comportement à grande échelle dans la zone de divergence du WCB. Ces similitudes confirment la bonne qualité de la simulation à grande échelle et notamment la cohérence des champs de vent dans la zone de divergence, ce qui suppose une bonne simulation des processus mis en jeu dans cette région, et nous permet d'avoir une bonne confiance dans les résultats qui suivent obtenus à l'aide des traceurs passifs et lagrangiens advectés durant la simulation.

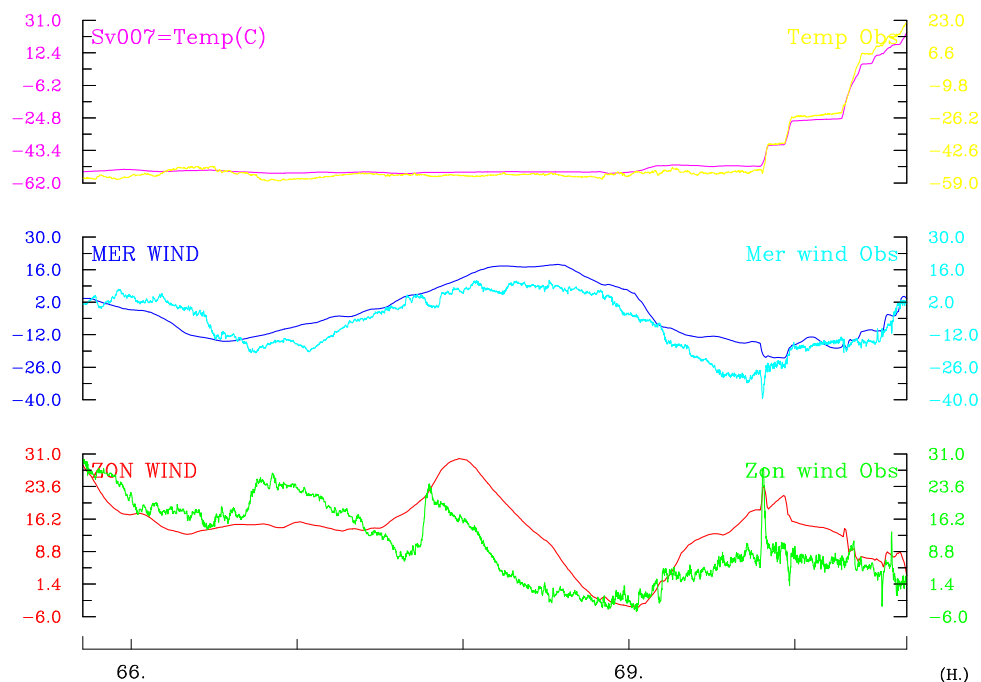


FIG. 2.10 – Mesures MOZAIC et simulation MESONH de (en haut) température, (au milieu) vent méridien, (en bas) vent zonal.

La figure 2.11 représente les mesures d’ozone du second avion MOZAIC dans la zone de divergence du WCB, avec les concentrations des traceurs passifs stratosphérique (en noir) et couche limite (en bleu) advectés dans le modèle MESONH. On constate que globalement les concentrations de traceurs couche limite et stratosphérique sont en bon accord avec les valeurs obtenues dans la figure 2.4 issues des traceurs de FLEXPART initialisés dans des boîtes définies en altitude par la pression.

On constate que le maximum de traceur stratosphérique dans la partie S3 est décalé vis à vis du pic d’ozone. La simulation est légèrement décalée, et l’utilisation de trajectoires à partir de la position de l’avion risque d’être faussée par le décalage de la structure du précurseur en altitude.

Dans la suite de l’étude, nous allons nous intéresser à la phénoménologie des processus d’échanges STE dans le domaine imbriqué, et conclure sur l’origine des variations mesurées

par l'avion MOZAIC dans la zone de divergence en altitude du WCB.

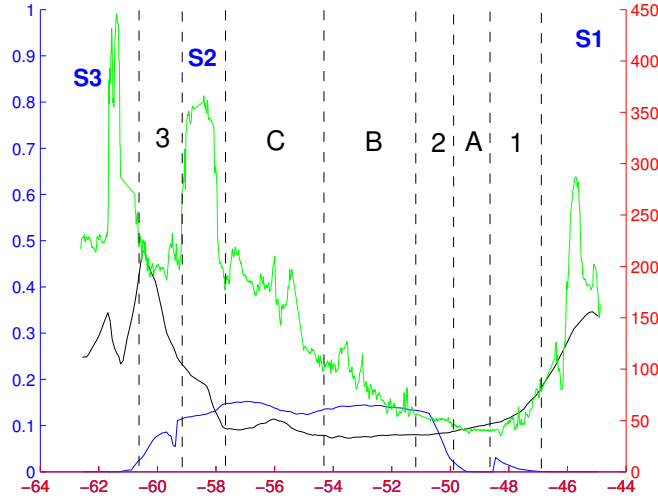


FIG. 2.11 – Mesure d’ozone (en vert) du vol MOZAIC, et pourcentage des traceurs passifs stratosphérique (en noir) et couche limite (en bleu).

### 2.3.4 Résultats

Dans MESO-NH, l’utilisation des traceurs lagrangiens le long du vol MOZAIC et l’interprétation des trajectoires comparables aux modèles LAGRANTO et FLEXPART sont certes possibles, mais demeurent toutefois délicates pour deux raisons.

D’une part, il existe un léger décalage spatial du précurseur d’altitude dans le domaine de simulation par rapport à la position du précurseur dans les analyses opérationnelles de l’ECMWF. Les champs de vent interpolés le long de la position de l’avion sont donc légèrement biaisés, et limitent d’autant plus la validité des rétro-trajectoires.

D’autre part, il a été montré grâce aux modèles LAGRANTO et FLEXPART que les parties troposphériques chargées en ozone sur la partie Ouest de la zone de divergence en altitude du WCB subissent un mélange entre de l’air stratosphérique, de l’air troposphérique et de l’air couche limite. Or, contrairement à FLEXPART, les traceurs lagrangiens dans MesO-NH ne donnent pas d’information sur la distribution des rétro-panaches des masses d’air qui se sont mélangées, mais uniquement la position du barycentre de chacun des panaches de particules.

Ainsi, lorsque une rétro-trajectoire est lancée à partir d’une masse d’air qui a subi un mélange entre des masses d’air d’origines différentes, la position obtenue à chaque pas de temps et les paramètres dynamiques associés n’ont alors que peu de signification vis à vis du mélange et de la dispersion que peut subir chacune des masses d’air le long de la trajectoire de l’avion.

Par conséquent, nous allons uniquement nous intéresser à la phénoménologie qui se produit dans le domaine de simulation, et notamment étudier les processus d'échanges STE qui se produisent au niveau de la tour convective de la tempête tropicale, et au niveau de la région de split front.

### Echanges STE dans un système convectif intense

Depuis son origine au Sud de la côte américaine jusqu'au 16 Juillet à 20h, la tempête tropicale a conservé une activité convective très intense, visible sur les différentes images satellites montrées dans ce chapitre. Par la suite, la cellule convective est sous l'influence de la dynamique du jet en altitude vers la zone de divergence du WCB.

Plusieurs études (Wang, 2003 [179] ; Mullendore et al., 2005 [120]) ont montré l'importance du transport de la couche limite vers la stratosphère dans les supercellules convectives. Ces échanges STE peuvent perturber fortement la chimie dans l'UTLS car ils transportent en quelques heures des composés chimiques issus de la couche limite.

Afin de favoriser la compréhension des phénomènes mis en jeu dans les STE de ce cas d'étude, un bref rappel de la structure d'une cellule orageuse est présentée sur la figure 2.12).

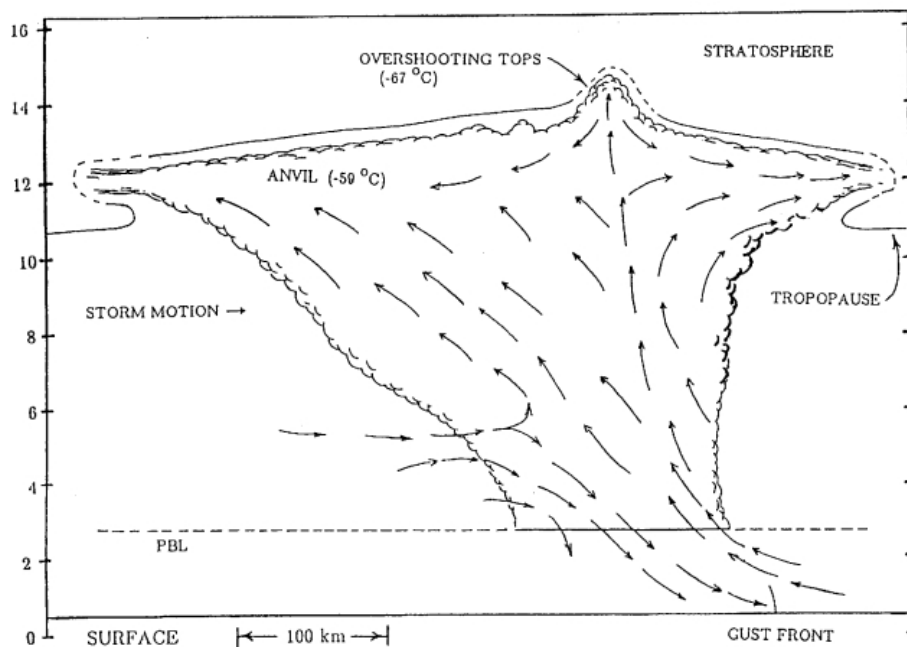


FIG. 2.12 – Schéma représentant la structure nuageuse dans une cellule convective intense. En altitude les lignes en pointillés indiquent les zones d'échanges à travers la tropopause.

Dans le cas des cellules convectives intenses comme celle illustrée sur le schéma ci-dessus la couverture nuageuse en altitude correspond à ce que l'on désigne comme l'enclume ou anvil en anglais. Elle résulte de la divergence en altitude de l'air nuageux.

Dans certains cas, l'enclume peut être surmontée d'un dôme conséquence des plus forts mouvements ascendants jusqu'à la tropopause. Le dôme désigné aussi en anglais par le terme "overshooting top" correspond à une zone d'intrusion de quelques centaines de mètres de la troposphère dans la stratosphère. L'overshooting top est le lieu d'échanges à travers la tropopause (Poulida et al., 1996 [138]; Wang, 2003 [179]; Mullendore et al., 2005 [120]). Ici dans le cadre d'un système beaucoup plus grand comme celle de la dépression du cas d'étude, le noyau de la tempête tropicale s'apparente à un système convectif de moyenne échelle ou Mesoscale Convective System (MCS). Celui-ci se situe dans le Warm Conveyor Belt. La couverture nuageuse d'altitude en forme d'enclume de la tempête tropicale s'inscrit dans la tête nuageuse d'altitude de la dépression en forme de crochet (cloud hook en anglais). Ce crochet se développe généralement au Nord Ouest du WCB et constitue souvent le signe du développement explosif d'une dépression.

La figure 2.13 est une coupe verticale faite dans le système convectif issu de la tempête tropicale dans le domaine imbriqué le 16 Juillet à 20h. A cette date, l'activité convective est encore intense. La figure 2.13a est colorée par le champ de tourbillon potentiel, et les isocontours noirs représentent les valeurs d'énergie cinétique turbulente. Les fortes valeurs de PV dans la partie basse de la coupe (entre 0 et 8km d'altitude) sont la conséquence des gradients de température et des cisaillements de vent le long du front, et d'un relâchement de chaleur latente dans les cellules convectives. Les fortes valeurs de PV sont donc créées diabatiquement. L'anomalie négative de PV qui accompagne habituellement une anomalie positive de PV, produit par relâchement de chaleur latente (eg Raymond and Jiang;1990 [145]), est visible sur la droite de l'anomalie positive.

Le champ de PV en altitude (au dessus de 8km d'altitude) est représentatif des mouvements que subit la stratosphère. On constate que ce champ de PV en altitude est très perturbé avec des zones localisées de destruction et d'ondulations de la tropopause. La structure de PV est visiblement perturbée par le flux diabatique des cellules convectives. Les 3 zones de turbulence dans cette coupe sont liées à la turbulence générée par la cellule convective.

Sur la figure 2.13b le champ de traceur passif stratosphérique (en couleur) est représenté avec le traceur couche limite (isocontours). Le traceur couche limite dessine en altitude la forme prise par l'air nuageux dans la zone de divergence, avec une partie stratiforme qui s'étale comme une enclume. Des zones de mélange entre ces 2 traceurs se situent au niveau de la tropopause, vers 13 km d'altitude, et dans la zone de subsidence de la stratosphère, sur le côté gauche de la coupe. Le mélange de ces 2 traceurs est favorisé dans les régions de turbulence vues sur la figure 2.13a.

Les conclusions obtenues avec les traceurs passifs sont en accord avec l'étude de Poulida et al. (1996) [138] qui montre que les échanges STE dans un système convectif intense se font à la fois au niveau de la tour convective et sur les bords de la couverture nuageuse d'altitude (cf schéma sur la figure 2.12).

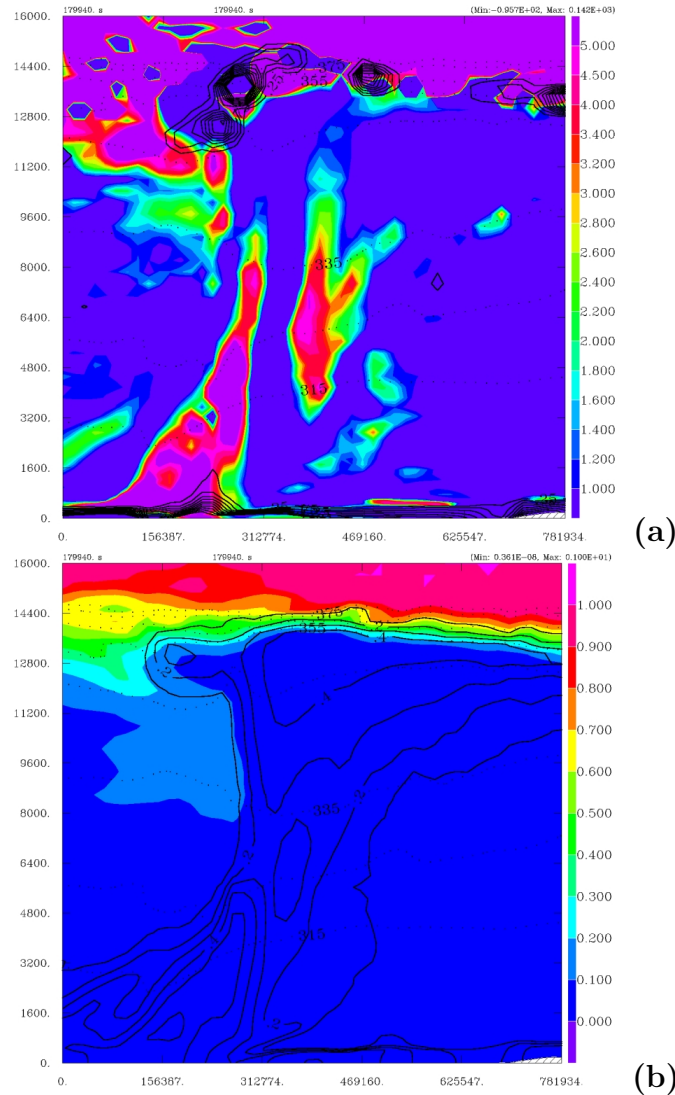


FIG. 2.13 – Coupe verticale dans le domaine imbriqué dans la cellule orageuse le 16 à 20h (a) colorée par le tourbillon potentiel. Les isocontours noirs sont associés à de l'énergie cinétique turbulente. (b) colorée par le traceur passif stratosphérique. Les isocontours noirs représente le traceur passif couche limite.

La figure 2.14a est faite sur une surface isentropique à  $\theta=355\text{K}$ . A l'aide de la distribution du traceur passif stratosphérique (en couleur), on retrouve la position du précurseur d'altitude, ainsi que la trace de la foliation sur la partie centrale inférieure de la coupe (couleur verte). Les valeurs d'humidité spécifique de 100 et 200 mg/Kg (isocontours noirs) se mélangent avec de l'air stratosphérique avec une concentration de traceur de 40% dans une bande qui suit le bord du précurseur et la partie Ouest de la couverture nuageuse associée au système convectif. Les échanges STE se font donc à travers la tropopause préférentiellement au niveau de la tour convective (overshooting top en anglais) et sur le



bord Ouest de l'enclume.

La figure 2.14b représente les valeurs d'humidité spécifique sur la surface  $PV=2\text{pvu}$ . On constate qu'il existe des ondes de gravité dans l'enclume de la cellule convective intense. Les ondes de gravité générées par convection ont été simulées dans différents systèmes convectifs. Leurs longueurs d'onde horizontales peuvent varier de 10 km à 2000km en fonction de l'intensité du système (e.g., Sato, 1993 [152]; Dhaka et al., 2003 [48]; Song et al., 2003 [156]; Kim et al., 2005 [97]). Dans notre cas, la longueur d'onde horizontale visible sur le champ d'humidité spécifique est d'environ 100km, représentatif d'un système convectif intense des moyennes latitudes.

Le fait que des ondes de gravité soient observées confirme la force du système convectif et du transport vertical au niveau de la tour convective car ces ondes semblent prendre origine au niveau de la zone d'impact de la cellule convective sur la tropopause. Wang (2003) [179] a caractérisé ces ondes de gravité ainsi que des zones de déferlement d'onde. Les vitesses verticales dans le coeur de l'updraft génèrent ces ondes de gravité. Quand l'instabilité devient suffisamment large, cela provoque des déferlements d'onde à proximité de la tour convective sur une échelle horizontale de 5km. Ces déferlements génèrent un transfert de masse profond à travers les isentropes. Ces zones de déferlement sont typiquement à une échelle inférieure à la résolution du domaine (14km) et ne peuvent pas être complètement résolues par la simulation. Cependant, on peut supposer qu'un tel mécanisme a pu contribuer aux échanges STE à proximité de la tour convective.

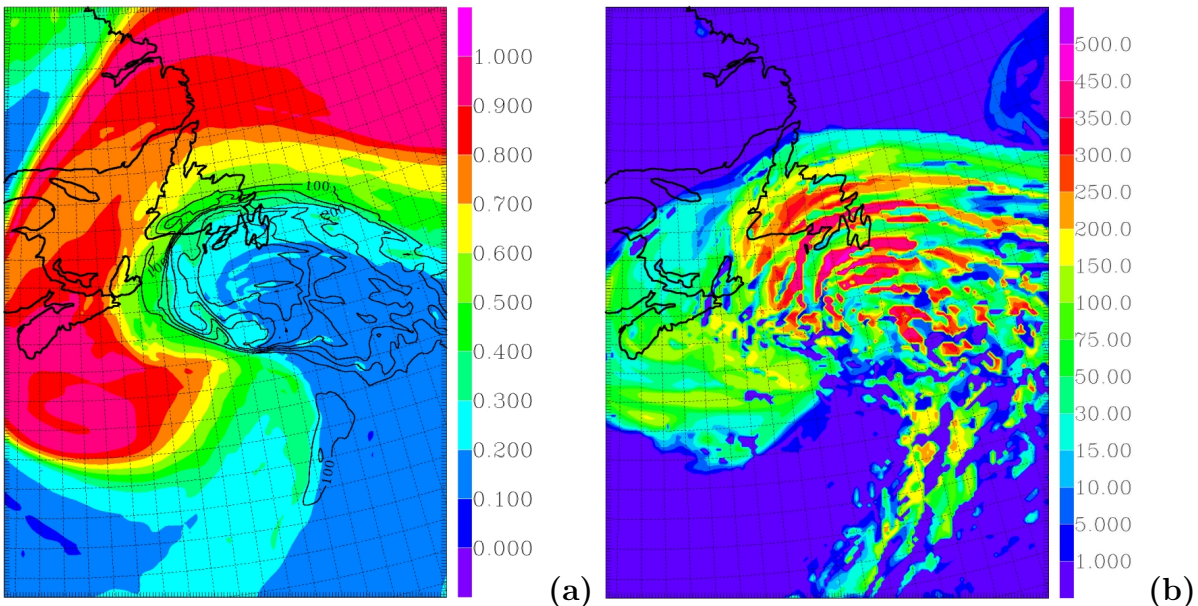


FIG. 2.14 – (a) Champ de traceur passif stratosphérique sur surface à température potentiel constant  $355\text{K}$ . Les isocontours représentent la concentration en humidité spécifique (en  $\text{mg/Kg}$ ). (b) Champ d'humidité spécifique ( $\text{mg/Kg}$ ) sur surface à tourbillon potentiel constant  $PV=2\text{pvu}$ . Coupes valables pour le 16 à 20h.

La figure 2.15a est une coupe horizontale à 12km d'altitude valable le 16 Juillet à 20h. Un champ d'altitude reconstruit est représenté en couleur sur cette coupe. Ce champ représente l'altitude qu'avaient les masses d'air le 16 Juillet à 17h en chacun des points de maille. Ce champ d'altitude est calculé à partir des trajectoires calculées par les traceurs lagrangien de MESONH (Gheusi and Stein, 2002 [68]). La position du précurseur d'altitude est visible sur cette coupe à l'aide du champ de PV (isocontours noirs). La zone bleue est associée à la zone de plus fort soulèvement vertical. Elle représente également la zone où se situe la tour convective. Dans l'étude de Mullendore et al. (2005) [120], le transport de masses d'air d'origine couche limite est le plus rapide et le plus intense dans une cellule convective. Les couches intermédiaires de la troposphère sont moins affectées car leur transport est localisé sur la périphérie des courants ascendant, et ne prend pas le coeur des "updrafts". De plus, le maximum d'injection d'air couche limite dans la stratosphère se produit au niveau de la tour convective (Wang et al., 2003 [179]; Mullendore et al., 2005 [120]).

La figure 2.15b est de même nature, mais valable le 17 Juillet à 02h. Le champ d'altitude reconstruit représente également l'altitude qu'avaient les masses d'air le 16 Juillet à 17h de chacun des points de maille. On constate que le précurseur d'altitude a suivi un mouvement en direction du Pôle. Les masses d'air ayant suivi le soulèvement le plus rapide (en bleu) qui se situaient au niveau de la tour convective le 16 Juillet à 20h, ont pris un mouvement majoritairement cyclonique. Ceci signifie que les particules pouvant avoir subi un échange STE dans la tour convective suivent un mouvement cyclonique dans la zone de divergence en altitude. Ces masses d'air d'origine troposphérique chargées en ozone vont rester préférentiellement sur le coté Ouest de la zone de divergence, coincées entre le cordon ombilical et le précurseur d'altitude.

Le groupe 3 chargé en ozone mesuré par l'avion MOZAIC a échantillonné cette région. La concentration en ozone du groupe 3 peut donc s'expliquer par un mélange convectif dans la région de la tour convective du système convectif intense issu de la tempête tropicale.

De même, les échanges STE entre le bord de l'enclume et le précurseur ont suivi le mouvement de déformation du précurseur. Le gradient d'ozone relativement faible enregistré dans le groupe 1 à proximité du cordon ombilical est dû aux échanges STE convectifs le long du bord de l'enclume qui tendent à réduire le gradient d'ozone à proximité de la tropopause.



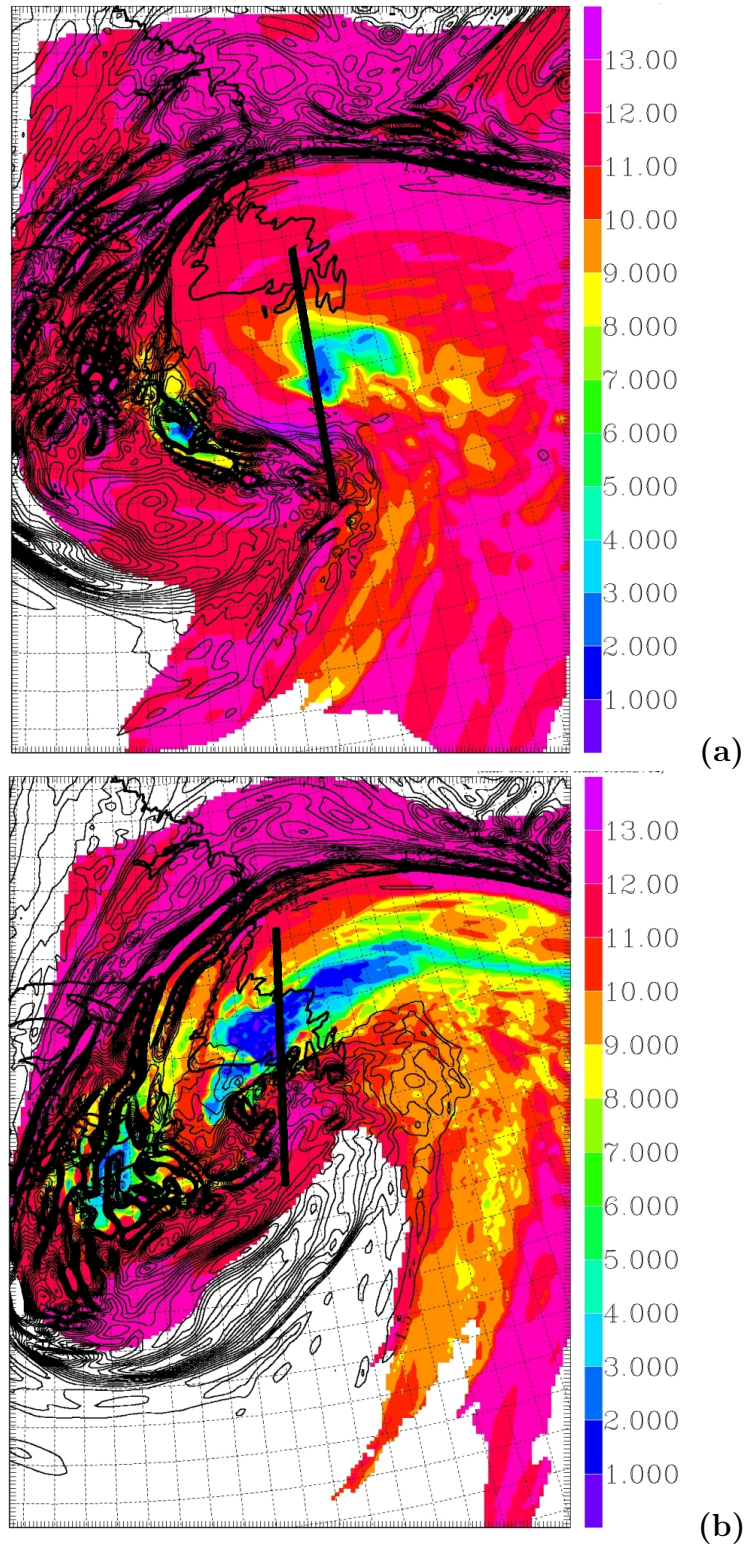


FIG. 2.15 – Coupes horizontales à 12km d'altitude d'un champ d'altitude reconstruit. Les isocontours représente le champ de tourbillon potentiel. (a) La coupe est valable le 16 à 20h. Le champ d'altitude représente l'altitude des particules 3h avant. (b) la coupe est valable pour le 17 à 02h. Le champ d'altitude représente l'altitude des particules 9h avant.

### Mélanges convectifs dans la zone du split front

Dans la section 2.1 portant sur l'analyse du cas d'étude, la coupe verticale de la figure 12 de l'article et l'image satellite figure 3 de l'article ont montré qu'une partie du WCB pouvait être représentée par le modèle conceptuel de "split front".

Le principe du modèle de split front (Browning and Monk, 1982 [31]) est présenté sur la figure 2.16a. Le front en altitude se place en avant du front de surface et forme une zone de nuages bas le long du front froid appelée "shallow moist zone". L'instabilité due à la position du DA au dessus du WCB dans la shallow moist zone déclenche de la convection dans le WCB. Ces cellules peuvent favoriser les mélanges convectifs entre le WCB et le DA.

La figure 2.16b est une coupe verticale colorée par la vitesse verticale avec les pourcentages de traceur passif stratosphérique (isocontours noirs), valide le 16 Juillet à 21h dans le domaine de simulation principal. Cette coupe verticale a été faite à la même position et au même instant que la coupe verticale de la figure 12 de l'article issue du modèle LAGRANTO c'est à dire parallèle au WCB. La zone d'ascendance forte et penchée sur la partie droite de la coupe verticale représente l'ascendance à grande échelle associée au mouvement du WCB. Les isocontours de PV (en noir) entre 8 et 12km d'altitude sont associés au DA et se positionnent au dessus de la zone d'ascendance du WCB. Cette coupe verticale simule bien le cas de "split front".

Une cellule convective méso-échelle est visible sur la figure 2.16b à la base de l'ascendance du WCB, mais non présente dans la zone blanche de la coupe de la figure 12 de l'article, relative à la circulation du WCB. Cette cellule méso-échelle n'est pas assez large pour pouvoir être résolue par le modèle ECMWF, et donc sa vitesse verticale n'a pas été prise en compte dans les rétro-trajectoires du modèle LAGRANTO. Cette cellule convective, qui a pu être déclenchée par l'effet "split front", peut mélanger de l'air du DA potentiellement chargé en ozone avec de l'air du WCB. Cette cellule convective suggère qu'un mélange convectif peut se produire entre la foliation de tropopause et le WCB au dessous.

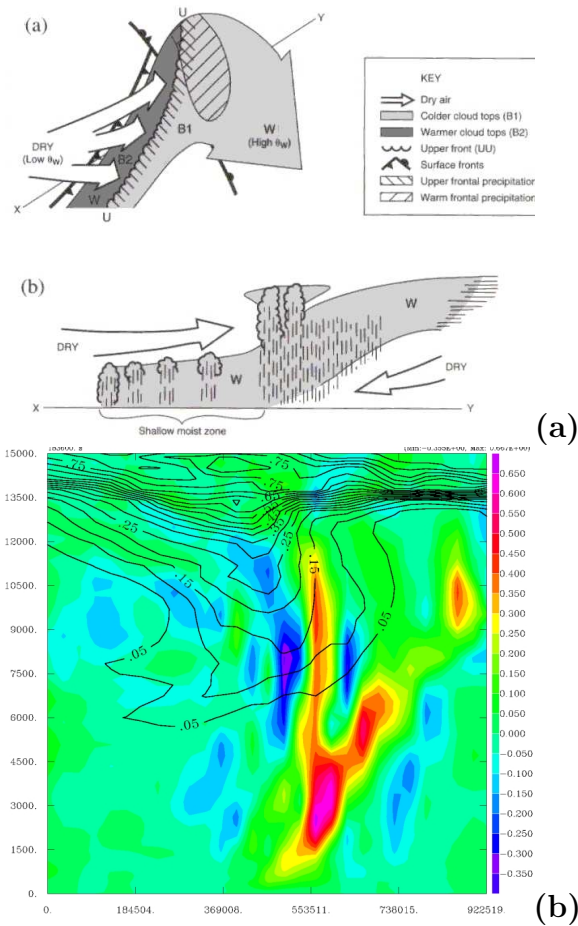


FIG. 2.16 – (a) Schéma du modèle conceptuel de split front (Browning and Monk, 1982). (b) Coupe verticale de vitesse verticale (m/s, en couleur) avec le pourcentage de traceur stratosphérique (isocourbes noires) valable le 16 Juillet à 21h.

Nous décidons d'étudier les processus d'échanges STE dans la zone de split front à l'aide de particules relâchées dans une boîte qui englobe de l'air du DA et de l'air du WCB. La figure 2.17a représente le domaine de simulation du domaine imbriqué. La position de l'air stratosphérique ( $PV \geq 2pvu$ ) sur une coupe horizontale à 12.3 km d'altitude le 16 Juillet à 22h est représentée par le masque noir de la figure. On positionne une boîte (rectangle rouge sur la figure) sur le domaine dont la hauteur est entre 9 et 16km d'altitude, où des particules sont relâchées.

La figure 2.17b représente un champ de PV (en couleur) et un champ d'humidité spécifique (isocourbes noires) sur la coupe verticale en longitude (trace verte horizontale sur la figure 2.17a). Le rectangle noir représente la position de la boîte en longitude dans la coupe verticale. On constate que de l'air du précurseur avec un fort PV et de l'air troposphérique sec descendant jusqu'à 7km d'altitude associés au courant DA se situent sur le côté gauche de la coupe. L'air humide sous le DA est associé à la "shallow moist zone",

et de l'air humide en altitude sur le coté droit est associé au transport vertical des cellules convectives. Sur la coupe 2.17b, la trace de la foliation est associée à l'anomalie positive de PV visible sur la partie centrale du rectangle noir. La boîte est donc positionnée en altitude entre l'air stratosphérique du DA et le sommet des cellules convectives intenses le long du front d'altitude que décrit le schéma conceptuel de split front.

La figure 2.17c représente un champ de tourbillon potentiel (en couleur) et un champ d'humidité spécifique (isocontours noirs) sur une coupe verticale latitudinale (trace verte verticale sur la figure 2.17a). La figure 2.17d représente un champ de vitesse verticale (en couleur) et un champ de tourbillon potentiel (isocontours noirs). Le rectangle noir sur ces deux coupes représente la position de la boîte en latitude. Plusieurs cellules convectives sont visibles dans la boîte, avec des ascendances de l'ordre de  $0.2$  à  $0.4 \text{ ms}^{-1}$  et des subsidences de l'ordre de  $-0.2 \text{ ms}^{-1}$ . On constate aussi sur le champ de PV que la foliation de tropopause se situe sur la partie nord de la boîte entre 11.5km et 13km d'altitude. Vu l'extension verticale des courants ascendant et subsidant, des échanges STE par convection peuvent donc se produire dans cette boîte entre la foliation de tropopause ou le précurseur d'altitude, et le WCB. La divergence en altitude subie par les particules relâchées dans la boîte, et la nature des échanges STE subis sont présentées dans le paragraphe suivant.

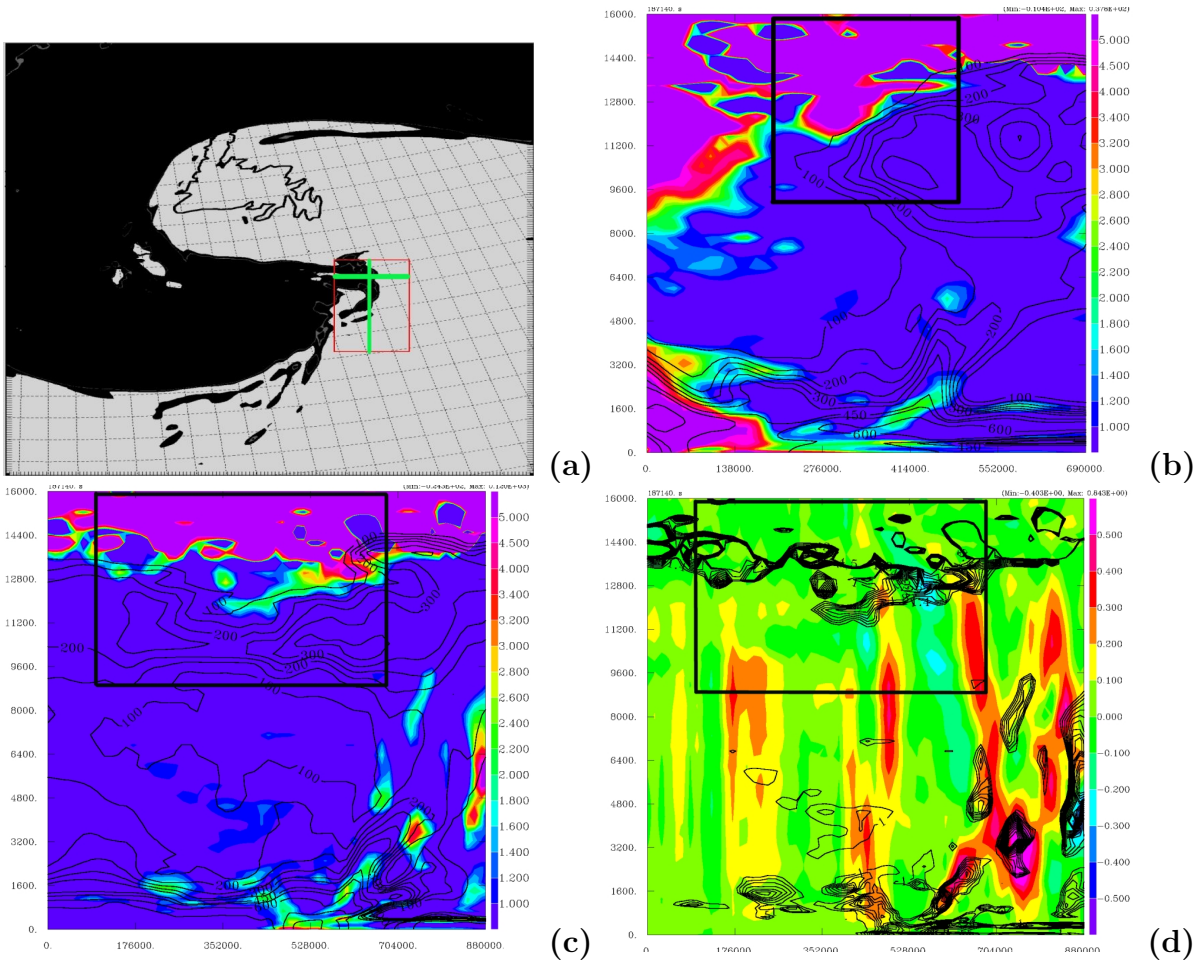


FIG. 2.17 – (a) Coupe horizontale à 12.3km d'altitude. Les parties noires sont de l'air stratosphérique. Les parties gris clair de l'air troposphérique. Le rectangle noir d'une hauteur entre 9 et 13km représente la boîte où les particules ont été relâchées le 16 Juillet à 22h. (b) Coupe verticale méridienne représentant le PV (pvu, en couleur) et l'humidité spécifique (gKg, isocontours noirs). (c) Coupe verticale longitudinale représentant le PV (pvu, en couleur) et l'humidité spécifique (gKg, isocontours noirs). (d) Coupe verticale longitudinale représentant la vitesse verticale ( $m.s^{-1}$ ) et le PV (pvu, isocontours noirs). La coupe horizontale et les 3 coupes verticales sont valables le 16 Juillet à 22h. Les traces des coupes verticales sont représentées en vert sur la coupe horizontale

Sur les figures 2.18a,b,c et d, les lignes vertes représentent des lignes de courant au niveau de la coupe à 12.3km d'altitude. Elles permettent de mieux apprécier les mouvements de déformation dans la zone de divergence en altitude. La stratosphère est représentée en noir sur les coupes, tandis que la troposphère est représentée en gris. Sur les figures successives, les particules rouges (jaunes) représentent les particules qui avaient un PV inférieur à 1.5pvu (supérieur à 2.5pvu) dans la boîte initiale le 16 Juillet à 22h, et qui ont un PV supérieur à 2.5pvu (inférieur à 1.5pvu) à l'instant de chacune des coupes. Cette augmentation (diminution) rapide d'1pvu de ces particules est significative d'un échange diabatique de la troposphère (stratosphère) vers la stratosphère (troposphère). Les particules rouges peuvent donc être associées à des particules ayant subi des échanges TST par convection (vu l'échelle de temps assez court de l'évolution du PV), et les particules jaunes à des échanges STT. Les particules n'ayant subi aucun changement significatif de PV de part et d'autre de la valeur 2pvu ne sont pas représentées. Cependant, elles correspondent à la majorité des points relâchés dans la boîte.

Sur les 4 coupes de la figure 2.18, les particules ayant subi des échanges STE se situent entre 11.7 et 12.6km d'altitude. Ces particules sont donc représentatives des échanges STE qu'a subis la région UTLS lorsque l'avion MOZAIC a traversé la zone de divergence en altitude, le 17 Juillet à 14h. L'altitude de la coupe de 12.3km a été choisie pour représenter au mieux la position de l'ensemble des points jaunes et rouges vis à vis du précurseur d'altitude. On constate sur les figures que quelques particules rouges sont dans la troposphère et quelques particules jaunes sont dans la stratosphère, ce qui est contraire à la définition donnée aux points jaunes ( $PV \leq 1.5$ ) et rouge ( $PV \geq 2.5$ ). Ceci vient du fait que le masque noir associé à l'air stratosphérique à 12.3km ne rend pas compte de l'évolution en 3D de la tropopause, tandis que la répartition 3D des particules est projetée sur cette coupe.

En regardant les figures successives de 2.18a à 2.18d, les particules colorées ayant subi des échanges STE s'étirent à la fois de façon cyclonique et majoritairement anti-cyclonique. Les particules relâchées dans la boîte représentent clairement la zone de divergence en altitude liée à la dynamique du DA et du WCB. Dans la zone de courbure anticyclonique, l'air stratosphérique (précurseur d'altitude et la foliation de tropopause) qui s'étire dans la zone de divergence s'accompagne de beaucoup de points ayant subi des échanges TST (points rouges). La partie stratosphérique qui a pris une courbure cyclonique est associée à un nombre plus faible de particules colorées (répartition 3D des particules non montrée). Vu le trajet des particules, on constate que l'air stratosphérique qui a divergé le plus anticycloniquement se situait dans la partie centrale de la boîte et a subi un mélange convectif intense, tandis que la partie qui a divergé cycloniquement se situait plus au Nord dans la boîte.

Cette série de 4 coupes montre que plus l'air stratosphérique se place au dessus de cellules convectives du WCB, plus il subit de mélange convectif, et plus il s'étire de façon anti-cyclonique en suivant la dynamique en altitude du WCB. Au contraire, l'air stratosphérique éloigné du WCB subit un mélange convectif plus faible, et suit préférentiellement la dynamique en altitude du DA en s'étirant de façon cyclonique.

Ici, la majorité des échanges STE sont des échanges TST, caractéristiques d'un mélange convectif de l'air stratosphérique (précurseur d'altitude et foliation) tandis qu'une faible



partie des échanges STE sont des échanges STT. Les points jaunes associés à un transport STT sont assez rares et ne semblent pas suivre de mouvement de divergence préférentiel. L'existence sur la figure 2.18b d'échanges STT (points jaunes) peut être caractéristique d'échanges à travers la foliation de tropopause, ou bien par un mouvement de déentraînement convectif de l'air stratosphérique dans la troposphère.

Force est de constater que des particules initialisées dans une boîte à un instant donné (ici le 16 Juillet à 22h) ne rendent pas compte à elles seules de l'ensemble des échanges STE qu'a subi l'air stratosphérique du précurseur d'altitude ou de la foliation au dessus du WCB. Cependant, un résultat général peut être tiré de cette étude lagrangienne. L'air du DA diverge cycloniquement et anticycloniquement dans la zone de divergence en altitude. La partie qui diverge anticycloniquement s'est positionnée à proximité ou au dessus d'une zone de split front et l'air stratosphérique du DA a subi un mélange convectif. L'air du DA qui diverge cycloniquement se situait plus à l'écart des échanges TST potentiels dans la zone de split front ou à proximité des cellules convectives profondes.

Ainsi, la mesure croissante d'ozone de l'avion MOZAIC de la partie Est vers la partie Ouest de la zone de divergence (entre les groupes 1 et C) peut donc s'expliquer par une diminution croissante d'échanges TST d'Est en Ouest avec l'air stratosphérique du DA (précurseur d'altitude ou foliation de tropopause) et l'air du WCB.

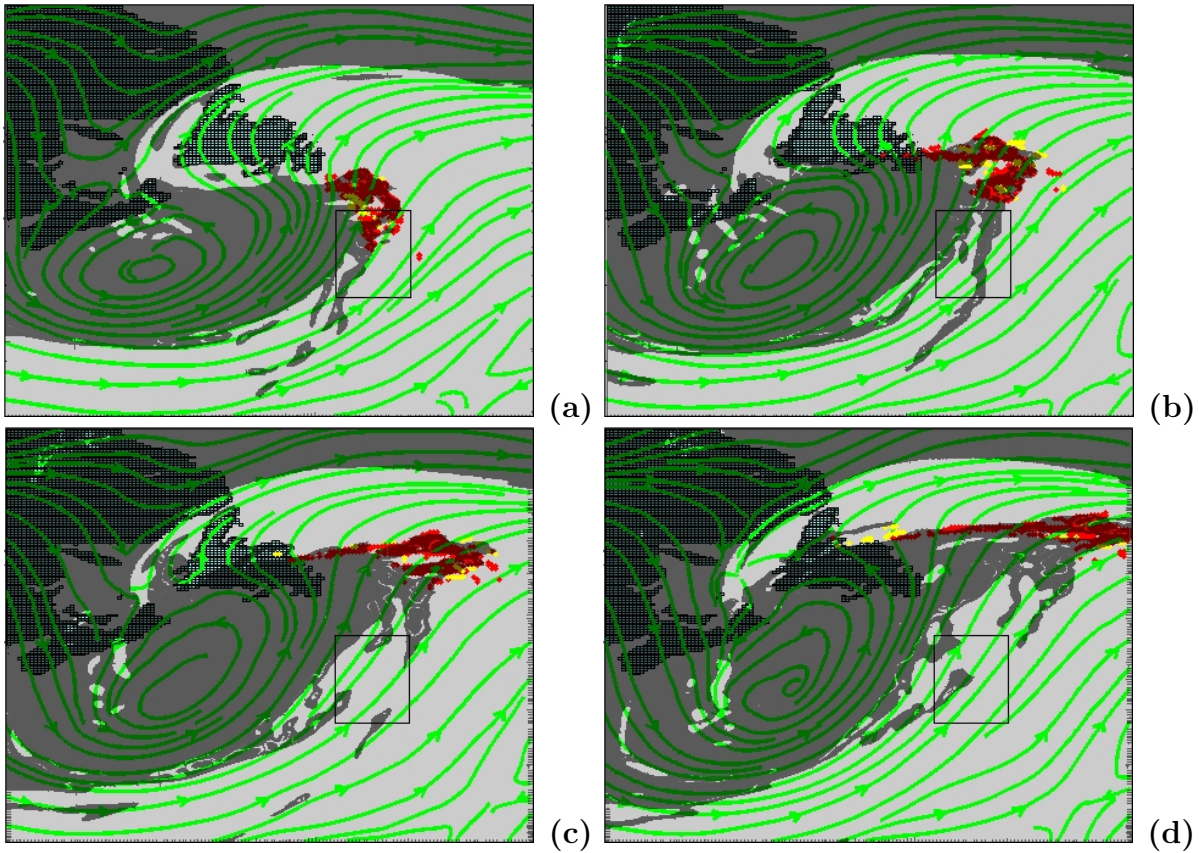


FIG. 2.18 – Coupes horizontales à 12.3km d'altitude. Les parties noires sont de l'air stratosphérique. Les parties gris clair de l'air troposphérique. Le rectangle noir d'une hauteur entre 9 et 13km représente la boîte où les particules ont été relâchées le 16 Juillet à 22h. Les coupes sont valables le 17 Juillet à (a) 00h, (b) 02h, (c) 04h, (d) 06h, les isocontours verts représentent les lignes de courant au niveau de la coupe. Les particules rouges (jaunes) représentent les particules qui avaient un PV inférieur à 1.5pvu (supérieur à 2.5pvu) à l'instant initial et ont un PV supérieur à 2.5pvu (inférieur à 1.5pvu) à l'instant de la coupe, significatif d'un échange de la troposphère (stratosphère) vers la stratosphère (troposphère).



### 2.3.5 Conclusion

Deux processus d'échange à travers la tropopause ont été caractérisés par MESONH.

Le premier processus est relatif aux échanges STE dans les systèmes convectifs intenses (Poulida et al., 1996). Une tempête tropicale a pris naissance en Floride et est remontée vers le Nord le long de la côte américaine pour atteindre la cyclogénèse des moyennes latitudes décrite précédemment. Cette tempête tropicale a conservé une forte intensité jusqu'au 16 Juillet 20h et a perdu en intensité peu après (cf figures satellites). Les figures 2.13 et 2.14 montrent que des échanges STE se font à la périphérie de l'enclume et que des zones potentielles de déferlement d'ondes de gravité peuvent accentuer ces échanges.

La figure 2.15 montre que les particules au niveau de la tour convective suivent un mouvement cyclonique dans la zone de divergence et se placent entre le précurseur d'altitude et le cordon ombilical. Cette partie est associée à une mesure de 200ppbv d'ozone dans le groupe 3. Les échanges STE le long du bord de l'enclume sont caractérisés par le faible gradient d'ozone lors de la traversé de la tropopause entre le groupe 1 et S1.

Le deuxième processus est relatif au modèle conceptuel de split front. Une étude lagrangienne a été menée à la fois dans le précurseur d'altitude et le WCB (figure 2.18). Elle montre qu'il existe un mélange convectif entre l'air stratosphérique du DA et l'air du WCB dans les cellules convectives intenses dans la zone de split front. La partie stratosphérique ayant le plus subi de mélange convectif, c'est à dire la partie la plus à l'Est, subi un étirement dans la zone de divergence et suit un mouvement anticyclonique. Durant le passage de l'avion MOZAIC dans la zone de divergence en altitude, l'augmentation croissante d'ozone mesurée d'Est en Ouest est liée à une diminution croissante du mélange convectif subi précédemment dans la zone de split front.

## 2.4 Discussion

### 2.4.1 Modélisation des processus d'échanges STE

Un tableau récapitulatif des résultats obtenus dans ce chapitre est donné :

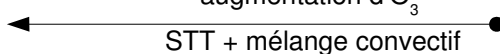
	S3	3	S2	C	B	2	A	1	S1
Analyses	Cordon	Préc.	Préc.	Préc.	Préc.	Tropo	Tropo	Tropo	Cordon
ECMWF	ombilical	d'altitude	d'altitude	d'altitude	d'altitude				Ombilical
RDF	Cordon	Basse	Préc.	Foliation	Haute	Basse	Jet	Basse	Cordon
Lagranto	ombilical	Tropo	d'altitude		Tropo	Tropo	Sub.	Tropo	Ombilical
Dispersion	100% ST	60% ST	25% ST	10% ST	10% ST	10% ST	20% ST	35% ST	100% ST
FLEXPART		10%CL	15%CL	15%CL	15%CL	15%CL	15%CL	18%CL	
Meso-NH		TST					augmentation d'O <sub>3</sub>  STT + mélange convectif		

FIG. 2.19 – Tableau récapitulatif des résultats obtenus avec les différentes méthodes utilisées dans ce chapitre

- Les Analyses ECMWF décrivent la traversée d'un thalweg d'altitude associé au développement d'une dépression durant le segment de vol MOZAIC (figure 5 de l'article). Dans ces analyses, l'avion vole dans la stratosphère entre les groupes B et S3 et aucune analyse des groupes B, C et 3 n'est possible.
- Le succès de la technique RDF avec LAGRANTO est de détecter la foliation de tropopause en moyenne troposphère dans le profil vertical à New-York et dans le vol de croisière en altitude (groupe C). L'incapacité de LAGRANTO à décrire les mouvements d'échelle convective empêche la technique d'identifier le processus de baisse d'O<sub>3</sub> dans le groupe 3 (par rapport aux groupes S2 et S3). Cependant l'origine des particules de ce groupe dans la basse troposphère est une indication d'un transport TST. L'augmentation régulière d'O<sub>3</sub> entre les groupes 1 et C n'est pas expliquée. Les groupes 3, 2 et 1 sont d'origine basse troposphère et ont suivi la divergence en altitude du WCB. La forte concentration en ozone du groupe C est la signature d'une STT dans une foliation de tropopause.
- FLEXPART confirme les résultats de LAGRANTO pour la foliation de tropopause. Il simule avec succès l'intensité de la foliation (position, épaisseur, concentration) avec une technique RDF appliquée à une ozone stratosphérique synthétique. Cependant, les paramétrisations physiques de FLEXPART (convection, turbulence) ne permettent pas d'élucider l'origine du groupe 3, ni le gradient constant d'O<sub>3</sub> entre les groupes 1 et C. Un mélange entre de l'air stratosphérique (10%) de l'air d'origine couche limite (15%) se produit dans les groupes B et C.

- Dans la simulation Meso-NH, la dépression se creuse trop et se déplace trop rapidement au nord. Les comparaisons quantitatives avec les données MOZAIC ne sont donc pas possibles sans un recalage spatio-temporel adéquat. Cependant les structures synoptiques (précurseur d'altitude, dépression en surface) et méso-échelle (cordon ombilical, foliation) et les courants cohérents (WCB et DA) sont bien représentés et permettent une étude phénoménologique pour l'interprétation de l'origine du groupe 3 et de l'augmentation d' $O_3$  entre les groupes 1 et C. Le modèle montre aussi la signature d'une TST au niveau de l'overshooting top de la tour convective de la tempête tropicale dans le groupe 3. L'augmentation d' $O_3$  d'Est en Ouest du groupe 1 au groupe C est due à une baisse des échanges TST par mélange convectif de la foliation et du DA qui se sont produits dans la zone de split front. Le faible gradient d'ozone entre le cordon ombilical S1 et le groupe 1 est dû aux échanges STE sur le bord de la couverture nuageuse du cloud hook.

La technique RDF employée avec LAGRANTO a permis d'améliorer la structure stratosphérique du précurseur d'altitude qu'a traversé l'avion MOZAIC. L'origine troposphérique du groupe 3 a pu être obtenue par LAGRANTO grâce à la largeur importante des ascensions dans la tour convective de la tempête tropicale dont les champs de vent verticaux ont pu être résolus par les analyses de l'ECMWF. Cependant, les échanges convectifs qu'a subi la foliation entre les groupes C et B n'ont pas pu être résolus à cause d'une faible résolution ( $0.5^\circ$ ) des champs diagnostiques de l'ECMWF. D'ailleurs, LAGRANTO montre une limitation, inhérente aux modèles lagrangiens, pour interpréter quantitativement les processus de mélange tels que ceux rencontrés dans le WCB de ce cas d'étude. Cependant, l'utilisation des modèles lagrangiens reste efficace par une analyse qualitative des situations synoptiques, et de la reconstruction de structure méso-échelle par technique RDF.

Dans la section 2.2, le modèle dispersif lagrangien FLEXPART a permis de quantifier les mélanges, et confirmer l'analyse qualitative de LAGRANTO. Ainsi, ces deux approches lagrangienne et dispersive sont complémentaires dans les études de cas d'échanges STE.

Les valeurs d'ozone RDF obtenues sur l'intrusion stratosphérique profonde sur le côté Ouest du thalweg et au niveau des traversés du cordon ombilical montrent la bonne représentativité des processus de mélange turbulent et d'advection dans le modèle FLEXPART.

Dans la section 2.3, MESONH démontre la nécessité d'utiliser un schéma convectif paramétré pour modéliser efficacement les processus d'échanges STE mis en jeu dans ce cas d'étude. Les modèles LAGRANTO et FLEXPART ne permettent pas explicitement l'interprétation de l'augmentation régulière d'ozone dans la zone de divergence du WCB dans ce cas d'étude parce que les processus de mélange convectif entre l'air stratosphérique du DA et l'air humide du WCB sont des processus sous-maille vis à vis du modèle opérationnel ECMWF, et de ce fait sont mal modélisés dans ces deux modèles lagrangiens.

L'utilisation de traceurs semi-lagrangiens dans MESO-NH permet une étude phénoménologique des processus d'échange et de mélange. L'information sur la dispersion des rétrotrajectoires, disponible dans FLEXPART, de chacun des points de mesures in-situ est nécessaire pour comparer les mesures in-situ d'ozone et de CO avec l'origine des rétro-panaches. Une étude

lagrangienne méso-échelle par l'utilisation du modèle dispersif FLEXPART à l'aide des sorties du modèle MESO-NH serait un outil efficace pour caractériser l'ensemble des processus de mélange rencontré par l'avion.

Ainsi, ce cas d'étude montre combien est difficile la représentation réaliste de processus d'échange TST par convection dans les modèles. Une estimation réaliste de ces processus est cependant indispensable pour l'interprétation du bilan chimique dans la région de la tropopause.

### 2.4.2 Spécificité du cas d'étude

Ce cas d'étude est rare puisqu'il met en jeu, dans une dépression d'été des moyennes latitudes, une intrusion stratosphérique profonde, des échanges convectifs au niveau d'une tempête tropicale, et des échanges convectifs dans le cas d'un front en "split front".

Les cas convectifs intenses sont assez caractéristiques de la période d'été. Durant cette saison, les cas d'intrusions convectives profondes ont été plusieurs fois observés dans la littérature, et modélisés. On constate que chacun de ces processus a eu pour effet de réduire les gradients chimiques au niveau de la tropopause. Le gradient chimique d'ozone est d'ailleurs nettement plus affecté que celui du CO. Ces deux cas convectifs ont donc pour effet de réduire le gradient d'ozone et de CO dans la région de la tropopause.

Le mélange convectif dans la stratosphère est faible comparé au transport induit par des structures à plus grande échelle. Mais à cause de son efficacité à transporter des masses d'air d'origine couche limite, la convection profonde peut être une source significative de composé halogène ou de traceurs troposphériques volatiles dans la basse stratosphère.

Le cas d'intrusion stratosphérique profond est très rare en été. Le mélange turbulent en ciel clair qui a dû charger en CO la partie haute de la foliation, combiné au mélange convectif dans le split front avec un air couche limite faiblement chargé en CO, a généré cette augmentation simultanée en ozone et CO, augmentation qui est à l'origine de la détection de ce cas d'étude.

Ces trois processus d'échanges STE combinés dans un système frontal des moyennes latitudes sont certes intenses (ce qui explique notamment pourquoi est ce que les trajectoires lagrangienne de LAGRANTO ont une bonne représentation des phénomènes malgré le manque d'un schéma convectif), mais ils sont caractéristiques de processus diabatiques et adiabatiques moins intenses et plus fréquemment observés dans les systèmes frontaux des moyennes latitudes. Ce cas d'étude cristallise à lui seul le manque de connaissance actuel des échanges STE en été, et les problèmes de modélisation de ces processus de manière général. La difficulté de leur caractérisation font que leur représentation dans les modèles globaux est d'autant plus sujet à caution.



# Chapitre 3

## Etude lagrangienne de la stratification troposphérique

### 3.1 Introduction

La structure en couches quasi-horizontales de la troposphère extratropicale et son ubiquité ont été constatées à l'aide des données MOZAIC (e.g., Newell et al., 1999 [123]; Thouret et al., 2000 [171]). Après classification, une classe importante de ces couches est caractérisée par une anomalie positive d'ozone, une anomalie négative d'humidité relative, une épaisseur moyenne de 860m et un volume d'occupation moyen de la troposphère d'environ 11%. Une région source de ces structures laminaires sont les zones frontales. Une zone frontale est une zone limite entre masses d'air d'origines différentes. La connaissance des structures détaillées de ces régions est d'une grande importance pour comprendre les rôles relatifs du transport et de la chimie sur les bilans chimiques des gaz traces dans la troposphère (eg Bethan et al., 1998 [150]). Les zones frontales délimitent les masses d'air ayant pris les ascendances d'un WCB et les subsidences du DA. Le transport dans la branche ascendante principale du WCB (Browning, 1990 [30]) d'une dépression extratropicale, est considéré comme étant le principal mécanisme de transport de la couche limite vers la haute troposphère aux moyennes latitudes (Stohl, 2001 [163]; Cooper et al., 2001 [41]). De même, l'intrusion sèche subsidente du DA (Cooper et al., 1998 [39]; Stohl and Trickl, 1999 [168]) transporte de l'air sec, potentiellement riche en ozone de la région de la tropopause vers la basse troposphère. Dans un système frontal, le front froid représente la frontière entre ces deux masses d'air. Les processus de mélange dans cette région peuvent mettre en relation de l'air potentiellement humide et pollué avec de l'air stratosphérique. Une étude de Cooper et al. (2004) [38] porte sur le mélange d'une intrusion stratosphérique profonde d'un DA dans deux WCB. Il montre que 50% de l'air stratosphérique injecté dans la troposphère est mélangé avec de l'air d'un WCB. Esler et al. (2001) [58] a récemment montré que le mélange entre les masses d'air du DA et du WCB, avec un tel contraste chimique dû à leur origine, peut avoir une implication sur la concentration moyenne en radicaux OH et peut de ce fait affecter le bilan chimique de plusieurs gaz traces.

Le transport irréversible de la stratosphère vers la troposphère dans les foliations de tropopause dépend du degré de filamentation de ces structures à fine échelle (Vaughan et al., 1994 [66]; Appenzeller et al., 1996 [16]; Langford and Reid, 1998 [102]; Karpetchko et al., 2003 [93]). La filamentation commence à proximité du courant jet par advection différentielle et cisaillement de vent (Appenzeller et Holton, 1997 [15]).

En l'occurrence, la filamentation crée une distribution laminaire des espèces chimiques dans les profils verticaux (Newell et al., 1999 [123]; Bithell et al., 1999 [107]; Curtius et al., 2001 [84]; Esler et al., 2003 [57]). Cette filamentation dans la troposphère peut persister pendant plusieurs jours après l'intrusion stratosphérique (Bithell et al., 2000 [59]). Les intrusions stratosphériques s'étirent et se filamentent au fur et à mesure à des échelles de plus en plus fines et s'intercalent avec l'air troposphérique au gré des passages successifs entre dépressions et anticyclones. Le mélange irréversible de l'air stratosphérique durant la durée de vie de la foliation est influencé par différents mécanismes comme les processus radiatifs qui dissolvent l'anomalie de PV, la turbulence (convection, déferlement d'onde, mélange avec la couche limite, etc ...) et la diffusion moléculaire (Shapiro, 1980 [7]; Appenzeller et al., 1996 [16]; Forster and Wirth, 2000 [34]). De manière générale, la diffusion et la turbulence génèrent des mélanges sur des échelles de temps plus court que les effets radiatifs. En l'absence de convection ou de mélange turbulent, le temps de mélange varie de 6 à 10 jours (Bithell et al., 2000 [59]; Good et al., 2003 [70]).

Le temps de mélange caractéristique d'une intrusion stratosphérique est encore mal connu actuellement. Or l'évaluation de l'impact de tels épisodes dans la quantification du flux stratosphérique et la mise en évidence des mécanismes responsables des mélanges irréversibles sont indispensables pour une bonne description des échanges STE aux moyennes latitudes dans les modèles globaux.

Certaines études (Gray et al., 1994 [106]; Bithell et al., 2000 [59]) suggèrent que loin du jet des moyennes latitudes, une partie de l'air sec injecté dans la troposphère est entraîné sans mélange intense jusqu'à ce qu'il rencontre un nouveau développement synoptique, sur une période de temps de 10 jours (Bithell et al., 2000 [59]). Ainsi, de l'air stratosphérique observé dans la troposphère peut conserver une signature chimique de son origine plus longtemps que sa signature thermodynamique.

L'estimation des temps de mélange est difficile car limitée par plusieurs facteurs, notamment la résolution des modèles (les structures à fine échelle comme les foliations de tropopause sont encore mal vues par les réanalyses des modèles opérationnels), et la paramétrisation des processus de mélanges tels que la diffusion moléculaire et la turbulence dans les systèmes convectifs et la couche limite. Ces limitations expliquent d'ailleurs pourquoi est ce que la stratification en couches constatée par Newell et al. (1999) [123] n'a jamais été montrée sur des fichiers d'analyses.

Cependant, une analyse de situation par des techniques lagrangiennes, comme par exemple la technique RDF (présentée à la section 2.1), permet de reconstruire ces structures à fine échelle notamment dans les zones frontales (eg Esler et al., 2003 [57]).

L'objet de ce chapitre est d'étudier, à partir d'un cas d'étude, la stratification en couche de courants cohérents issus de zones frontales à partir des analyses d'ozone, de CO et d'humidité relative d'un profil MOZAIC.

Le modèle dispersif lagrangien FLEXPART est utilisé pour estimer l'origine géographique des couches et les temps de résidence des différentes couches dans la troposphère. Une comparaison à l'aide d'image satellite est faite pour confirmer les origines stratosphériques par foliation de tropopause (Wimmers and Moody, 2004a [185] et 2004b [186]) dans les courants DA, et la dynamique des WCB par des cartes d'analyse de surface.

Une technique d'ozone RDF est utilisée pour porter la preuve de l'origine stratosphérique d'un pic d'ozone à 2.5km d'altitude, et d'estimer son temps de résidence dans la troposphère.

## 3.2 Situation synoptique et mesures MOZAIC

La figure 3.1 représente les mesures d'ozone (en noir), de CO (en rouge) et d'humidité relative (en jaune) d'un profil MOZAIC fait le 10 février 2002 à 12H00 UTC au dessus de Francfort.

On constate qu'il existe une couche entre 5.5km et 9km avec des concentrations d'ozone (50 ppbv) et de CO (140 ppbv) constantes. On appellera cette couche WCB1. Une seconde couche se situe entre 2.5 et 4 km, avec également des concentrations d'ozone (55 ppbv) et de CO (150 ppbv) relativement constantes. On appellera cette couche WCB2 (cf Figure 3.2) .

Il existe à 5km d'altitude un pic d'ozone de 95 ppbv avec une baisse du CO à 120 ppbv et une baisse de l'humidité relative à moins de 20%. On l'appellera FOLD1. Cette signature est caractéristique d'une intrusion stratosphérique. L'étude de Nédelec et al., 2003 a montré que cette signature est associée à une foliation de tropopause qui a pris origine au niveau du Groenland 48 heures avant le passage de l'avion sur Francfort.

Une signature similaire, mais beaucoup plus faible, est visible à 2.3km d'altitude : un pic d'ozone de 58 ppbv, associé à une légère diminution du CO et de l'humidité relative. On l'appellera FOLD2 (cf Figure 3.2). Ces variations chimiques sont certes comparables à celles constatées durant le passage à travers une foliation de tropopause, mais les variations sont trop faibles pour faire abstraction de processus photochimiques responsables d'un tel comportement.

Nous allons étudier à l'aide du modèle dispersif lagrangien FLEXPART et différentes techniques lagrangiennes les processus dynamiques responsables des concentrations chimiques des couches WCB1 et WCB2, et des pics FOLD1 et FOLD2. Nous estimerons les temps de résidence dans la troposphère de ce que nous allons démontrer comme étant des intrusions stratosphériques FOLD1 et FOLD2. Nous concluons sur la structure en couche sur le profil MOZAIC.



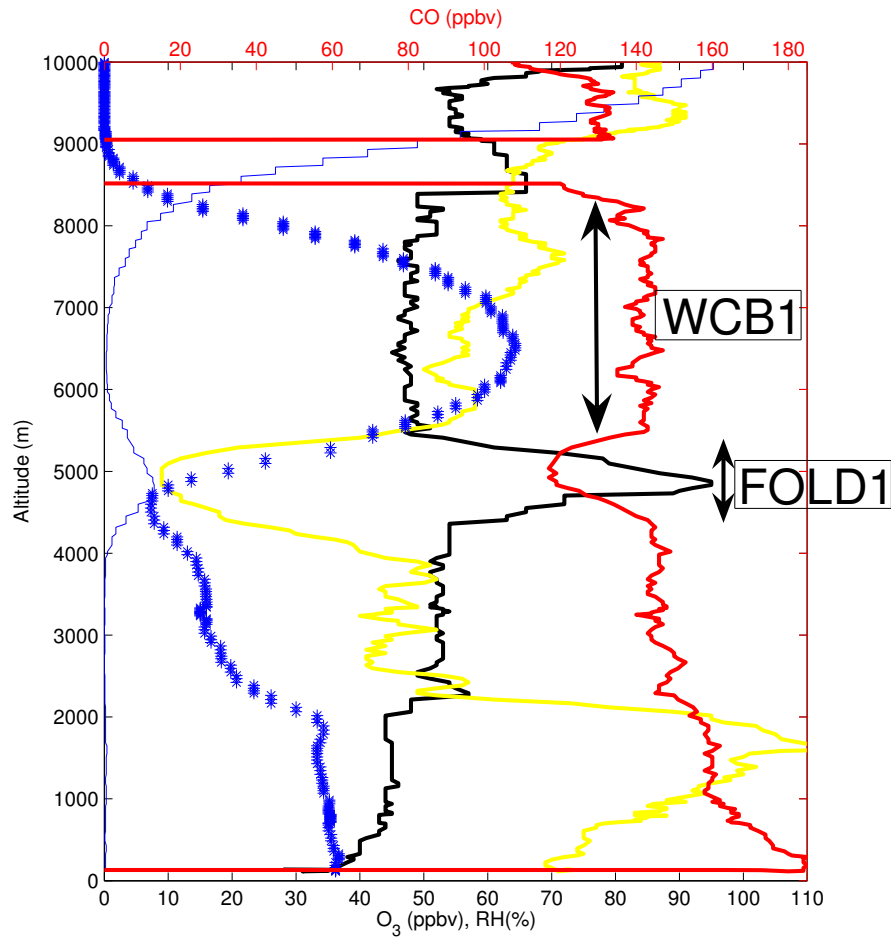


FIG. 3.1 – Profil MOZAIC du vol b20020210024, le 10 Février 2002 à 12h00 UTC, en fonction de l'altitude barométrique (en mètre) et de l'ozone (ppbv, en noir), du CO (ppbv, en rouge) et de l'humidité relative (% , jaune). Les fractions des traceurs passifs couche limite (% , étoiles bleues) et stratosphérique (% , ligne bleue) correspondent aux valeurs obtenues après 48 heures de rétrotrajectoires du modèle FLEXPART. La position de la couche WCB1 et du pic d'ozone FOLD1 est représentée sur le profil. Leur origine est discutée dans le texte.

### 3.3 Etude lagrangienne

Une présentation du modèle FLEXPART utilisé pour cette étude est faite à la section 2.2.

Tout au long du profil vertical de MOZAIC, nous utilisons des boîtes de 100m de hauteur, et d'une taille horizontale de  $0.5^\circ$  en longitude et latitude. Vingt mille particules sont relâchées à partir de chaque boîte.

Sur la figure 3.1 est représenté les pourcentages de traceurs passifs couche limite (étoiles bleues) et stratosphérique (ligne bleue) issus de chaque boîte. Le pourcentage d'air couche limite représente le pourcentage d'air ayant une altitude d'origine inférieure à l'altitude de la couche limite. Le pourcentage d'air stratosphérique représente le pourcentage d'air ayant un tourbillon potentiel supérieur à 2pvu à l'origine. Ces pourcentages sont obtenus après un temps de rétroplume de 48 heures (définissant ainsi l'origine des masses d'air). A cet instant, 10% de traceur stratosphérique est associé au pic d'ozone FOLD1 à 5km d'altitude. FLEXPART confirme ici l'origine stratosphérique du pic à 48 heures, et l'étude préliminaire de Nédelec et al., 2003.

Concernant la couche WCB1, la fraction de traceur d'origine couche limite est de 50% à 65%. La position approximative des particules associée au WCB1 est représenté sur l'analyse de surface de la figure 3.3a. Les particules sont prises dans un système frontal sur l'Atlantique. Les particules (ligne verte) se situent à l'avant d'un front froid. Ainsi, l'air couche limite de la couche WCB1 a pris origine dans la couche limite marine en avant d'un front froid sur l'océan Atlantique. Après soulèvement de l'air couche limite vers la troposphère libre au dessus du front chaud par le WCB associé au système frontal de la dépression, cet air s'est positionné au dessus de la foliation FOLD1 qui a subsidé à partir du Groenland avant d'atteindre la région de Francfort.

La figure 3.2 représente les pourcentages de traceurs passifs couche limite et stratosphérique issus de chaque boîte après un temps de rétroplume de 5 jours. On constate ici que la couche WCB2 a un pourcentage de traceur couche limite de 50% à 55%. La position de ces particules d'origine couche limite sur la figure 3.3b associée à l'analyse de surface du 5 Février à 00h montre qu'une partie de ces particules étaient dans un système frontal sur l'Atlantique. Ces particules ont été soulevées de la couche limite vers la moyenne troposphère par, entre autre, l'ascendance à grande échelle d'un second WCB.

On constate que le pourcentage stratosphérique entre 0 et 4km d'altitude est d'environ 5%. Après vérification, cette valeur correspond à de fortes valeurs de PV en basse altitude qui sont créés par effet diabatique en avant du front froid (Browning and Golding, 1995 [53]). Ce pourcentage de 5% n'est donc pas représentatif d'une origine stratosphérique.

Au niveau du pic d'ozone FOLD2, il n'existe pas de signal sur le traceur stratosphérique qui indique une quelconque origine stratosphérique. Le traceur couche limite n'a pas non plus de variation spécifique à cette altitude. Cependant, 50% d'air d'origine couche limite est associé au pic FOLD2.

Pour aller plus loin dans l'étude, nous utilisons la méthode des clusters pour caractériser l'origine stratosphérique du pic FOLD2 à l'aide de la position de 10 centres mobiles.

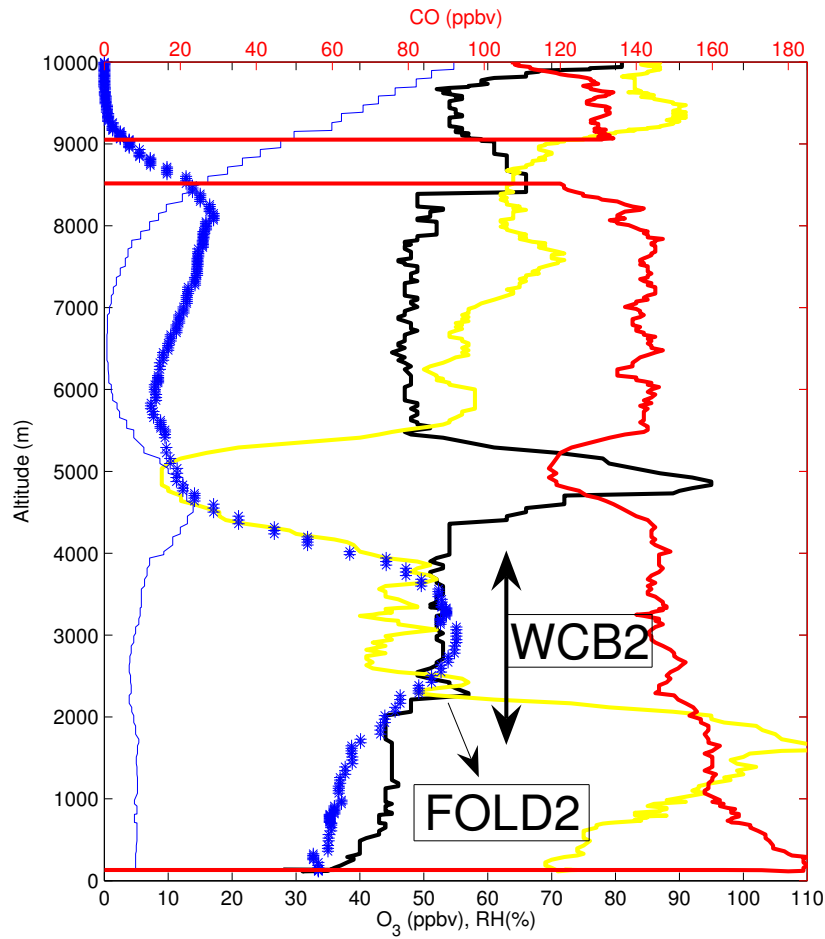


FIG. 3.2 – Même chose que pour la figure 3.1, mais les fractions des traceurs passifs correspondent aux valeurs obtenues après 5 jours de rétrotrajectoires. La position de la couche WCB2 et du pic FOLD2 est représenté sur le profil. Leur origine est discutée dans le texte.

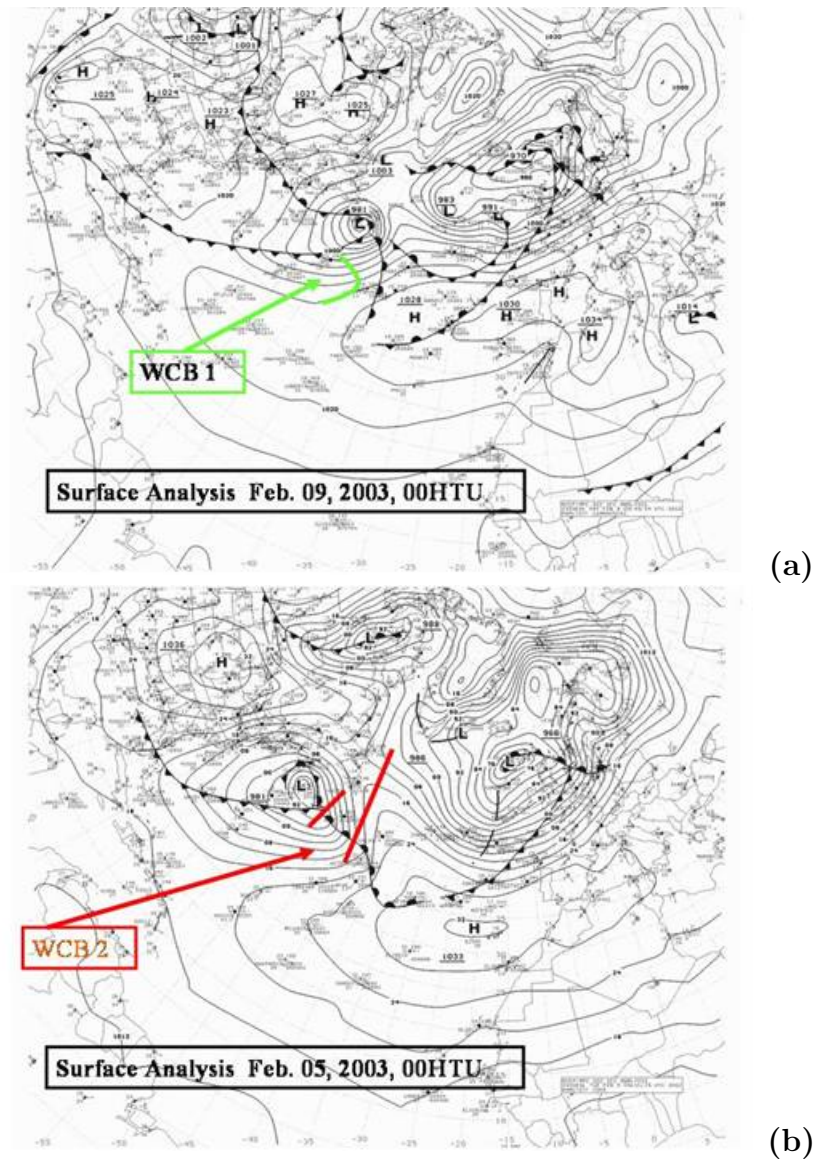


FIG. 3.3 – Analyses de surface (a) du 9 Février à 00hUTC et (b) du 5 Février à 00hUTC. La position des particules d'origine couche limite des couches WC1 et WCB2 définies sur les figures 3.1 et 3.2 est représentée par les traits verts et rouges sur ces deux cartes d'analyse.

### 3.4 Clusters et ozone synthétique

L'utilisation de la méthode des clusters dans FLEXPART (Stohl et al., 2002 [166]) est détaillée à la section 2.2. Pour pouvoir étudier la dispersion du panache de particule associé au pic d'ozone FOLD2, FLEXPART est utilisé avec 10 clusters pour chaque boîte.

TAB. 3.1 – Paramètres diagnostiques d'un cluster du pic d'ozone FOLD2, le 3 Février à 18h00 UTC

Altitude (km)	PV (pvu)	Humidité relative (%)	Fraction massique (%)
4.7	1.4	25	3

le tableau 3.1 représente les caractéristiques d'un des 10 clusters associés à une boîte du pic FOLD2. Il se situe au dessus du continent américain le 3 Février à 18h00UTC. Ses caractéristiques (4.7km d'altitude, 1.4 pvu, 25% d'humidité) sont proches des caractéristiques d'un courant DA en moyenne troposphère (fort tourbillon potentiel, faible humidité).

Pour confirmer l'appartenance de ce cluster à un courant DA, on utilise un run d'ozone synthétique de FLEXPART (la méthode est expliquée à la section 2.2). L'ozone synthétique est calculé à partir d'une relation linéaire ozone/PV=63 ppbv/pvu. Cette simulation d'ozone est initialisée le 30 Janvier à 00h00UTC. Ainsi, le transport d'ozone dans la simulation construit des structures à plus fine échelle que les fichiers d'analyse de l'ECMWF grâce à l'advection des champs d'ozone par le schéma d'advection et les paramétrisations de la turbulence et du transport convectif.

Sur la coupe verticale de la figure 3.4a, le cluster se situe dans une zone frontale d'altitude, dans une couche contenant 90ppbv d'ozone stratosphérique. Sur la coupe horizontale à 5km d'altitude de la figure 3.4b, le cluster se trouve au Sud d'une structure ondulatoire chargée en ozone. Cette structure est la trace d'une foliation de tropopause sur une coupe horizontale. L'ondulation vient de la dynamique d'altitude du jet polaire, dont la signature se caractérise sur l'image canal vapeur d'eau de la figure 3.6a par une bande sèche (sombre) qui ondule le long d'une bande nuageuse associée à un WCB.

Sachant que le cluster est associé à 3% en masse du panache total et qu'il se situe dans une couche caractérisée par 90ppbv d'ozone stratosphérique, cela signifie que FLEXPART associe au pic FOLD2 au moins 2.7ppbv d'ozone stratosphérique. Le pic d'ozone FOLD2 étant de 8 ppbv par rapport au niveau d'ozone de fond, FLEXPART explique ici 33% des 8ppbv du pic d'ozone FOLD2.

Sur la figure 3.5 est représenté 4 coupes horizontales à 4km d'altitude, colorées par les concentrations d'ozone synthétique, et la position des particules associées au pic d'ozone FOLD2 situées entre 0.5 et 3km (isocontours verts), entre 3 et 5km (isocontours rouges) et entre 5 et 10km (isocontours noirs).

Sur la figure 3.5a, le 3 Février à 18h00 UTC, sur l'ensemble des particules au dessus de 5km d'altitude (isocontours noirs), seul le groupe situé à l'Ouest de New-York est à proximité de fortes concentrations d'ozone stratosphérique. Ce groupe ainsi que les particules

se situant entre 3 et 5km (isocontours rouges) plus au Sud font partie du cluster dont les caractéristiques ont été présentées précédemment. Sur la figure 3.6a sont représentées les images canal vapeur d'eau des satellites GOES et METEOSAT combinées avec la position des concentrations d'ozone stratosphérique synthétique de l'image 3.5a. On constate que les concentrations d'ozone stratosphérique à proximité de New York sont associées à des signatures sèches ondulatoires sur l'image satellite 3.6a. Cette signature est typique de la dynamique d'un front d'altitude associé au courant-jet polaire qui génère une signature sèche (zone sombre) derrière le front froid de surface associé à une bande nuageuse avec une signature forte d'humidité (zone blanche). Ce groupe de particules au dessus de 5km d'altitude est le seul à être associé à la dynamique d'un front d'altitude, et à être potentiellement chargé en ozone. L'enrichissement en ozone stratosphérique du pic FOLD2 ne peut donc s'expliquer que par l'advection d'une intrusion stratosphérique issue de ce front d'altitude.

Les isocontours verts associés aux particules entre 0.5 et 3km du pic FOLD2 sont orientés de Sud-Ouest vers Nord-Est (Figures 3.5c et 3.5d). A l'aide de l'image satellite 3.6a, on constate que la majeure partie de ces particules se situe en avant (à l'Est) de la signature sèche du DA du courant-jet polaire dans une zone humide (signature blanche) associée à une bande de nuage. Ces particules entre 0.5 et 3km sont associées à un WCB, en avant du front d'altitude.

Du 4 Février à 18h00 UTC (Figures 3.5b et 3.6b) au 5 Février à 06h00 UTC (Figures 3.5c et 3.6c), le front d'altitude vu précédemment se dirige vers le Sud-Est et s'enroule dans le sens cyclonique. La signature d'ozone stratosphérique à 4km d'altitude de la foliation de tropopause devient plus étirée spatialement, et les concentrations d'ozone au centre de l'intrusion stratosphérique augmentent, preuve d'une subsidence de la partie irréversible de la foliation de tropopause entre le 3 Février à 18h et le 5 Février à 06h. Les isocontours noirs et rouges suivent la même dynamique que ce front d'altitude.

Sur la figure 3.5d, le 5 Février à 18h00 UTC, les particules initialement entre 5 et 10km d'altitude (isocontours noirs sur la figure 3.5c) subsident vers le niveau compris entre 3 et km d'altitude (isocontours rouges) en suivant la dynamique de la foliation de tropopause. Sur la figure 3.6d, on constate que ces particules sont situées à l'arrière (à l'Ouest) du WCB dans une zone ayant une faible signature sur le canal vapeur d'eau. Ces particules, chargées en ozone, ne sont donc pas à proximité de zones turbulentes générées par des cellules convectives. On peut supposer ici que la foliation située dans cette zone ne subit pas de mélange rapide dans la basse troposphère.

Au delà de cette date, les particules potentiellement chargées en ozone stratosphérique restent entre 0,5 et 3km d'altitude. Elles sont prises dans un anticyclone entre le 7 Février à 00h00 et le 8 Février à 12h00 UTC au Sud du Groenland. Puis elles suivent la dynamique de la seconde dépression associée à la couche WCB1 et au pic FOLD1, et atteignent l'avion MOZAIC le 10 Février à 13h00 UTC à 2,7 km d'altitude.

Ainsi, cette étude lagrangienne montre bien l'origine stratosphérique du pic FOLD2. Elle est associée à une frontogénèse d'altitude au dessus du Canada aux environs du 3 Février à 18h00. Les particules associées à une foliation de tropopause ont ensuite subsidé pour atteindre une altitude vers 3km d'altitude.

Nous allons utiliser la technique d'ozone RDF présentée à la section 2.2 pour confirmer ce résultat, et estimer le temps de résidence de l'intrusion stratosphérique associée au pic d'ozone FOLD2.

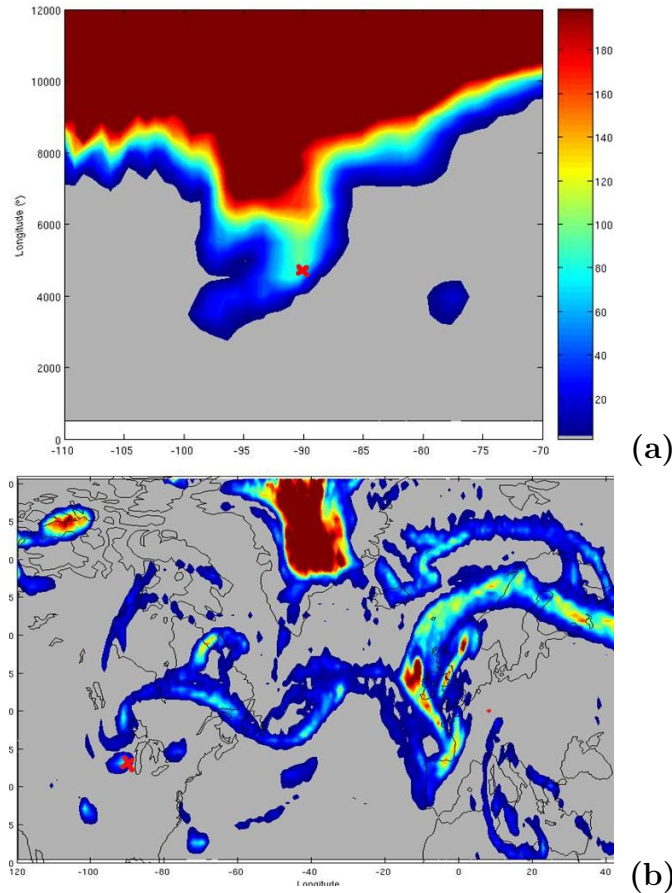


FIG. 3.4 – (a) Coupe verticale et (b) horizontale à 5km d'altitude d'ozone stratosphérique simulée par FLEXPART le 3 Février à 18h00 UTC. La croix rouge sur les deux coupes représente la position du cluster dont les caractéristiques sont présentées sur le tableau 3.1. La coupe verticale passe par la latitude où le cluster se situe.



### 3.4 Clusters et ozone synthétique

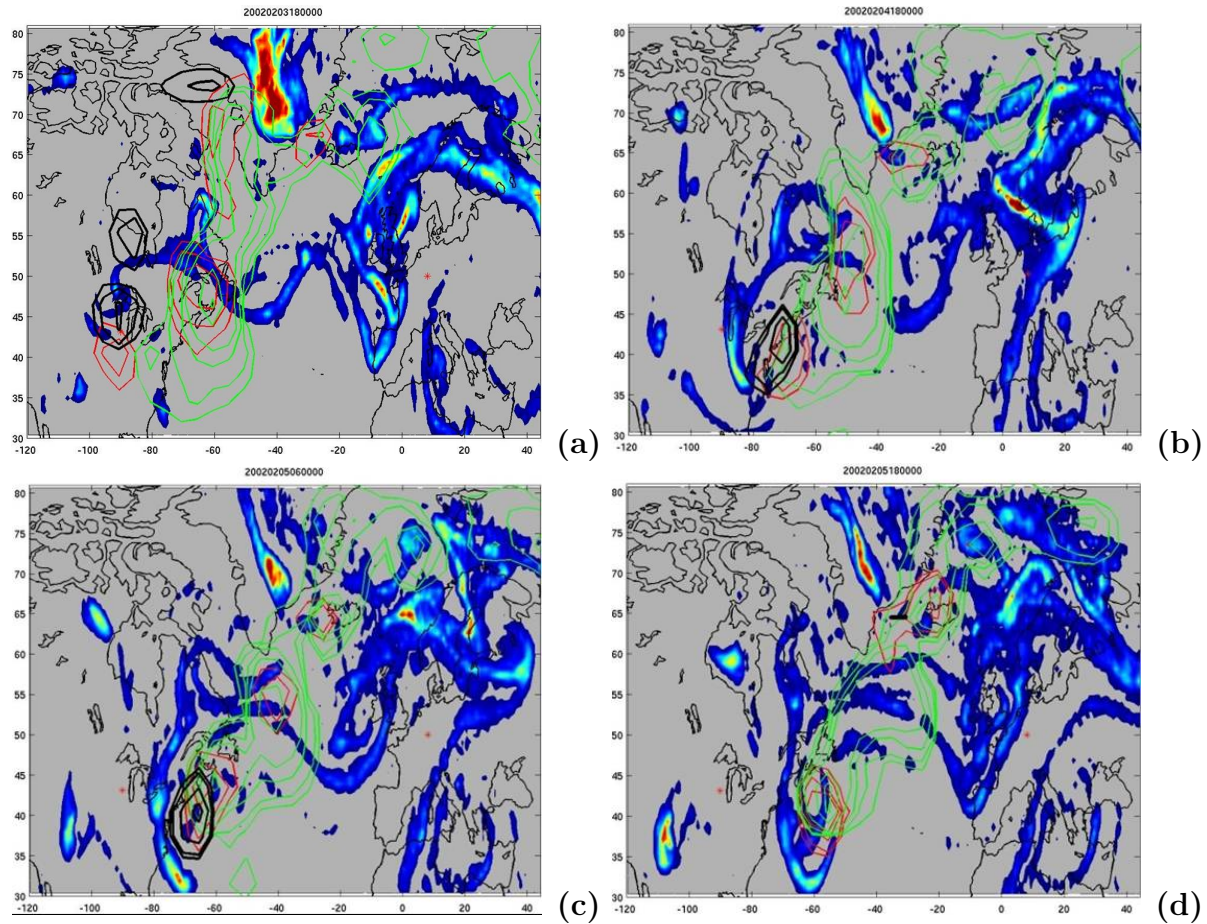


FIG. 3.5 – Coupe horizontale à 4km d'altitude d'ozone stratosphérique simulé par FLEX-PART valables (a) le 3 Février à 18hUTC, (b) le 4 Février à 18hUTC, (c) le 5 Février à 06hUTC et (d) le 5 Février à 18hUTC. Les isocontours représentent 0.05%, 0.1%, 0.25%, 0.5% et 1.5% de l'ensemble des particules relâchées au niveau du pic d'ozone FOLD2 (fractions calculées sur une grille de  $3^{\circ}\times 5^{\circ}$  en latitude/longitude. Les isocontours noirs représentent les particules compris entre 5km et 10km d'altitude, les isocontours rouges représentent les particules entre 3 et 5km d'altitude, et les isocontours verts représentent les particules entre 0.5 et 3km d'altitude.



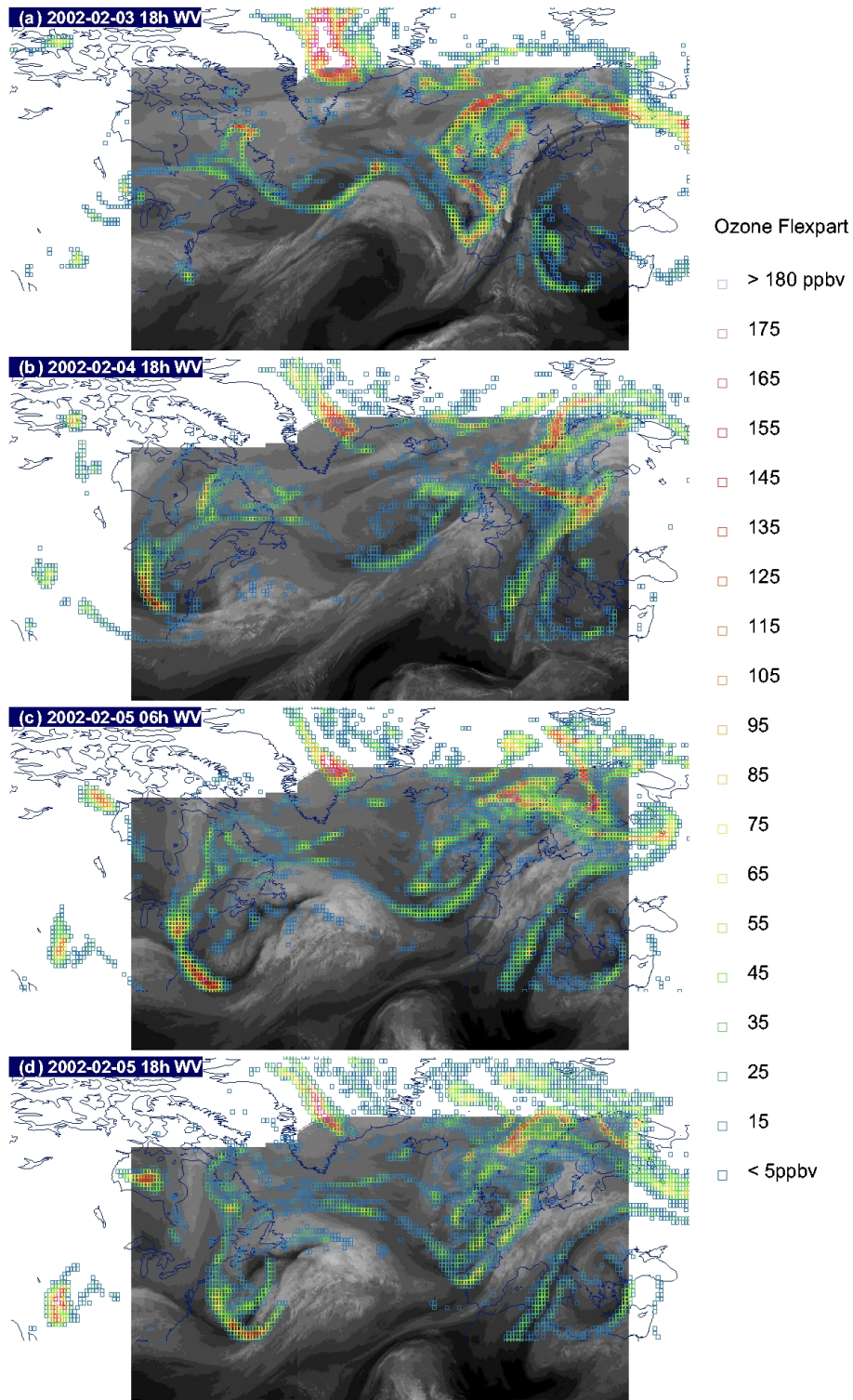


FIG. 3.6 – Projection de l’ozone stratosphérique simulée par FLEXPART à l’altitude de 4km sur une image composite Goes Est et Météosat du canal vapeur d’eau : (a) le 3 Février à 18hUTC, (b) le 4 Février à 18hUTC, le 5 Février (c) à 06hUTC et (d) à 18hUTC. Sur l’image composite satellite, les zones les plus sèches sont en noir et les plus chargées en blanc. Les données d’ozone stratosphérique synthétique sont représentées par des carrés de couleur selon la légende en cartouche pour des niveaux compris entre 5ppbv à 180ppbv.

## 3.5 Temps de résidence des couches stratosphériques

Nous utilisons l’ozone synthétique pour reconstruire les concentrations d’ozone le long du profil MOZAIC à partir de l’origine des panaches associés à chaque boîte FLEXPART. Cette concentration d’ozone est appelée ozone RDF, et le détail de la méthode est expliqué à la section 2.2.

La grille du domaine FLEXPART est remplie à l’instant initial à partir d’une relation linéaire entre l’ozone et le PV, et là où la valeur de PV est supérieure à 2pvu avec une altitude supérieure à 3000m. Cette dernière condition est employée pour éviter de prendre en compte les fortes valeurs de PV obtenues par diabatisme.

On décide d’utiliser les concentrations d’ozone au dessus de 7km d’altitude, pour ne prendre en compte que les structures stratosphériques à partir de la haute troposphère, et pour reconstruire efficacement les concentrations d’ozone RDF.

La figure 3.7 représente les valeurs d’ozone MOZAIC (en vert) et RDF (en noir) après 175 heures (7 jours et 10h) de rétrotrajectoire. Les valeurs d’ozone MOZAIC ont été diminuées de 40ppbv, pour faciliter la représentation des deux concentrations sur un même graphique.

On constate d’une part que le pic d’ozone MOZAIC FOLD1 concorde avec l’ozone RDF de FLEXPART et donne une concentration de 55ppbv d’ozone, soit une sous-estimation de 40 ppbv de la concentration réelle. Cette sous-estimation est due au fait que l’air troposphérique dans FLEXPART ne prend pas en compte la concentration de fond d’ozone troposphérique. Dans la simulation FLEXPART, la foliation s’est donc mélangée depuis 48 heures avec de l’air troposphérique dont la concentration d’ozone est 0 ppbv, ce qui peut expliquer le décalage de 40 ppbv entre l’ozone synthétique de FLEXPART et l’ozone mesuré par l’avion MOZAIC.

On constate qu’un pic d’ozone RDF stratosphérique existe dans la région du pic d’ozone FOLD2. Ce pic est représenté par FLEXPART comme étant un pic d’ozone stratosphérique de 3 ppbv, sur une épaisseur entre 1,5 et 3km d’altitude. Cette signature confirme ici l’origine stratosphérique de ce second pic.

Cette technique permet donc de retrouver l’origine stratosphérique d’un pic d’ozone stratosphérique de 8ppbv sur une période de rétrotrajectoire de 175 heures (7,5 jours). Le fait que le pic d’ozone RDF soit plus faible et sur une épaisseur d’altitude plus large peut venir d’une surestimation du mélange dans le modèle dispersif à cause de l’utilisation successive des fichiers d’analyse et de prévisions de l’ECMWF (Stohl et al., 2004 [164]) qui peut induire une surestimation du mélange turbulent le long des rétrotrajectoires. La paramétrisation de la turbulence dans le modèle peut également contribuer à l’élargissement du pic, mais dans une moindre mesure.

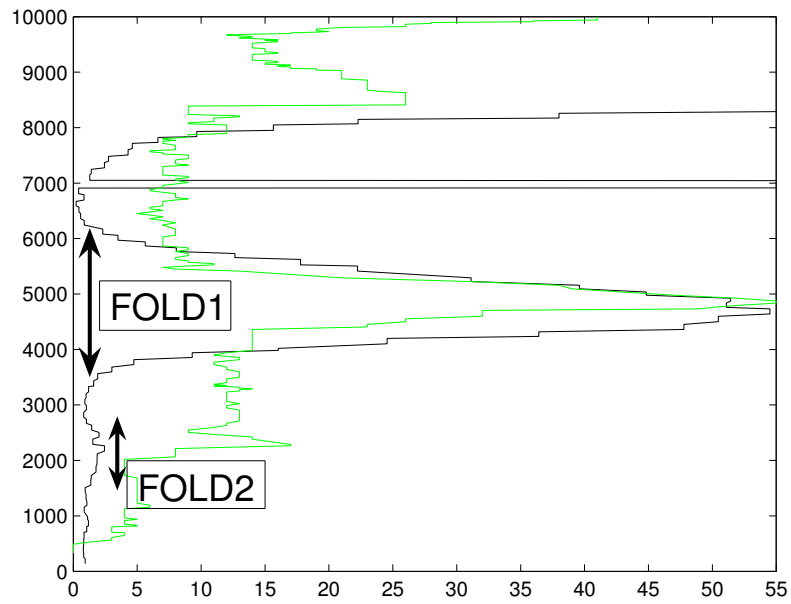


FIG. 3.7 – Profil d’ozone MOZAIC, et d’ozone RDF calculé par le modèle FLEXPART après 175 heures (7.5 jours) de rétrotrajectoires. L’ozone MOZAIC a été réduit sur cette coupe de 40 ppbv. La position des pics d’ozone RDF FOLD1 et FOLD2 est représentée sur le profil.

## 3.6 Conclusion

Une analyse lagrangienne a été faite avec le modèle dispersif FLEXPART le long d'un profil MOZAIC au dessus de Frankfort en Février 2002. Elle a révélé que l'avion a traversé dans la troposphère une stratification de quatre couches issues de quatre courants cohérents de zones frontales des moyennes latitudes : deux foliations de tropopause et deux WCB, venant de deux dépressions originaires au Sud du Groenland et sur la côte Est des USA.

L'utilisation d'une simulation d'ozone synthétique de FLEXPART associée à des rétro-trajectoires, une technique permettant d'obtenir de l'ozone RDF stratosphérique, a permis de retrouver l'origine stratosphérique d'un pic d'ozone de 8ppbv (relativement à la concentration d'ozone de fond) à 2.3km d'altitude. Cette anomalie d'ozone est issue d'une foliation de tropopause au dessus du Canada et du transport irréversible de cette foliation dans la basse troposphère au dessus de l'Atlantique durant 7.5 jours. La seconde foliation de tropopause à 5km d'altitude a un temps de résidence de 48 heures dans la troposphère.

Cette étude confirme l'ubiquité des couches laminaires dans la troposphère. Elle montre également l'intercalage dans la troposphère des courants cohérents des zones frontales au gré de leur passages successifs entre dépressions et anticyclones.

Au moment de la mesure MOZAIC, le pic d'ozone d'ozone FOLD2 à 2.3km d'altitude se situait à proximité du sommet de la couche limite (1800m d'altitude). Cette anomalie d'ozone de 8ppbv est donc proche d'être mélangée de façon homogène avec les concentrations de fond par mélange turbulent. On peut donc ici avec une bonne approximation estimer le mélange de cette foliation dans la troposphère à environ 8 jours, ce qui est cohérent avec les études précédentes (Bithell et al., 2000 [59]; Good et al., 2003 [70]).

## 3.7 Perspective

La méthode d'ozone RDF a montré son potentiel pour détecter de façon efficace des anomalies stratosphériques d'ozone aussi petites que 8 ppbv dans les profils troposphériques d'ozone MOZAIC. Cette méthode nécessite 3 heures de calcul par profil MOZAIC (sur un bi-processeur) de 10 jours de rétrotrajectoires. Une simulation d'ozone stratosphérique sur la période de temps considérée est également nécessaire (environ 2 jours de calcul pour obtenir les champs d'ozone stratosphérique sur 1 mois).

Cette méthode peut donc être utilisée de façon statistique sur des centaines de profils MOZAIC pour affiner les résultats climatologiques du bilan d'ozone troposphérique (eg Thouret et al. 2006 [170]; Zbinden et al., 2006 [189]) et d'estimer de façon précise la contribution du flux stratosphérique sur le bilan d'ozone troposphérique.

Ce cas d'étude est également un moyen efficace pour tester la validité de la paramétrisation des mouvements turbulents dans les modèles lagrangiens pour reproduire les processus de mélange. De même, la bonne représentation dans les modèles de chimie-transport de la stratification en couche constatée dans ce cas d'étude et le mélange de la seconde foliation sur une période de temps d'environ 8 jours est important pour une bonne estimation de la concentration en radicaux OH et d'ozone dans la troposphère.



# Chapitre 4

## Couche de mélange dans la région de la tropopause

### 4.1 Introduction sur le transport et le mélange

Les propriétés de transport et de mélange des masses d'air atmosphérique sont très importantes. Elles jouent un rôle majeur sur la distribution des espèces chimiques, avec des implications sur la qualité de l'air, l'absorption des radiations ultraviolettes (dans le cas de l'ozone) et le climat (dans le sens où plusieurs espèces chimiques jouent un rôle dans l'équilibre radiatif terrestre). Les études portant sur la qualité de l'air prennent en compte les flux atmosphériques à l'échelle locale et régionale. Or des polluants émis dans des régions industrielles peuvent être transportés à des milliers de kilomètres. Les efforts mis en oeuvre pour obtenir un air de meilleure qualité doivent donc également prendre en compte le transport par le flux à grande échelle (e.g. Akimoto 2003 [9]).

Dans la troposphère et la stratosphère, la stratification de la densité de l'air contraint fortement le transport vertical. De ce fait, la turbulence tend à être confinée à des régions relativement localisées. Dans la troposphère, elle est localisée dans la couche limite, dans les nuages convectifs et partout où elle résulte d'instabilités dynamiques (e.g. dans des zones de déferlement d'ondes d'inertie gravité). La troposphère a tendance à être bien mélangée suivant la verticale par convection. Cependant des observations de couches à longue durée de vie avec des concentrations chimiques anormales (e.g. Newell et al., 1999 [123]) montrent que, particulièrement aux latitudes extra-tropicales, l'échelle de temps au bout de laquelle une masse d'air subit un mélange convectif peut s'étendre de quelques jours à quelques semaines (cf le chapitre 3)

A l'échelle synoptique et en dehors des régions à forte turbulence, par exemple dans la stratosphère, le flux atmosphérique est quasi-horizontale. Le mouvement des parcelles d'air suit préférentiellement des trajectoires le long de surfaces isentropes faiblement inclinées. Ainsi les déplacements horizontaux sont généralement plus grands que les déplacements verticaux. Ce flux peut avoir à la fois un caractère organisé et ondulatoire, mais aussi un comportement fortement non linéaire et chaotique.

Si l'on considère les propriétés de transport et de mélange d'un flux atmosphérique, il est nécessaire de distinguer 3 processus.

Le premier est le "transport", qui correspond à un déplacement macroscopique en volume d'espèces chimiques. Le deuxième est le "brassage" (stirring en anglais) qui se caractérise par l'étirement ou la filamentation au cours du temps de l'interface entre deux réservoirs par advection différentielle. Le brassage tend à placer des masses d'air ayant des caractéristiques chimiques différentes à des échelles spatiales de plus en plus proche. Le troisième est le "mélange", qui est une action d'homogénéisation par diffusion moléculaire entre différentes espèces chimiques. Seul ce processus permet le mélange moléculaire qui mène à des réactions chimiques entre deux réservoirs.

Dans la basse stratosphère, le bilan des concentrations chimiques résulte d'un transport à grande échelle quasi horizontal et d'une combinaison entre brassage et mélange à petite échelle (Haynes and Shuckburg, 2000 [77]; Fereday and Haynes, 2004 [50]).

L'influence du brassage est de réduire l'échelle spatiale caractéristique des structures atmosphériques associées à différentes concentrations chimiques, mais aussi de réduire l'échelle de temps caractéristique de la diffusion moléculaire nécessaire pour homogénéiser des concentrations chimiques à l'échelle synoptique.

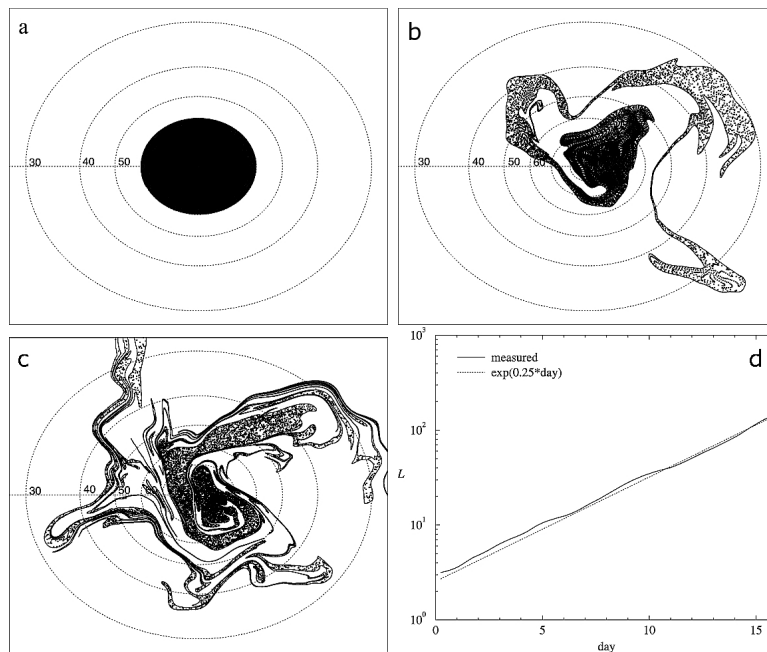


FIG. 4.1 – Simulation d'advection de contour d'une interface initialement à  $60^\circ\text{N}$  de latitude, basée sur des champs de vent stratosphérique sur la surface isentrope 475K après (a) 00 jour, (b) 7 jours et (c) 15 jours. Ces simulations sont en projection stéréographique polaire, et les latitudes sont représentées par les lignes pointillées. (d) Graphe représentant l'augmentation de la longueur de l'interface en fonction du temps. Tirés de Wonhas and Vassilicos (2003 [8]).

A l'aide d'une simulation par advection de contour, Wonhas and Vassilicos (2003 [8]) montrent l'influence de l'advection différentielle sur la longueur d'une interface située à l'instant initial à 60°N de latitude dans un champ de vent à grande échelle sur la surface isentrope 475 K. La longueur de l'interface augmente de façon exponentielle avec le temps. Le brassage par advection différentielle gouverne l'étirement de l'interface jusqu'à ce que l'échelle spatiale transverse des filaments soit de l'ordre de la dizaine de kilomètres. Waugh et al. (1997 [52]) évaluent à 15 jours le temps nécessaire pour qu'une interface se filamente jusqu'à une échelle spatiale de 10km, échelle caractéristique des mélanges, et à 30 jours pour que le mélange soit total. On peut dire que le brassage gouverne la capacité de mélange de la zone UTLS et dans un certain contexte comme les échanges STE, le terme "mélange adiabatique" est utilisé dans la littérature ainsi que dans ce chapitre pour dire "brassage adiabatique".

Pour modéliser les processus de mélange à méso-échelle, le coefficient de diffusion effective horizontale est utilisé. Il est de même dimension que la diffusion moléculaire (ie  $m^2s^{-1}$ ), mais il est représentatif de la fréquence des zones de turbulence 3D à petite échelle et de la diffusion moléculaire dans un milieu. Des zones de turbulence 3D issues de déferlement d'ondes d'inertie gravité (Alisse et al., 2000 [10]; Whiteway et al., 2003 [184]) existent dans la basse stratosphère. Ces ondes peuvent être générées par orographie, par convection, ou par des processus synoptiques tels que le cisaillement de vent ou la turbulence en ciel clair dans les courant-jets. La région de la tropopause est une zone prédestinée pour le déferlement à cause du changement de stabilité statique et à cause du cisaillement vertical de vent qui permet à la vitesse de phase de l'onde de devenir critique. Ces zones de turbulences 3D peuvent avoir une épaisseur d'1 kilomètre, et homogénéisent suivant la verticale les composés chimiques.

Dans la basse stratosphère, l'échelle horizontale caractéristique moyenne à laquelle la diffusion effective horizontale agit est de 20km (Waugh et al., 1997 [52]; Tan et al., 1998 [47]). A partir de l'échelle de quelques dizaines de kilomètres, l'advection différentielle réduit difficilement l'échelle spatiale des filaments. La diffusion effective devient alors efficace pour réduire les filaments à plus fine échelle, et générer un mélange d'espèces chimiques par diffusion moléculaire.

L'advection différentielle issue des courant-jets d'altitude génère des processus de brassage isentropique entre la stratosphère et la troposphère. Celui-ci réduit les échelles spatiales des structures stratosphériques, et étire de plus en plus la région de la tropopause à fine échelle. A méso-échelle, il augmente les gradients chimiques (e.g. Nakamura, 1996 [122]) car il réduit la distance qui sépare les masses d'air d'origine troposphérique et stratosphérique.

Dans les zones où le brassage est assez fort, à proximité des courants-jet par exemple, les processus photochimiques et d'advection diabatique peuvent être négligés pour modéliser la distribution spatiale des traceurs atmosphériques. Dans ces régions, les traceurs ont alors une relation linéaire (e.g. Plumb et al., 2000 [135]).

Lorsque des masses d'air quittent des zones de fort brassage, par exemple dans la stratosphère profonde ou au centre des thalwegs d'altitude dans la plus basse stratosphère à l'écart des zones de brassage par les courants-jet, des processus (radiatif, advection diabatique, photochimie) détruisent les relations linéaires entre traceurs obtenues par mélanges



isentropiques précédents. Cet état de fait permet alors à partir d'un diagramme traceur-traceur de caractériser les processus de mélange isentropiques récents (e.g. Plumb et al. 2000 [135], et les autres références qui suivent.)

Les deux parties suivantes présentent en quoi les relations entre traceurs atmosphériques peuvent aider à la compréhension des processus de mélange dans la région de la tropopause. Pour cela, une climatologie des mesures d'ozone et de CO des données MOZAIC va être présentée à l'aide d'une méthode basée sur les relations linéaires entre ozone/CO, et à l'air d'une méthode basée sur un nouveau type de repère dynamique.

## 4.2 Approche chimique à l'aide des données MOZAIC

### 4.2.1 Relation entre traceurs atmosphériques

Les premières études sur les relations traceur-traceur ont permis d'identifier des anomalies chimiques dans la région du vortex polaire (comme la destruction d'ozone ou la dénitrification), de déterminer les flux chimiques vers la troposphère et de caractériser mais également de quantifier le transport dans la basse stratosphère (Proffitt et al., 1990 [60]; Fahey et al., 1990 [51]; Plumb and Ko, 1992 [6]; Sparling et al., 1997 [61]; Waugh et al., 1997 [52]; Neu and Plumb, 1999 [100]; Plumb et al., 2000 [135]; Morgenstern et al., 2002 [126]).

Une application des relations traceur-traceur est d'utiliser les concentrations chimiques du CO et de l'ozone dans la zone de l'UTLS pour étudier les échanges STE (cf chapitre 2).

Le CO, traceur troposphérique, et l'ozone, traceur stratosphérique, ont des gradients de signe opposé près de la tropopause (figure 4.2).

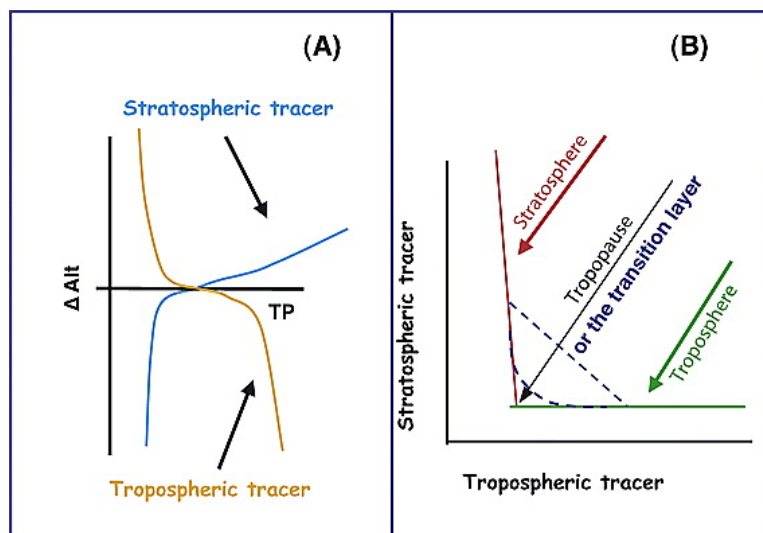


FIG. 4.2 – Schéma idéalisé de la relation entre traceurs stratosphérique et troposphérique. D'après Pan et al., (2004 [101])

Nous allons définir le concept de ligne de mélange pour identifier les processus de mélange isentropique à travers la tropopause, se produisant sur une échelle de temps de quelques jours. En l'absence de processus de mélange à travers la tropopause et de processus photochimique dans la troposphère, la relation d'équilibre standard entre l'ozone et le CO peut être schématisée par la forme d'un L dans le diagramme ozone-CO (figure 4.2). La branche horizontale caractérise la partie troposphérique, c'est à dire une faible concentration d'ozone, pour un large éventail de concentration de CO rencontré dans la troposphère libre. De même, la branche verticale représente la partie stratosphérique, avec la concentration de CO à l'équilibre associée aux différentes concentrations en ozone de la stratosphère. Si deux masses d'air différentes, c'est à dire un point associé à chacune des branches, se mélangent de façon complète, alors l'état final associé à ce processus sera représenté par un point sur le graphique, correspondant aux niveaux de concentration finaux de chacun des traceurs. C'est le cas dans la troposphère libre où la stabilité statique est faible, et où il existe un fort brassage des masses d'air.

Si 2 masses d'air se mélangent de façon partielle et incomplète à l'échelle synoptique, il va en résulter une succession de taux de mélange à l'interface de ces masses d'air. C'est le cas dans la basse stratosphère, où le milieu est stratifié. Dans une zone où le brassage est dominant, une ligne droite entre les 2 points de chaque réservoir va être visible car le brassage (donc une advection de masse d'air) conserve les relations volumiques entre traceurs, et parce que les processus photochimiques source ou puit d'ozone et du CO, ainsi que les phénomènes diabatiques et diffusifs sont négligeables. Dans la plus basse stratosphère, il existe une forte stabilité statique qui empêche un mélange uniforme de se faire, et donc permet de garder une trace de ces mélanges partiels sous forme d'une ligne, que l'on appellera ligne de mélange (en pointillés sur la figure 4.2).

L'existence d'une ligne courbe de référence associée à une combinaison entre mélanges adiabatiques, advection diabatique et processus photochimiques en dehors de tout brassage adiabatique est nécessaire pour que l'utilisation de relation entre traceur-traceur permette de caractériser des mélanges adiabatiques récents entre deux masses d'air différentes, ou des anomalies chimiques (Waugh et al., 1997 [52]; Plumb et al., 2000 [135]).

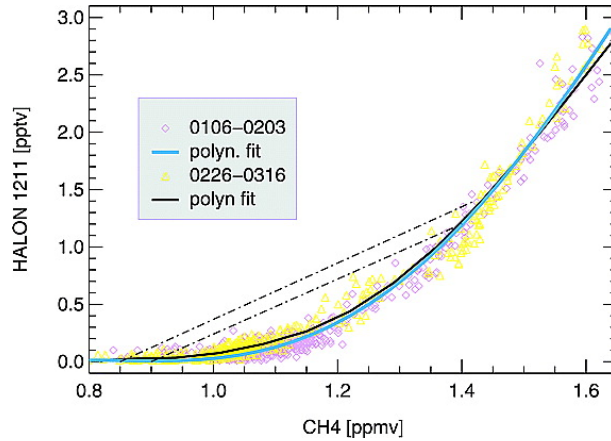


FIG. 4.3 – Corrélations entre  $CH_4$  et Halon-1211 issues des vols ER-2 entre le 6 Janvier et le 16 Mars (Konopka et al., 2003 [129]). Les deux lignes pointillées représentent la zone où les lignes de mélange récents sont supposées être observées.

Sur la figure 4.3, Konopka et al. (2003 [129]) montrent à l'aide de mesures chimiques de méthane et d'Halon-1211 que le vortex polaire est isolé vis à vis des moyennes latitudes entre Février et Mars 2002. Cette constatation vient du fait qu'en dehors de la ligne courbe du diagramme traceur/traceur associée à une combinaison du transport diabatique à grande échelle, et des processus photochimiques, ils ne trouvent pas de relations linéaires entre les deux traceurs (entre les lignes pointillées) associées à des mélanges adiabatiques récents entre le vortex polaire et la "surf zone".

Dans le cas d'un diagramme ozone/CO, les mélanges isentropiques récents créent des lignes de mélange dont les pentes  $\Delta\text{ozone}/\Delta\text{CO}$  et corrélations linéaires seront négatives. La valeur de pente de la ligne de mélange va dépendre du taux de concentration des traceurs dans les masses d'air initiales, et du temps écoulé entre la mesure et le début du processus de mélange isentropique, car les processus diabatiques et chimiques tendent à détruire la relation linéaire obtenue et modifient les taux de mélange vers une relation non linéaire (une ligne courbe) entre les deux traceurs.

Hoor et al.(2002 [81]) exploitent les données des campagnes de vols STREAM97 (5 vols en Mars dans la zone  $90^\circ\text{W}-70^\circ\text{W}$  et  $40^\circ\text{N}-60^\circ\text{N}$ ), et STREAM98 (8 vols en Juillet dans la zone  $20^\circ\text{E}-40^\circ\text{E}$  et  $65^\circ\text{N}-85^\circ\text{N}$ ). Ils identifient les origines des différentes parties du graphique ozone/CO obtenu (figure 4.4). Pour une concentration  $O_3 > 350\text{ppbv}$ , on identifie la branche stratosphérique, caractérisée par une pente raide et une faible dispersion des points. Il n'y a donc pas eu de mélange récent. Pour  $O_3 < 80\text{ppbv}$  on identifie l'air troposphérique caractérisé par une branche quasi-horizontale, avec des niveaux en CO allant jusqu'à  $200\text{ppbv}$ . Entre ces 2 régimes, il existe une ligne de mélange. La pente de la ligne de mélange (la droite qui passe au mieux par l'ensemble des points tel que  $\text{CO} < 80\text{ppbv}$  et  $\text{ozone} < 350\text{ppbv}$ ) est négative. Si la dispersion des points est faible autour de cette droite, alors les points auront une bonne corrélation inverse (inférieure à -0.6).

En étudiant plus précisément la pente de la ligne de mélange en fonction de la température potentielle  $\theta$ , Hoor et al.(2003 [81]) identifient de façon qualitative une couche

de mélange dont le processus de formation est associé à la dynamique du courant-jet subtropical d'une épaisseur située entre  $\theta = 349\text{K}$  et  $\theta = 364\text{K}$  (valeur de pente -6), et une couche de mélange associée à la dynamique du jet polaire d'une épaisseur située entre  $334\text{K}$  et  $349\text{K}$  (valeur de pente -4). Cette classification des lignes de mélange se justifie en extrapolant la ligne de mélange jusque dans la haute troposphère, et en vérifiant que la valeur de CO ainsi obtenue correspond à une valeur moyenne caractéristique de CO dans la région correspondante. De plus, une étude qualitative lagrangienne a confirmé l'origine supposée des régions sources.

Quels moyens a-t-on de distinguer dans la zone haute troposphère/basse stratosphère l'ozone produit photochimiquement dans la troposphère et dans la couche limite planétaire (CLP) de celui de la stratosphère? Il est possible de les distinguer en calculant le coefficient de pente associé du diagramme ozone/CO. Puisque une forte concentration de CO est associée à une forte concentration de précurseur d'ozone, si une hausse de CO est associée à une hausse d'ozone, alors on est en présence soit d'un processus de production photochimique, soit d'un transport issu d'une CLP polluée, et le coefficient de pente sera positif. Ce raisonnement exclut les cas où les précurseurs d'ozone sont associés aux NOx produits par les éclairs (LiNox) dans les systèmes convectifs de méso-échelle. Parrish et al. (1998 [131]) étudient ces processus de photochimie dans la CLP. Le bilan net des réactions chimiques entre précurseurs d'ozone et l'ozone change de signe en fonction des concentrations des constituants chimiques et de l'intensité du rayonnement. Parrish et al. (1998 [131]) trouvent une pente négative de -0.11 dans le cas d'une destruction d'ozone par réaction avec du NO anthropogénique en Décembre, et une pente positive de 0.33 en Août (voir figure 4.5) pour un cas de production photochimique de l'ozone à partir de ses précurseurs. A partir des résultats de Hoor et al. (2002 [81]) et de Parrish et al. (1998 [131]), nous pouvons estimer que dans le cas d'une pente ozone/CO inférieure à -1, nous sommes en présence d'un mélange entre haute troposphère et basse stratosphère et non pas en présence d'un cas de photochimie. Nous nous servons donc de ce seuil sur la pente pour isoler dans les données les processus de mélange isentropique dans la zone UTLS.

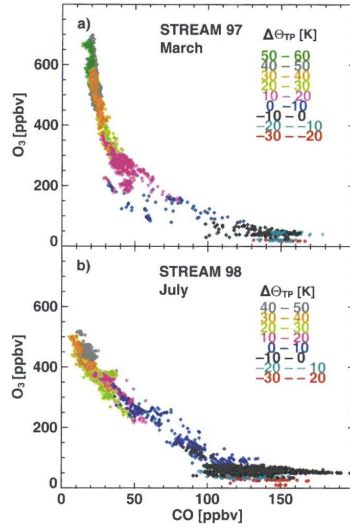


FIG. 4.4 – Graphique ozone/CO obtenu durant la campagne STREAM (Hoor et al.,2002 [81]). Les rapports de mélange d’ozone et CO sont donnés en ppbv. Le code de couleur indique la température potentielle. En haut pour la campagne de Mars, en bas pour la campagne de Juillet. Les pentes en Juillet sont de -4 à -6

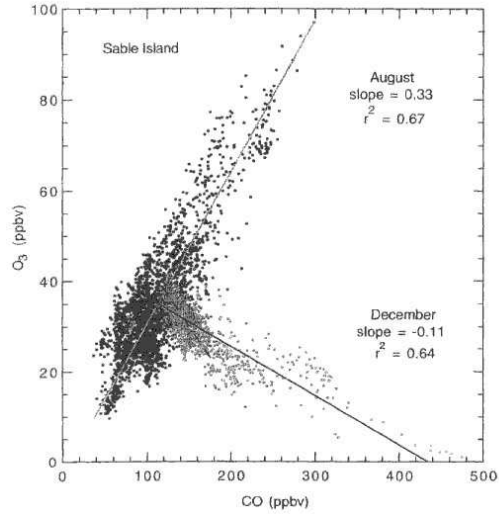


FIG. 4.5 – Graphique ozone/CO tiré des observations dans la CLP de Parrish et al.(1998 [131]). Les 2 droites de régression représentent les ajustements linéaires de 2 groupes d’observation. Un groupe est représenté par une droite à pente ozone/CO positive (0.33) caractéristique d’une production photochimique de l’ozone dans la CLP. Un autre groupe est représenté par une droite à pente ozone/CO négative (-0.11) caractéristique d’une destruction photochimique de l’ozone dans la CLP en présence de fortes concentrations d’acide nitreux.

### 4.2.2 Description des données MOZAIC-3

Dans cette étude, nous allons traiter les données MOZAIC3. Les mesures disponibles sont l'ozone, le monoxyde de carbone, l'humidité relative, et des variables météorologiques usuelles. MOZAIC est un programme de mesures aéroportées, utilisant une flotte de 5 avions de lignes. Les vols MOZAIC couvrent la partie du globe allant de 120°W à 150°E et de 20°N à 70°N. Les mesures analysées ici iront de Janvier à Décembre 2003.

Contrairement à une campagne de recherche, les mesures sur les vols MOZAIC se font de façon automatique, sans contrôle du choix de la situation météorologique, et concernent un nombre restreint d'espèces analysées. Ces faiblesses sont compensées par la grande couverture temporelle et spatiale de MOZAIC puisqu'en volant tous les jours, ces avions ont fourni des données sur plusieurs centaines de vols. C'est pourquoi nous traiterons ces données de façon globale, et non pas au cas par cas comme l'ont fait Hoor et al.(2002 [81]). Nous analyserons les variations saisonnières et géographiques des couches de mélange associées à la dynamique des courant-jets polaire et subtropical.

De façon à étudier la variabilité zonale de la couche de mélange depuis la côte Ouest des USA jusqu'au Japon, nous avons défini des zones géographiques en fonction de plusieurs paramètres : la dynamique des courant-jets d'altitude et la topographie de surface. Nous nous sommes servis des analyses mensuelles du CEPMMT pour caractériser la dynamique d'altitude près de la tropopause.

On a ainsi choisi 4 zones géographiques :

- L'Amérique du Nord entre 20°N et 70°N. Cette zone s'étend du milieu des USA (100°W) jusqu'à la côte Est américaine (60°W). Dans cette zone, seul le jet subtropical apparaît en moyenne mensuelle. L'instabilité du courant-jet polaire gomme sa signature à l'échelle de temps mensuelle.

- L'océan Atlantique Nord entre 20°N et 70°N, et entre 60°W et 20°W. Cette zone a été définie pour sa particularité de n'avoir que des surfaces océaniques, donc des émissions en CO très faibles. Le jet d'altitude suit en moyenne le rail des tempêtes depuis la côte Est des USA jusqu'en Irlande.

- L'Europe entre 20°N et 70°N, et entre 20°W et 50°E. Elle comprend l'Europe de la CEE et l'Afrique du nord. Selon la figure 4.11, c'est une zone où deux courant-jets d'altitude co-existent à l'échelle de temps mensuelle, celui associé au rail des tempêtes sur l'Atlantique Est et le courant-jet subtropical qui commence à s'intensifier sur l'Afrique du Nord.

- L'Asie entre 20°N et 70°N, et entre 60°E et 150°E. Dans cette zone, seul le jet subtropical, très intense, apparaît en moyenne mensuelle. Les taux d'émission de CO en surface sont très élevés au Nord durant les saisons de printemps et d'été en raison des feux de biomasse boréaux, et au Sud et à l'Est en toute saison en raison des émissions anthropiques.

### 4.2.3 Variations régionales et saisonnières des observations MOZAIC

Dans ce chapitre, nous nous focalisons sur les données MOZAIC de l'année 2003. Le tableau 4.1 représente le nombre de vols traités pour chaque saison.

TAB. 4.1 – Nombres de vols MOZAIC traités par saison de l'année 2003

Hiver	Printemps	Ete	Automne
337	338	451	465

La figure 4.6 représente la densité de probabilité des données MOZAIC avec un tourbillon potentiel supérieur à 2pvu en hiver, printemps, été et automne sur des intervalles de 10 ppbv de CO et 15 ppbv d'ozone. La densité de probabilité représente le nombre d'observations dans une maille sur le nombre total d'observations. La valeur de 2pvu étant généralement prise pour représenter la tropopause dynamique aux moyennes latitudes, on peut considérer que les données représentées sur cette figure sont associées à des mesures faites dans la plus basse stratosphère. Ces diagrammes permettent d'avoir une vue d'ensemble de la gamme d'observations en ozone/CO possible des données MOZAIC dans la zone de la plus basse stratosphère.

Les zones colorées en orange représentent les concentrations en ozone/CO les plus fréquemment mesurées, avec des densités de probabilité supérieures à 1%. L'étendue spatiale de cette zone dépend de la position relative des avions MOZAIC par rapport à la tropopause ainsi que de la variabilité des concentrations chimiques ozone et CO dans la stratosphère et la troposphère. Si la distribution des données MOZAIC était homogène dans la basse stratosphère, la zone orange devrait être plus étendue de façon homogène sur les diagrammes ozone/CO.

Les parties jaunes et verte représentent les observations chimiques ayant une densité de probabilité entre 0.01% et 1%. En saison d'automne, on voit que les zones jaune et verte sont compactes et il n'existe pas de variations zonale suivant les 4 régions. En hiver et printemps, la branche verticale est bien développée à cause de l'augmentation de la concentration d'ozone stratosphérique due à la circulation de Brewer Dobson. En été, les parties jaunes et vertes des diagrammes sont plus larges suivant l'horizontale, car de faibles concentrations en CO sont plus fréquemment observées, ce qui rend le diagramme plus concave. Une variabilité de la concavité des diagrammes est clairement visible entre la saison printemps et été. Prenons l'exemple de la région Europe pour tenter une interprétation. En été, le jet subtropical se situe vers 35°N au dessus de cette région. Les surfaces isentropes qui traversent la tropopause subtropicale se prolongent au Sud dans la haute troposphère tropicale. Le brassage adiabatique sur ces surfaces peut mélanger la basse stratosphère au dessus de l'Europe avec des masses d'air d'origine tropicale. En été boréal, la composition chimique des masses d'air de la haute troposphère tropicale peut être très influencée par le court-circuit convectif avec les masses d'air de la couche limite planétaire tropicale peu

chargée en CO. Au printemps, le jet subtropical se situe vers 25°N. Le transport issu des latitudes subtropicales influence moins la concentration chimique de la basse stratosphère au dessus de l'Europe, ce qui réduit la concavité du diagramme. La forme des diagrammes ozone CO peut donc dépendre, entre autres, des variations saisonnières des concentrations en ozone et CO, et de la position des jet subtropical et polaire au dessus des régions observées.

La partie bleue représente les mesures rares d'ozone et de CO. Il existe une partie bleue au sommet de la branche verticale. Elle est associée à des mesures faites au coeur de thalwegs particulièrement creusés. Ce sont dans ces situations que les avions MOZAIC échantillonnent les masses d'air les plus fortement chargées en ozone stratosphérique. Il existe aussi une partie bleue au bout droit de la branche horizontale. Son développement est associé à une mise en contact des masses d'air polluées de la couche limite planétaire avec la tropopause. Il existe une variabilité saisonnière de l'extension de cette branche horizontale, particulièrement en Asie. Elle est peu développée en automne et hiver, et bien développée au printemps et en été. Il existe aussi une variabilité zonale, faible en hiver et automne, et forte au printemps et en été. Les concentrations en CO sont particulièrement fortes au dessus de l'Asie en été, avec des concentrations au delà de 300ppbv.

Enfin, certaines parties bleues dessinent des branches horizontales associées à de fortes valeurs d'ozone. Elles sont vraisemblablement issues d'intrusions troposphériques dans la basse stratosphère par convection profonde ou par pyro-convection (Ray et al., 2004 [144]).

Ray et al. (2004 [144]) proposent une explication à ces branches horizontales :

1) Une intrusion troposphérique profonde par convection se produit dans la stratosphère.

2) Un mélange par brassage isentropique se produit ce qui crée une ligne de mélange.

3) La ligne de mélange se "redresse" vers l'horizontale par production photochimique d'ozone avec les précurseurs amenés par l'intrusion troposphérique.

Ray et al. (2004 [144]) ont mesuré ce type de signature après un temps de résidence dans la stratosphère d'une semaine. Les mesures MOZAIC montrent qu'elles se produisent fréquemment au printemps et en été. On ne peut pas conclure sur l'origine géographique de ces intrusions sans une étude lagrangienne.

La section suivante montre la méthode employée pour distinguer les mesures associées aux mélanges isentropiques récents dans la couche de mélange.





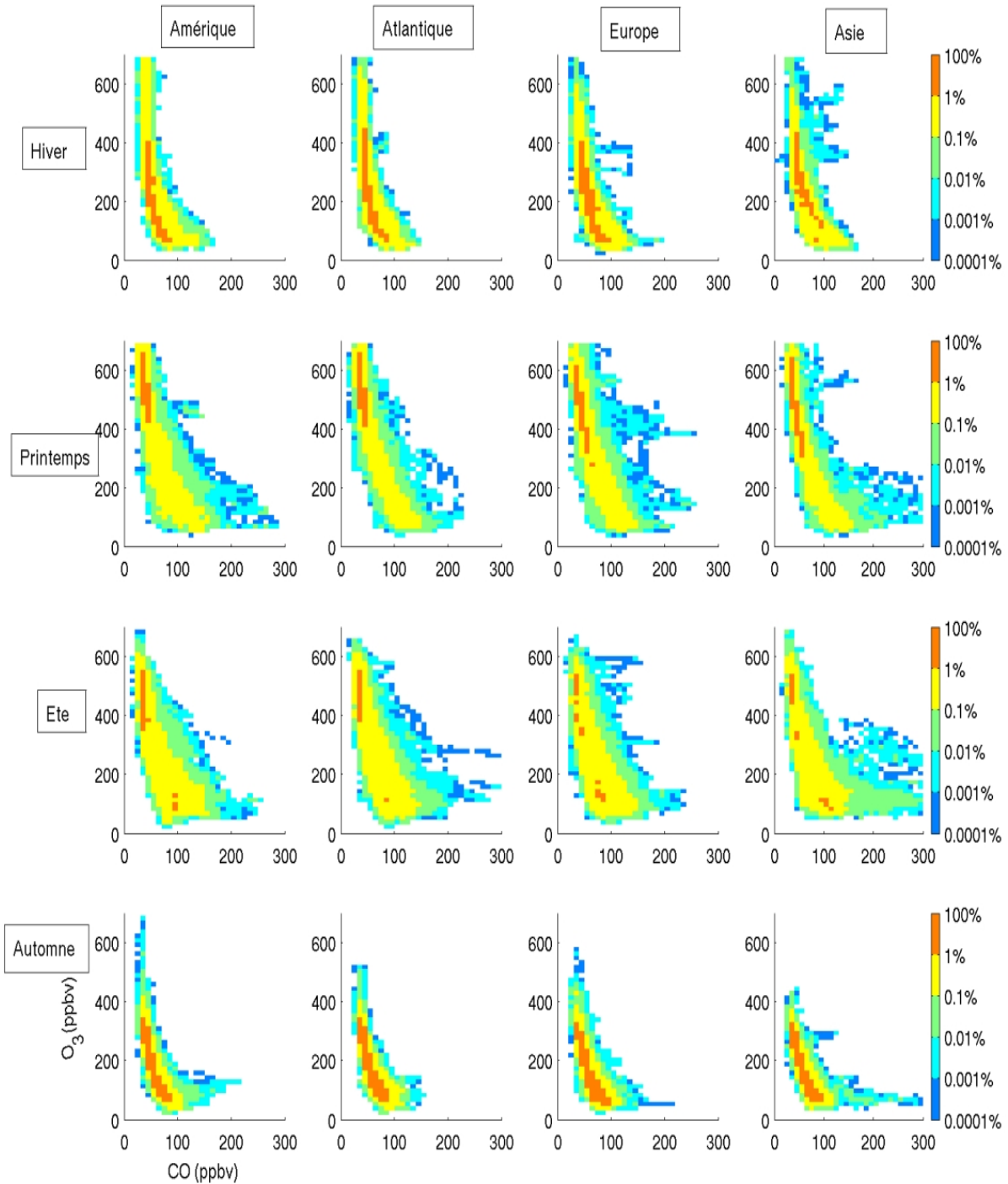


FIG. 4.6 – Densité de probabilité des observations MOZAIC sur un repère CO (abscisses, ppbv) et ozone (ordonnées, ppbv). pour 4 saisons et 4 régions (définies dans le texte).

#### 4.2.4 Traitement des données

##### Contraintes liées au traitement automatique des données.

Au contraire de Hoor et al.(2002 [81]) qui ont procédé à des analyses spécifiques de quelques cas d'études, nous avons choisi ici d'étudier les caractéristiques de la couche de mélange en traitant de façon systématique plusieurs centaines de vols correspondants à une zone géographique et une période données. Par exemple, la figure 4.7 montre le graphe de dispersion ozone/CO associé à la zone europe en hiver. On constate que l'on obtient la même forme que les graphiques de Hoor et al.(2002 [81]), à savoir une branche horizontale et une branche verticale, et une zone intermédiaire dans laquelle il semble possible de définir des lignes de mélange. La zone intermédiaire (la partie arrondie de la forme en L du graphe ozone/CO) présente plusieurs caractéristiques dont il faut tenir compte pour définir la méthodologie d'étude de la couche de mélange. En raison de la densité des observations MOZAIC, un point sur le graphe  $O_3 - CO$  peut correspondre à un large éventail d'autres mesures thermodynamiques, comme par exemple la température potentielle. Il y a sur ce graphique un écrasement des données au fur et à mesure qu'elles sont affichées sur un point de coordonnées (ozone,CO). Il est impossible avec cette simple méthode d'étudier les caractéristiques de la couche de mélange. Il faut donc adopter une méthode pour moyennner les données en les classant avec des critères d'homogénéité. Nous allons pour cela utiliser la température potentielle  $\theta$  comme dans Hoor et al.(2002 [81]). Le choix des classes en  $\theta$  se fera à l'aide des analyses mensuelles du CEPMMT. Le contrôle de l'homogénéité des classes se fera par un calcul de l'écart type sur  $\theta$ .

L'épaisseur de l'arrondi de la forme en L est très forte, ce qui suggère une assez large variabilité des lignes de mélange. Il ne serait donc pas informatif de calculer la pente des lignes de mélange sur les données d'un ensemble de vols. Il faut donc définir un traitement vol par vol et définir une méthode qui permet de synthétiser les résultats de l'ensemble des cas sur un seul diagramme ozone/CO.

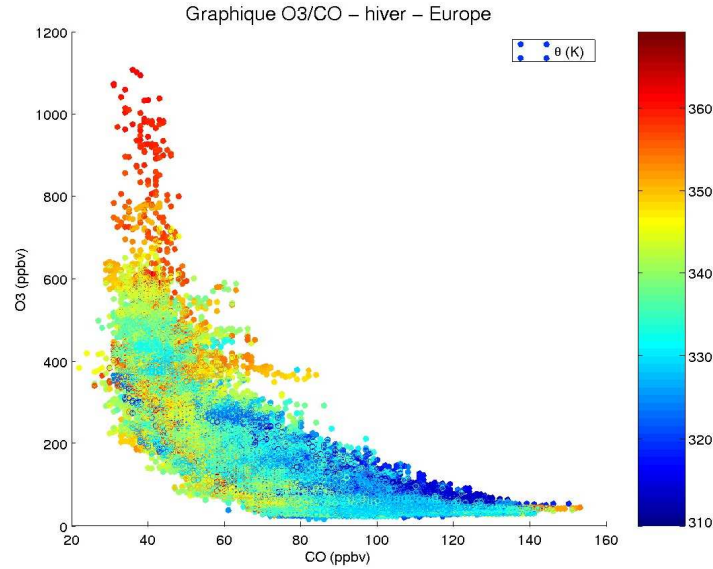


FIG. 4.7 – Diagramme ozone/CO des données MOZAIC pour la zone Europe en hiver. Le code couleur indique la température potentielle. Ce graphe correspond à 102 vols de Décembre 2001 à Février 2002. Les rapports de mélange de ozone et CO sont indiqués en ppbv.

### Traitement des données

Dans ce paragraphe, nous allons détailler la façon dont nous procédons pour traiter les données. Le graphe 4.8 est l'organigramme schématisant la démarche globale du traitement des données MOZAIC.

Chaque vol est traité indépendamment. Une sélection sur la zone géographique est effectuée comme expliqué à la section 4.2.2. On spécifie ensuite 2 classes en température potentielle sans seuil de PV pour différencier la couche de mélange liée aux masses d'air troposphérique des moyennes latitudes de celle liée aux masses d'air des latitudes subtropicales, pour chaque saison. La justification de ces 2 classes en  $\theta$  est donnée plus loin dans le chapitre.

Pour chaque série temporelle de données (correspondant à un critère géographique et à un critère en  $\theta$ ), on applique une boucle sur le temps décalée par pas de 4 secondes, soit 1 point de mesure. L'uniformisation des valeurs de pente et de corrélation entre mailles voisines sur les diagrammes ozone/CO que génère cette méthode est discutée plus loin. Cette boucle temporelle prend en compte un intervalle de 50 points consécutifs (soit 50km horizontalement), pour lequel on calcule un coefficient de pente et de corrélation. Le coefficient de pente est le coefficient directeur optimal de la droite ajustant au mieux les variations en ozone et CO du nuage de points de l'intervalle de données. Ce coefficient est calculé par la méthode des moindres carrés. Par la suite, ce coefficient sera associé à la valeur en ozone et CO du point central de l'intervalle. Le coefficient de corrélation est le coefficient

de covariance entre ozone et CO dans l'intervalle. Ce coefficient traduit la tendance qu'a le nuage de points à être dispersé par rapport à la droite de régression calculée avec le coefficient de pente. Plus ce coefficient se rapprochera de la valeur 1 en valeur absolue, et moins les points seront dispersés par rapport à la droite, et par conséquent le coefficient de pente aura une meilleure valeur statistique.

Le fait de prendre un intervalle de calcul de 50 points n'est pas arbitraire, il existe des contraintes à ce choix. D'une part, il existe une contrainte instrumentale. Le détecteur en ozone donne des valeurs indépendantes toutes les 4 secondes, c'est à dire à chaque point des données. Par contre, l'instrument de détection en CO mesure des valeurs indépendantes toutes les 30 secondes, c'est à dire tous les 7 points. Donc si l'on veut que les coefficients de pente et de corrélation aient un véritable sens physique et statistique, il faut prendre un intervalle ayant au moins 3 points indépendants pour le CO, c'est à dire un intervalle minimum de 21 points de valeurs dans la base de données.

D'autre part, nous avons pu établir que les lignes de mélange associées aux traversées de la tropopause par un avion dans le cas des grands thalwegs synoptiques, ont une dimension horizontale maximale de 100km environ. Ce résultat a été obtenu par un programme annexe. Dans ce programme, on calcule 2 coefficients de pente associés à 2 intervalles successifs de 20 points. Si ces 2 coefficients sont identiques avec une marge d'erreur de  $\pm 1$ , alors on ajoute 5 points au premier intervalle, et on compare le coefficient obtenu pour l'intervalle de 25 points avec l'intervalle suivant de 20 points, et ainsi de suite. Quand la condition sur la pente n'est plus atteinte, alors le programme retourne la taille du dernier intervalle, et reprend le même processus pour les intervalles suivants. La taille de cet intervalle sera alors la taille de la ligne de mélange analysée (si la pente est inférieure à -1). C'est par cette méthode que l'on a obtenu la taille maximale de 100km (figure 4.9).

Donc pour étudier ces lignes de mélange, il faut prendre un intervalle d'une taille maximum de 100 points. Finalement, plus on augmente la taille de l'intervalle de calcul, et plus on aura de points indépendants. Cependant on aura une évaluation de moins en moins précise des lignes de mélange si l'intervalle contient trop de points des branches horizontales et verticales du diagramme ozone/CO. A contrario, en réduisant l'intervalle on peut l'ajuster à la taille réelle des lignes de mélange, mais une trop forte réduction entraînera une statistique de moins en moins fiable. L'intervalle de 50 points nous semble donc être un bon compromis entre ces 2 contraintes.

Il faut noter que le choix de la taille de l'intervalle n'a pas une incidence importante sur l'interprétation finale. Sur le graphe 4.10, on constate qu'on obtient des résultats comparables pour 30 points ou 100 points. Ainsi, l'uniformisation que génère le glissement de la boucle temporelle par pas de 4 secondes a un faible impact sur les résultats.

Après le calcul du coefficient de pente et de corrélation, on applique une série de filtres qui vise à sélectionner au mieux les intervalles de points qui représentent des lignes de mélange. Un premier filtre sélectionne les valeurs de la pente tel que  $a < -1$ . Ceci élimine tout intervalle de donnée non lié à une ligne de mélange entre les réservoirs troposphérique et stratosphérique, c'est à dire les cas de production photochimique ( $a > 0$ ) ou de destruction photochimique dans la CLP ( $-1 < a < 0$ ) comme on l'a vu dans l'étude de Parrish et al. (1998 [131]). Un deuxième filtre sélectionne les coefficients de corrélation tel que  $c < -0.6$ .

Ceci assure le fait que la série temporelle de 50 points soit bien placée spatialement par rapport à la ligne de mélange en éliminant les séries qui contiennent trop de points de l'un des réservoirs troposphérique ou stratosphérique, c'est à dire les branches horizontale et verticale respectivement. En effet, lorsque un intervalle se situe à cheval sur un des réservoirs atmosphérique et une ligne de mélange, la dispersion des points est plus importante, donc le coefficient de corrélation tend plus vers 0. Ainsi, ce filtre réduit efficacement ce phénomène et nous permet un traitement algorithmique simple en faisant glisser l'intervalle de 50 points de données point par point.

Après les filtres sur la pente et sur la corrélation les coefficients  $a$  et  $c$  sont mis en grille sur le diagramme ozone/CO avec une maille telle que  $\Delta O_3=15\text{ppbv}$  et  $\Delta \text{CO}=5\text{ppbv}$ . Par ailleurs on met aussi sur la même grille les variables physiques comme  $\theta$ .

A la sortie de la boucle sur les vols, toutes les données ont été traitées en affectant les coefficients  $a, c$  et  $\theta$  à une grille sur le diagramme ozone/CO. Nous allons alors calculer les valeurs moyennes de ces coefficients sur chaque maille de la grille ozone/CO et de leur écart-type.

Après ces calculs, on applique sur chaque maille de la grille ozone/CO un seuil en fréquence qui va éliminer les événements rares non représentatifs d'une tendance moyenne. On vérifie aussi pour un intervalle donné que l'écart type en  $\theta$  ne soit pas trop grand, ce qui signifierait que les valeurs moyennes obtenues n'auraient pas une véritable valeur physique.

Nous avons défini des couches isentropes pour le calcul des lignes de mélange en se basant sur la structure mensuelle moyenne des courant-jets et des déformations associées des surfaces isentropes à l'aide des fichiers operationnels mensuels du CEPMMT. Les valeurs limites de température potentielle pour chaque saison sont données sur le tableau 4.2.

TAB. 4.2 – Valeurs seuils en température potentielle des surfaces isentropiques intersectant le courant-jet polaire ou subtropical.

	Hiver	Printemps	Ete	Automne
jet subtropical	$\theta \geq 325K$	$\theta \geq 330K$	$\theta \geq 340K$	$\theta \geq 350K$
jet polaire	$\theta \leq 320K$	$\theta \leq 325K$	$\theta \leq 335K$	$\theta \leq 345K$

Prenons comme exemple la saison d'été. La figure 4.11 représente les surfaces isentropes, des isocontours de PV et des valeurs de vents moyennés sur le mois d'Août dans le plan d'une coupe verticale passant à travers la région Europe. On constate que la répartition en température potentielle dans ce cas ( $\theta \geq 340K$  pour le jet subtropical et  $\theta \leq 335K$  pour le jet polaire) est bien adaptée à la zone européenne où les deux courant-jets co-existent. Nous l'avons aussi conservé sur les autres zones géographiques où seul le jet subtropical apparaît en moyenne mensuelle de façon à ne pas traiter les lignes de mélanges dans des couches isentropes trop épaisses.

## 4.2 Approche chimique à l'aide des données MOZAIC

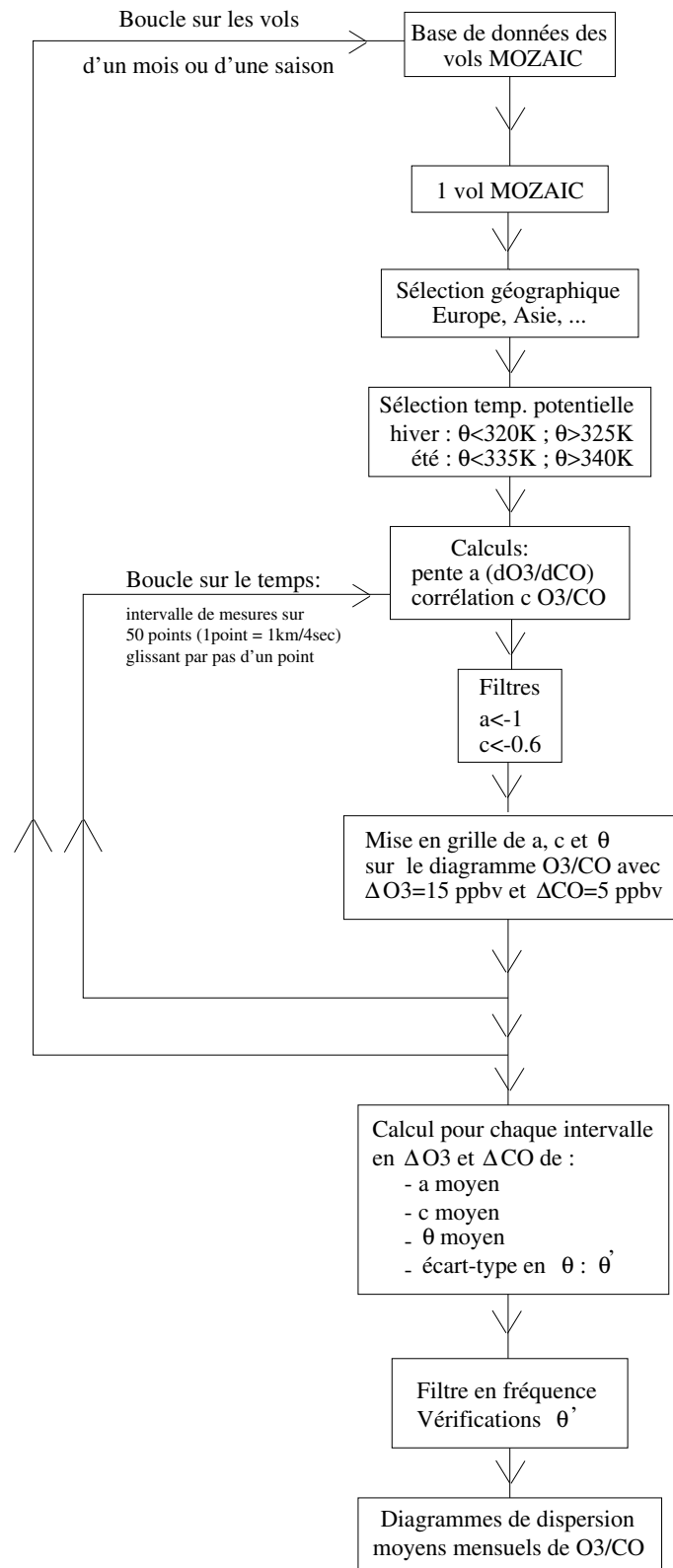


FIG. 4.8 – Organigramme du traitement des données MOZAIC.

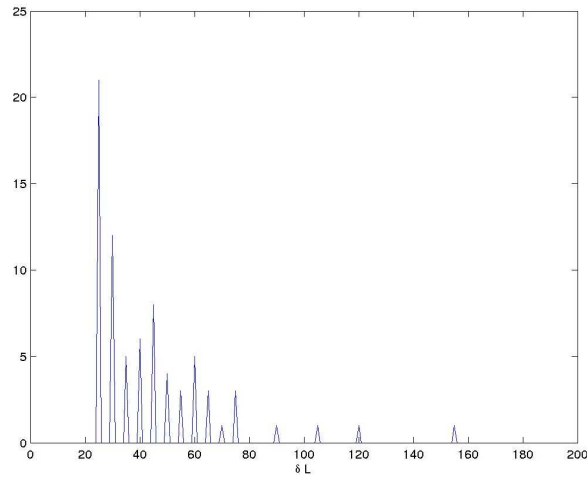


FIG. 4.9 – Diagramme en fréquence sur 150 vols de la taille (en km) des lignes de mélange pour les vols MOZAIK sur la zone Europe en été 2002.

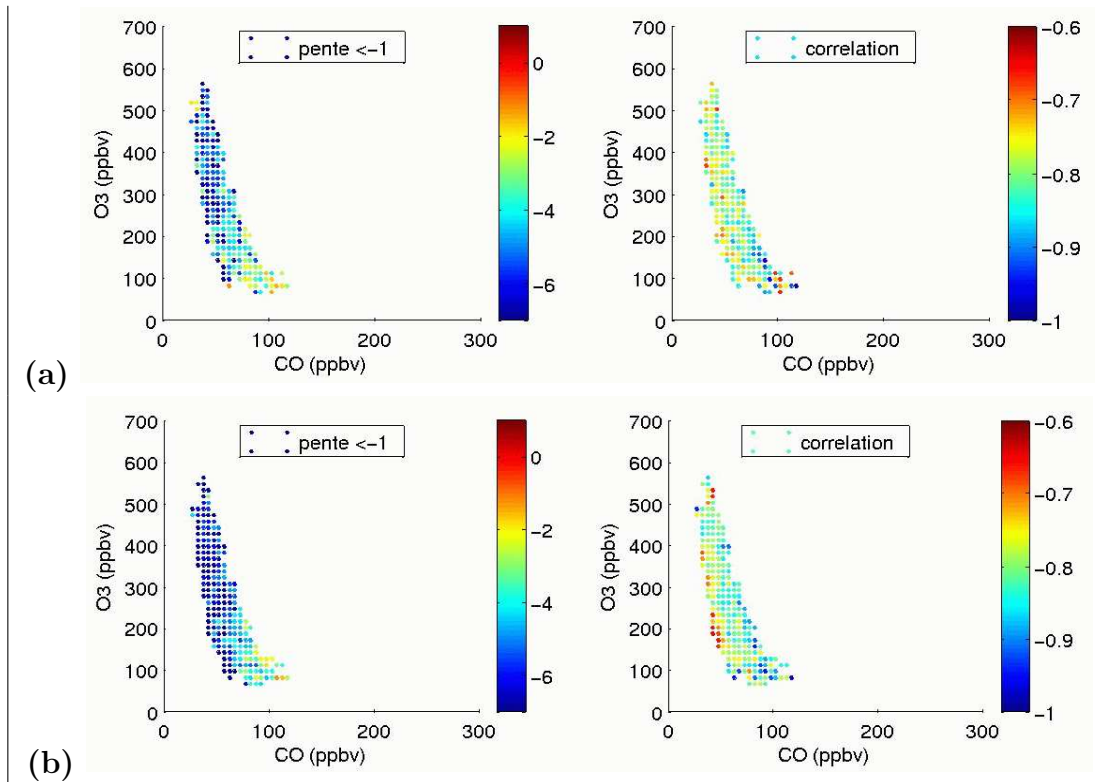


FIG. 4.10 – Diagrammes ozone/CO obtenus pour (a) 30 points et (b) 100 points. À gauche la pente des lignes de mélange. À droite le coefficient de corrélation.

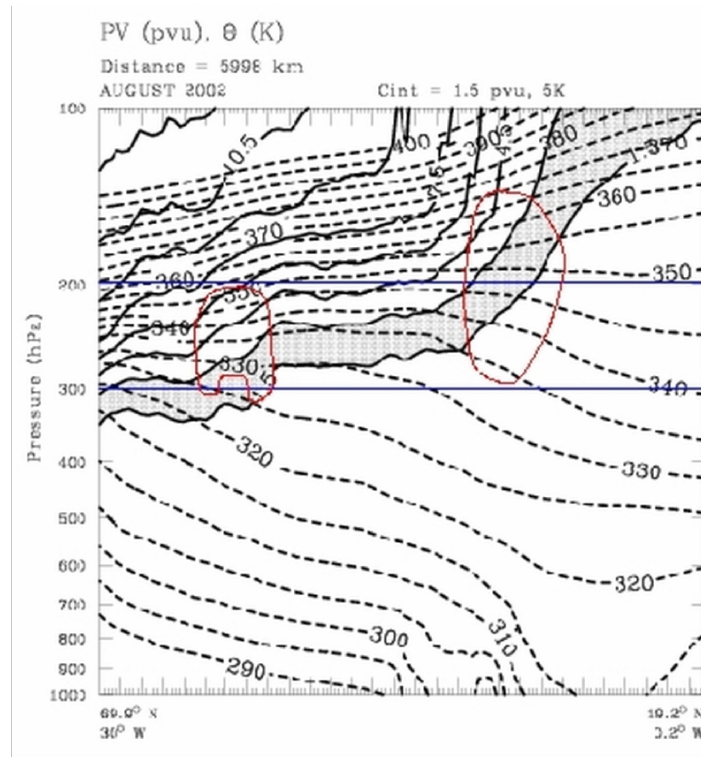


FIG. 4.11 – Coupe verticale en Août 2002 issue de l'analyse mensuelle du CEPMMT. Isentropes (pointillés, K) et iso-contours du tourbillon potentiel (lignes pleines tous les 1.5 pvu ( $1\text{pvu}=10^{-6} \text{ m}^2 \text{ s}^{-1} \text{ K kg}^{-1}$ ), ombre entre 1.5 et 3pvu représentant la tropopause dynamique). Les lignes bleues délimitent la zone de vol des avions MOZAIC. Les isocontours rouges sont les isocontours de vent perpendiculaire au plan de la coupe. La coupe va de  $70^\circ\text{N}/30^\circ\text{W}$  à  $20^\circ\text{N}/0^\circ\text{W}$ .

#### 4.2.5 Caractérisation des mélanges récents

La figure 4.12 représente les diagrammes ozone/CO associés à la couche de mélange telle que définie par l'organigramme de la figure 4.8. Les graphes sont faits pour 4 saisons, colorés par la corrélation temporelle, et avec une différenciation suivant les valeurs seuils de température potentielle présentées sur le tableau 4.2. Nous ne faisons pas ici de différenciation suivant les régions.

On constate que les diagrammes associés à la couche de mélange ne conservent que les parties inclinées de la figure 4.6. Les branches verticale et horizontale des réservoirs stratosphérique et troposphérique ont été supprimées. Il existe une variation saisonnière de la forme générale de la couche de mélange dans les diagrammes ozone/CO, avec un élargissement maximum en été, et minimum en Automne, et ceci pour les deux types de gamme de températures potentielles. On remarque aussi que pour un niveau de concentra-



tion en ozone donné, la couche de mélange associée au jet polaire est plus chargée en CO que la couche de mélange associée au jet subtropical.

La couche de mélange associée au jet polaire concerne un réservoir troposphérique ayant des concentrations en ozone d'environ 60 ppbv et en CO entre 90 et 150 ppbv de CO, et un réservoir stratosphérique avec une concentration en ozone entre 250 ppbv à l'automne et 400 ppbv au printemps et 45 ppbv de CO. Ces résultats semblent donc montrer qu'il existe pour une même saison des lignes de mélanges reliant un réservoir stratosphérique relativement homogène et des réservoirs troposphériques de différentes natures.

On constate aussi que les corrélations les plus négatives, donc les meilleures, se situent sur la bordure associée aux forts CO (bordure droite). Il existe une dégradation de la corrélation au niveau de la zone associée au réservoir stratosphérique, mais également sur la bordure de la couche de mélange associée aux faibles CO (bordure gauche), clairement visible sur la couche de mélange associée au jet subtropical en été. Il existe donc un gradient de corrélation de la bordure gauche de la couche de mélange vers la bordure droite. Une interprétation de ce gradient va être tentée à l'aide des figures suivantes.

La figure 4.13 représente le diagramme ozone/CO coloré par la valeur moyenne de température potentielle pour les quatre saisons et suivant la différenciation en température potentielle. On constate que la couche de mélange se situe entre 310K et 350K en hiver, entre 315 et 340K au printemps, 315K et 360K en été, et entre 320 et 360K en automne.

Pour les latitudes subtropicales et en été, la distribution de  $\theta$  moyen dans le diagramme O3/CO montre qu'il existe une relation entre la température potentielle des couches isentropes et la concentration en CO. Pour un niveau d'ozone donné, les couches isentropes ayant le  $\theta$  le plus fort sont les moins chargées en CO, et les couches isentropes ayant le  $\theta$  le plus faible sont les plus chargées en CO. Cette relation, visible dans la basse stratosphère entre 340K et 360K, s'étend sur une gamme de rapports de mélange de l'ozone de 100 à 400 ppbv environ. Nous avons tenté d'élaborer une explication à cette relation. Elle est résumée graphiquement sur la figure 4.15 et se base sur 2 constats. Dans la zone Europe que nous avons définie, les forts taux d'émission de CO en surface sont au Nord, les faibles taux d'émission sont au Sud. On sait d'autre part qu'il existe en moyenne mensuelle 2 courant-jets d'altitude dans cette région en été, le polaire au Nord, le subtropical au Sud. Lorsque l'avion vole sur des surfaces  $\theta$  élevées ( $\theta \sim 360K$ ), le niveau de CO devrait être faible car cette gamme de surfaces isentropes sort dans la troposphère au niveau du courant-jet subtropical, c'est à dire au dessus de régions où le taux d'émissions de CO en surface est a priori plus faible qu'ailleurs. Cela correspond à l'Atlantique subtropical Est, l'Afrique du Nord et la Méditerranée pour la zone Europe que nous avons définie. Au contraire, lorsque l'avion vole sur des surfaces  $\theta$  plus faibles ( $\theta \sim 340K$ ), le niveau de CO peut être plus fort car cette gamme de surfaces isentropes est associée à la dynamique du courant-jet polaire et elle sort dans la troposphère plus au Nord au dessus de l'Europe de la CEE où les taux d'émissions en surface sont plus élevés que dans la partie Sud. La distribution de la corrélation sur le diagramme O3/CO (figure 4.12) montre aussi une relation assez nette entre forte température potentielle et faible corrélation inverse et entre faible température potentielle et forte corrélation inverse. Une tentative d'explication simple que l'on peut proposer est liée à la distance méridienne entre la zone de vol MOZAIC et la

tropopause (fig. 4.15). Plus la température potentielle est élevée, plus le mélange s'opère sur une grande distance le long d'une isentrope et donc plus le temps caractéristique des processus de mélange isentrope entre stratosphère et troposphère devrait être grand, ce qui a pour effet de diminuer la qualité de la corrélation entre O<sub>3</sub> et CO.

Un étude lagrangienne a été faite pour confirmer ces hypothèses. Des rétrotrajectoires de 5 jours ont été faites à l'aide du modèle LAGRANTO et des fichiers d'analyses et de prévisions du CEPMMT avec une résolution de 0.5° en latitude longitude, 60 niveaux verticaux, et disponibles tous les 3 heures.

La figure 4.14 représente le temps de résidence moyen des observations ozone/CO dans la stratosphère calculé sur une période de 5 jours. Pour des concentrations d'ozone inférieures à 150 ppbv, il est difficile d'observer une différence entre les temps de résidence des deux réservoirs. Cependant, pour une concentration de 200 ppbv d'ozone, on constate que les mesures dans la couche de mélange au niveau du jet polaire ont en moyenne des temps de résidence dans la stratosphère plus court que dans la couche de mélange associée au jet subtropical. Au dessus de 200 ppbv d'ozone, les temps de résidence moyens dans la stratosphère sont supérieurs à 5 jours. Cette étude lagrangienne ne permet pas de confirmer cette différence sur les temps de résidence sur l'ensemble du diagramme ozone/CO, notamment parce qu'une durée de 5 jours est courte vis à vis des temps caractéristiques de mélange par brassage. Cependant on peut dire, avec un certain degré de confiance, que dans la couche de mélange, plus la température potentielle est grande, plus grand est le temps de résidence dans la stratosphère, et plus faible sera la concentration en CO pour un même niveau de concentration en ozone. Ces résultats confirment les explications données par l'interprétation du schéma de la figure 4.15.

Sur les diagrammes en saison d'hiver, printemps et automne, la relation entre température potentielle et CO est présente mais dans une moindre mesure. Elle ne s'étend pas sous le niveau d'ozone de 200 ppbv. En fait, le jet subtropical étant en moyenne à des latitudes plus faibles durant ses 3 saisons qu'en été, les avions MOZAIC n'échantillonnent pas la partie basse de la couche de mélange associée au jet subtropical.

Sur les graphes associés à la couche de mélange du jet polaire, la rupture de tropopause au niveau du jet est en moyenne plus au Nord que dans le cas du jet subtropical. Ainsi, la partie troposphérique des surfaces isentropes concernées couvre plus largement les surfaces continentales où le taux d'émission de CO est plus intense. Le mélange se fait donc pour des niveaux en CO minimum plus grands que ceux atteints au niveau du jet subtropical.

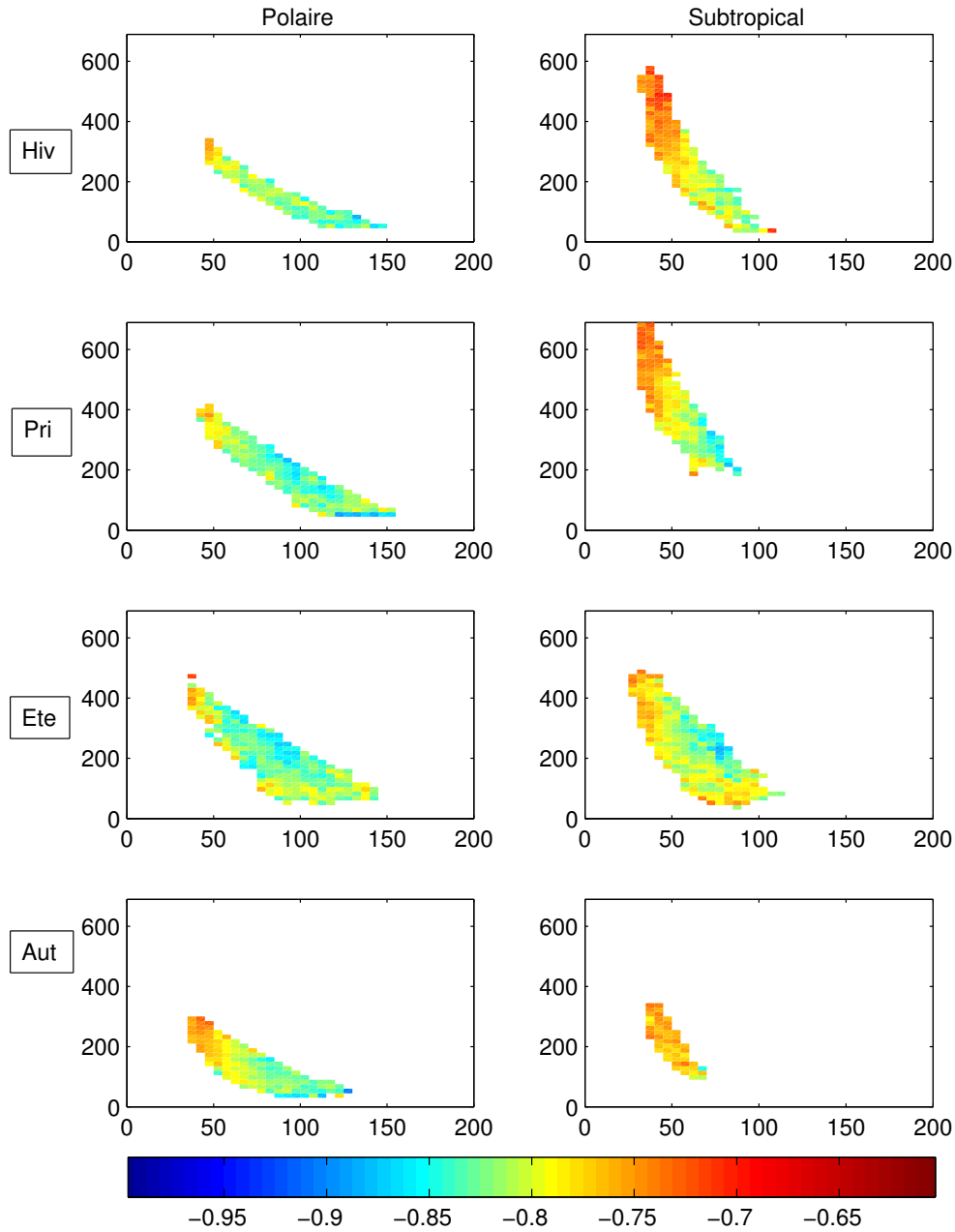


FIG. 4.12 – Diagrammes ozone/CO colorés par la corrélation temporelle moyenne après traitement de donnée. les quatre lignes correspondent aux quatre saisons. Les corrélations moyennes de la colonne de gauche sont obtenues pour des seuils en température potentielle traversant la tropopause polaire (seconde ligne du tableau 4.2). La colonne de droite correspond aux seuils en température potentielle traversant la tropopause subtropicale (première ligne du tableau 4.2).

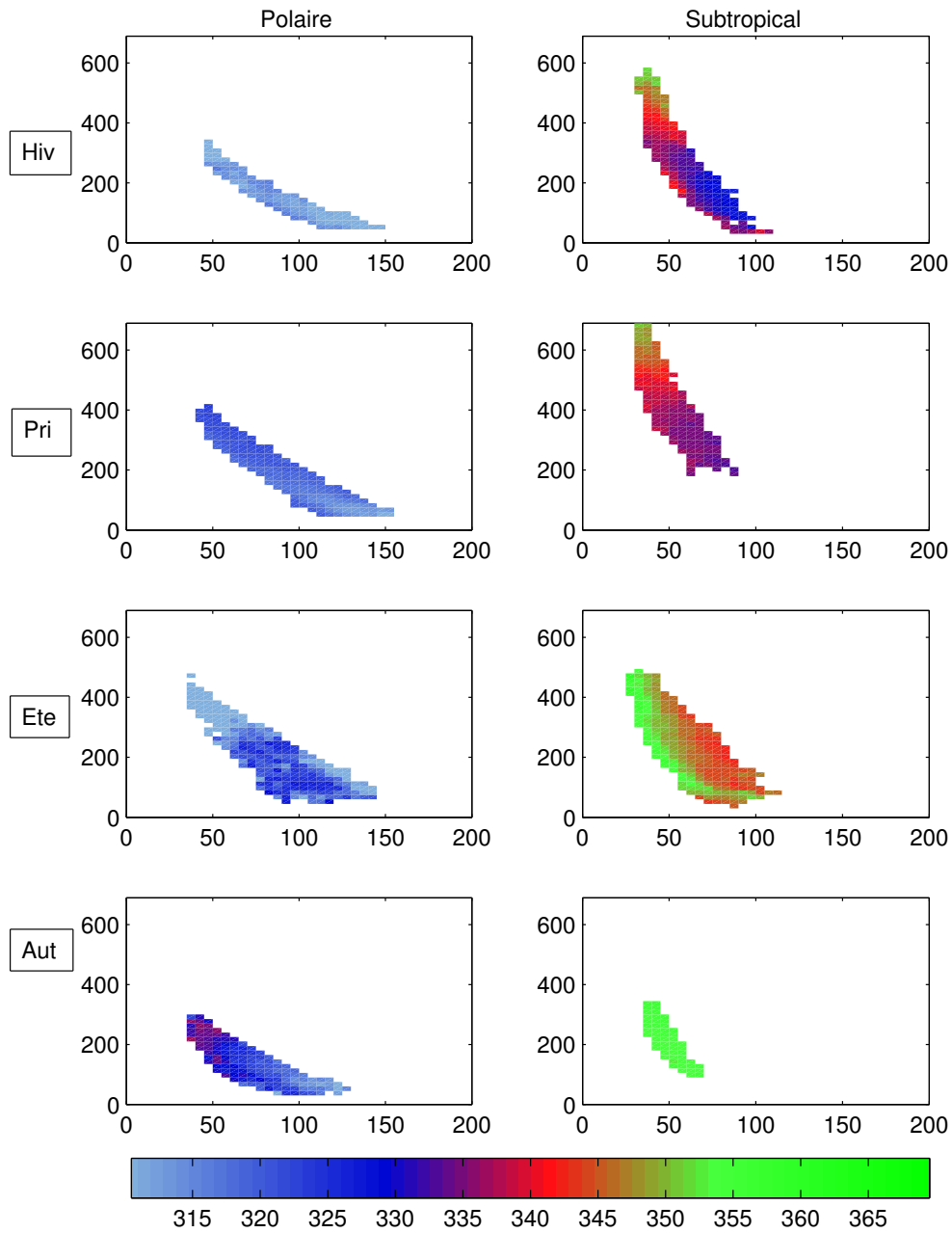


FIG. 4.13 – Même chose que pour la figure 4.12, mais les diagrammes ozone/CO sont colorés par la température potentielle.

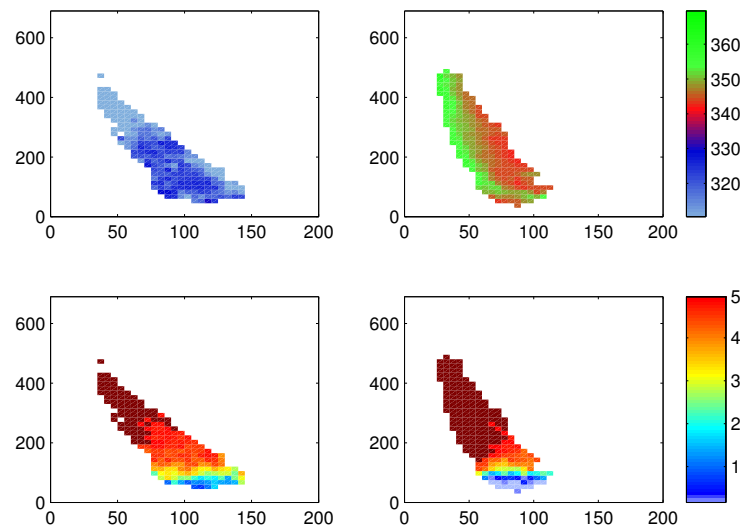


FIG. 4.14 – Diagrammes ozone/CO durant la saison d’été colorés par la température potentielle (en haut, K) et le temps de résidence dans la stratosphère (en bas, en jours) calculé sur une période de rétrotrajectoire de 5 jours.

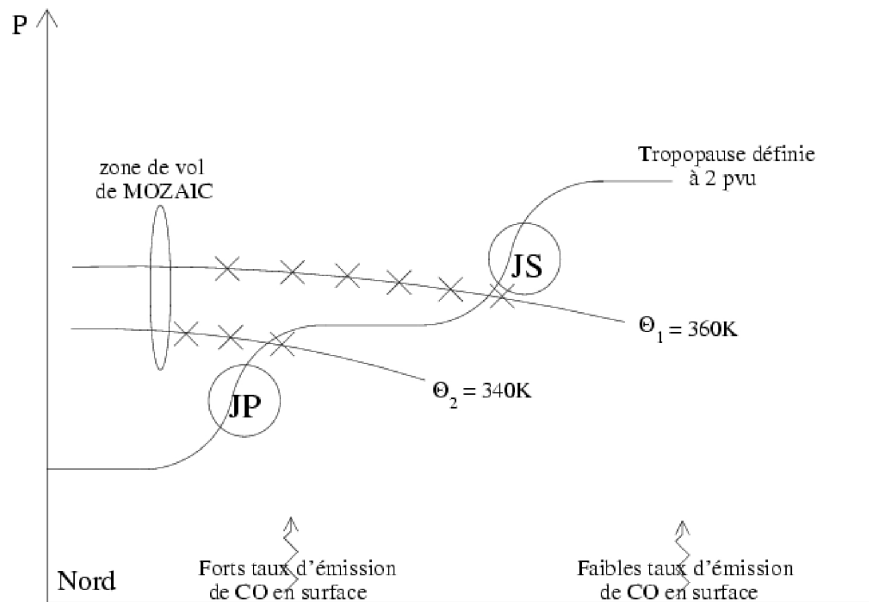


FIG. 4.15 – Schéma d’une coupe méridienne traversant les deux courant-jets. les croix symbolisent l’extension méridienne de la zone où s’opère le mélange le long d’une isentrope entre la zone des vols MOZAIC et la haute troposphère.

### 4.2.6 Lignes de mélange synthétiques

Nous allons synthétiser les caractéristiques des mélanges isentropiques récents pour les quatre saisons de l'année 2003, et pour les quatre régions définies précédemment.

En appliquant un critère sur la corrélation avec  $c \leq -0.9$ , on sélectionne les lignes de mélange les plus cohérentes, donc les plus récentes. En traçant une droite de régression sur l'ensemble des points concernés, on obtient alors une ligne de mélange synthétique qui est représentative des lignes de mélange isentropiques rencontrées en moyenne pour chaque saison et chaque région. En se basant sur le comportement des couches de mélange sur la figure 4.12, on fixe la concentration en ozone du réservoir troposphérique à 60ppbv, et du CO dans le réservoir stratosphérique à 45ppbv. On suppose ici que le réservoir stratosphérique se caractérise par une variabilité en ozone, et le réservoir troposphérique par une variabilité en CO.

La figure 4.16 représente les lignes de mélange synthétiques pour les 4 saisons et les 4 régions géographiques, associées à la couche de mélange au niveau du jet polaire. On constate que l'automne (Fig. 4.16d) est la saison durant laquelle la différence de composition chimique des 2 réservoirs stratosphérique et troposphérique est la plus faible, ce qui est conforme à l'étriquement du diagramme ozone/CO en cette saison. Les trois régions Amérique, Atlantique et Europe ont des lignes synthétiques similaires, avec une concentration de 100ppbv de CO dans le réservoir troposphérique et de 200ppbv d'ozone dans le réservoir stratosphérique. L'Asie se démarque avec un réservoir troposphérique ayant une concentration en CO de 140 ppbv.

La figure 4.16a, associée à la saison d'hiver, montre une certaine homogénéité des lignes de mélange synthétiques entre les 4 régions avec un réservoir troposphérique à 130ppbv de CO et un réservoir stratosphérique à 280ppbv d'ozone.

La figure 4.16b au printemps montre une homogénéité des lignes synthétiques des régions Atlantique, Asie et Europe, avec des réservoirs troposphériques à 150 ppbv de CO et des réservoirs stratosphériques à 300 ppbv d'ozone. La région Amérique possède un réservoir troposphérique enrichi de 160ppbv de CO.

La figure 4.16c associée à la saison d'été présente des lignes de mélange synthétiques homogènes pour les régions Amérique, Atlantique et Europe avec un réservoir troposphérique ayant 150 ppbv de CO et un réservoir stratosphérique ayant 350 ppbv d'ozone. Cette valeur est supérieure à la valeur du réservoir stratosphérique au printemps de 300 ppbv, ce qui est contradictoire avec le cycle saisonnier de l'ozone stratosphérique, associé à un maximum au printemps et un minimum en automne. Ceci semble être une indication des limites de la méthode employée ici. Il est possible que :

- Il manque un contrôle de la valeur de fond d'ozone stratosphérique tel que défini par la ligne synthétique (par rapport à sa valeur climatologique)
- Il manque une détermination des limites  $[O_3, CO]$  pour lesquelles on peut faire cette extrapolation linéaire, en contrôlant par exemple l'homogénéité de la température potentielle
- L'hypothèse que la valeur d'ozone stratosphérique extrapolée à partir des mesures associées aux mélanges récents correspond à la valeur d'ozone stratosphérique climatolo-

gique est peut être limitée par le fait qu'un terme de perturbation par brassage dans la zone haute troposphère peut s'ajouter à la valeur d'ozone stratosphérique climatologique.

L'Asie possède un réservoir stratosphérique ayant la plus faible concentration en ozone de 200ppbv, et le réservoir troposphérique ayant la concentration en CO la plus forte, de 250ppbv. Outre les limites de la méthode exposées plus haut, cette faible concentration en ozone peut potentiellement s'expliquer par l'impact de la mousson asiatique qui injecte de l'air troposphérique chargé en CO et humidité dans la stratosphère subtropicale (Dethof et al., 1999 [2]; Gettelman et al. (2004 [67]); Li et al., (2005 [105])). Ce flux troposphérique peut diminuer la concentration en ozone de la couche de mélange subtropicale au dessus de l'Asie, et peut être celle de la couche de mélange du jet polaire.

Les variations zonales des caractéristiques de la couche de mélange au niveau du jet polaire semblent donc être en accord et en phase avec les différences zonales d'émission de surface. Les concentrations en CO dans le réservoir troposphérique sont plus fortes au dessus de l'Amérique qu'au dessus de l'Atlantique et de l'Europe (jusqu'à 15 ppbv de plus au printemps et en été). La région Asie se caractérise par des concentrations en CO beaucoup plus fortes, particulièrement en été. Des intrusions troposphériques par mélange convectif peuvent être responsables d'un transport rapide de masses d'air fortement polluées dans la haute troposphère au dessus de l'Asie durant la saison d'été (Nédelec et al., 2005 [130]).

La figure 4.17 représente les lignes de mélange synthétiques pour les 4 saisons et les 4 régions géographiques, associées à la couche de mélange au niveau du jet subtropical.

Les concentrations en CO au niveau du réservoir troposphérique sont en majorité extrapolées à partir des lignes de mélange mesurées dans la stratosphère. En effet, les mesures MOZAIC dans la troposphère subtropicale sont assez rares. L'ensemble des lignes de mélanges présente des concentrations en CO plus faibles que dans la couche de mélange associée à la dynamique du jet polaire ( figure 4.16). Ceci est en accord avec le gradient méridien des concentrations en CO dans la troposphère. Les concentrations en CO du réservoir troposphérique sont de 100 ppbv en hiver et été, de 140 ppbv au printemps, et de 70 ppbv en automne. La région Asie se distingue fortement en été avec une concentration de 240 ppbv de CO, et en automne de 110 ppbv.

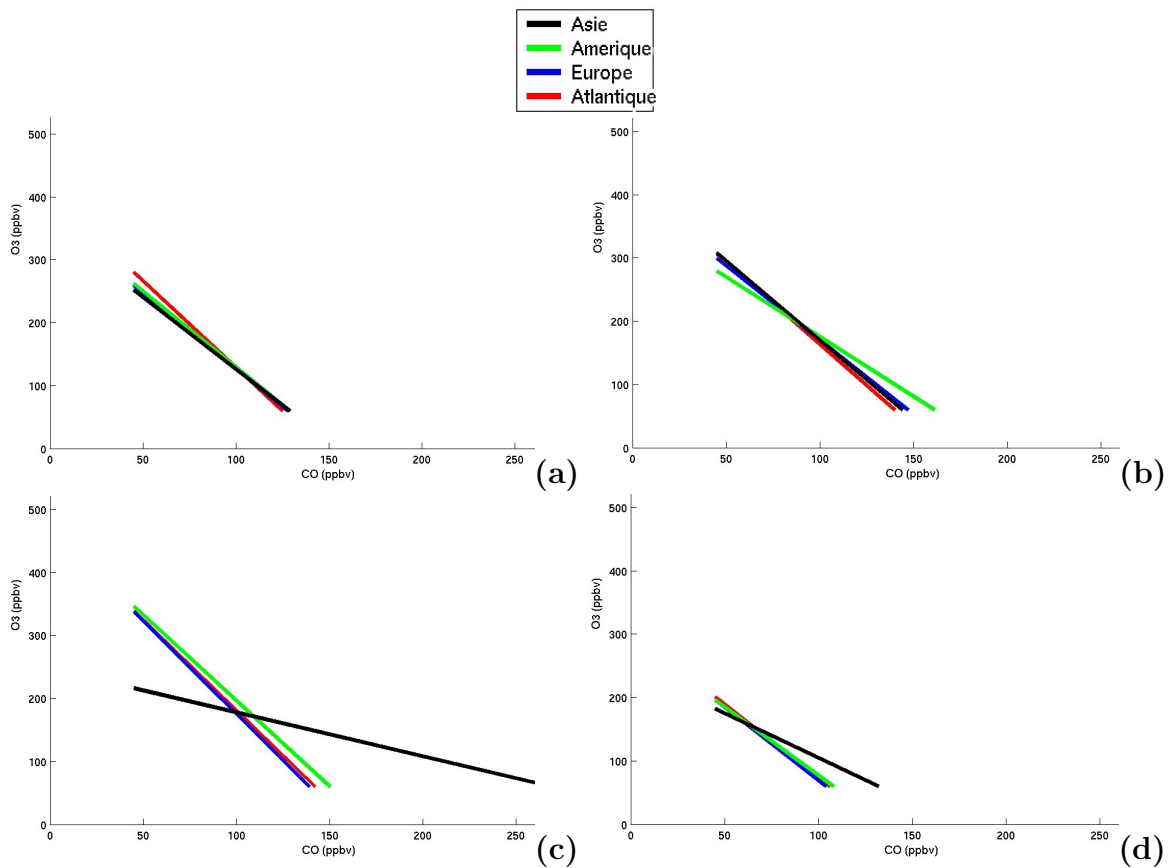


FIG. 4.16 – Lignes de mélange synthétiques issu de la couche de mélange du jet polaire, pour les saisons (a) hiver, (b) printemps, (c) été et (d) automne, pour les 4 régions géographiques.



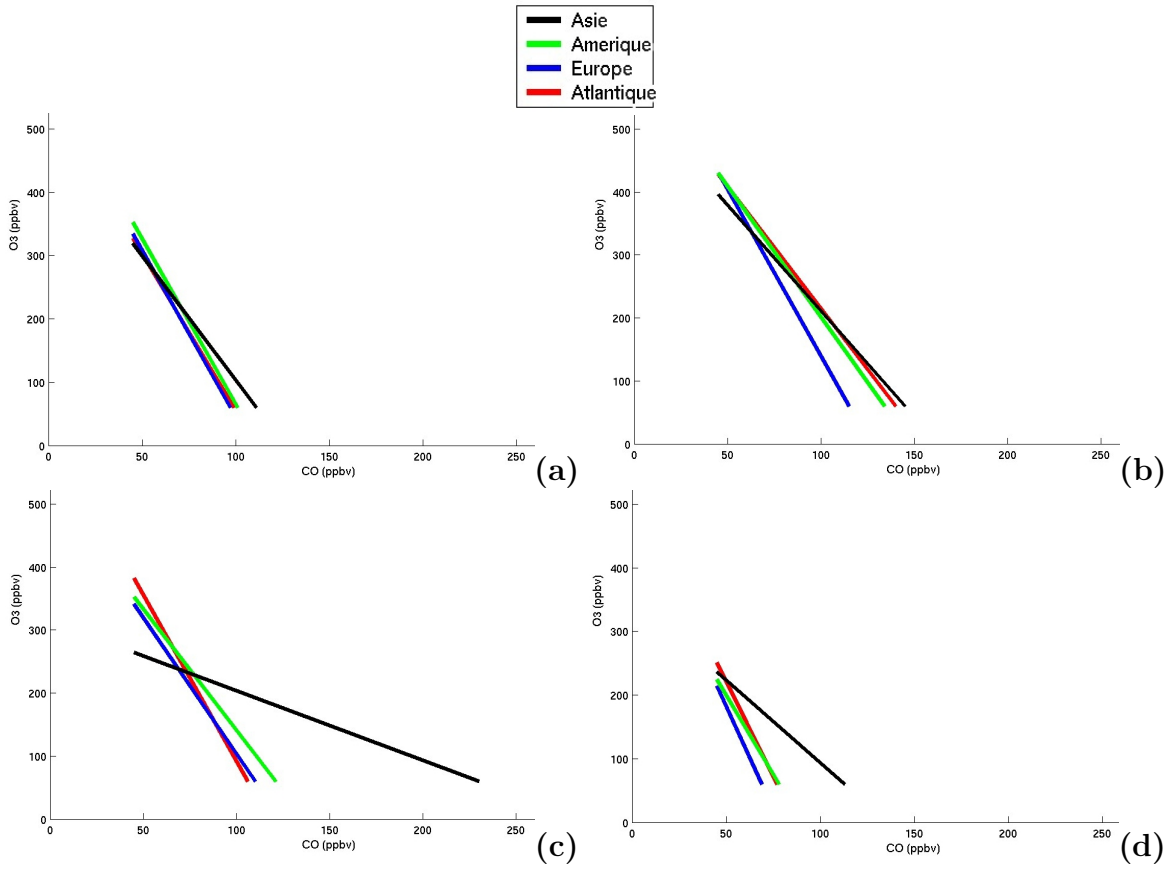


FIG. 4.17 – Lignes de mélange synthétiques issu de la couche de mélange du jet subtropical, pour les saisons (a) hiver, (b) printemps, (c) été et (d) automne, pour les 4 régions géographiques.

### 4.2.7 Conclusion

Nous avons analysé les grandes caractéristiques de la couche de mélange au dessus de la tropopause par une analyse globale d'une année de la base de donnée MOZAIC. Cette analyse a nécessité le développement d'un traitement automatique des données. Elle a consisté à calculer les pentes et corrélations des lignes de mélange vol par vol puis à les moyennner sur une grille du diagramme O<sub>3</sub>/CO.

Les particularités des données MOZAIC sont la grande couverture spatiale et temporelle. Contrairement aux campagnes de recherche limitées à une région et une période donnée, nous avons la capacité d'explorer les variations saisonnières et zonales de la couche de mélange. La mise au point du traitement automatique nous a permis d'identifier et d'étudier les couches de mélange liées à la dynamique des ondes planétaires et des courant-jets d'altitude de façon globale.

Nous avons identifié une couche de mélange sur une épaisseur isentrope de 310K-350K en hiver, de 315-340K au printemps, de 315K-360K en été, et de 320K-360K en automne. La variation saisonnière n'est donc pas aussi importante que ne le laissent supposer les données de la campagne STREAM (Hoor et al., 2002 [81]). Il est probable que cette variation de l'épaisseur isentrope de la couche de mélange puisse être imputée à la variation de hauteur de la tropopause au cours des saisons hiver-été.

Sur les diagrammes ozone/CO, les parties basses des couches de mélange indiquent l'existence d'au moins 2 réservoirs troposphériques très différents. Le premier comporte des niveaux faibles en O<sub>3</sub> et CO avec des corrélations faibles. il est associé aux surfaces isentropes coupant la tropopause au niveau du jet subtropical. Le deuxième réservoir contient les plus forts niveaux de CO. C'est ce réservoir qui a la variation zonale la plus grande. Sa valeur de fonds en CO est peu intense sur l'Atlantique et l'Europe, plus intense sur l'Amérique, et très intense sur l'Asie, ce qui semble être en phase avec les variations du taux d'émission du CO sur ces régions.

La région Asie se démarque particulièrement des trois autres régions. Les concentrations en CO dans le réservoir troposphérique asiatique se démarquent des autres régions en été et automne, tandis qu'en hiver et au printemps, les différences zonales sont moins marquées. Ces résultats confirment les différentes études faites sur l'Asie comme étant une région particulièrement polluée.

De l'analyse des diagrammes O<sub>3</sub>/CO, il semble se dégager un lien assez direct entre la valeur de température potentielle des observations, leur corrélation et leur distance méridienne isentrope à la tropopause. Plus  $\theta$  est élevée, plus la distance méridienne isentrope à la tropopause est grande, et moins bonne sera la corrélation. Nous sommes donc capable de suivre l'évolution de la dynamique d'altitude liée aux courant-jets ainsi que son influence sur la couche de mélange.

La méthode employée dans la partie des lignes de mélange synthétiques, pour étudier le comportement climatologique des mélanges isentropiques récents, semble avoir certaines

limitations. De plus, la position des mesures MOZAIC vis à vis de la tropopause et par rapport aux jet polaire et subtropical influence les résultats en ozone et CO obtenus dans la couche de mélange. Il est donc nécessaire d'étudier les moyennes chimiques dans un repère lié à la dynamique des jet d'altitude pour faire abstraction des biais issus de la position des avions MOZAIC dans la basse stratosphère, et confirmer les observations et les hypothèses formulées dans cette section.

### 4.3 Approche Dynamique

La latitude équivalente basée sur le tourbillon potentiel est un paramètre diagnostique largement utilisé pour étudier les mélanges isentropiques dans la stratosphère et la basse troposphère (voir schéma explicatif de la figure 4.18). Dans la stratosphère en particulier, l'analyse de traceur peut être simplifiée par l'utilisation d'un tel système de coordonnées. La coordonnée selon l'axe méridien peut être basée sur l'aire comprise dans des contours de PV (latitude équivalente) ou dans des contours de traceurs chimiques (latitude équivalente par traceurs, Allen and Nakamura, 2003 [11]) qui donne des résultats moins bruités. Les coordonnées par latitude équivalente ont été utilisées pour étudier les processus au niveau du vortex polaire, l'initialisation de modèles 3D, et les échanges de traceur à travers la tropopause de façon adiabatique (e.g., Manney et al. 1999 [99]; Lary et al. 1995 [85]; Seo and Bowman 2001 [154]; Hoor et al., 2004 [128]).

L'inconvénient d'un tel repère en latitude équivalente est qu'il fait l'hypothèse de processus adiabatiques, et qu'il moyenne de façon zonale les processus d'échanges. Ceci réduit la portée des résultats sur les échanges STE car ces phénomènes sont localisés zonalement. Sprenger and Wernli (2003 [159]) montrent que les flux STT et TST sont localisés en espace et en temps. Par exemple, la région du couloir des tempêtes à l'Est des USA a un impact important sur les échanges STE.

Dans cette section, un nouveau système de coordonnées est présenté. Le principe de la méthode est de sélectionner et de reporter les mesures chimiques dans une structure synoptique de référence. Celle choisie est un thalweg d'altitude. Le repère d'affichage des données est adimensionné géographiquement en prenant pour coordonnées verticale le tourbillon potentiel et pour coordonnée horizontale l'angle entre une surface de tourbillon potentiel et l'horizontale dans un plan zonal vertical.

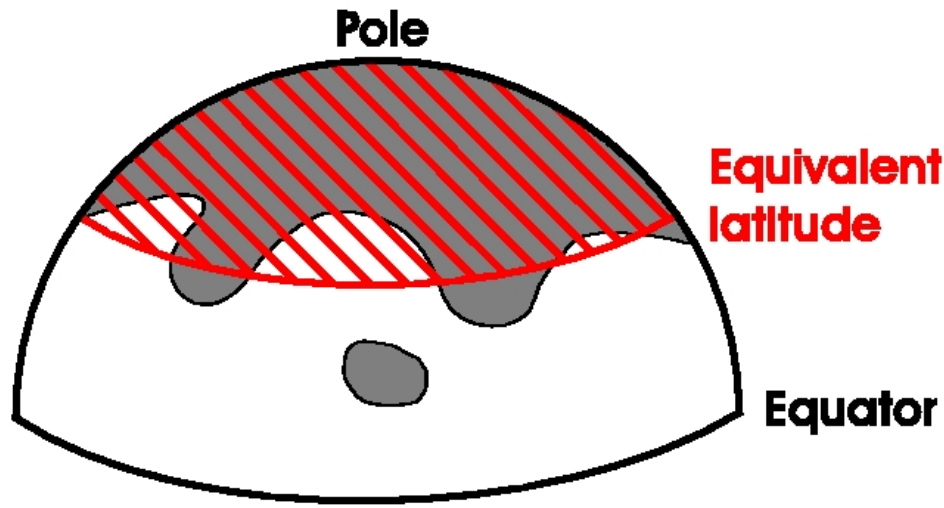


FIG. 4.18 – Schéma illustrant le concept de latitude équivalente (Hegglin et al., 2006 [83]). Une aire (couleur grise) entourée par un contour de PV sur une surface isentrope est transformée en un cercle dont l'air est identique, centré autour du pôle. La latitude de ce cercle est définie comme étant la latitude équivalente. Ainsi, une goutte froide avec un fort PV sur une surface isentrope donnée sera positionnée à une latitude plus haute.

### 4.3.1 Description de la méthode

La figure 4.19 (Hoskins et al., 1985) présente les structures associées à une anomalie isolée d'altitude et positive de tourbillon potentiel. L'état de référence (bords latéraux) consiste en deux couches avec différentes stabilité statiques représentant la troposphère et la stratosphère. Sur la figure 4.19 sont représentés les champs de vent, de température potentielle et une surface de tourbillon potentiel. On constate qu'en suivant la surface à PV constant, plus on se rapproche du centre du jet d'altitude, plus l'angle que fait la surface PV avec l'horizontale est grand. A contrario, plus on s'éloigne du coeur du jet, et plus l'angle devient faible. Le centre de l'anomalie positive de PV est associé à un minimum de vent. Le long de la surface PV, les températures potentielles les plus basses sont rencontrées au centre de l'anomalie, tandis que les températures potentielles les plus fortes se situent sur les bords latéraux.

Le principe du repère dynamique qui sera utilisé par la suite est de calculer l'angle  $\alpha$  de la surface PV locale par rapport à l'horizontale et par projection sur un plan vertical zonal, et d'utiliser le tourbillon potentiel en axe vertical pour obtenir un système de coordonnées. Par convention, on affecte une valeur positive à  $\alpha$  lorsque le gradient horizontal de PV est négatif (coté droit de la figure), et une valeur négative lorsque le gradient horizontal est positif (coté gauche de la figure). Ainsi, en utilisant un système de coordonnées basé sur la valeur d'angle de surface PV et la valeur du tourbillon potentiel associé, on est capable de positionner les points de mesures MOZAIC dans une anomalie de PV (goutte froide ou thalweg d'altitude) sans ambiguïtés.

Pour le calcul d'angle et de tourbillon potentiel, on utilise les champs diagnostiques du CEPMMT issus des fichiers d'analyses aux échéances 00h, 06h, 12h et 18h et de prévisions aux échéances 03h, 09h 15h et 21h sur 60 niveaux verticaux et avec une résolution horizontale de 0.5°.

On interpole linéairement en espace et en temps les champs diagnostiques entre deux fichiers d'analyses sur les points de mesure de chaque vol. Des paramètres dynamiques tels que le tourbillon potentiel, l'angle de la surface PV et le gradient vertical de température potentiel sont calculés.

La figure 4.20 représente une coupe zonale d'isocontours (en noir) de PV entre 2 pvu et 10 pvu. La coupe a une dimension spatiale d'environ 100° de longitude. Un premier thalweg d'altitude est visible à l'abscisse 300, et un second thalweg à l'abscisse 370. Ces thalwegs d'altitude sont des anomalies positives de PV, avec des surfaces PV déformées depuis l'échelle synoptique jusqu'à la méso-échelle par des processus dynamiques telles que les ondes de Rossby d'échelle synoptique et la frontogénèse d'altitude à méso-échelle.

La figure 4.20a est colorée par la valeur d'angle des surfaces PV calculée à partir des gradients horizontaux et verticaux de PV. On constate sur le thalweg à  $x=300$  que les valeurs d'angle sont négatives coté Ouest de l'axe du thalweg, et positives sur le coté Est. Une valeur nulle est obtenue au niveau de l'axe. Sur le second thalweg, les valeurs d'angle sont globalement négatives coté Ouest et positives coté Est. Cependant, des variations successives d'angle positif et négatif sont visibles de chaque coté du thalweg d'altitude, dues à des ondulations à petite échelle des surfaces PV. Sur cet exemple, on voit que la présence de structures de méso-échelles dans le champ de PV rend complexe l'utilisation du repère choisi pour construire un composite d'un traceur chimique dans un thalweg d'altitude. Il est nécessaire de filtrer les variations de méso-échelle pour ne regarder que les structures synoptiques.

On applique un filtrage de Fourier sur les surfaces de PV pour calculer les gradients de PV. On applique un fenêtrage sur des longueurs d'onde supérieures à 25° en longitude pour filtrer les petites ondulations des structures de PV ainsi que des structures de PV à plus grande échelle par exemple issues d'une subsidence adiabatique par frontogénèse d'altitude. Les frontogénèses d'altitude, associées aux structures typiques "en jambes" sous les thalwegs d'altitude, créent des angles positifs à la fois sur le coté Est et Ouest des thalwegs. En filtrant ces différentes structures de PV, on obtient ainsi des structures proches du cas idéalisé de l'anomalie positive de PV de la figure 4.19.

La figure 4.20b représente les résultats des calculs d'angle obtenus après filtrage de Fourier. On constate bien que seules les structures synoptiques ont été gardées et que les valeurs absolues d'angle ont diminué. Ensuite, l'axe des 2 thalwegs d'altitude ainsi que des dorsales sont bien définis, et les angles positifs et négatifs sont bien positionnés coté Est et Ouest des thalwegs, de part et d'autre des axes.

Au dessus d'environ 8pvu, il existe toujours une fluctuation importante des valeurs d'angle. Cette région est associée à des gradients verticaux de PV quasiment nuls voir négatifs. Le repère en angle et PV ne permet donc pas sur cette coupe de se situer précisément entre thalwegs et dorsales au delà de 8pvu.

La hauteur de tropopause varie suivant les saisons, et suivant la position des courant-

### 4.3 Approche Dynamique

jets. La tropopause est basse au niveau des thalwegs, et est plus haute au niveau des dorsales. Les avions MOZAIC volant entre 8 et 12 km d'altitude, ils traversent plus fréquemment la tropopause au niveau des thalwegs d'altitudes. Notre étude porte sur la couche de mélange au niveau de la tropopause. Celle-ci est fréquemment traversée au niveau des thalwegs d'altitude quelque soit la saison, tandis qu'elle est rarement traversée au niveau des dorsales particulièrement en été et automne où la tropopause est haute. Pour conserver une certaine homogénéité sur le nombre de mesures suivant les saisons, on ne sélectionne que les mesures faites dans les thalwegs d'altitude. Pour cette sélection on utilise le signe de la dérivée seconde de la surface PV locale calculée sur une distance de  $40^\circ$  de longitude. Une dérivée positive sera associée à un thalweg d'altitude, et une dérivée négative sera associée à une dorsale. La figure 4.20c représente la sélection des points faite à partir de la dérivée seconde positive (partie bleue). Sur l'exemple de cette coupe, seules les mesures MOZAIC dans les parties bleues associées aux thalwegs d'altitude seront sélectionnées. On constate notamment que les points associés aux frontogénèses d'altitude sont également sélectionnés, mais avec un calcul d'angle sur la figure 4.20b qui permet de distinguer les frontogénèses d'altitude coté Est et Ouest des thalwegs.

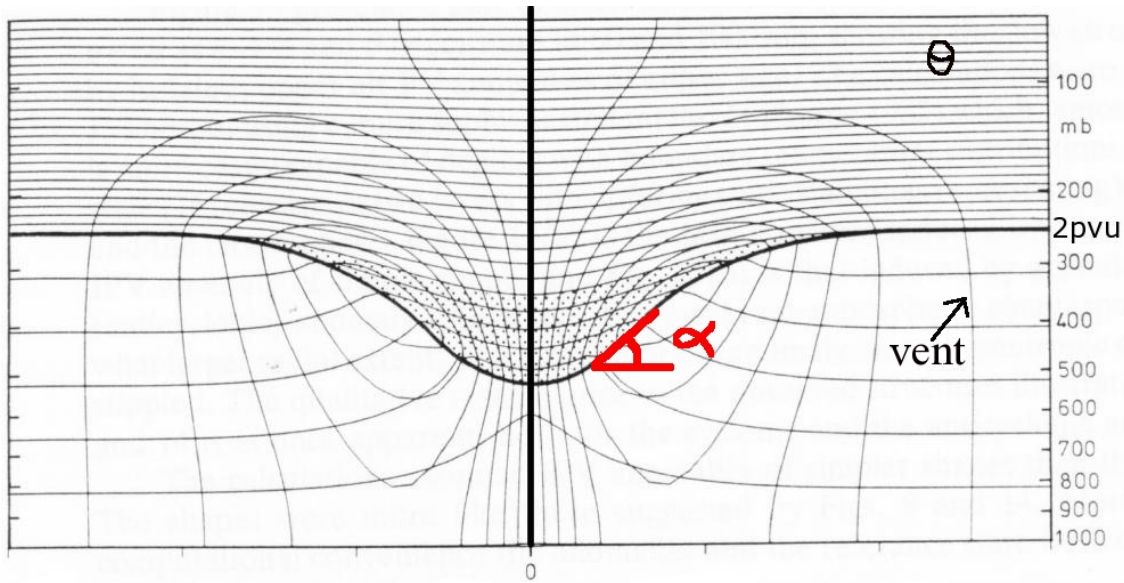


FIG. 4.19 – Coupe verticale d'un cas idéalisé d'une anomalie positive de PV (Hoskins et al., 1985). champs de vent, de température potentielle.

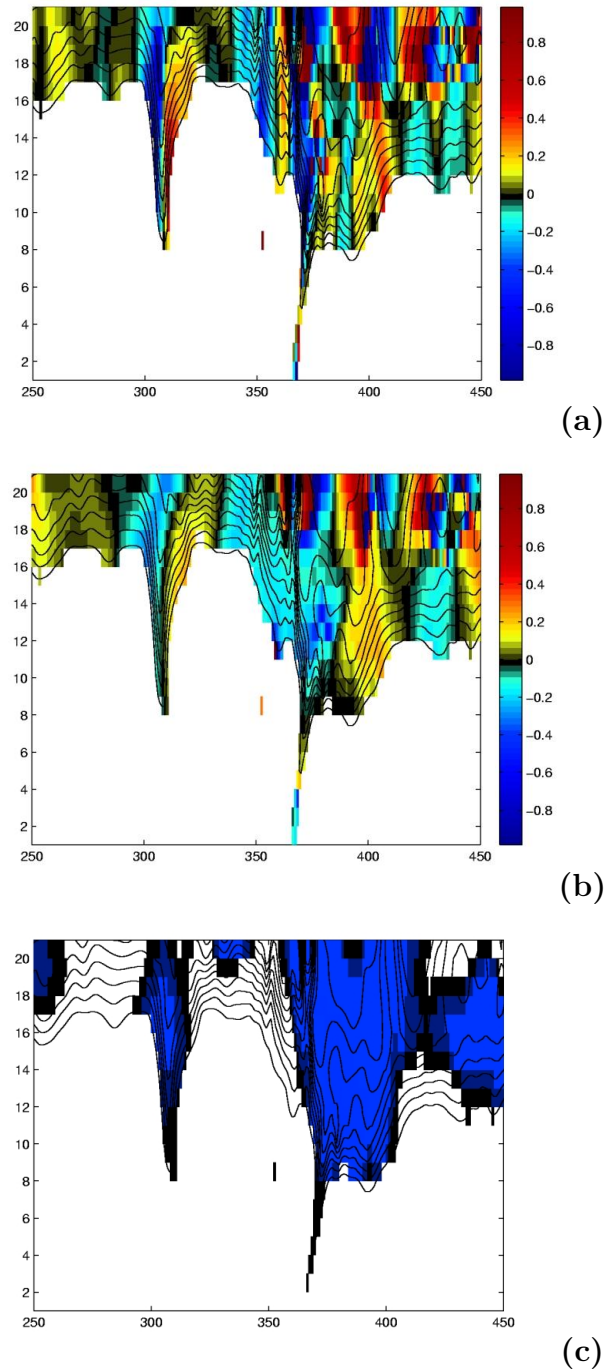


FIG. 4.20 – Isocontours de PV suivant une coupe zonale de  $100^\circ$  en longitude, colorée par l'angle des surfaces PV sans filtrage FFT (en haut), avec filtrage FFT (milieu). L'image du bas représente la sélection en bleu des parties où la dérivée seconde des surface PV est positive.

### 4.3.2 Diagrammes angle/PV

La figure 4.21 représente les valeurs de vent, de gradient vertical de température potentielle, de température potentielle, et le nombre de vols associé aux intervalles du système de coordonnées en angle de surface PV et de PV. Les valeurs d'angle sont comprises entre  $-0.6^\circ$  et  $0.6^\circ$ . Ces valeurs sont faibles car l'échelle caractéristique des variations horizontales des surfaces PV est de l'ordre de la centaine de kilomètres tandis que celle des variations suivant la hauteur est de l'ordre du kilomètre. Les valeurs de PV sont entre 1 et 11 pvu. Les calculs sont fait pour des périodes temporelles de 2 mois durant l'année 2003.

La forme générale des diagrammes suit une forme évasée sous les 6pvu (notamment pour les périodes de Janvier à Juin). Pour des PV supérieurs à 6pvu, certaines valeurs d'angle sont supérieures à 0.6 (en valeur absolu). Ceci vient du fait que parfois le gradient vertical de PV est très faible à cause de transferts radiatifs locaux. Sachant que plus faible est la valeur du gradient vertical de PV, plus fort sera la valeur d'angle (en valeur absolu), on obtient pour des PV supérieurs à 6 pvu une gamme importante de valeurs d'angle, d'où un élargissement du diagramme.

Un filtre sur le nombre d'observations est appliqué à chacun des graphes : chaque intervalle en angle/PV doit avoir des mesures d'au moins 10 vols MOZAIC, pour que les moyennes puissent être représentatives. De ce fait, les diagrammes s'élargissent suivant l'angle de Janvier-Février à Novembre-Décembre parce que le nombre de vols MOZAIC disponibles augmente au cours de l'année 2003.

La première colonne est colorée par la vitesse du vent enregistrée par les avions MOZAIC. Elle montre que les fortes valeurs de vent sont associées aux angles les plus forts. Ceci confirme que le calcul d'angle des surfaces PV est lié à la vitesse du vent, et plus grande est la baroclinicité, plus fort est la vitesse du vent, et donc la valeur d'angle. Au voisinage de la valeur d'angle 0, la vitesse du vent atteint des valeurs minima, entre 10 et  $20 \text{ ms}^{-1}$ . Cette partie est associée à l'axe des thalwegs.

La seconde colonne est colorée par le gradient vertical de température potentielle (en  $K.km^{-1}$ ). Entre 4 et 6pvu, pour les périodes entre Janvier et Avril, et entre 5 et 8pvu pour la période Novembre-Décembre, on constate que la stabilité statique est plus forte proche des valeurs d'angle nulles qu'à proximité des fortes valeurs d'angle  $\alpha$ . Il semble ici que pour une surface de PV donnée, la stabilité statique augmente à mesure que l'on s'éloigne du coeur des courant-jets d'altitude, donc des valeurs d'angle les plus fortes.

La troisième colonne représente les moyennes de température potentielle. On constate globalement que pour une même surface PV, les valeurs minimum relatives de  $\theta$  sont mesurées au niveau des angles nuls, et notamment au coeur de l'anomalie de stabilité statique vue précédemment. Ce comportement de la température potentielle est conforme au schéma idéalisé de la figure 4.19.

En comparant les moyennes des paramètres de vent, de gradient vertical de  $\theta$  et de température potentielle, on constate que les résultats obtenus sont conformes avec le schéma idéalisé de la figure 4.19. La méthode de calcul d'angle fonctionne, et le repère de coordonnées en fonction de l'angle et du PV est un repère efficace pour positionner les observations MOZAIC dans un thalweg d'altitude idéalisé.



La quatrième colonne représente la distribution du nombre de vols MOZAIC sur le diagramme en angle/PV. On constate que dans la stratosphère, les avions MOZAIC volent majoritairement entre 6 et 8 pvu de Novembre à Avril, tandis que durant les périodes de Mai à Octobre la distribution des observations s'étale de façon homogène sur une gamme plus large en tourbillon potentiel (entre 1 et 8pvu). Ceci vient des variations saisonnières de la hauteur de tropopause. La tropopause étant plus basse de Novembre à Avril, les avions MOZAIC volent fréquemment au dessus de la tropopause, profondément dans la stratosphère. De Mai à Octobre, la tropopause étant plus haute, les avions MOZAIC traversent donc fréquemment la tropopause au gré des traversées successives des thalwegs et dorsales. Il existe donc un biais sur la fréquence d'observation des différentes surface PV suivant la saison.

On constate aussi que les avions volent majoritairement au centre des thalwegs, à l'écart des courant-jets d'altitude. Ceci est dû au fait que des turbulences en ciel clair sont rencontrées au coeur des courant-jets. Les avions de ligne équipés des capteurs MOZAIC essaient d'éviter au maximum ces zones de turbulence, et génèrent ainsi un biais sur la distribution des points de mesures dans la stratosphère. Un tel biais ne peut être observé que sur un repère dynamique basé sur la baroclinicité du milieu tel que l'angle des surfaces PV et un paramètre de profondeur dans la stratosphère tel que le tourbillon potentiel.

Sur la figure 4.22, la troisième colonne représente les valeurs moyennes d'ozone. Pour des vorticités supérieures à 6pvu, le cycle saisonnier de l'ozone stratosphérique est clairement visible, avec un maximum en Mars-Avril à 800ppbv d'ozone à 8pvu, et un minimum en Septembre-Octobre de 300 ppbv à 8pvu. Entre 1 et 3 pvu, le cycle saisonnier de l'ozone est différent. Il existe un maximum d'ozone en Mai-Juin, voire Juillet-Aout, et un minimum en Novembre-Décembre. Ceci est à relier au cycle saisonnier de l'ozone troposphérique, avec un maximum de production photochimique durant la saison d'été, et un minimum au début de l'hiver. Entre ces deux régions de la zone UTLS, le cycle de l'ozone est une combinaison des comportements des deux cycles décrits précédemment.

On constate aussi qu'au niveau des anomalies positives de stabilité statique observées sur la figure 4.21, les concentrations en ozone sont plus faibles qu'en dehors de l'anomalie. Ce constat est clairement établi pour les périodes de Mars-Avril et Mai-Juin sur la figure 4.23. Cette figure représente les anomalies de gradient vertical de température potentielle et d'ozone calculées par soustraction pour chaque PV d'une valeur moyennée sur les angles  $\alpha$ . L'anomalie de stabilité statique n'est pas associée à une descente d'air stratosphérique riche en ozone. Elle est due à la présence des courant-jets sur les bords qui semblent réduire la stabilité statique locale. Les températures potentielles étant plus basses dans l'anomalie, les mélanges isentropiques dans l'anomalie se font entre de l'air stratosphérique et des surfaces isentropiques ayant une température potentielle plus faible, donc plus basse en altitude dans l'atmosphère, donc avec un caractère troposphérique plus prononcé. Cette anomalie négative d'ozone dans l'anomalie positive de stabilité statique est un effet des mélanges isentropiques dans la couche de mélange sur la composition chimique du thalweg d'altitude.

La quatrième colonne de la figure 4.22 représente les valeurs moyenne de CO. Il existe également deux cycles saisonniers. Le premier cycle, visible entre 1 et 4 pvu, donne un maxi-

maximum de CO entre Mars et Juin de 120 ppbv, et un minimum de Septembre à Décembre de 90 ppbv. Ce comportement peut venir de plusieurs facteurs. Le transport vertical dans la troposphère suit des variations saisonnières et des différences zonales (stohl et al., 2002 [165]), avec par exemple une augmentation de l'exportation des traceurs chimiques des basses couches vers la troposphère entre les périodes d'hiver et de printemps. Les variations de production par les émissions de surface (au 2/3) et par oxydation du méthane (1/3) jouent un rôle important sur le cycle saisonnier du CO dans la basse troposphère. Le CO s'accumule graduellement entre la fin de l'automne et le début du printemps. Ensuite, il est rapidement détruit par les radicaux OH entre Avril et Juin (Novelli et al., 1998 [133]).

Au dessus de 7 pvu, un cycle du CO stratosphérique est visible. Il existe un minimum de CO en Mai-Juin de 35 ppbv à 8pvu, et un maximum en Novembre-Décembre à 45 ppbv. Cette variation peut venir du raccourci de la circulation de Brewer Dobson (Rosenlof et al., 1997 [149]; Hoor et al., 2004 [128]). La convection tropicale de Mars-Avril à Juillet-Aout peut injecter de faibles valeurs de CO dans la basse stratosphère, puis un transfert des latitudes subtropicales vers les moyennes latitudes peut diminuer la concentration en CO de la couche de mélange pour des fortes valeurs de PV.

Le deuxième colonne représente la corrélation moyenne en ozone/CO calculée sur les intervalles de 50 points suivant la même méthode décrite à la section 4.2.4. Les anticorrélations les plus négatives (inférieures à -0.6) sont observées dans une région comprise entre 2 et 6pvu. Cette région correspond à la position moyenne des jets dans la basse stratosphère, ce qui signifie que la région entre 2 et 6 pvu est une région où les mélanges isentropiques sont dominants par rapport aux processus diabatiques et diffusifs. Les mauvaises corrélations pour des vorticités inférieures à 2pvu sont dues à la destruction des lignes de mélanges par mélange convectif dans la troposphère. Pour des vorticités supérieures à 6pvu, le brassage adiabatique généré par les turbulences des courant-jets n'a que peu d'impact sur la distribution chimique en ozone et CO.

Durant la période Juillet-Aout, le domaine où les mélanges isentropiques sont dominants atteint une vorticité de 8pvu, tandis que les mauvaises corrélations associées à la destruction des lignes de mélanges par convection atteignent 4pvu.

On constate aussi que dans la région entre 2 et 6 pvu, les meilleures anticorrélations se situent au niveau des angles les plus abrupts, et l'anticorrélation est plus mauvaise au centre des diagrammes. Ceci peut s'expliquer par le fait que l'effet de brassage est plus efficace à proximité des jets, au niveau des angles abrupts, donc la corrélation ozone/CO y est meilleure. Ceci peut également venir d'un temps de résidence des particules plus important au centre des thalwegs que sur les bords, et ainsi les processus diabatiques ou diffusifs détruisent peu à peu la relation linéaire entre traceur.

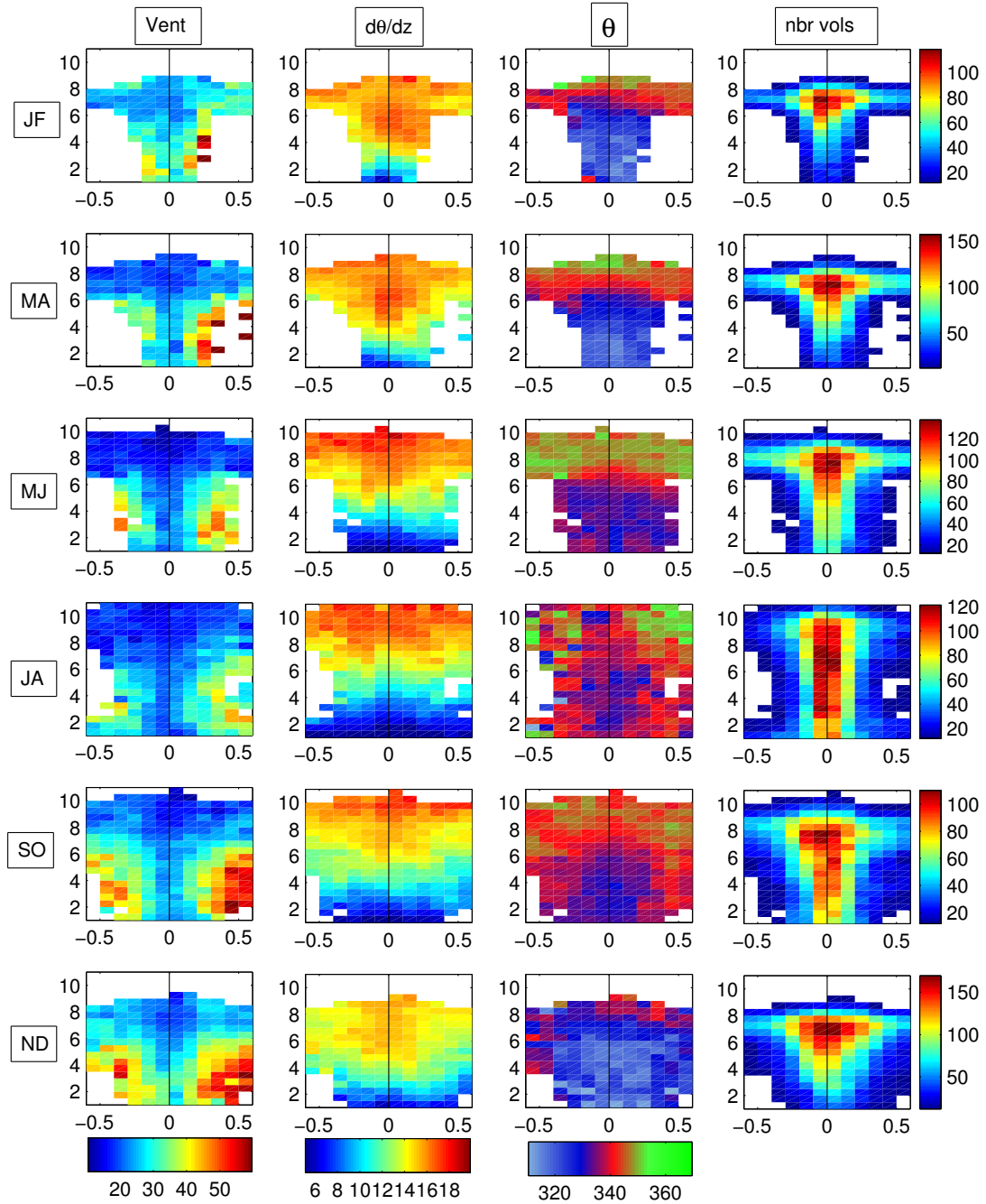


FIG. 4.21 – diagrammes en coordonnée angle et PV. Les colonnes représentent les valeurs moyennes des paramètres 1) Vitesse du vent ( $m.s^{-1}$ ), 2) gradient vertical de température potentielle ( $K.Km^{-1}$ ), 3) température potentielle (K), 4) pdf des observations (en nombre de vols). Les lignes représentent les moyennes pour différentes périodes de temps : 1) Janvier-Février, 2) Mars-Avril, 3) Mai-Juin, 4) Juillet-Aout, 5) Septembre-Octobre, 6) Novembre-Décembre.

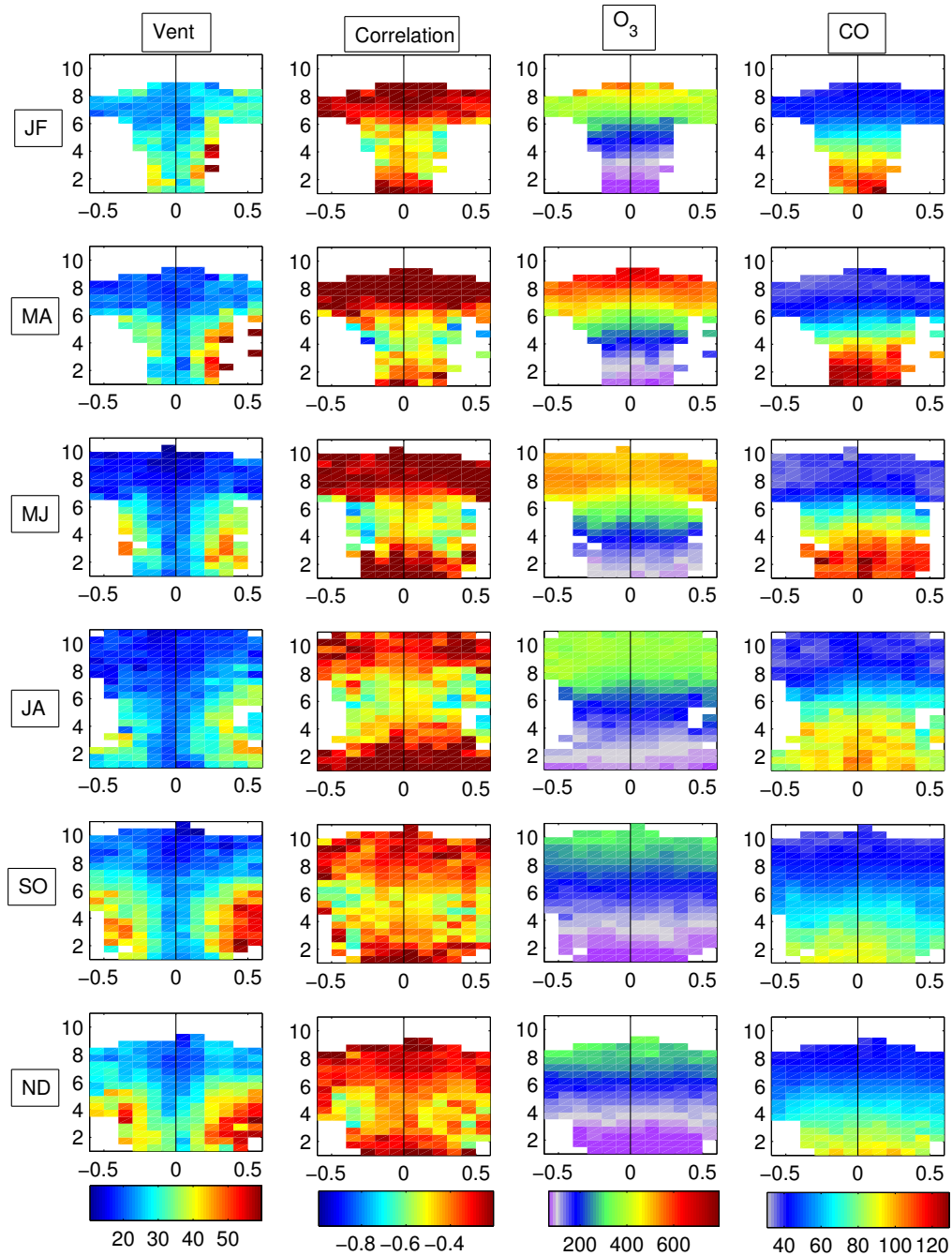


FIG. 4.22 – Même chose que pour la figure 4.21, sauf que les colonnes représentent les valeurs moyennes de : 1) vitesse du vent ( $m.s^{-1}$ ), 2) corrélation temporelle, 3) ozone (ppbv), 4) CO (ppbv).

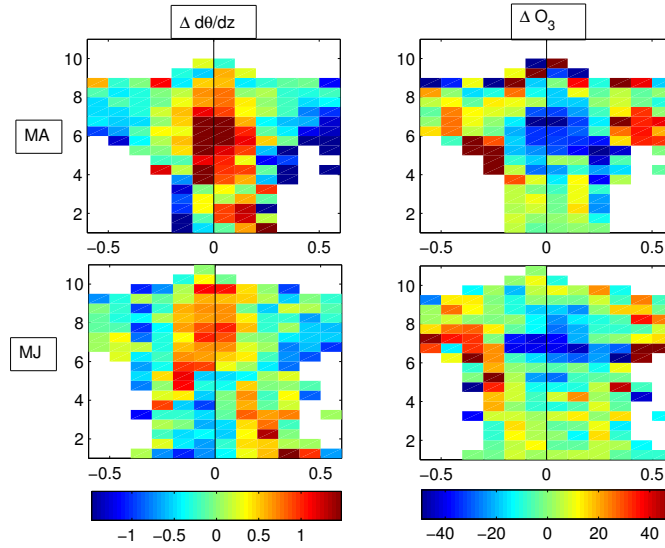


FIG. 4.23 – Anomalies du gradient vertical de température potentielle ( $\Delta\theta/dz$ ) et d’ozone ( $\Delta O_3$ ) calculées par soustraction pour chaque PV d’une valeur moyennée sur les angles  $\alpha$ . Les périodes caractéristiques de Mars-Avril (MA) et Mai-Juin (MJ) sont représentées.

### 4.3.3 Caractérisation de la couche de mélange

Sur la figure 4.22, deux cycles saisonniers ont été caractérisés pour l’ozone et le CO. On a constaté également que les valeurs d’anticorrélation les plus négatives correspondent à une région de la stratosphère où les concentrations d’ozone et de CO ont des variations saisonnières minimum. Nous allons ici définir l’épaisseur de la couche de mélange à partir de la variabilité de l’ozone et du CO dans la basse stratosphère.

La figure 4.24a représente l’écart type normalisé du CO calculé pour des différentes valeurs de PV espacées de 1pvu. On constate que l’écart type suit un maximum en juin entre 1 et 8 pvu. Au delà de 8 pvu, deux maxima relatifs de l’écart type sont visibles en Mai et Aout. Plus grand est l’écart type, plus grande est la variabilité de la concentration en CO. On constate une grande variabilité dans la troposphère (jusqu’à 2pvu) en Juin vraisemblablement due à la convection profonde. La variabilité du CO dans la stratosphère est maximum entre 4 et 5 pvu, et est en phase avec la variabilité troposphérique jusqu’à 8pvu. Au delà, la variabilité du CO n’est plus en phase avec le cycle troposphérique. Sur la figure 4.24b est représenté l’écart type normalisé de l’ozone par tranche de PV. Au delà de 8 pvu, cet écart type suit un maximum marqué entre Novembre et Avril et un minimum entre Mai et Septembre. Cette variabilité d’origine stratosphérique pure est sous l’influence de la circulation générale de Brewer Dobson qui est effective en saison d’hiver et minimum en été. Pour des valeurs de PV inférieur à 8pvu, il n’existe pas de cycle saisonnier bien marqué de la variabilité de l’ozone. On constate que la variabilité de l’ozone croît à mesure que le PV diminue pour atteindre un maximum de variabilité à PV=3pvu. Pour des valeurs inférieures de PV, la variabilité de l’ozone diminue dans la troposphère.

Les écarts type en ozone et CO montrent donc que la couche située entre 3 et 8 pvu est une couche de transition entre les variabilités chimiques troposphériques et stratosphériques.

La figure 4.24c représente la valeur moyenne mensuelle de la corrélation ozone/CO et la figure 4.24d représente le pourcentage d'observation ayant une corrélation inférieure à -0.6. On constate sur la figure 4.24c que les meilleures anticorrélations sont obtenues pour 5 et 6 pvu. De même, le maximum d'observations ayant de bonnes anticorrélations culmine à 50% à 6pvu. De 1 à 6 pvu, l'anticorrélation ozone/CO (en valeur absolue) et le pourcentage d'observations augmentent, et suivent un maximum en Mars, et un minimum en Aout. Cette variation saisonnière peut être due au fait que la stabilité statique dans la stratosphère étant plus faible en été, les mélanges à travers les surfaces isentropes sont plus efficaces, et la période de temps durant laquelle la trace chimique d'un mélange isentropique reste visible devient plus faible. Donc les meilleures anticorrélations sont moins observées en été. Au delà de 6pvu, l'anticorrélation diminue, et suit un maximum entre Juillet et Septembre, et un minimum entre Février et Avril. Sur la figure 4.24d, le pourcentage d'observations chute en hiver et printemps au delà de 6pvu, mais se maintient à 50% jusqu'à 8pvu. Le décalage de l'écart type du CO en Juillet Aout au delà de 7pvu sur la figure 4.24a s'explique donc par un mélange isentropique plus important en Juillet Aout à cette profondeur de la stratosphère.

La couche dans laquelle l'influence du mélange isentropique est dominant peut être donc située entre 3 et 6 pvu en hiver, printemps et automne, et entre 3 et 8 pvu entre juillet et septembre. Cette couche stratosphérique se caractérise par une variabilité du CO couplée à la variabilité troposphérique du CO. La variabilité de l'ozone y est forte et quasi uniforme tout au long de l'année, preuve de flux d'échange à travers la tropopause plus ou moins constant durant l'année. Il n'existe pas de couplage dans la couche de mélange entre la variabilité de l'ozone stratosphérique et la variabilité de l'ozone dans la couche de mélange.

Sur la figure 4.25 est représenté le pourcentage d'observations ayant une corrélation ozone/CO inférieure à -0.6 pour des valeurs d'angle comprises entre -0.1 et 0.1 (a) et des valeurs d'angles supérieures à 0.3 (b). On constate que pour les observations associées aux angles les plus abrupts, à proximité du coeur des courant-jets, le pourcentage d'observations des meilleures anticorrélations est plus grand qu'au centre des thalwegs. Ceci est vrai pour des valeurs de pv comprises entre 2 et 5 pvu. Il existe un maximum d'observations en hiver/printemps et un minimum en été/automne pour les fortes valeurs d'angle. Cette variabilité saisonnière et le pourcentage d'observation des meilleures anticorrélations sont plus faibles au centre des thalwegs. Ceci peut s'expliquer par le fait que les plus forts brassages isentropiques se passent à proximité des courants-jet d'altitude, donc pour des fortes valeurs d'angle, et créent de bonnes anticorrélations ozone/CO. Pour les mesures MOZIC faites au centre des thalwegs, on peut supposer que les masses d'air étant éloignées des courants-jet, elles ont subi un mélange isentropique avec de l'air troposphérique depuis une période de temps plus longue, et que des processus diabatiques et chimiques ont modifié la signature chimique de leur mélange ce qui a réduit la corrélation ozone/CO, tel que ce qu'on a montré à la section 4.2.5.

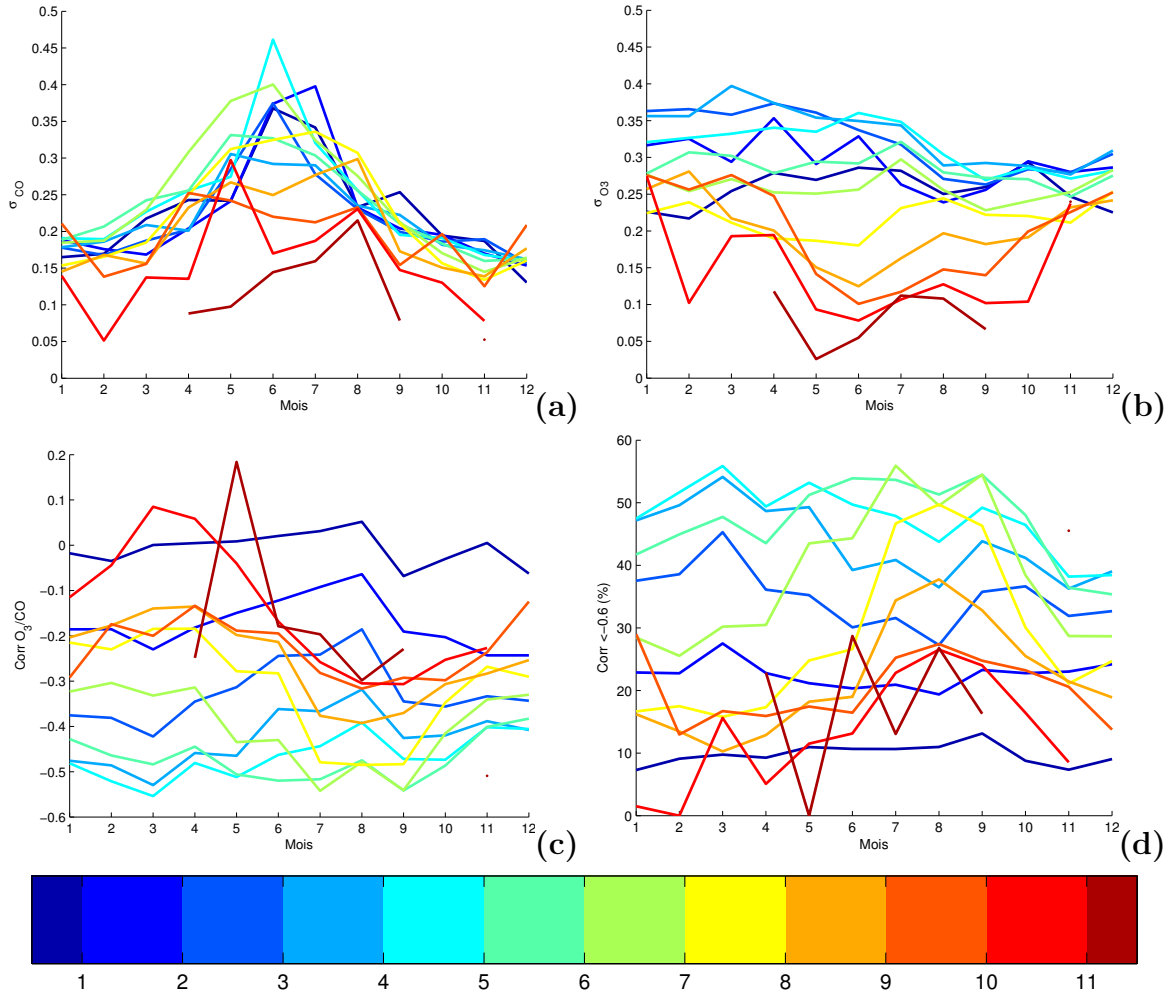


FIG. 4.24 – (a) écart type moyen normalisé du CO (a) et de l’ozone (b) pour chaque mois, calculé sur des tranches de 1 pvu. (c) correspond à la corrélation ozone/CO moyenne pour chaque mois. (d) correspond au pourcentage d’observation ayant une corrélation ozone/CO inférieur à -0.6

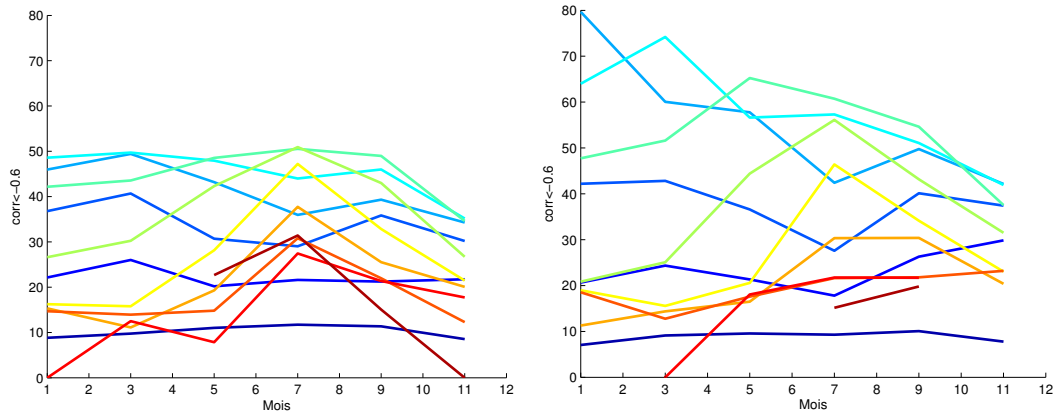


FIG. 4.25 – pourcentage des observations avec corrélation inférieur à  $-0.6$  pour (a) des angles entre  $-0.1$  et  $0.1$  et (b) des angles supérieur à  $0.3$  ou inférieur à  $-0.3$

#### 4.3.4 Différences zonales

La figure 4.26 représente les moyennes de CO par tranche de 1pvu, pour les 6 périodes de temps, et pour les 4 régions Amérique (en noir), Atlantique (en rouge), Europe (en vert) et Asie (en bleu).

On constate une variabilité zonale entre les 4 régions. Au dessus de l'Atlantique et de l'Europe, le cycle saisonnier à 1 pvu se caractérise par un maximum en Mars-Avril à 120ppbv, et un minimum de Juillet à Décembre de 90 ppbv. Au dessus de l'Amérique, le maximum de CO est mesuré en Mai-Juin (130ppbv) et le minimum est mesuré de Septembre à Décembre (90ppbv). La région d'Asie est la région la plus polluée sur l'ensemble de l'année. Le maximum de CO est mesuré entre Mars et Juin (140ppbv) et son minimum entre Septembre et Décembre (100ppbv). Cette variation zonale dans la troposphère se répercute sur la concentration régionale en CO dans la stratosphère jusqu'à 4 ou 6pvu, c'est à dire jusqu'à la partie haute de la couche de mélange. Pour des PV supérieures à 6pvu, les 4 régions suivent le même comportement en CO en fonction du PV, preuve d'une homogénéisation zonale des différences chimiques rencontrées entre 1 et 6pvu. Cette homogénéisation peut être due au fait qu'à partir de 6 pvu, le temps de résidence moyen des masses d'air dans la stratosphère est tel que les mélanges successifs subis par ces masses d'air ne permettent pas de conserver une différence chimique zonale issue de la troposphère. L'homogénéisation peut également s'expliquer par le fait qu'il n'existe que peu de surfaces isentropes qui passent la tropopause.

De Janvier à Aout, on constate que le gradient de CO en fonction du PV est plus faible entre 1 et 4pvu qu'entre 4 et 6 pvu pour certaines régions. En Mai-Juin et particulièrement en Juillet-Aout, on constate que le gradient de CO par rapport au PV est quasiment nul entre 1 et 4 pvu dans les régions Atlantique et Europe. Les variations zonales du gradient de CO en fonction du PV entre 1 et 4pvu est la conséquence des mélanges isentropiques entre les masses d'air troposphériques de chaque région (avec des signatures chimiques en haute troposphère spécifiques) et le flux général stratosphérique à 6pvu qui lui conserve



une même signature chimique sur l'ensemble de l'hémisphère. Il est possible également que des différences dynamiques dans la région de la tropopause puissent exister entre ces différentes régions. Ces différences peuvent venir par exemple d'une différence d'activité du jet polaire et subtropical aux moyennes latitudes entre ces régions, ce qui peut influencer les échanges STE par mélanges isentropiques dans la couche de mélange de chacune de ces régions. Une autre possibilité peut venir d'une différence d'activité convective entre ces régions, qui est connue pour influencer la composition chimique de la basse stratosphère (Rosenlof et al., 1997 [149]), mais aussi crée des zones de turbulence qui peuvent intensifier localement le mélange dans la basse stratosphère, et donc influencer le gradient de CO. On constate d'ailleurs que les gradients de CO les plus faibles sont rencontrés en Juillet-Aout, période durant laquelle les intrusions convectives profondes sont les plus efficaces.

La figure 4.27 représente les moyennes d'ozone par tranche de 1pvu, pour les 6 périodes de temps et les 4 régions. Il n'y a pas de variabilité zonale de l'ozone pour des vorticités inférieures à 6pvu. Au dessus de 6pvu, la variation d'ozone en fonction du PV est assez faible pendant l'été. Cette variation est forte entre 1 et 6 pvu à cause des échanges STE dans la couche de mélange.

De même que sur la figure 4.26, on constate une variation d'ozone en fonction du PV plus faible entre 1 et 4pvu qu'entre 4 et 8pvu.

### 4.3.5 Différences chimiques dans les thalwegs

Sur la figure 4.28 est représenté les concentrations moyennes en CO par tranche de 1pvu pour des angles inférieurs à 0.1 en valeur absolue (en noir), et des angles supérieurs à 0.3 en valeur absolue (en rouge). De façon systématique, les concentrations en CO sur les bords des thalwegs sont plus faibles qu'au centre. Ces différences chimiques significatives sont visibles jusqu'à 8pvu.

Au dessus d'un certain seuil en PV, la variation du CO devient quasiment nul. Cette limite est plus marquée pour les fortes valeurs d'angle (entre 6 et 8pvu) que pour les mesures au centre des thalwegs.

Ces comportements peuvent s'expliquer par le fait que sur une surface de PV donné, les surfaces isentropes traversant la surface de PV au centre du thalwegs possèdent une température potentielle plus faible que sur les bords du thalweg. Les mélanges isentropiques au centre du thalweg se font donc avec des surfaces isentropiques à température potentielle plus faible, donc potentiellement plus chargées en CO lorsqu'elles sont dans la troposphère.

La figure 4.29 représente les concentrations moyennes d'ozone suivant le même protocole que la figure 4.28. On constate des différences de concentration dans une tranche de PV, par exemple entre 4 et 8 pvu en Janvier-Février, entre 6 et 9pvu en Juillet Aout. Pour des vorticités plus faibles ou plus fortes que ces gammes de PV, les différences chimiques sont inexistantes. Ces différences chimiques ne sont donc visibles que dans la partie supérieure de la couche de mélange. On constate que sur les bords des thalwegs, l'ozone stratosphérique reste constant en fonction du PV jusqu'à des PV plus faibles que celles obtenues au centre des thalwegs. Il est possible qu'à cette profondeur, les surfaces isentropiques sur les bords ne traversent pas ou rarement la tropopause, tandis qu'au centre, les surfaces isentropiques

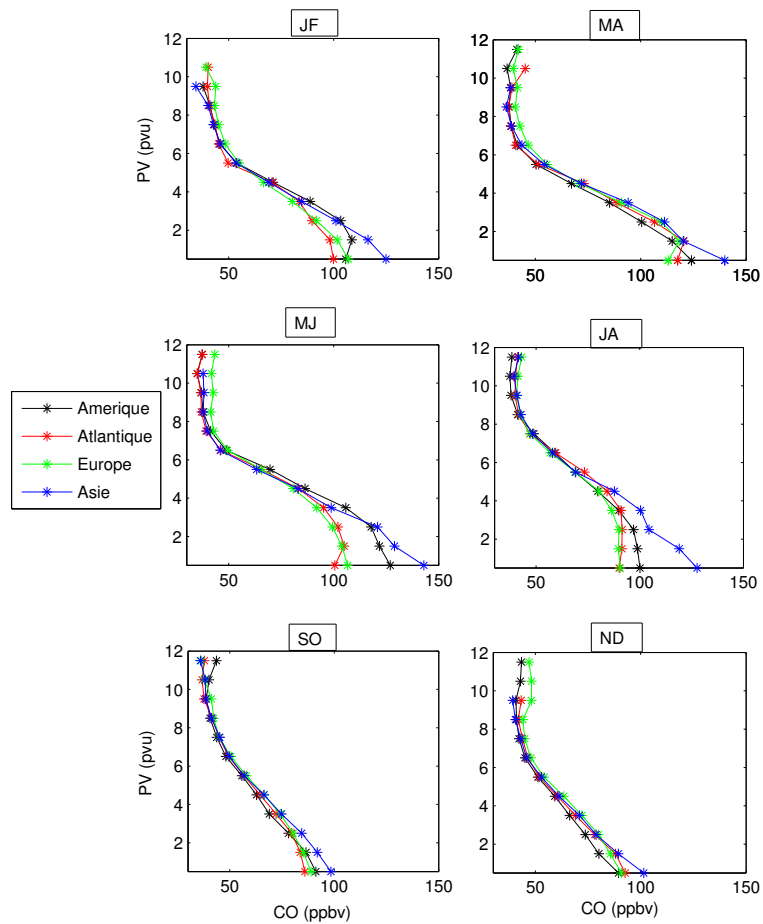


FIG. 4.26 – valeurs moyenne de CO par tranche de PV pour les 4 régions, et suivant les 6 périodes de temps.

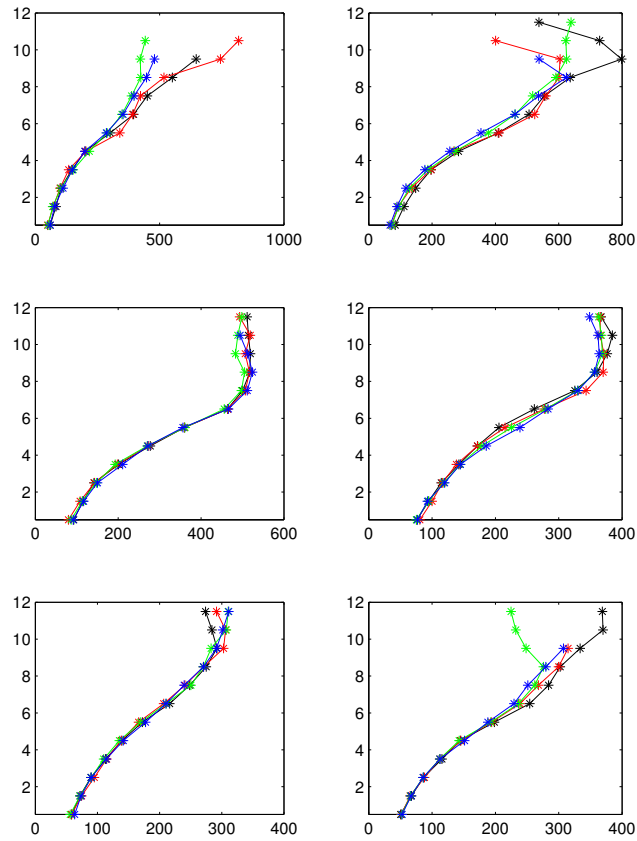


FIG. 4.27 – Même chose que pour la figure 4.26, mais pour l’ozone.

traversent la tropopause, et génèrent des échanges STE. Pour des vorticités inférieures à 6pvu (en moyenne) les différences chimiques disparaissent parce que quelque soit la position dans le thalweg, les surfaces isentropes traversent la tropopause. Sachant que les variations d’ozone sont faibles suivant les température potentielle dans la troposphère (par rapport aux concentrations dans la stratosphère), les mélanges isentropiques au centre ou aux bords des thalwegs mènent à une concentration moyenne d’ozone équivalente.

L’effet de couche de mélange crée donc une anomalie de CO entre le centre et le bord des thalwegs sur l’ensemble de l’épaisseur de la couche de mélange, tandis qu’une anomalie d’ozone n’est observée en moyenne que dans la partie supérieure de la couche de mélange.

### 4.3.6 Perspective à l’aide d’une approche Lagrangienne

L’étude des échanges stratosphère-troposphère peut aussi se faire à l’aide de méthodes Lagrangiennes, c’est à dire des rétro- trajectoires au cas par cas pour l’analyse d’un cas d’étude ( eg; Hoor et al.,2002 [81]), ou de façon plus systématique en lançant des rétrotrajectoires sur chaque point de grille des réanalyses de données météorologiques sur plusieurs années fournies par le CEPMMT (eg; Sprenger and Wernli,2003 [159]). Avec la réanalyse de 15 ans de données du CEPMMT et à l’aide d’une méthode lagrangienne, Sprenger and Wernli (2003 [159]) ont étudié les échanges stratosphère-troposphère et troposphère-stratosphère. Ils obtiennent des cartes de flux d’échange entre les 2 réservoirs atmosphériques suivant différentes saisons. Dans le cas du flux troposphère-stratosphère, ils confirment le rôle joué par la dynamique des courant-jets polaires et subtropicaux; ils montrent par ailleurs que les flux très intenses ont lieu au dessus du Groënland en liaison avec le franchissement orographique.

Des trajectoires lagrangiennes à l’aide du modèle LAGRANTO ont été lancées en chaque point de mesure MOZAIC. Ces rétrotrajectoires ont été faites à l’aide de champs d’analyse et de prévision de l’ECMWF disponibles toutes les 3 heures avec une résolution horizontale de  $0.5^\circ$  en latitude et longitude, et 60 niveaux verticaux.

Sur la figure 4.30 est représenté quatres paramètres lagrangiens tirés des rétrotrajectoires. Sur la première colonne, le paramètre appelé CL (pour Couche Limite) représente la fraction d’observation dans le repère dynamique ayant une pression supérieur à 700hPa au cours de la rétrotrajectoire. Ce paramètre est représentatif des parcelles d’air ayant subi un soulèvement profond de la basse troposphère vers la zone de l’UTLS. Sur la deuxième colonne, le paramètre  $\tau_{st}$  représente le temps de résidence sur 5 jours dans la stratosphère (la tropopause étant définie par la valeur de tourbillon potentiel 2pvu) des parcelles d’air d’origine troposphérique dans le repère dynamique. Sur la troisième colonne, le paramètre STT (pour Stratosphere to Troposphere Transport) représente la fraction des observations ayant à l’origine de chaque rétrotrajectoire une valeur de PV supérieur à 6pvu. Ce paramètre est représentatif du flux stratosphérique de la moyenne stratosphère vers la couche de mélange dont la partie haute a été définie précédemment à 6pvu en moyenne. Sur la quatrième colonne, le paramètre TST (pour Troposphere to Stratosphere Transport) représente la fraction des observations ayant à l’origine de chaque rétrotrajectoire une valeur de PV inférieure à 2pvu. Ce paramètre est représentatif des intrusions troposphériques dans la

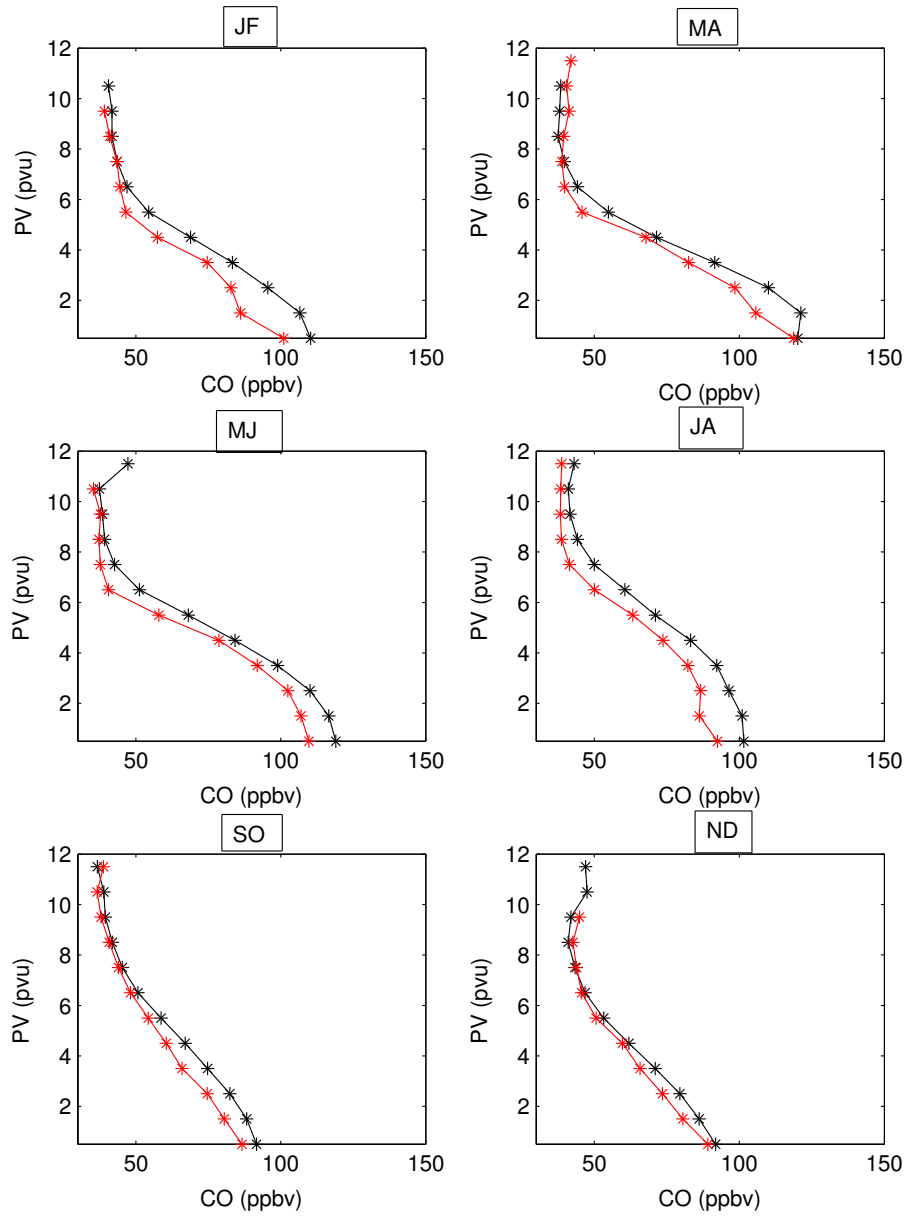


FIG. 4.28 – valeurs moyenne de CO par tranche de PV pour les 4 régions, et pour des valeurs d'angle entre -0.1 et 0.1 (lignes noires) et pour des valeurs supérieures à 0.3 ou inférieures à -0.3 (lignes rouges).

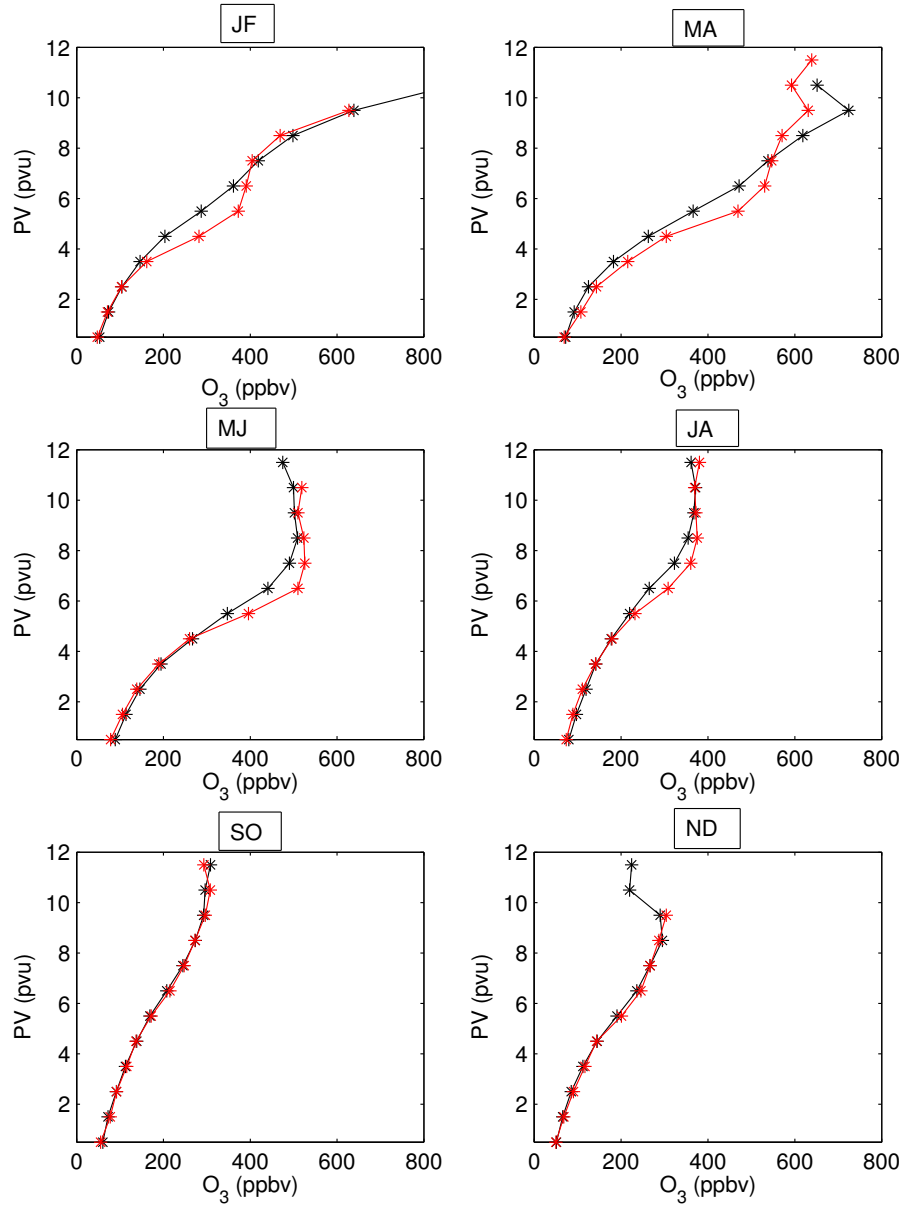


FIG. 4.29 – Même chose que pour la figure 4.28, mais pour l’ozone.

basse stratosphère.

Sur la deuxième colonne, le paramètre  $\tau_{st}$  permet d'estimer le temps de ventilation en fonction de la profondeur dans la basse stratosphère. On constate que le temps de résidence des masses d'air est de 5 jours entre 1 et 4pvu pour les périodes de temps entre Novembre et Avril. Le maximum de profondeur de la ventilation à 5 jours est obtenu durant la période Juillet-Aout : jusqu'à 6pvu. Ceci concorde avec la faiblesse relative de la stabilité statique en été, qui permet une meilleure ventilation.

Sur la troisième colonne, le paramètre STT montre une variation saisonnière du flux stratosphérique dans la couche de mélange. Le flux stratosphérique se fait sur une gamme de vorticité large durant les périodes Mai-Juin et Juillet-Aout. Il existe également également une différence entre les bords et le centre des thalwegs. Les intrusions stratosphériques semblent se produire préférentiellement sur les bords des thalwegs.

Sur la quatrième colonne, la valeur TST atteint 10% des observations à 4 ou 5pvu pour les périodes JF,MA, MJ et ND. Ce taux est obtenu à 6pvu en JA et SO. En dessous de 5pvu, aucun cycle saisonnier ne semble ressortir.

Sur la première colonne, le paramètre CL montre que les échanges de la basse troposphère vers la stratosphère atteignent les 6pvu. (1% des observations). Il ne semble pas y avoir de cycle saisonnier sur l'intensité des échanges avec la basse troposphère, cependant ces masses d'air atteignent une profondeur plus grande dans la stratosphère de Mai à Octobre, peut être à cause de la stabilité statique de la stratosphère plus faible durant cette période de l'année.

La structure générale des champs issus de ces paramètres lagrangiens est conforme à ce qu'on peut attendre. On peut vraisemblablement exploiter statistiquement les résultats de ce repère dynamique avec une méthode lagrangienne.

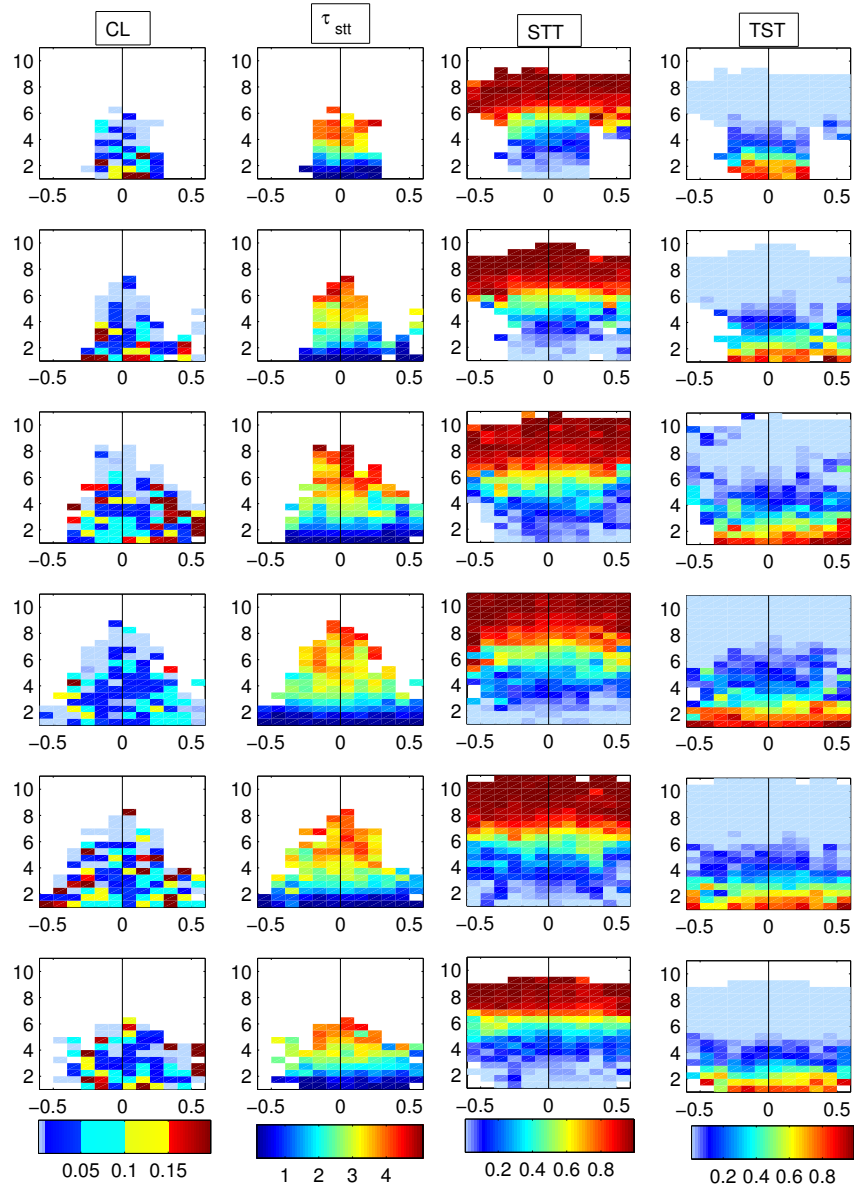


FIG. 4.30 – Même chose que pour la figure 4.21, sauf que les colonnes représentent les valeurs moyennes de : 1) paramètre CL (%), 2) paramètres  $\tau_{st}$  (en jour), 3) paramètre STT (%), 4) paramètre TST (%). cf texte à la section 4.3.6 pour les définitions des paramètres.



### 4.3.7 Conclusion

La méthode présentée ici est basée sur la définition d'un nouveau repère dynamique qui permet le remplacement cohérent des observations le long des dorsales et des thalwegs d'altitude. Le système de coordonnées est composé de l'angle des surfaces PV par rapport à l'horizontale en abscisse, et le PV en ordonnée. Cette méthode permet de décrire la composition chimique et la dynamique du mélange et du transport dans les ondes baroclines. Nous nous sommes focalisés ici sur les ondes baroclines associées aux thalwegs d'altitude, car c'est dans ces structures qu'il existe le plus grand nombre de données MOZAIC sur une large épaisseur dans la stratosphère. L'utilisation de paramètres dynamiques tels que la vitesse du vent, le gradient vertical de température potentielle et la température potentielle a permis de confirmer la validité de la méthode. Ce repère est le premier à permettre une étude climatologique des ondes baroclines des moyennes latitudes, sans la nécessité de moyennes zonale ou temporelle.

Contrairement à la première partie du chapitre qui était basée sur une analyse des diagrammes ozone/CO, l'approche dynamique a permis de caractériser les variations saisonnières de l'ozone et du CO dans la stratosphère et la troposphère. L'ozone dans la haute troposphère possède un maximum en Mai-Juin et un minimum en Novembre-Décembre. L'ozone stratosphérique est maximum en Mars-Avril et minimum en Septembre-Octobre. Pour la première fois, une climatologie du CO a été faite dans la haute troposphère et la basse stratosphère des moyennes latitudes. Le cycle saisonnier du CO dans la haute troposphère possède un maximum entre Mars et Juin de 120 ppbv, et un minimum de Septembre à Décembre de 90 ppbv. Le CO stratosphérique (au dessus de 7pvu) a un minimum en Mai-Juin de 35 ppbv, et un maximum en Novembre-Décembre de 45 ppbv.

Dans la zone UTLS, une couche de mélange est observée entre 2 et 6 pvu, et jusqu'à 8pvu en été par les données MOZAIC. Cette couche de mélange se caractérise par une diminution de la variabilité du CO, variabilité d'origine troposphérique, et une diminution de la variabilité de l'ozone, en fonction du tourbillon potentiel. Cette couche de mélange comporte des cycles saisonniers qui sont caractéristiques d'une combinaison des cycles saisonniers de la troposphère et de la stratosphère. Les meilleures anti-corrélations en ozone/CO sont observées dans la couche de mélange, et notamment sur les bords des thalwegs d'altitude. Ceci confirme que le processus dominant qui redistribue les champs de concentrations d'ozone et de CO dans les thalwegs d'altitude est le brassage adiabatique généré par les courants-jet d'altitude.

Des différences chimiques dans les thalwegs d'altitude ont été constatées. Un minimum relatif d'ozone est observé au centre des thalwegs par rapport aux bords des thalwegs, notamment au sommet de la couche de mélange. Cette anomalie négative d'ozone s'accompagne d'une anomalie positive de stabilité statique. Ensuite, une anomalie positive de CO est observée au centre des thalwegs, et ceci sur l'ensemble de l'épaisseur de la couche de mélange. Ceci vient du fait que au centre des thalwegs d'altitude et pour une surface de PV donné, les surfaces isentropes traversant la surface de PV au centre du thalweg possèdent une température potentielle plus faible que sur les bords du thalweg. Les mélanges isentropiques au centre du thalweg se font donc avec des surfaces isentropes à température

potentielle plus faible, donc potentiellement plus chargées en CO.

Des variations zonales dans la couche de mélange sur la distribution en ozone et CO ont été caractérisées entre 2 et 4pvu, et parfois jusqu'à 6pvu en Juillet-Aout. Ces variations zonales vont dans le sens des conclusions obtenues par la première partie de ce chapitre. La région Asie se démarque par une forte concentration en CO, surtout entre Mai et Aout (140 ppbv) à cause de taux d'émission de CO en surface élevés au Nord en raison des feux de biomasse et au Sud en raison des émissions anthropiques. Le soulèvement d'air fortement chargé en CO constaté par Nédélec et al. (2005 [130]) semble donc être représentatif d'une tendance saisonnière dans la région Asie.

Enfin, une approche lagrangienne permet de caractériser des différences saisonnières ou de part et d'autre de l'axe des thalwegs d'altitude sur les flux de la stratosphère vers la troposphère, ou de la troposphère vers la stratosphère. Cette approche n'est encore qu'une perspective. Cependant, en utilisant le modèle dispersif lagrangien FLEXPART avec des rétroplumes faites sur des périodes de 20 jours, nous pourrions obtenir des pourcentages de traceurs passifs, et l'origine troposphérique des concentrations chimiques de chaque parcelle d'air de la couche de mélange. Nous pourrions également estimer les temps de mélange suivant la profondeur dans la plus basse stratosphère. Le repère dynamique utilisé ici n'ayant pas de contrainte technique particulière, il sera également possible de comparer dans ce repère les mesures chimiques avec des paramètres diagnostiques de mélange plus sophistiqués, comme le paramètre de diffusivité effective ou les coefficients de Lyapunov. Une seconde étape sera également de caractériser la couche de mélange dans les dorsales d'altitude, en traitant les données MOZAIC sur plusieurs années. Cette étude permettra de distinguer l'impact des différences dynamiques des échanges STE entre dorsales et thalwegs sur la distribution d'ozone et de CO dans la basse stratosphère.



# Conclusion

Les échanges de gaz trace entre la basse stratosphère et la haute troposphère sont considérés comme d'une grande importance du point de vue du bilan chimique et radiatif dans l'atmosphère. Il est clair maintenant (Holton et al., 1995) que la circulation générale de Brewer Dobson génère un flux net de la troposphère vers la stratosphère aux tropiques, et un flux net de la stratosphère vers la troposphère aux moyennes latitudes. Cependant, le calcul du flux net seul ne permet pas de comprendre la distribution chimique dans l'UTLS, ni de déterminer plusieurs aspects importants des relations entre chimie et transport. Des études récentes par observation ou par modélisation ont montré une grande complexité des processus dynamiques de la région UTLS qui régissent la distribution chimique, et des liens qui peuvent exister entre eux. Les incertitudes actuelles sur l'estimation des échanges stratosphère-troposphère dans les modèles de chimie-transport restent grandes. Ainsi, la difficulté de disposer d'un bilan précis de l'ozone troposphérique reste un frein à la quantification de l'impact des processus photo-chimiques sur la production d'ozone.

Le but de cette thèse a été de contribuer à la connaissance des échanges stratosphère-troposphère au niveau du cas d'étude et au niveau global saisonnier.

La base de donnée du projet MOZAIC est tout indiquée pour faire ce travail. Depuis Décembre 2001, cinq avions commerciaux Airbus A-340 fournissent des mesures d'ozone, de CO et d'humidité. Ces avions volent en moyenne une fois par jour, ce qui permet à la base de donnée MOZAIC d'avoir une très large couverture spatiale et temporelle de données in situ de la région de l'UTLS. J'ai utilisé cette base de données pour la recherche de cas d'études et pour une étude saisonnière et climatologique.

Dans un premier cas d'étude, l'utilisation de plusieurs modèles lagrangiens, FLEXPART et Lagranto, et du modèle eulérien MESO-NH permet de mettre en évidence l'importance des échanges stratosphère-troposphère dans un cas de cyclogénèse en été. La technique RDF appliquée à la région UTLS est utile pour reconstituer par advection des structures stratosphériques de fine échelle qui sont lissées par le cycle d'analyse et de prévisions des modèles comme celui de l'ECMWF. Une foliation est observée deux fois dans son cycle de vie, une première fois dans la basse troposphère de la partie Ouest du thalweg d'altitude, et une seconde fois dans la haute troposphère dans la zone de divergence en altitude, coté Est du thalweg. Le succès de la technique RDF avec LAGRANTO est de détecter la foliation de tropopause en moyenne troposphère dans le profil vertical à New-York et dans le vol de croisière en haute troposphère. L'analyse faite avec LAGRANTO (Brioude et al., 2006), confirmée par le modèle dispersif lagrangien FLEXPART, montre que la zone

de divergence en altitude de la dépression porte les signatures d'un mélange entre de l'air couche limite soulevé par le WCB, et de l'air stratosphérique du précurseur d'altitude. Le modèle non-hydrostatique MESO-NH met en exergue le rôle de la convection sur le transport de la troposphère vers la stratosphère. Une tempête tropicale, prise dans le cycle de vie de l'onde barocline, est responsable d'un transport TST à travers la tour convective, et au niveau des bords de la couverture nuageuse. Ces processus de transport ont été caractérisés par des gradients chimique d'ozone sur un avion MOZAIC en altitude. Un deuxième phénomène de transport TST s'est produit dans une zone de décalage du front, là où le front en altitude et l'air stratosphérique du précurseur se mettent en avant du front froid de surface. Un mélange convectif du précurseur et de la foliation de tropopause a été caractérisé. Le mouvement de déformation subi explique une augmentation croissante d'ozone d'Est en Ouest par l'avion MOZAIC. Ce cas d'étude montre, grâce à la technique RDF, que les dépressions d'été peuvent être associées à des transports profonds de la stratosphère vers la troposphère. Il montre aussi qu'à travers la nécessité d'utiliser des outils complexes tels que les traceurs lagrangiens de MESO-NH, combien est difficile la représentation des processus de transport, et leur interprétation complète sur les bilans chimiques.

Un second cas d'étude porte sur l'ubiquité des couches laminaires dans la troposphère (Newell et al., 1999). Je démontre que les cyclogénèses des moyennes latitudes peuvent être responsables d'une stratification en couches de masses d'air issues de courants cohérents. Le modèle dispersif lagrangien FLEXPART est utilisé ici pour retrouver l'origine de la formation de plusieurs couches sur un profil vertical de MOZAIC observé à Francfort en hiver. FLEXPART montre comment s'effectue la superposition verticale de 2 couches d'origine stratosphérique (foliations de tropopause) et de 2 couches d'origine couche limite marine (ceintures de transport d'air chaud) associées au développement de deux dépressions sur l'Atlantique et à leur passage successif entre dépression et anticyclone. J'ai développé une méthode de reconstruction de champs d'ozone stratosphérique à partir d'une simulation d'ozone synthétique de FLEXPART associée à des rétrotrajectoires. Elle m'a permis de calculer le temps de résidence et l'origine stratosphérique d'un pic d'ozone à 2.3km d'altitude dont l'anomalie d'ozone par rapport à la concentration d'ozone de fond est de seulement 8 ppbv. Le temps de résidence de cette intrusion stratosphérique dans la troposphère est d'environ 7.5 jours. Cette excellente faculté à retrouver des intrusions stratosphériques fines dans les profils MOZAIC peut être employée, entre autres, pour une étude climatologique du bilan d'ozone troposphérique dans les données MOZAIC avec une très bonne reconnaissance du flux d'ozone stratosphérique dans la troposphère. On peut raisonnablement penser que cette méthode permettra de détecter dans la base de donnée MOZAIC une grande majorité d'intrusions stratosphériques dont les temps de résidence dans la troposphère pourront atteindre 7 jours. L'estimation de l'impact des intrusions stratosphériques sur le bilan d'ozone troposphérique aura alors une précision inégalée.

La dernière partie de la thèse présente l'impact des échanges stratosphère-troposphère sur les distributions saisonnières de l'ozone et du monoxyde de carbone aux moyennes latitudes et dans la zone UTLS. A l'aide de diagnostics déduits des analyses du CEPMMT, un nouveau repère dynamique est proposé, dont le système de coordonnées est composé

de l'angle des surfaces de tourbillon potentiel par rapport à l'horizontale en abscisse, et le tourbillon potentiel en ordonnée. Ce repère permet le remplacement cohérent des observations MOZAIC le long des dorsales et des thalwegs d'altitude. L'utilisation de paramètres dynamiques tels que la vitesse du vent, le gradient vertical de température potentielle et la température potentielle a permis de confirmer la validité de la méthode. Ce repère est le premier à permettre une étude climatologique de la distribution des gaz trace dans des ondes baroclines des moyennes latitudes, sans la nécessité de moyennes zonales.

Ainsi, j'ai établi pour la première fois des composites saisonniers de la distribution d'ozone et CO de l'UTLS dans un cadre dynamique qui m'a permis 1) d'identifier les cycles saisonniers des espèces, 2) d'identifier la couche de mélange issue des échanges stratosphère troposphère, 3) de caractériser des anomalies chimiques dans la couche de mélange et 4) de caractériser des différences zonales de concentration de CO climatologique dans la région UTLS.

L'analyse des données montre que :

- Le cycle saisonnier de l'ozone stratosphérique a un maximum de printemps lié à la circulation de Brewer-Dobson dans la stratosphère. L'ozone troposphérique possède un maximum en Mai-Juin et un minimum en Novembre-Décembre. Le cycle saisonnier du monoxyde de carbone montre un maximum entre Mars et Juin (120 ppbv) et un minimum entre Septembre et Décembre (90 ppbv).

- L'impact principal des échanges stratosphère-troposphère tel qu'il est vu dans les composites est la formation d'une couche de mélange au dessus de la tropopause. La principale caractéristique de la couche de mélange est une diminution de la variabilité du CO, variabilité d'origine troposphérique, et une diminution de la variabilité de l'ozone, en fonction du tourbillon potentiel. Cette couche de mélange porte la signature de la combinaison des cycles saisonniers de la troposphère et de la stratosphère.

- Des différences chimiques dans les thalwegs d'altitude ont été constatées. Un minimum relatif d'ozone est observé au centre des thalwegs par rapport aux bords des thalwegs, notamment au sommet de la couche de mélange. Cette anomalie négative d'ozone s'accompagne d'une anomalie positive de stabilité statique. Ensuite, une anomalie positive de CO est observée au centre des thalwegs, et ceci sur l'ensemble de l'épaisseur de la couche de mélange. Ceci vient du fait que le centre des thalwegs d'altitude a une tendance à plus se mélanger avec la troposphère que par rapport aux bords des thalwegs.

- Des variations zonales dans la couche de mélange sur la distribution en ozone et CO ont été caractérisées entre 2 et 4pvu, et parfois jusqu'à 6pvu en Juillet-Aout. La région Asie se démarque par une forte concentration en CO, surtout entre Mai et Aout.

Une perspective de ce travail sera de mieux caractériser les variations de flux stratosphérique ou troposphérique dans la couche de mélange, en fonction de la saison à l'aide du modèle dispersif lagrangien FLEXPART. Ce modèle permettra de caractériser les origines géographiques des parcelles d'air dans la couche de mélange, et de mieux caractériser l'influence de la dynamique sur la distribution chimique en ozone et CO dans la couche de mélange au dessus de la tropopause. Plus généralement, ce travail jette les bases d'une nouvelle méthodologie d'estimation des échanges Stratosphère-Troposphère par l'emploi systématique de FLEXPART sur les données MOZAIC. Il sera alors possible d'étudier

l'impact régional des émissions de surface et des échanges Stratosphere-Troposphere sur les bilans chimiques d'ozone et de CO dans la région UTLS à l'échelle saisonnier.

# Glossaire

- CCB :Cold Conveyor Belt ou Ceinture de Transport d'air Froid
- CEPMMT : Centre Européen de Prévisions Météorologiques à Moyen Terme. Synonyme de l'ECMWF
- DA :Dry Airsteam ou Courant d'air Sec
- ECMWF : European Centre for Medium-Range Weather Forecasts. Synonyme du CEPMMT
- IPCC : Intergovernmental Panel on Climate Change
- MOZAIC : Measurement of ozone and water vapour by airbus in-service aircraft
- NAM : North hemispheric Annular Mode ou mode annulaire de l'hémisphère nord
- RDF : Reverse Domain Filling ou Reconstruction de Champ
- STE : Stratosphere Troposphere Exchanges ou Echanges entre la Stratosphère et la Troposphere
- STT : Stratosphere to Troposphere Transport ou Transport de la Stratosphere vers la Troposphere
- TST : Troposphere to Stratosphere Transport ou Transport de la Troposphere vers la Stratosphere
- UTLS : Upper Troposphere-Lower Stratosphere ou Haute Troposphere-Basse Stratosphere
- WCB : Warm Conveyor Belt ou Ceinture de Transport d'air Chaud
- WMO : World Meteorology Organization ou Organisation Mondiale de la Météorologie





# Bibliographie

- [1] Browning K. A. The dry intrusion perspective of extra-tropical cyclone development. *Meteorol. Appl.*, 4 :317–324, 1997.
- [2] Dethof A., A. O’Neill, J. M. Slingo, and H.G.J. Smit. A mechanism for moistening the lower stratosphere involving the asian summer monsoon. *QJRMS*, 125 :1079–1106, 1999.
- [3] Donnell E. A., D. J. Fish, E. M. Dicks, and A. J. Thorpe. Mechanisms for pollutant transport between the boundary layer and the free troposphere. *J. Geophys. Res.*, 106 :7847–7856, 2001.
- [4] Hauglustaine D. A., Hourdin F., Jourdain L., Filiberti M. A., Walters S., Lamarque J. F., and Holland E. A. Interactive chemistry in the laboratoire de meteorologie dynamique general circulation model : Description and background tropospheric chemistry evaluation. *J. Geophys. Res.*, 109 :D04314, 2004.
- [5] Plumb R. A. A tropical pipe model of stratospheric transport. *J. Geophys. Res.*, 101 :3957–3972, 1996.
- [6] Plumb R. A. and M. K. W. Ko. Interrelationships between mixing ratios of long-lived stratospheric constituents. *J. Geophys. Res.*, 97 :10,145–10,156, 1992.
- [7] Shapiro M. A. Turbulent mixing within tropopause folds as a mechanism for the exchange of chemical constituents between the stratosphere and troposphere. *J. Atmos. Sci.*, 37 :994–1004, 1980.
- [8] Wonhas A. and J. C. Vassilicos. Mixing and geometry of advected, chemically reactive scalar fields : Application to chlorine deactivation over the midnorthern latitudes. *J. Geophys. Res.*, 108(D11) :4325, doi :10.1029/2002JD002333, 2003.
- [9] H. Akimoto. Global air quality and pollution. *Science*, 302 :1716–1719, 2003.
- [10] J. Alisse, P. H. Haynes, J. Vanneste, and C. Sidi. Quantification of stratospheric mixing from turbulence microstructure measurements. *GRL*, 27(17) :26216–2624, 2000.
- [11] Allen, R.Douglas, Nakamura, and Noboru. Tracer equivalent latitude : A diagnostic tool for isentropic transport studies. *JAS*, 60 :287–304, 2003.
- [12] M. Ambaum. Isentropic formation of the tropopause. *J. Atmos. Sci.*, 54 :555–568, 1997.

- 
- [13] M. P. H. Ambaum and B. J. Hoskins. The nao troposphere-stratosphere connection. *J. Climate*, 15 :1967–1978, 2002.
- [14] C. Appenzeller and H. C. Davies. Structure of stratospheric intrusion into the troposphere. *Nature*, 358 :570–572, 1992.
- [15] C. Appenzeller and J. R. Holton. Tracer lamination in the stratosphere : A global climatology. *J. Geophys. Res.*, 101, 15 :555–569, 1997.
- [16] C. Appenzeller, J. R. Holton, and K. H. Rosenlof. Seasonal variation of mass transport across the tropopause. *J. Geophys. Res.*, 101(D10) :15071–15078, 1996.
- [17] Grant W. B., E. V. Browell, C. S. Long, L. L. Stowe, R. G. Grainger, and A. Lambert. Use of volcanic aerosols to study the tropical stratospheric reservoir. *J. Geophys. Res.*, 101 :3973–3988, 1996.
- [18] Johnson W. B. and W. Viezee. Stratospheric ozone in the lower troposphere : I. presentation and interpretation of aircraft measurement. *Atmos. Environ.*, 15 :1309–1323, 1981.
- [19] M. J. Bader, G. S. Forbes, J. R. Grant, R. B. E. Lilley, and A. J. Waters (Eds). Images in weather forecasting : A practical guide for interpreting satellite and radar imagery. *Cambridge Univ. Press, New York*, 1995.
- [20] M. P. Baldwin and T. J. Dunkerton. Propagation of the arctic oscillation from the stratosphere to the troposphere. *J. Geophys. Res.*, 104 :46, 1999.
- [21] M. P. Baldwin and T. J. Dunkerton. Stratospheric harbingers of anomalous weather regimes. *Science*, 294 :581–584, 2001.
- [22] M. P. Baldwin, D. B. Stephenson, D. W. J. Thompson, T. J. Dunkerton, A. J. Charlton, and A. O Neil. Stratospheric memory and skill of extended range weather forecasts. *Science*, 301 :636, 2003.
- [23] P. Bechtold, J. Kain, E. Bazile, P. Mascart, and E. Richard. A mass flux convection scheme for regional and global models. *Quart. J. Roy. Meteor. Soc.*, 127 :869–886, 2001.
- [24] M. G. Beekman, G. Ancelet, S. Blonsky, D. De Muer, A. Ebel, H. Elbern, J. Hendricks, J. Kowol, C. Mancier, R. Sladkovic, H. G. J. Smit, P. Speth, T. Trickl, and Ph. Van Haver. Regional and global tropopause fold occurrence and related ozone flux across the tropopause. *J. Atmos. Chem.*, 28 :29–44, 1996.
- [25] S. Bethan, G. Vaughan, and S. Reid. A comparison of ozone and thermal tropopause troposphere. *Quart. J. Roy. Meteor. Soc.*, 122 :929–949, 1996.
- [26] J. Beuermann, P. Konopka, D. Brunner, O. Bujok, O. Gunther, D. S. McKenna, J. Lelieveld, R. Muller, and C. Schiller. Highresolution measurements and simulation of stratospheric and tropospheric intrusions in the vicinity of the polar jet stream. *Geophys. Res. Lett.*, 29(12) :1577, doi :10.29/2001GL014162, 2002.
- [27] R. X. Black. Stratospheric forcing of surface climate in the arctic oscillation. *J. Climate*, 15 :268–277, 2002.

- [28] P. Bougeault and P. Lacarrère. Parametrization of orography-induced turbulence in meso-beta scale model. *Mon. Wea. Rev.*, 117 :1870–1888, 1989.
- [29] J. Brioude, J. P. Cammas, and O. R. Cooper. Stratosphere-troposphere exchange in a summertime extratropical low : analysis. *Atmospheric Chemistry Physics*, 6 :2337–2353, 2006.
- [30] K. A. Browning. Organization of clouds and precipitation in extratropical cyclones. *Extratropical Cyclones, The Erik Palmén Memorial Volume, C. W. Newton and E. O. Holopainen, Eds., Amer. Meteor. Soc.*, pages 129–154, 1990.
- [31] K. A. Browning and G. A. Monk. A simple model for the synoptic analysis of cold fronts. *Quart. J. Roy. Meteor. Soc.*, 108 :435–452, 1982.
- [32] K. A. Browning and N. M. Roberts. Structure of a frontal cyclone. *Quart. J. Roy. Meteor. Soc.*, 120 :235–257, 1994.
- [33] N. Butchart and A. A. Scaife. Removal of chlorofluorocarbons by increased mass exchange between the stratosphere and troposphere in a changing climate. *Nature*, 410 :799–802, 2001.
- [34] Forster C. and V. Wirth. Radiative decay of idealized stratospheric filaments in the troposphere. *J. Geophys. Res.*, 105 :10,169–10,184, 2000.
- [35] T. N. Carlson, R. A. Anthes, M. Schwartz, S. G. Benjamin, and D. G. Baldwin. Analysis and prediction of severe storms environment. *Bull. Amer. Meteor. Soc.*, 61 :1018–1032, 1980.
- [36] J. P. Chaboureau, J. P. Cammas, P. J. Mascart, J. P. Pinty, and J. P. Lafore. Mesoscale model cloud scheme assessment using satellite observations. *J. Geophys. Res.*, 107(D16) :4301, doi :10.1029/2001JD000714, 2002.
- [37] N. Chaumerliac, R. Rosset, M. Renard, and E. C. Nickerson. The transport and redistribution of atmospheric gases in regions of frontal rain. *J.*, 14 :43–51 DOI : 10.1007/BF00115221,, 1992.
- [38] O. Cooper, C. Forster, D. Parrish, E. Dunlea, G. Hubler, F. Fehsenfeld, J. Holloway, S. Oltmans, B. Johnson, A. Wimmers, and L. Horowitz. On the life cycle of a stratospheric intrusion and its dispersion into polluted warm conveyor belts. *J. Geophys. Res.*, 109 :D23S09, 2004.
- [39] O. R. Cooper, J. L. Moody, J. C. Davenport, S. J. Oltmans, B. J. Johnson, X. Chen, P. B. Shepson, and J. T. Merrill. The influence of springtime weather systems on vertical ozone distributions over three north american sites. *J. Geophys. Res.*, 103 :22001–22013, 1998.
- [40] O. R. Cooper, J. L. Moody, D. D. Parrish, M. Trainer, J. S. Holloway, G. Hubler, F. C. Fehsenfeld, and A. Stohl. Trace gas composition of midlatitude cyclones over the western north atlantic ocean : A seasonal comparison of o<sub>3</sub> and co. *J. Geophys. Res.*, 107(D7) :4057 doi :10.1029/2001JD000902, 2002.
- [41] O. R. Cooper, J. L. Moody, D. D. Parrish, M. Trainer, T. B. Ryerson, J. S. Holloway, G. Hubler, F. C. Fehsenfeld, S. J. Oltmans, and M. J. Evans. Trace gas signatures of

- the airstreams within north atlantic cyclones : Cases studies from the north atlantic regional experiment (nare'97) aircraft intensive. *J. Geophys. Res.*, 106(D6) :5437–5456, 2001.
- [42] P. Crutzen, M. Lawrence, and U. Pöschl. On the background photo chemistry of tropospheric ozone. *Tellus*, 51 :123–146, 1999.
- [43] P. J. Crutzen and P. H. Zimmermann. The changing photochemistry of the troposphere. *Tellus*, 43 :136–151, 1991.
- [44] J. Cuxart, P. Bougeault, and J. L. Redelsperger. A turbulence scheme allowing for mesoscale and large-eddy simulations. *Quart. J. Roy. Meteor. Soc.*, 126 :1–30, 2000.
- [45] E. F. Danielson. Stratospheric-tropospheric exchanges based upon radioactivity, ozone and potential vorticity. *J. Atmos. Sci.*, 25 :502–518, 1968.
- [46] R. G. Derwent, P. G. Simmonds, S. Seuring, and C. Dimmer. Observation and interpretation of the seasonal cycles in the surface concentrations of ozone and monoxide at mace head, ireland from 1990 to 1994. *Atmos. Environment*, 32 :145–157, 1998.
- [47] Tan D.G.H., P.H. Haynes, A.R. MacKenzie, and J.A. Pyle. Effects of fluid-dynamical stirring and mixing on the deactivation of stratospheric chlorine. *J. Geophys. Res.*, 103(D1) :1585–1605, 1998.
- [48] S. K. Dhaka, M. Takahashi, Y. Shibagaki, M. D. Yamanaka, and S. Fukao. Gravity wave generation in the lower stratosphere due to passage of the typhoon 9426 (orchid) observed by the mu radar at shigaraki. *J. Geophys. Res.*, 108 :4595, 2003.
- [49] Staley D.O. On the mechanism of mass and radioactivity transport from stratosphere to troposphere. *J. Atmos. Sci.*, 19 :450, 1962.
- [50] Fereday D.R. and P.H. Haynes. Scalar decay in two-dimensional chaotic advection and batchelor-regime turbulence. *Phys. Fluids*, 16, 2004.
- [51] Fahey D.W., S. Solomon, S. R. Kawa, M. Loewenstein, J. R. Podolske, S. E. Strahan, and K. R. Chan. A diagnostic for denitrification in the winter polar stratosphere. *Nature*, 345 :698–702, 1990.
- [52] Waugh D.W., R.A. Plumb, and J.W. Elkins et al. Mixing of polar vortex air into middle latitudes as revealed by tracer-tracer correlations. *J. Geophys. Res.*, 102 :13119–13134, 1997.
- [53] Browning K. E. and B. W. Golding. Mesoscale aspects of a dry intrusion within a vigorous cyclone. *Q. J. R. Meteorol. Soc.*, 121 :463–493, 1995.
- [54] Stone E., W. J. Randel, and J. L. Stanford. Transport of passive tracers in baroclinic wave life-cycles. *J. Atmos. Sci.*, 56 :1364–1381, 1999.
- [55] S. Eckhardt, A. Stohl, H. Wernli, P. James, C. Forster, and N. Spichtinger. A 15-year climatology of warm conveyor belts. *J. of Climate*, 17 :218–237, 2004.
- [56] K. A. Emanuel and M. Zivkovic-Rothman. Development and evaluation of a convection scheme for use in climate models. *J. Atmos. Sci.*, 56 :1766–1782, 1999.

- [57] J. G. Esler, P. H. Heynes, K. S. Law, H. Barjat, K. Dewey, J. Kent, S. Schmitgen, and N. Brough. Transport and mixing between airmasses in cold frontal regions during dynamics and chemistry of front zones (dcfz). *J. Geophys. Res.*, 108 :1000, 2003.
- [58] J. G. Esler, D. G. H. Tan, P. H. Haynes, M. J. Evans, K. S. Law, P. H. Plantevin, and J. A. Pyle. Stratosphere-troposphere exchange : Chemical sensitivity to mixing. *J. Geophys. Res.*, 106 :4717–4731, 2001.
- [59] Bithell et al. Persistence of stratospheric ozone layers in the troposphere. *Atmospheric Environment*, 34 :2563–2570, 2000.
- [60] Proffitt M.H. et al. Ozone loss in the arctic polar vortex inferred from high-altitude aircraft measurements. *Nature*, 347 :31–36, 1990.
- [61] Sparling L. C. et al. Diabatic cross-isentropic dispersion in the lower stratosphere. *J. Geophys. Res.*, 102 :25,817–25,829, 1997.
- [62] Arnold F., J. Schneider, K. Gollinger, H. Schlager, P. Schulte, D. E. Hagen, P. D. Whitefield, and P. van Velthoven. Observation of upper tropospheric sulfur dioxide- and acetone-pollution : Potential implications for hydroxyl radical and aerosol formation. *Geophys. Res. Lett.*, 24 :57–60, 1997.
- [63] H. Fischer, M. de Reus, M. Traub, J. Williams, J. Levievel, J. de Gouw, C. Warneke, H. Schlager, A. Minikin, R. Scheele, and P. Siegmund. Deep convective injection of boundary layer air into the lowermost stratosphere at midlatitudes. *Atmospheric Chemistry and Physics*, 3 :739–745, 2003.
- [64] L. M. Fry, F. A. Jew, and P. K. Kuroda. On the stratospheric fallout of strontium 90 : The spring peak of 1959. *J. Geophys. Res.*, 65 :2061–2066, 1960.
- [65] Lawrence M. G., P. J. Crutzen, P. J. Rasch P.J., B. E. Eaton, and N. M. Mahowald. A model for studies of tropospheric photochemistry : Description, global distributions, and evaluation. *J. Geophys. Res.*, 104 :26,245–26,277, 1999.
- [66] Vaughan G., Price J.D., and Howells A. Transport into the troposphere in a tropopause fold. *Quarterly Journal of Royal Meteorological Society*, 120 :1085–1103, 1994.
- [67] A. Gettelman, D. E. Kinnison, T. J. Dunkerton, and G. P. Brasseur. Impact of monsoon circulations on the upper troposphere and lower stratosphere. *JGR*, 109 :D22101, doi :10.1029/2004JD004878, 2004.
- [68] F. Gheusi and J. Stein. Lagrangian description of air-flows using eulerian passive tracers. *Quart. J. Roy. Meteor. Soc.*, 128 :337–360, 2002.
- [69] M. A. Goering, W. A. Gallus Jr, M. A. Olsen, and J. L. Standford. Role of stratospheric air in a severe weather event : Analysis of potential vorticity and total ozone. *J. Geophys. Res.*, 106, 11 :813–823, 2001.
- [70] P. Good, C. Giannakopoulos, F. M. O Connor, S. R. Arnold, M. de Reus, and H. Schlager. Constraining tropospheric mixing timescales using airborne observations and numerical models. *Atmos. Chem. Phys.*, 3 :1023–1035, 2003.

- 
- [71] V. Grewe. The origin of ozone. *Atmospheric Chemistry and Physics*, 6 :1495–1511, 2006.
- [72] V. Grewe and M. Dameris. Calculating the global mass exchange between stratosphere and troposphere. *Ann. Geophysicae*, 94 :431–442, 1996.
- [73] D. E. Hartley, J. T. Villarín, R. X. Black, and C. A. Davis. A new perspective on the dynamical link between the stratosphere and troposphere. *Nature*, 391 :471–474, 1998.
- [74] D. A. Hauglustaine, G. P. Brasseur, S. Waters, P. J. Rasch, J. F. Müller, L. K. Emons, and M. A. Carroll. Mozart, a global chemical transport model for ozone and related chemical tracers. part 2 : Model results and evaluation. *J. Geophys. Res.*, 103, 28 :291–335, 1998.
- [75] P. H. Haynes and H. McIntyre. On the observation and impermeability theorems for potential vorticity. *J. Atmos. Sci.*, 47 :2021–2031, 1990.
- [76] P. H. Haynes and M. E. McIntyre. On the evolution of vorticity and potential vorticity in the presence of diabatic heating and frictional or other forces. *J. Atmos. Sci.*, 44, 5 :828–841, doi : 10.1175/1520-0469, 1984.
- [77] P. H. Haynes and E. Shuckburgh. Effective diffusivity as a diagnostic of atmospheric transport. 2 : Troposphere and lower stratosphere. *J. Geophys. Res.*, 105, 22 :795–810, 2000.
- [78] M. I. Hegglin, D. Brunner, H. Wernli, C. Schierz, O. Martius, P. Hoor, H. Fischer, U. Partchatka, N. Spelten, C. Schiller, M. Krebsbach, U. Weers, J. Staehelin, and Th. Peter. Tracing troposphere-to-stratosphere transport above a mid-latitude deep convective system. *ACP*, 4 :741–756, 2004.
- [79] J. R. Hoerling, T. K. Schaack, and A. J. Izen. Global objective tropopause analysis. *Mon. Wea. Rev.*, 119 :1816–1831, 1991.
- [80] J. R. Holton, P. H. Haynes, M. E. MacIntyre, A. R. Douglass, R. B. Rood, and L. Pfister. Stratosphere-troposphere exchange. *Rev. Geophys.*, 2 :403–439, 1995.
- [81] P. Hoor, H. Fischer, L. Lange, and J. Lelieveld. Seasonal variations of a mixing layer in the lowermost stratosphere as identified by the co-o<sub>3</sub> correlation from in situ measurements. *JGR*, 107 :10.1029, 2002.
- [82] B. J. Hoskins, M. E. McIntyre, and A. W. Robertson. On the use of and significance of isentropic potential vorticity maps. *Quart. J. Roy. Meteor. Soc.*, 111 :877–946, 1995.
- [83] Hegglin M. I., D. Brunner, T. Peter, P. Hoor, H. Fischer, J. Staehelin, M. Krebsbach, C. Schiller, U. Partchatka, and U. Weers. Measurements of no, no<sub>y</sub>, n<sub>2</sub>o, and o<sub>3</sub> during spurt : implications for transport and chemistry in the lowermost stratosphere. *Atmos. Chem. Phys.*, 6 :1331–1350, 2006.
- [84] Curtius J., B. Sierau, F. Arnold, M. de Reus, J. Ström, H. A. Scheeren, and J. Lelieveld. Measurement of aerosol sulfuric acid 2. pronounced layering in the free troposphere during the second aerosol characterization experiment (ace 2). *J. Geophys. Res.*, 106(D23) :31975–31990, 2001.

- [85] Lary D. J., M. P. Chipperfield, J. A. Pyle, W. A. Norton, and L. P. Riishojgaard. Three dimensional tracer initialization and general diagnostics using equivalent pv latitude potential temperature coordinates. *Quart. J. Roy. Meteor. Soc.*, 121 :187–210, 1995.
- [86] P. James, A. Stohl, C. Forster, S. Eckhardt, P. Seibert, and A. Frank. A 15-year climatology of stratosphere-troposphere exchange with a lagrangian particle dispersion model, part 2 : Mean climate and seasonal variability. *J. Geophys. Res.*, 108(D12) :8522, doi :10.1029/2002JD002639, 2003.
- [87] P. James, A. Stohl, C. Forster, S. Eckhardt, P. Seibert, and A. Frank. A 15-year climatology of stratosphere-troposphere exchange with a lagrangian particle dispersion model, part 1 : Methodology and validation. *J. Geophys. Res.*, 108(D12) :8519, doi :10.1029/2002JD002637, 2003.
- [88] Stehr JW, Ball WP, Dickerson RR, Doddridge BG, Piety CA, and Johnson JE. Latitudinal gradients in o-3 and co during indoex 1999. *J. Geophys. Res.*, 107 (D19) :8015, 2002.
- [89] Wang K.-Y. and D. E. Shallcross. A lagrangian study of the three-dimensional transport of boundary-layer tracers in an idealised baroclinic wave life-cycle. *J. Atmos. Chem.*, 35 :227–247, 2000.
- [90] J. S. Kain and J. M. Fritsch. Convective parametrization for mesoscale models : The kain-fritsch scheme. the representation of cumulus convection in numerical models. *Meteor. Monogr.*, 24 :163–170, 1993.
- [91] L. S. Kalkstein, G. Tan, and J. A. Skindlov. An evaluation of three clustering procedures for use in synoptic climatological classification. *J. of Climate and Applied Meteorology*, 26(6) :717–730, 1987.
- [92] M. Kanakidou and P. J. Crutzen. The photochemical source of carbon monoxide : Importance, uncertainties and feedbacks, chemosphere. *Global. Change Sci.*, 1 :91–109, 1999.
- [93] A. Karpetchko, E. Kyro1, and P. von der Gathen. Generation of layering in the upper arctic troposphere away from the jet stream. *Physics of Auroral Phenomena*, Proc. XXVI Annual Seminar :231–234, 2003.
- [94] E. Kessler. On the distribution and continuity of water substance in atmospheric circulation. *Meteor. Monogr.*, 46 :165–170, 1969.
- [95] D. Keyser and M. A. Shapiro. A review of the structure and dynamics of upper-level frontal zones. *Mon. Weather Rev.*, 114 :452–499, 1986.
- [96] G. N. Kiladis. Observations of rossby waves linked to convections over the eastern tropical pacific. *J. Atmos. Sci.*, 55 :321–339, 1998.
- [97] S. Y. Kim, H. Y. Chun, and J. J. Baik. A numerical study of gravity waves induced by convection associated with typhoon rusa. *Geophysical Research Letters*, 32 :L24816, 2005.



- 
- [98] Bengtsson L. From short-range barotropic modelling to extended-range global weather prediction : a 40-year perspective. *Tellus*, 51 A-B :13–32, 1999.
- [99] Manney G. L., H. A. Michelsen, M. L. Santee, M. R. Gunson, F. W. Irion, A. E. Roche, and N. J. Livesy. Polar vortex dynamics during spring and fall diagnosed using trace gas observations from the atmospheric trace molecule spectroscopy instrument. *J. Geophys. Res.*, 104 :18841–18866, 1999.
- [100] Neu J. L. and R.A. Plumb. Age of air in a leaky pipe model of stratospheric transport. *J. Geophys. Res.*, 104 :19,243–19,255, 1999.
- [101] Pan L., W. J. Randel, B. L. Gary, M. J. Mahoney, and E. J. Hintsala. Definitions and sharpness of the extratropical tropopause : A trace gas perspective. *J. Geophys. Res.*, 109 :D23103 doi :10.1029/2004JD004982, 2004.
- [102] A. O. Langford and S. J. Reid. Dissipation and mixing of a small-scale stratospheric intrusion in the upper-troposphere. *J. Geophys. Res.*, 103, 31 :265–276, 1998.
- [103] K. S. Law, P. H. Plantevin, V. Thouret, A. Marenco, W. A. H. Asman, M. Lawrence, P. J. Crutzen, J. F. Muller, D. A. Hauglustaine, and M. Kanakidou. Comparison between global chemistry transport model results and measurements of ozone by airbus in-service aircraft (mozaic) data. *J. Geophys. Res.*, 105 :1503–1525, 2000.
- [104] B. Legras, B. Joseph, and F. Lefèvre. Vertical diffusivity in the lower stratosphere from lagrangian back-trajectory reconstructions of ozone profiles. *J. Geophys. Res.*, 108 (D18) :1029, 2003.
- [105] Q. Li and al. Convective outflow of south asian pollution : A global ctm simulation compared with eos mls observations. *GRL*, 32 :L14826, doi :10.1029/2005GL022762, 2005.
- [106] Gray L.J., Bithell M., and Cox B.D. The role of specific humidity fields in the diagnosis of stratosphere troposphere exchange. *Geophysical Research Letters*, 21 :2103–2106, 1994.
- [107] Bithell M., L. J. Gray, and B. D. Cox. A three-dimensional view of the evolution of midlatitude stratospheric intrusions. *J. Atmos. Sci.*, 56 :673–687, 1999.
- [108] Fosters P. M. and K. P. Shine. Radiative forcing and temperature trends from stratospheric ozone changes. *J. Geophys. Res.*, 102 :10,841–10,855, 1997.
- [109] Helten M., Smit H. G. J., Sträter W., Kley D., Nedelec P., Zöger M., and Busen R. Calibration and performance of automatic compact instrumentation for the measurement of relative humidity from passenger aircraft. *J. Geophys. Res.*, 103 :25,643–25,652, 1998.
- [110] Mahowald N. M., R. G. Prinn, and P. J. Rasch. Deducing ccl3f emissions using an inverse method and chemical transport models with assimilated winds. *J. Geophys. Res.*, 102(D23) :28,153–28,168, 1997.
- [111] Molina M. and Molina L. Air quality in the mexico megacity : an integrated assessment. *Kluwer Academic Publishers, Dordrecht*, 2002.

- [112] Murphy D. M., D. W. Fahey, M. H. Proffitt, C. S. Liu, K. R. Chan, C. S. Eubank, S. R. Kawa, and K. K. Kelly. Reactive nitrogen and its correlation with ozone in the lower stratosphere and upper troposphere. *J. Geophys. Res.*, 98 :8751–8773, 1993.
- [113] J. F. Mahfouf and F. Rabier. The ecmwf operational implementation of four dimensional variational assimilation. part ii : Experimental results with improved physics. *Quart. J. Roy. Meteor. Soc.*, 126 :1171–1190, 2000.
- [114] A. Marenco, V. Thouret, P. Nédélec, H. G. Smit, M. Helten, D. Kley, F. Karcher, P. Simon, K. Law, J. Pyle, G. Poschmann, R. Von Wrede, C. Hume, and T. Cook. Measurement of ozone and water vapour by airbus in-service aircraft : The mozaic airbon program, an overview. *J. Geophys. Res.*, 103, 25 :631–25–642, 1998.
- [115] P. Mascart, J. Noilhan, and H. Giordani. A modified parameterization of flux-profile relationships in the surface layer using different roughness length values for heat and momentum. *Boundary-Layer Meteorology*, 72 :331–344, 1995.
- [116] M. E. McIntyre. On the role of wave propagation and wave breaking in atmosphere ocean dynamics (sectional lecture). *Theoretical And Applied Mechanics 1992, Proc. XVIII Int. Congr. Theor. Appl. Mech., Haifa, ed. S. R. Bodner, J. Singer, A. Solan, Z. Hashin, 459pp; Amsterdam, New York, Elsevier*, pages 281–304, 1993.
- [117] M. E. McIntyre and W. A. Norton. Dissipative wave mean interactions and the transport of vorticity or potential vorticity. *J. Fluid Mech.*, 212 :403–435, 1990.
- [118] M. E. McIntyre and T. N. Palmer. Breaking planetary waves in the stratosphere. *Nature*, 305 :593–599, 1983.
- [119] J. J. Morcrette. Radiation and cloud radiative properties in the european center for medium range weather forecasts operational weather forecast system. *J. Geophys. Res.*, 96 :9121–9132, 1991.
- [120] G. L. Mullendore, D. R. Durran, and J. R. Holton. Cross-tropopause tracer transport in convection. *J. Geophys. Res.*, 110 :6113, 2005.
- [121] Carlson T. N. Mid-latitude weather systems. *Am. Meteorol. Soc.*, 1998.
- [122] Nakamura N. Two-dimensional mixing, edge formation, and permeability diagnosed in an area coordinate. *J. Atmos. Sci.*, 53 :1524–1537, 1996.
- [123] R. Newell, V. Thouret, J. Cho, P. Stoller, A. Marenco, and H. Smit. Ubiquity of quasi-horizontal layers in the troposphere. *Nature*, 398 :316–319 doi :10.1038/18,642, 1999.
- [124] J. Noilhan and S. Planton. A simple parametrization of land surface processus for meteorological models. *Mon. Wea. Rev.*, 117 :536–549, 1989.
- [125] P. Nédélec, J. P. Cammas, V. Thouret, G. Athier, J. M. Cousin, C. Legrand, C. Abonnel, F. Lecoœur, G. Cayez, and C. Marizy. An improved infrared carbone monoxide analyser for routine measurements aboard commercial airbus aircraft : technical validation and first scientific results of the mozaic iii programme. *Atmo. Chem. Phys.*, 3 :1551–1564, 2003.

- 
- [126] Morgenstern O., J. A. Pyle, A. M. Iwi, W. A. Norton, J. W. Elkins, D. F. Hurst, and P. A. Romashkin. Diagnosis of mixing between middle latitudes and the polar vortex from tracer-tracer correlations. *J. Geophys. Res.*, 107(D17) :4321 doi :10.1029/2001JD001224, 2002.
- [127] Brasseur G. P., a. B. Khattatov, and S. Walters. Modeling, in atmospheric chemistry and global change. *Oxford University Press*, Oxford, 1999.
- [128] Hoor P, Gurk C, Brunner D, Hegglin MI, Wernli H, and Fischer H. Seasonality and extent of extratropical tst derived from in-situ co measurements during spurt. *ACP*, 4 :1427–1442, 2004.
- [129] Konopka P., J.-U. Grooß, G. Günther, D. S. McKenna, R. Müller, J. W. Elkins, D. Fahey, , and P. Popp. Weak impact of mixing on chlorine deactivation during solve/theseo 2000 : Lagrangian modeling (clams) versus er-2 in situ observations. *J. Geophys. Res.*, 108(D5) :8324 doi :10.1029/2001JD000876, 2003.
- [130] Nedelec P., V. Thouret, J. Brioude, B. Sauvage, J.-P. Cammas, , and A. Stohl. Extreme co concentrations in the upper troposphere over northeast asia in june 2003 from the in situ mozaic aircraft data. *Geophys. Res. Lett.*, 32 :L14807 doi :10.1029/2005GL023141, 2003.
- [131] D. D. Parrish, M. Trainer, J. S. Holloway, J. E. Yee, M. S. Warshawsky, and F. C. Fehsenfeld. Relationships between ozone and carbon monoxide at surface sites in the north atlantic region. *JGR*, 103 :357–13,376, 1998.
- [132] D. D. Parrish, M. Trainer, J. S. Holloway, J. E. Yee, M. S. Warshawsky, F. C. Fehsenfeld, G. L. Forbes, and J. L. Moody. Relationships between ozone and carbone monoxide at surface sites in the north atlantic region. *J. Geophys. Res.*, 103 :13357–13376, 1998.
- [133] Novelli P.C., K.A. Masarie, and P.M. Lang. Distributions and recent changes in atmospheric carbon monoxide. *J. Geophys. Res.*, 103 :19015–19033, 1998.
- [134] D. Peters and D. W. Waugh. Influence of barotropic shear on the poleward advection of upper-tropospheric air. *J. Atmos. Sci.*, 53 :3013–3031, 1996.
- [135] R. A. Plumb, D. W. Waugh, and M. P. Chipperfield. The effects of mixing on tracer relationships in the polar vortices. *JGR*, 105(D8) :10,047–10,062, 2000.
- [136] L. M. Polvani and R. A. Plumb. Rossby waves breaking, microbreaking, filamentation, and secondary vortex formation : The dynamics of a perturbed vortex. *J. Atmos. Sci.*, 49 :462–476, 1992.
- [137] G. A. Postel and M. H. Hitchman. A climatology of rossby waves breaking along the subtropical tropopause. *1999*, 56 :359–373, *J. Atmos. Sci.*
- [138] O. Poulida and R. R. Dickerson. Stratosphere troposphere exchange in a midlatitude mesoscale convective complex. *J. Geophys. Res.*, 1996.
- [139] J. D. Price and G. Vaughan. On the potential for stratosphere-troposphere exchange in cut-off-low systems. *Quart. J. Roy. Meteor. Soc.*, 119 :343–365, 1993.

## BIBLIOGRAPHIE

---

- [140] Cooper O. R., J. L. Moody, D. D. Parrish, M. Trainer, T. B. Ryerson, J. S. Holloway, G. Hübler, F. C. Fehsenfeld, and M. J. Evans. Trace gas composition of midlatitude cyclones over the western north atlantic ocean : A conceptual model. *J. Geophys. Res.*, 107(D7) :10.1029, 2002.
- [141] Lemoine R. Secondary maxima in ozone profiles. *Atmos. Chem. Phys.*, 4 :1085–1096, 2004.
- [142] F. Rabier, H. Jarvinen, E. Klinker, J. F. Mahfouf, and A. A. Simmons. The ecmwf operational implementation of fourdimensional variational assimilation. part i : Experimental results with simplified physics. *Quart. J. Roy. Meteor. Soc.*, 126 :1143–1170, 2000.
- [143] W. J. Randel. Global variations of zonal mean ozone during stratospheric warming events. *J. Atmos. Sci.*, 50 :3308–3321, 1993.
- [144] E. A. Ray and al. Evidence of the effect of summertime midlatitude convection on the subtropical lower stratosphere from crystal-face tracer measurements. *JGR*, 109 :D18304, doi :10.1029/2004JD004655, 2004.
- [145] D. J Raymond and H. Jiang. A theory for long-lived mesoscale convective systems. *J. Atmos. Sci.*, 47 :3067–3077, 1990.
- [146] R. J. Reed. A study of a characteristic type of upper-level frontogenesis. *J. Meteor.*, 12 :226–237, 1955.
- [147] H. J. Reid and G. Vaughan. Convective mixing in a tropopause fold. *Quart. J. Roy. Meteor. Soc.*, 130 :1195–1212, 2004.
- [148] A. Robock. Volcanic eruptions and climate. *Rev. Geophys.*, 38 :191–219, 2000.
- [149] K. H. Rosenlof, A. F. Tuck, K. K. Kelly, J. M. Russell III, and M. P. McCormick. Hemispheric asymmetries in water vapor and inferences about transport in the lower stratosphere. *JGR*, 102(D11) :13,213–13,234, 1997.
- [150] Bethan S., G. Vaughan, C. Gerbig, A. Volz-Thomas, H. Richer, and D. A. Tiddeman. Chemical air mass differences near fronts. *J. Geophys. Res.*, 103 :13,413–13,434, 1998.
- [151] Blonsky S. and Speth P. An algorithm to detect tropopause folds from ozone soundings. *Meteorologische Zeitschrift N.F.*, 7 :153–162, 1998.
- [152] K. Sato. Small-scale wind disturbances observed by the mu radar during the passage of typhoon kelly. *J. Atmos. Sci.*, 50 :518–537, 1993.
- [153] P. Seibert and A. Frank. Source-receptor matrix calculation with a lagrangian particle dispersion model in backward mode. *Atmospheric Chemistry and Physics*, 4 :51–63, 2002.
- [154] K.-H. Seo and K. P. Bowman. A climatology of isentropic crosstropopause exchange. *J. Geophys. Res.*, 106 :28,159–28,172, 2001.
- [155] M. A. Shapiro. Further evidence of the mesoscale and turbulent structure of upper-level jet stream-frontal zone systems. *Mon. Wea. Rev.*, 106 :1100–1111, 1978.

- 
- [156] I. S. Song, H. Y. Chun, and T. P. Lane. Generation mechanisms of convectively forced internal gravity-waves and their propagation to the stratosphere. *J. Atmos. Sci.*, 60 :1960–1980, 2003.
- [157] P. Spaete, D. R. Johnson, and T. K. Schaak. Stratospheric-tropospheric exchange during the presidents’day storm. *Mon. Weather Rev.*, 122 :429–439, 1994.
- [158] M. Sprenger, M. Croci Maspoli, and H. Wernli. A global investigation based upon ecmwf analyses for the time period march 2000 to february 2001. *J. Geophys. Res.*, 108(D12) :8518, doi :10.1029/2002JD002587, 2003.
- [159] M. Sprenger and H. Wernli. A northern hemispheric climatology of cross-tropopause exchange for era15 time period (1979-1993). *JGR*, 108 :10.1029, 2003.
- [160] J. Stein, E. Richard, J. P. Lafore, J. P. Pinty, N. Asencio, and S. Cosma. High resolution non-hydrostatic simulations of flash-foods episodes with grid-nesting and ice-phase parametrization. *Meteorology Atmospheric Physics*, 72 :101–110, 2000.
- [161] D.S. Stevenson, F.J. Dentener, M. Schultz, K. Ellingsen, T. van Noije, G. Zeng, M. Amann, C.S. Atherton, N. Bell, D.J. Bergmann, I. Bey, T. Butler, J. Cofala, W.J. Collins, R.G. Derwent, R.M. Doherty, J. Drevet, H. Eskes, A. Fiore, M. Gauss, D. Hauglustaine, L. Horowitz, I. Isaksen, M. Krol, J.F. Lamarque, M. Lawrence, V. Montanaro, J.F. Muller, G. Pitari, M.J. Prather, J. Pyle, S. Rast, J. Rodriguez, M. Sanderson, N. Savage, D. Shindell, S. Strahan, K. Sudo, S. Szopa, and O. Wild. Multi-model ensemble simulations of present-day and near-future tropospheric ozone. *J. Geophys. Res.*, 111 :D08301, doi :10.1029/2005JD006338, 2006.
- [162] A. Stohl. Computation, accuracy and applications of trajectories- a review and bibliography. *Atmos. Environ.*, 32 :947–966, 1998.
- [163] A. Stohl. A one year lagrangian climatology of airstreams in the northern hemisphere troposphere and lowermost stratosphere. *J. Geophys. Res.*, 106 :7263–7279, 2001.
- [164] A. Stohl, O. Cooper, and P. James. A cautionary note on the use of meteorological analysis fields for quantifying atmospheric mixing. *J. Atmos. Sci.*, 61 :1446–1453, 2004.
- [165] A. Stohl, S. Eckhardt, C. Forster, P. James, and N. Spichtinger. On the pathways and timescales of intercontinental air pollution transport. *JGR*, 107(D23) :4684, doi :10.1029/2001JD001396, 2002.
- [166] A. Stohl, S. Eckhardt, C. Forster, P. James, N. Spichtinger, and P. Seibert. A replacement for simple back trajectory calculations in the interpretation of atmospheric trace substance measurement. *Atmos. Environ.*, 36 :4635–4648, 2002b.
- [167] A. Stohl, C. Forster, S. Eckhardt, N. Spichtinger, H. Huntrieser, J. Heland, H. Schlager, S. Wilhelm, F. Arnold, and O. Cooper. A backward modeling study of intercontinental pollution transport using aircrafts measurements. *J. Geophys. Res.*, 108(D12) :doi :10.1029/2002JD002,862, 2003.
- [168] A. Stohl and T. Trickl. A textbook example of long-range transport : Simultaneous observations of ozone maxima of stratospheric and north american origin in the free troposphere over europe. *J. Geophys. Res.*, 104, 30 :445–462, 1999.

## BIBLIOGRAPHIE

---

- [169] R. T. Sutton, H. Mclean, R. Swinbank, A. O'Neill, and F. W. Taylor. High resolution stratospheric tracer fields estimated from satellite observations using lagrangian trajectory calculations. *J. Atmos. Sci.*, 51 :2995–3005, 1994.
- [170] V. Thouret, J. P. Cammas, B. Sauvage, G. Athier, R. Zbinden, P. Nedelec, P. Simon, and F. Karcher. Tropopause referenced ozone climatology and inter-annual variability (1994-2003) from the mozaic programme. *Atmospheric Chemistry and Physics*, 3 :1033–1051, 2006.
- [171] Thouret V., J. Y. N. Cho, R. E. Newell, A. Marenco, and H. G. J. Smit. General characteristics of tropospheric trace constituent layers observed in the mozaic program. *J. Geophys. Res.*, 105(D13) :17379–17392, 2000.
- [172] Thouret V., A. Marenco, J. A. Logan, P. Nédélec, and C. Grouhel. Comparisons of ozone measurements from the mozaic airborne program and the ozone sounding network at eight locations. *J. Geophys. Res.*, 103(D19) :25695–25720, 1998b.
- [173] Thouret V., A. Marenco, P. Nédélec, and C. Grouhel. Ozone climatologies at 9 - 12 km altitude as seen by the mozaic airborne program between september 1994 and august 1996. *J. Geophys. Res.*, 103(D19) :25653–25680, 1998a.
- [174] Wirth V. Comments on "a new formulation of the exchange of mass and trace constituents between the stratosphere and troposphere". *J. Atmos. Sci.*, 52 :2491–2493, 1995.
- [175] G. Vaughan and R. M. Timmis. Transport of near-tropopause air into the lower midlatitude stratosphere. *Quart. J. Roy. Meteor. Soc.*, 124 :1559–1578, 1998.
- [176] G. Vaughan and R. M. Worthington. Break-up of a stratospheric streamer observed by mst radar. *Q. J. Roy. Meteorol. Soc.*, 126 :1751–1769, 2000.
- [177] D. Vogelesang and A. Horslag. Evaluation and model impacts of alternative boundary layer height formulations. *Boundary Layer Meteorology*, 81 :245–269, 1996.
- [178] A. Volz-Thomas, M. Berg, T. Heil, N. Houben, A. Lerner, W. Petrick, D. Raak, and H. W. Pätz. Measurements of total odd nitrogen (noy) aboard mozaic in-service aircraft : instrument design, operation and performance. *Atmospheric Chemistry and Physics*, 5 :583–595, 2005.
- [179] P. K. Wang. Moisture plumes above thunderstorm anvils and their contributions to cross-tropopause transport of water vapor in midlatitudes. *J. Geophys. Res.*, 108 :4194,doi :10.1029/2002JD002581, 2003.
- [180] Y. Wang, J. A. Logan, D. J. Jacob, and C. M. Spivakovsky. Global simulation of tropospheric o3-nox-hydrocarbon chemistry, 2, model evaluation and global ozone budget. *J. Geophys. Res.*, 103 :10727–10755, 1998.
- [181] D.W. Waugh and L.M. Polvani. Climatology of intrusions into the tropical upper troposphere. *Geophys. Res. Lett.*, 27 :3857–3860, 2000.
- [182] H. Wernli and M. Bourqui. A lagrangian 1-year climatology of (deep) cross-tropopause exchange in the extratropical northern hemisphere. *J. Geophys. Res.*, 107(D2) :4021, doi :10.1029/2001JD000812, 2002.

- 
- [183] H. Wernli, H. C., and Davies. A lagrangian-based analysis of extratropical cyclones. i : The method and some applications. *Quart. J. Roy. Meteor. Soc.*, 123 :467–489, 1997.
- [184] J. A Whiteway, E. G. Pavelin, R. Busen, J. Hacker, and S. Vosper. Airborne measurements of gravity wave breaking at the tropopause. *GRL*, 30(20) :2070, doi :10.1029/2003GL018207, 2003.
- [185] A. J. Wimmers and J.L Moody. Tropopause folding at satellite-observed spatial gradients : 1. verification of an empirical relationship. *J. Geophys. Res.*, 109 :D19306, doi :10.1029/2003JD004145, 2004.
- [186] A. J. Wimmers and J.L Moody. Tropopause folding at satellite-observed spatial gradients : 2. development of an empirical model. *J. Geophys. Res.*, 109 :D19307, doi :10.1029/2003JD004146, 2004.
- [187] V. Wirth. Diabatic decay of upper-level cyclones and anticyclones and resulting stratosphere-troposphere exchange in the life-cycles of extratropical cyclones. *Proceedings, The Life Cycles of Extratropical Cyclones, Vol. II, Bergen, Norway, June 27-July 1, 1994. S. Gronas and M.A. Shapiro (eds.)*, pages 554–559, 1994.
- [188] S. T Zalesak. Fully multidimensionnal flow-corrected transport algorithms for fluids. *J. Comput. Phys.*, 31 :335–362, 1979.
- [189] R. Zbinden, J. P. Cammas, V. Thouret, P. Nedelec, F. Karcher, and P. Simmon. Mid-latitude tropospheric ozone contents from the mozaic programme : Climatology and inter-annual variability. *Atmospheric Chemistry and Physics Discussion*, 6 :1053–1073, 2006.
- [190] G. Zeng and J. A. Pyle. Changes in tropospheric ozone between 2000 and 2100 modelled in a chemistry-climate model. *Geophysical Research Letters*, 30 :1392, 2003.
- [191] B. Zierl and V. Wirth. The influence of radiation on tropopause behavior and stratosphere-troposphere exchange in an upper tropospheric anticyclone. *J. Geophys. Res.*, 102 :23883–23894, 1997.

---

## ABSTRACT

This thesis aims at MOZAIC data analyses and to improve understanding of Stratosphere-Troposphere Exchange (STE) on case study scale or global scale. The use of Lagrangian techniques and the mesoscale model MESO-NH underlines importance of STE into a summertime cyclogenesis case study. It characterizes a deep stratospheric intrusion and the impact of convective mixing across the tropopause on chemical distribution into the UTLS region. A lagrangian analysis of a second case study shows that frontal zones of midlatitudes are able to layered stratify air masses processed by coherent airstreams. Finally, a study shows the impact of STE on seasonal distribution of ozone and CO at midlatitudes UTLS region. A dynamical referential, link to the vertical structure of baroclinic waves, allows a coherent reshape of observations along upper troughs and upper ridges. The mixing layer formation over the tropopause and seasonal chemical variations are shown. A lagrangian analyses of zonal variations is tented.



---

**Auteur** : Jérôme Brioude

**Titre** : Caractérisation de la tropopause extratropicale avec les données aéroportées  
MOZAIC : zone de mélange et d'échange

**Directeur de thèse** : Jean-Pierre Cammas

**Lieu et date de soutenance** : Salle Coriolis de l'OMP, le 26 Septembre 2006

## **RESUME**

Cette thèse porte sur l'analyse des données MOZAIC pour améliorer la connaissance des échanges stratosphère-troposphère (STE) au niveau du cas d'étude ou au niveau global saisonnier. L'utilisation de techniques lagrangiennes et du modèle méso-échelle MESO-NH met en évidence l'importance des STE sur la distribution chimique de l'UTLS dans un cas de cyclogénèse d'été. Une étude lagrangienne d'un second cas d'étude montre que les zones frontales des moyennes latitudes peuvent être responsables d'une stratification en couches de masses d'air issues de différents courants cohérents. Enfin, l'impact des STE sur les distributions saisonnières d'ozone et du CO aux moyennes latitudes dans la zone UTLS est présenté. Un nouveau repère dynamique permet un remplacement cohérent des observations le long des dorsales et des thalwegs d'altitude. La formation d'une couche de mélange au dessus de la tropopause, et les variations chimiques saisonnières sont présentées. Une analyse lagrangienne des variations zonales est tentée.

**MOTS CLES** : Tropopause extratropicale, Echanges Stratosphère-Troposphère, Chimie-Transport, Ozone, Monoxyde de Carbone, Modélisation

**Discipline** : Physique et Chimie de l'atmosphère

**Laboratoire** : Laboratoire d'Aérologie, OMP, 14 av. Ed. Belin, 31400 Toulouse, FRANCE