



HAL
open science

Etude de la canicule européenne de 2003 avec les données aéroportées MOZAIC : pollution et transport.

Marc Tressol

► **To cite this version:**

Marc Tressol. Etude de la canicule européenne de 2003 avec les données aéroportées MOZAIC : pollution et transport.. Planète et Univers [physics]. Université Paul Sabatier - Toulouse III, 2008. Français. NNT: . tel-00290101

HAL Id: tel-00290101

<https://theses.hal.science/tel-00290101>

Submitted on 24 Jun 2008

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

DOCTORAT DE L'UNIVERSITE DE TOULOUSE

DELIVRE PAR

L'UNIVERSITE TOULOUSE III - PAUL SABATIER

Spécialité :

Physique et Chimie de l'Atmosphère

Présentée et soutenue publiquement par

Marc Tressol

le 8 Avril 2008

Titre :

Etude de la canicule européenne de 2003 avec les données aéroportées MOZAIC : pollution et transport.

Jury :

Gérard ANCELLET	DR CNRS	Rapporteur
Matthias BEEKMANN	DR CNRS	Rapporteur
Jean-Pierre CAMMAS	Physicien	Directeur de thèse
Sylvain COQUILLAT	Professeur	Président
Corinne MARIZY	Ingénieur EADS	Invitée
Valérie THOURET	Physicienne adjointe	Directrice de thèse
Robert VAUTARD	DR CNRS	Rapporteur

Je tiens à remercier en premier lieu mes directeurs de thèse : Jean-Pierre Cammas, Céline Mari et Valérie Thouret de m'avoir encadré pendant ces trois années et de m'avoir fourni les moyens et collaborations pour réaliser cette étude.

Je remercie Robert Delmas et Frank Roux, directeurs successifs du Laboratoire d'Aérodynamique, de m'y avoir accueilli. Je remercie également Sylvain Coquillat d'avoir accepté de juger mon travail et de présider le jury. Gérard Ancellet, Matthias Beekmann et Robert Vautard, tous trois membres du jury, sont également remerciés pour m'avoir fait l'honneur de rapporter ce travail ainsi que Corinne Marizy pour avoir accepté de participer à ce jury.

Merci à la fondation EADS pour le financement dont j'ai pu disposer pendant ces 3 ans et de permettre des rapprochements avec le monde industriel.

Merci à toute l'équipe MOZAIC : pour leur travail qui m'a permis d'utiliser ce formidable jeu de données dont je commence à peine à prendre la mesure avec le recul. Y'a pas à dire faut que ça continue!

Quelques mots aussi pour l'accueil que m'a réservé le personnel du LMCA et dont j'ai pu profiter des connaissances sur le modèle GEOS-Chem. Merci donc à Isabelle, Sylvia, Jérôme, Gert... pour leur bonne humeur, leur conseil et leur aide. J'ai failli oublier le chocolat suisse qui a beaucoup pesé dans le sac du retour!

Mes remerciements vont aussi aux membres du SILA sans qui, il serait compliqué de traiter les données et de pouvoir simuler, sacré monde informatique! Un bon matos nécessite les bonnes personnes pour le faire fonctionner (vive la clim!!!) avec une dédicace spéciale car il en faut bien une, à l'ordinateur qui n'a jamais bronché malgré les noms d'oiseaux que je lui ai donné!

Et puis un coucou spécial à tous les collègues pour les moments de franche rigolade : Jérôme (qui m'a formé à Flexpart et raconté un grand nombre de ...), Olivier (le nord commence à Sesquières... et le pôle se trouve à Lille!), Amandine (l'affichage direct est plus rapide que le mail!), Nathalie (de bataille de bureaux à discussion de score, non on va rester à la bataille), Marielle (ses bien bons gâteaux et pour la porte fermée avec Amandine...), Carlos (« bi careuffoule! » que viva el francès) et Damien (pour les nombreuses discussions sur tout et rien mais aussi pour les jeux stupides qui prennent des plombes).

Merci aussi à tout le personnel du laboratoire pour y faire régner une bonne ambiance.

Je remercie mes parents, mon frerot, ma famille, les potes vttistes (du dimanche quand il pleut pas et que ça descend!) qui « m'écoutent » dire du charabia sur l'atmosphère.

Un gros merci à Karine pour son soutien, ses encouragements (et pour aussi stresser à ma place!).

Table des matières

Introduction	7
1 Vague de chaleur et pollution atmosphérique	11
1.1 Les vagues de chaleur	11
1.2 La pollution atmosphérique	13
1.2.1 L’ozone	13
1.2.2 Les oxydes d’azote	16
1.2.3 Le monoxyde de carbone	17
1.2.4 Les hydrocarbures non méthaniques	19
1.2.5 Cycles diurnes et profils climatiques	21
1.3 L’été européen 2003 et sa canicule	24
1.3.1 Contexte historique	24
1.3.2 Les conséquences de l’épisode	25
1.4 Mesures MOZAIC	28
1.4.1 Présentation du programme	28
1.4.2 Qualité des mesures	30
1.5 Le modèle FLEXPART	32
1.5.1 Présentation du modèle	32
1.5.2 Outils diagnostiques	34
2 La canicule européenne de 2003 vue par les avions MOZAIC	37
2.1 Cas d’étude	38
2.1.1 Synthèse de l’article	38
2.1.2 Article : Air pollution during the 2003 European heat wave as seen by MOZAIC airlines	46
2.2 Résultats complémentaires	65
2.2.1 Résultats dynamiques	65
2.2.2 Résultats sur la pollution	67
3 Modélisation du bilan régional de l’ozone pendant la canicule	75
3.1 Etat des modèles globaux	76
3.2 Présentation du modèle	77
3.3 Simulation standard pour l’été 2003	80

3.3.1	Température et vapeur d'eau	81
3.3.2	Monoxyde de carbone et ozone	83
3.3.3	Hauteur de la couche limite planétaire	89
3.3.4	Emissions biogéniques	91
3.3.5	Déposition sèche de l'ozone	93
3.4	Tests de sensibilité	94
3.4.1	Sensibilité aux émissions anthropiques	95
3.4.2	Sensibilité aux émissions par les feux de forêt	97
3.5	Conclusion	105
	Conclusion	107

Introduction

Le climat et la chimie atmosphérique sont intimement liés et des modifications sur l'un des deux entraînent une réponse de l'autre. Leurs interactions dans l'atmosphère font l'objet de nombreuses études avec un focus sur la troposphère, partie de l'atmosphère dans laquelle nous vivons et qui est comprise entre le sol et 8 ou 16 km suivant la latitude du lieu d'observation. La troposphère reçoit toutes les émissions gazeuses provenant des sols, de la végétation et en majorité des activités anthropiques. C'est donc dans la troposphère que se concentre la pollution atmosphérique. Les gaz émis sont alors soumis au rayonnement et peuvent entraîner la production d'autres gaz nocifs par réactions photochimiques. Tous ces polluants perturbent la composition chimique de la troposphère et entraînent donc des effets sur le climat par forçages radiatifs.

Certains facteurs comme les événements climatiques intenses ont la capacité de déplacer les équilibres chimiques par modification des conditions météorologiques. Les vagues de chaleur font partie de ces phénomènes climatiques exceptionnels. Elles sont, par définition, accompagnées de températures plus élevées que la normale. En été, elles sont en général associées à des conditions anticycloniques stables avec un fort rayonnement, des vents faibles et très peu de précipitations. Ces caractéristiques sont autant de facteurs favorables à la production et à l'accumulation d'espèces polluantes proches de la surface comme, en particulier, l'ozone.

Bien que minoritaire, l'ozone est un composant essentiel de l'atmosphère. Sa capacité oxydante et ses propriétés radiatives motivent son étude. C'est un gaz à effet de serre qui, dans la haute troposphère, a un impact comparable à celui du dioxyde de carbone (CO_2).

Il présente deux caractères différents selon qu'il se trouve dans la stratosphère ou dans la troposphère. Dans la stratosphère, l'ozone est formé par la photodissociation de l'oxygène moléculaire. A ces hautes altitudes, l'ozone a un rôle protecteur car il filtre le rayonnement solaire dans le domaine des ultraviolets qu'il empêche d'atteindre le sol et de détruire la vie terrestre. Dans la troposphère, sa formation se fait par réactions photochimiques en présence d'oxydes d'azotes, d'hydrocarbures et de monoxyde de carbone. C'est un polluant secondaire qui affecte la santé humaine et la végétation. Il se retrouve en quantité élevée principalement lors des vagues de chaleur.

L'été 2003, en Europe, peut être pris comme un exemple d'événement climatique intense susceptible d'avoir créé des pics de pollution. Au cours de cet été 2003, une vague de chaleur exceptionnelle a affecté plusieurs pays européens au début du mois d'Août. Les températures ont alors atteint des niveaux très élevés pendant une dizaine de jours. Cette canicule fut le point d'orgue d'un des étés les plus chauds jamais enregistrés (Luterbacher et al., 2004 [44]). Les alertes à l'ozone pour franchissement de la valeur seuil d'information du public ($180 \mu\text{g} \cdot \text{m}^{-3}$ ou 84 ppbv) se sont multipliées pendant les périodes les plus chaudes. De plus, la sécheresse des mois précédents fut favorable à l'apparition de feux de biomasse sans précédent rejetant ainsi de grandes quantités de polluants (chimiques, aérosols, particules) dans l'atmosphère.

La modélisation des vagues de chaleur et de la pollution qui les accompagne, présente un enjeu important pour l'avenir. Dans un contexte de réchauffement climatique, les vagues de chaleur que nous connaissons actuellement pourraient devenir une valeur normale dans un futur proche. Il est donc essentiel d'arriver à comprendre les mécanismes qui favorisent l'apparition de la pollution tout en représentant correctement les niveaux qu'elle est capable d'atteindre. Le transport de la pollution à différentes échelles (continentales ou régionales ou locales) est un élément prépondérant de ces études du fait d'une contribution possible pouvant s'additionner à la pollution locale déjà existante ou pouvant modifier les régimes photochimiques. La modélisation de la pollution et de son transport devra être suffisamment précise pour pouvoir appliquer des politiques de limitations des émissions anthropiques au bon moment et au bon endroit.

Les données in situ apportent des informations sur la composition et la structure de l'atmosphère terrestre. Lors d'épisodes météorologiques exceptionnels, leur étude fournit des indices pour la compréhension de ces phénomènes, pour la résolution des questions scientifiques et pour la quantification de leur impact. Les résolutions temporelles et spatiales de ces données in situ sont élevées. Afin d'obtenir une couverture géographique satisfaisante, un nombre important de dispositif de mesure est nécessaire.

Un accident météorologique comme la canicule européenne de 2003 nécessite une étude fine des données disponibles. Cet accident est relativement bien détaillée au niveau du sol avec de nombreuses stations de mesures pour les conditions météorologiques ainsi que pour la qualité de l'air. Par contre, son extension verticale ne peut être appréciée qu'à la faveur des programmes d'observations par ballons, par des moyens de télédétection et par les données in situ du programme MOZAIC. La base de données MOZAIC fournit une couverture sans équivalent de données météorologiques, d'ozone, de CO et de NO_y pendant la canicule. La présence de 5 avions de lignes équipés dans 4 aéroports européens (Francfort, Munich, Paris et Vienne) autorise une étude des variations et des anomalies des paramètres physiques et chimiques détaillée.

Ce travail de thèse porte sur l'analyse de la période de l'été 2003 à partir des données MOZAIC enregistrées au-dessus de 3 aéroports européens (Francfort, Paris et Vienne). Il est centré sur l'étude des processus chimiques et dynamiques contrôlant la pollution de la basse à la haute troposphère pendant la canicule européenne de 2003. Le premier objectif est de caractériser la distribution verticale des paramètres critiques de la pollution que sont l'ozone et le monoxyde de carbone et d'établir leurs anomalies par rapport à une climatologie. Le second objectif est de déterminer le rôle des émissions anthropiques et des feux de forêt autour du bassin méditerranéen pendant cette période particulière de l'été 2003 en utilisant un modèle de transport Lagrangien de dispersion des particules. Enfin, le troisième objectif est de quantifier le rôle des processus dynamiques et chimiques, identifiés par l'analyse des données expérimentales, en utilisant une modélisation eulérienne à l'échelle globale.

Le chapitre 1 est dédié à la compréhension et à l'analyse des conditions météorologiques,

qui ont conduit à la vague de chaleur de l'été 2003, à travers une recherche bibliographique sur des études passées basées sur des observations et des exercices de modélisation dédiés. Dans ce chapitre, je décris le jeu de données MOZAIC qui est le socle de cette étude et la modélisation lagrangienne utilisée pour détecter l'origine des masses d'air échantillonnées par les avions MOZAIC.

Dans le chapitre 2, une analyse systématique de la pollution pendant la canicule à partir des données MOZAIC est présentée. Les caractéristiques et les anomalies de cette période atypique y sont définies à partir des profils verticaux mesurés par les avions et des études de trajectoires. Cette étude met en avant le rôle potentiellement important des feux de forêts en région méditerranéenne sur la pollution de l'Europe du Nord. Une analyse critique du rôle relatif des émissions locales et du transport continental de polluants est donnée.

Le chapitre 3 est consacré à l'exploitation du modèle de chimie-transport GEOS-CHEM. L'utilisation de ce modèle est motivée par l'évaluation des différents processus chimiques et dynamiques en jeu pendant la canicule de l'été 2003. En particulier, des tests de sensibilité aux émissions par les feux de forêts sont discutés en terme d'impact sur les concentrations d'ozone et de monoxyde de carbone dans la couche limite et la troposphère libre.

Chapitre 1

Vague de chaleur et pollution atmosphérique

L'objectif de ce chapitre est de présenter le cadre général de l'étude de la canicule européenne de l'été 2003. Tout d'abord, la première section de ce chapitre présente une bibliographie des vagues de chaleur mettant en avant l'intérêt d'étudier ces phénomènes pour mieux comprendre les processus en jeu. Les effets dévastateurs conséquents à ces épisodes seront aussi présentés et permettront de mieux appréhender l'importance d'arriver à prévoir ces vagues de chaleur. Ensuite, la deuxième section présentera synthétiquement la canicule de 2003, ses conséquences dont l'épisode de pollution qu'elle a engendré. Enfin les présentations des données aéroportées MOZAIC et de l'outil Lagrangien FLEXPART utilisés pour cette étude seront faites.

1.1 Les vagues de chaleur

Toutes les régions du globe ont connu dans leur histoire des vagues de chaleur et ce à n'importe quelle saison. L'organisation météorologique mondiale (OMM; WMO : World Meteorological Organisation) propose la définition suivante d'une vague de chaleur : « Réchauffement important de l'air, ou invasion d'air très chaud sur un vaste

territoire; généralement elle dure de quelques jours à quelques semaines » (Vocabulaire météorologique international, OMM-N°182).

En été, les vagues de chaleur sont souvent responsables de records de température maximum mais aussi d'intenses épisodes de pollution à l'ozone. En Europe de l'Ouest, les vagues de chaleur d'été interviennent à l'occasion de deux situations connues et détaillées par García et al., 2002 [27] :

- la situation de blocage anticyclonique.
- la situation de flux de sud.

Ces deux situations sont dépendantes en partie du positionnement de l'anticyclone des Açores et leurs durées sont différentes. Quand les hautes pressions subtropicales à 500 hPa se déplacent vers le nord et sont suivies par le déplacement de l'anticyclone des Açores sur l'Europe de l'Ouest la situation est alors bloquée. La combinaison entre la dorsale d'altitude et les hautes pressions de surface peut durer de plusieurs jours à plusieurs semaines et ce blocage ne prend fin qu'avec le rétablissement des vents d'Ouest.

La situation de flux de sud dure moins longtemps en raison de son caractère dynamique qui engendre des déplacements de masses d'air. Elle est occasionnée par la présence simultanée d'un thalweg Atlantique (entre 40 °O et 15 °O) et d'une dorsale sur la péninsule ibérique. Cette situation occasionne un transport rapide de l'air chaud saharien vers l'Europe.

Les vagues de chaleur sont largement étudiées dans le monde en particulier pour leurs effets sur l'augmentation de la mortalité. A chaque vague de chaleur, il est observé un pic de mortalité corrélé avec le pic de température (Basu et Samet, 2002 [7]). Un autre effet bien connu est l'association de températures élevées avec des fortes concentrations d'ozone. De nombreuses études tentent d'exprimer une relation mathématique entre les concentrations d'ozone en milieu urbain et les conditions météorologiques (Cox et Chu, 1993 [17]; Bloomfield et al., 1995 [11]; Camalier et al., 2007 [13]).

1.2 La pollution atmosphérique

De nos jours, la qualité de l'air est un problème majeur. Des niveaux élevés de pollution sont dangereux pour la santé et un éventail de mesures gouvernementales a été mis en place pour réduire les émissions lors d'épisodes intenses. Ici nous présenterons essentiellement la pollution atmosphérique liée aux vagues de chaleur. L'ozone occupera une place importante de part son rôle majeur dans la pollution à l'échelle régionale en raison de son effet sur la santé et la végétation. Les autres polluants, avec notamment le monoxyde de carbone (CO), les oxydes d'azote NO_x ($\text{NO}_x = \text{NO} + \text{NO}_2$), seront décrits dus à leur implication comme composés intermédiaires dans les cycles chimiques de formation de l'ozone ou comme précurseurs de cette formation. La durée de vie des espèces chimiques polluantes doit être connue pour savoir quels modes de transport elles subiront et les zones géographiques qu'elles seront susceptibles d'affecter.

Les temps de vie des principaux constituants atmosphériques sont donnés sur la Figure 1.1. L'ozone fait partie des espèces à durée de vie modérée (de l'ordre de quelques semaines) et il pourra donc être transporté, aux latitudes tempérées, par les processus de circulations locales, par les systèmes convectifs et par les systèmes frontaux comme le montre la Figure 1.1. Le CO est une espèce à durée de vie sensiblement plus longue et il pourra donc être transporté sur des distances supérieures. Les oxydes d'azote ne seront affectés que par les processus de transport rapide à cause d'une durée de vie limitée de quelques heures près du sol à quelques jours en haute troposphère.

1.2.1 L'ozone

Sa réactivité photochimique et ses propriétés radiatives font de l'ozone une espèce dont l'étude est essentielle. Sa capacité oxydante est néfaste pour le monde vivant et donc pour la santé humaine en étant agressif pour les muqueuses oculaires et respiratoires. Il pénètre aisément les voies respiratoires les plus fines et peut ainsi entraîner des irritations du nez, des yeux et de la gorge, des altérations de la fonction pulmonaire, des essoufflements et des toux. L'ozone troposphérique est qualifié de polluant secondaire car il n'est pas

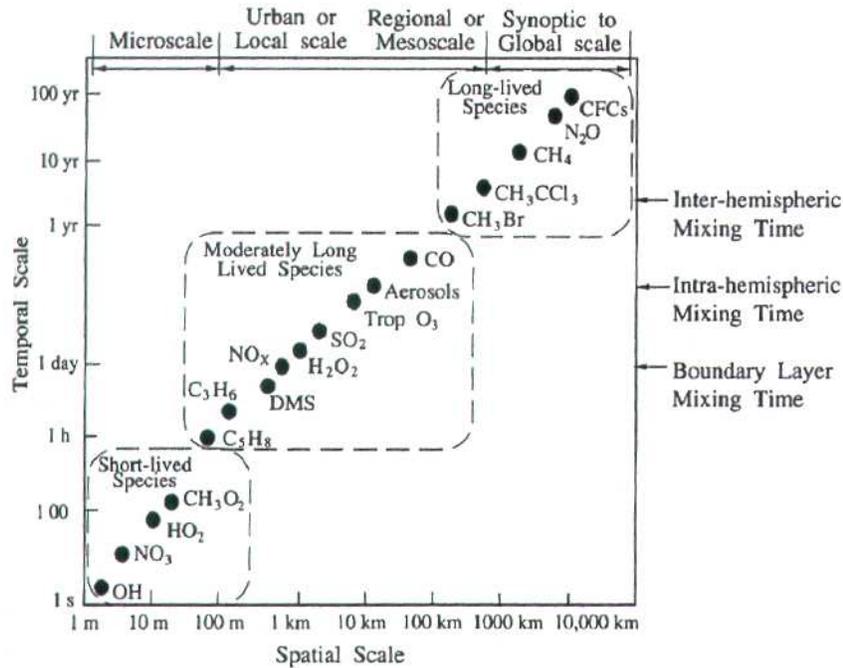


FIG. 1.1 – Temps de vie des principales espèces traces de l’atmosphère en fonction des échelles spatiales et temporelles des processus de transport. D’après Seinfeld et Pandis (1998) [61].

directement émis mais est formé par réactions photochimiques mettant en jeu des gaz issus de la combustion d’hydrocarbures. Dans l’atmosphère, la seule réaction conduisant à la formation d’ozone est la réaction de combinaison entre un atome d’oxygène dans l’état fondamental ($O(^3P)$) et une molécule de dioxygène 1.1. La présence d’un troisième corps permet de stabiliser les produits de réaction comme suivant :



La formation d’ozone dépend donc des processus permettant la production d’oxygène atomique. Ces derniers varient en fonction de l’altitude. Dans la stratosphère, l’oxygène atomique est produit par la dissociation photochimique (réaction 1.2) du dioxygène pour des longueurs d’onde UV inférieures à 240 nm.



Dans la troposphère, cette réaction ne peut avoir lieu à cause de l'absence de rayonnement UV à des longueurs d'onde inférieures à 240 nm. L'oxygène atomique nécessaire à la production d'ozone proviendra donc d'un autre processus qui est la réaction de photodissociation du dioxyde d'azote NO_2 pour des longueurs d'onde inférieures à 424 nm (réaction 1.3) :



Mais le NO ainsi formé réagit rapidement avec l'ozone pour reformer NO_2 selon la réaction de titration 1.4 :



L'ozone et les NO_x se trouvent par conséquent dans un état stationnaire. Cette titration est importante dans des zones de fortes émissions en NO_x comme les grands centres industriels ou les aéroports (Pison et Menut, 2004 [55]). La production nette d'ozone sera donc augmentée si la réaction de titration qui produit le NO_2 , nécessaire pour former l'oxygène atomique, est substituée par une autre réaction. Il existe plusieurs mécanismes réactionnels permettant la retransformation du NO en NO_2 par l'intermédiaire de l'action des radicaux hydroperoxyde HO_2 et méthylperoxyde CH_3O_2 . Ces radicaux interviennent dans les réactions d'oxydation du CO, des hydrocarbures non méthaniques (NMHC) et du méthane (CH_4) par le radical OH (Crutzen, 1974 [18], 1988 [19]; Fishman et al., 1979 [25]). Les réactions conduisant à une production d'ozone sont :



Mais elles sont en compétition avec les réactions :



A la vue de ce système, il faut donc que les vitesses des réactions 1.5a et 1.5b soient supérieures, respectivement, aux réactions 1.6a et 1.6b pour que le NO soit recombéné en NO₂. C'est ce qui se produit quand le rapport des concentrations entre NO et l'ozone est supérieure à 2.10⁻⁴. Dans la troposphère, des concentrations typiques de NO_x supérieures à 10 – 20 ppt permettront donc de ne pas consommer l'ozone.

Une des caractéristiques de la chimie de l'ozone est donc sa non linéarité. Le processus de production de l'ozone est ralenti quand il n'y a pas assez ou trop de NO_x. Deux régimes se distinguent pour limiter la production d'ozone. Le régime de production est limité lorsque la concentration en NO_x est faible. L'ozone peut être alors détruit des suites de l'oxydation des hydrocarbures. Par contre, le régime est dit saturé lorsque l'on trouve des NO_x en trop grande quantité. Dans ce cas, la réaction de titration 1.4 détruit de grandes quantités d'ozone. Lorsque les NO_x sont présents dans les concentrations adéquates alors l'oxydation du CO, du CH₄ et des NMHC par le radical OH conduit à une production d'ozone. Les mécanismes dans le cas du CO et des NMHC sont détaillés par la suite avec quelques indications importantes sur les sources et les puits de ces espèces.

1.2.2 Les oxydes d'azote

Les interactions chimiques des oxydes d'azote avec les gaz traces sont importantes dans les processus d'oxydation de l'atmosphère. Comme nous l'avons dit précédemment les oxydes d'azote NO_x sont nécessaires à la production d'ozone troposphérique. Sans eux il ne pourrait pas y avoir de production nette d'ozone ainsi que l'apparition de smogs urbains. Les NO_x proviennent essentiellement des activités anthropiques dans les grands centres urbains et industriels sans oublier les transports. Il existe aussi des sources naturelles

comme les injections depuis la stratosphère, l'activité microbienne des sols ainsi que les éclairs. La durée de vie des NO_x est beaucoup plus faible que celle de l'ozone (Fig. 1.1) mais ce sont les mêmes processus qui les transporteront. Ils pourront donc se retrouver dans des zones rurales et y favoriser la production d'ozone. Le caractère catalytique des mécanismes réactionnels de formation d'ozone n'influence pas la quantité des NO_x . Le puits principal des NO_x dans l'atmosphère est un processus en deux parties. La première partie consiste à l'oxydation du NO_2 par OH en acide nitrique (HNO_3). La seconde partie concerne le dépôt sec et le lessivage de l'acide nitrique qui est très soluble.



Il faut aussi tenir compte des nitrates de peroxyacyl ($\text{RC}(\text{O})\text{O}_2\text{NO}_2$) dans le bilan des NO_x . Les nitrates de peroxyacyl dont l'espèce la plus abondante est le nitrate de peroxyacétyl (PAN : $\text{CH}_3\text{C}(\text{O})\text{O}_2\text{NO}_2$) sont formés par deux réactions successives. La première réaction se fait entre les radicaux acyl organiques (RCO) et le dioxygène alors que la seconde réaction fait intervenir le produit de la première avec le NO_2 . Cette classe de composés azotés organiques est un réservoir important. De part leur plus longue durée de vie à basse température (de l'ordre de la semaine), leur rôle est majeur dans le transport et le recyclage des NO_x .

1.2.3 Le monoxyde de carbone

Le monoxyde de carbone (CO) est formé soit naturellement, soit par l'intermédiaire des activités humaines. Le CO provenant de sources naturelles est le produit de la réaction photochimique d'oxydation du méthane et des hydrocarbures avec en particulier l'isoprène. Le CO anthropique est issu des combustions incomplètes des énergies fossiles. Les combustions de biomasse (d'origine anthropique ou naturelle) relâchent également de grandes quantités de CO dans l'atmosphère. Le CO a un rôle important dans la photochimie troposphérique

car c'est l'espèce qui réagit le plus avec les radicaux OH :



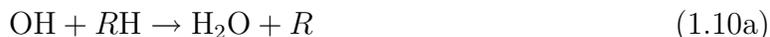
Ces radicaux OH sont les composés les plus réactifs de l'atmosphère et le principal puits des gaz traces. Le CO contrôle donc la quantité de radicaux OH qui en retour détermine la capacité oxydante de l'atmosphère. Mais la réaction d'oxydation du CO (1.8) a pour produit les radicaux HO₂ qui en fonction de la concentration en NO_x aboutissent à la production ([NO_x] raisonnablement élevé) ou à la destruction ([NO_x] faible) d'ozone comme nous l'avons décrit dans le paragraphe 1.2.1. La réaction entre HO₂ et NO évite la réaction de titration (1.4) et favorise la production d'ozone. Le mécanisme réactionnel catalytique aboutissant à la production d'ozone en présence de CO est le suivant :



Le CO possède un temps de vie de quelques semaines à quelques mois (Fig. 1.1). En association avec les fortes émissions en surface le CO présente des variabilités spatiales et temporelles qui peuvent influencer la production d'ozone à l'échelle globale. Ainsi, le CO est utilisé comme traceur atmosphérique des pollutions anthropogéniques et des feux de biomasse en particulier (Forster et al, 2001 [26], Damoah et al, 2004 [20]).

1.2.4 Les hydrocarbones non méthaniques

Les hydrocarbones non méthaniques (NMHC) se retrouvent essentiellement dans la couche limite. Ils peuvent être aussi bien d'origine anthropique que d'origine naturelle. Dans les centres urbains, il est possible de contrôler leurs émissions alors que dans les régions de campagne ce n'est pas possible. L'isoprène et les terpènes sont les principales espèces de NMHC émises naturellement (Guenther et al., 1993 [32]). Ces émissions dépendent donc des facteurs climatiques ainsi que du type de végétation. Le taux d'émission de l'isoprène est en partie dépendant de la lumière et de la température. L'algorithme développé par Guenther et al., 1993 [32], par exemple, paramétrise la variation non linéaire du taux d'émission avec la température. Ce taux d'émission est maximum pour des valeurs de température proche de 40 ° C, au delà les émissions faiblissent rapidement. Lors de vagues de chaleur, ces espèces pourront affecter la concentration en ozone. La production d'ozone par les NHMC se déroule selon le cycle catalytique suivant (R et R' représentent des chaînes carbonées avec un atome de carbone de moins dans la chaîne R' vis-à-vis de R) :



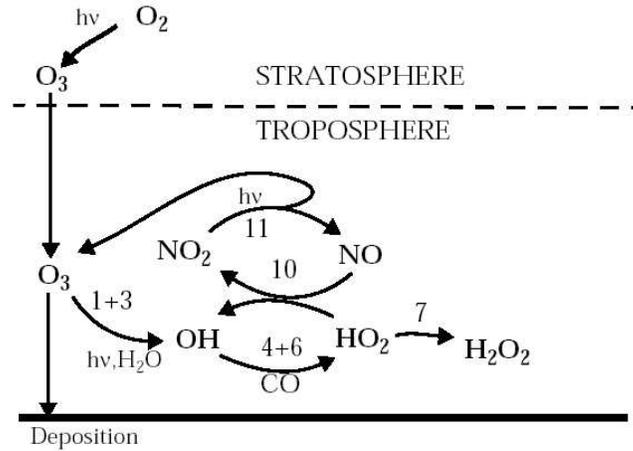


FIG. 1.2 – Principaux puits et sources de l’ozone troposphérique (d’après Jacob, 1999 [38]).

Production et destruction

Les cycles catalytiques de production de l’ozone où interviennent les oxydes d’azote (NO_x), le monoxyde de carbone (CO) et les composés organiques volatiles (COV) sont schématisés sur la Figure 1.2. La source naturelle d’ozone stratosphérique y est représentée. Le transport d’ozone depuis la stratosphère est le résultat de la déformation de la tropopause par les fronts météorologiques à proximité des courants-jets, de déferlements d’ondes de Rossby. La déposition au sol fait partie des processus de destruction de l’ozone. Cette dernière se fait soit par absorption par les végétaux, soit par décomposition thermodynamique en surface. 30% des pertes d’ozone auraient pour origine la déposition au sol. Elle dépend des conditions météorologiques, de l’humidité du sol et de la végétation. La photolyse de l’ozone dans la troposphère doit aussi être prise en compte dans les puits :



Si la longueur d’onde est inférieure à 320 nm, la réaction de photolyse (réaction 1.11) pourra produire des atomes d’oxygène dans l’état excité ($\text{O} (^1\text{D})$) . C’est seulement dans cet état qu’ils réagiront avec la vapeur d’eau et ainsi produire le radical OH. Pour des longueurs d’onde supérieures à 320 nm, l’oxygène atomique produit est dans l’état fonda-

mental ($O(^3P)$) et pourra conduire de nouveau à une production d’ozone par la réaction 1.1.

Rôle de la vapeur d’eau

La vapeur d’eau est présente essentiellement dans la troposphère avec un fort gradient vertical. Ses concentrations varient géographiquement en fonction de la latitude à cause de sa dépendance à la température. En plus de ses rôles dans la formation des nuages et dans l’effet de serre, la vapeur d’eau intervient dans la chimie troposphérique. Sa participation dans la production des radicaux HO_x vue précédemment se traduit par le système réactionnel suivant :



Ce système peut donc conclure à une destruction de l’ozone dont le taux va dépendre de la quantité de vapeur d’eau disponible. Ce taux est donc maximum pour les basses altitudes et les latitudes équatoriales.

1.2.5 Cycles diurnes et profils climatiques

Cycles diurnes

Les différentes réactions chimiques présentées précédemment dépendent de la présence du rayonnement solaire. Ce dernier intervient tout spécialement dans la dissociation du NO_2 . Les équilibres chimiques se trouvent donc déplacés dans un sens favorisant ou non la présence d’une espèce. Dans le cas des NO_x , le NO_2 n’étant plus dissocié il apparaît clair que le cycle diurne sera marqué. Durant la nuit, aucun équilibre chimique n’est présent pour maintenir la concentration en NO et ce dernier se transforme intégralement en NO_2 . Néanmoins, en zone polluée, la concentration en NO n’est pas nulle de part l’apport des

émissions de surface. Par exemple, le NO va titrer l’ozone selon la réaction 1.4 et ne sera pas produit en retour. Dans les zones urbaines, le NO présente deux pics correspondant aux émissions dues au transport aux heures de pointe dont l’intensité sera plus forte les jours ouvrables. De plus, le pic de NO du matin est plus élevé en conséquence de l’association d’une couche limite moins développée avec une durée plus réduite de l’heure de pointe. Les concentrations de NO₂ restent beaucoup plus stables car sa durée de vie est aussi sensiblement plus importante que celle du NO.

Le CO présente un cycle diurne moins marqué que l’ozone en accord avec sa plus longue durée de vie. C’est la nuit que les valeurs de la concentration en CO seront les plus élevées au sol. L’absence de dispersion nocturne due à une couche limite planétaire très peu développée et l’apport des émissions de surface dans celle-ci permettent une accumulation du CO.

L’ozone possède un cycle diurne marqué avec un pic dans l’après-midi. Celui-ci a lieu quelques temps après que le rayonnement UV a été maximal. La nuit, la concentration en ozone faiblit par la suite de diverses réactions : réaction de titration 1.4, réaction avec NO₂ formant le radical nitrate NO₃ et réaction avec les hydrocarbures de type alcène. Enfin la déposition sèche à la surface est toujours active.

Profils climatologiques en été

La Figure 1.3 présente les profils climatologiques MOZAIC pour l’ozone et le CO à Francfort avec respectivement 10 et 3 ans de mesures (cf partie 2.1.1 pour plus d’informations). Les profils sont réalisés en moyennant les données des mois de Juillet et Août tous les 50 m.

Les profils font état de variations différentes dans la troposphère entre les deux espèces. Le profil d’ozone indique une augmentation avec l’altitude. Les concentrations les plus faibles se rencontrent en surface et les plus fortes en altitude. Il est possible d’y distinguer 3 parties avec des différences de variations.

- Pour les altitudes comprises entre le sol et 2,5 km, la variation d’ozone présente un

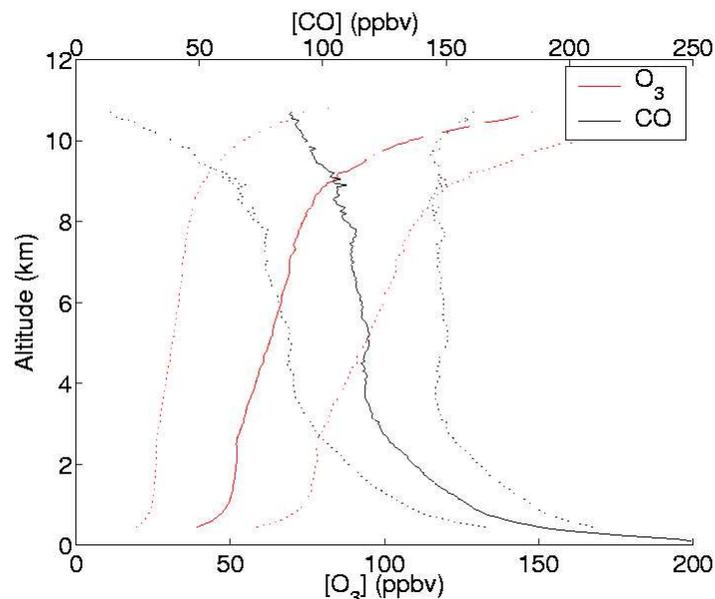


FIG. 1.3 – Profil vertical climatologique (ligne continue) du rapport de mélange (en ppbv) de l’ozone (en rouge) et du CO (en noir) à Francfort selon MOZAIC. La déviation standard est représentée en pointillée.

fort gradient vertical. Les plus basses valeurs se trouvent en surface, en conséquence de la déposition sèche et de la réaction de titration. Celle-ci a la particularité d’être soutenue à proximité des aéroports (Pison et Menut, 2004 [55]). La limite de 2,5 km correspond à la hauteur climatologique de la couche de mélange pour la nuit et la couche limite planétaire pour le jour. Nous pouvons observer le mélange entre 1 km et 2,5 km avec une valeur proche de 50 ppbv sur toute la couche.

- Entre 2,5 km et 9 km d’altitude, le rapport de mélange de l’ozone augmente linéairement avec l’altitude pour passer de 50 ppbv à 75 ppbv.
- Au delà de 9 km d’altitude, le rapport de l’ozone croît fortement avec l’approche de la stratosphère dans laquelle ses concentrations sont maximales.

Le profil du CO présente un comportement à l’opposé de l’ozone correspondant à la distribution de ses sources très largement majoritaires à la surface. Le CO diminue avec l’altitude et ses concentrations sont maximales au sol avec des valeurs climatologiques proche de 250 ppbv. Dans le premier kilomètre d’altitude, la diminution est très forte et la

concentration tombe à 150 ppbv. Au dessus, le CO voit ses valeurs décroître plus lentement pour atteindre 120 ppbv en dessous de 4 km. Dans la troposphère libre, les valeurs des rapports de mélange de CO rencontrées font état de constance (120 ppbv de 3,5 à 6 km d'altitude) et sont suivies d'une légère baisse (110 ppbv à 9 km). Enfin, au delà des 9 km d'altitude et à mesure que l'on s'approche de la stratosphère les concentrations de CO s'affaiblissent.

1.3 L'été européen 2003 et sa canicule

1.3.1 Contexte historique

L'été 2003 en Europe de l'ouest fut caractérisé par une persistance des températures au-dessus des normes de saison. C'est un des étés les plus chauds de l'histoire avec des températures moyennes de surface dépassant de 2,4°C les températures moyennes de la période 1901-1995 (Luterbacher et al., 2004 [44]). Une étude de Grazzini et al., 2003 [30] situe l'anomalie maximale de température sur la France et les régions alpines avec des valeurs comprises entre +3°C et +6°C par rapport à la période climatologique de 1958-2001. Ces valeurs sont comparables à l'anomalie de température de +3,6°C à Paris donnée par Bessemoulin et al., 2004 [8]. Mais c'est au début du mois d'Août que la canicule s'est installée sur l'Europe de l'ouest pour une période légèrement inférieure à deux semaines. Une telle extension temporelle et géographique n'a jamais été observée par le passé (Trigo et al., 2005 [74]). De nombreuses études ont mis en avant le caractère exceptionnel des conditions météorologiques et ont tenté d'expliquer l'émergence d'un tel épisode. La Figure 1.4 présente l'anomalie de température de surface d'après les réanalyses du NCEP pour l'été et pour la période caniculaire. L'anomalie est calculée par rapport à une climatologie couvrant la période (1979-1995) réalisée par l'intermédiaire d'une moyenne glissante sur 5 jours (Kalnay et al, 1996 [42]).

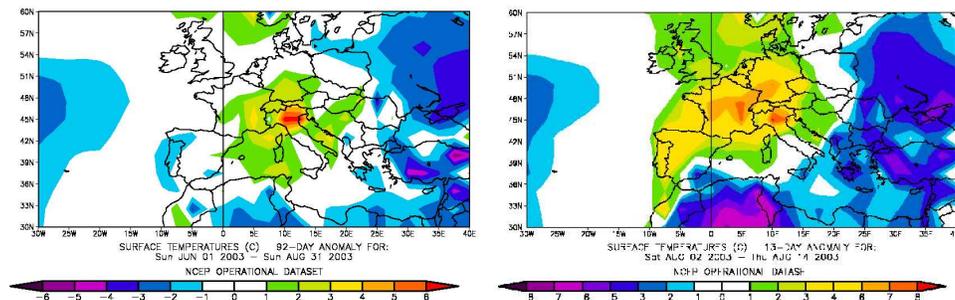


FIG. 1.4 – Anomalie de la température de l'air ($^{\circ}\text{C}$) pour :
(a) l'été (1 Juin 2003 au 31 Août 2003).
(b) la période caniculaire (2 Août 2003 au 14 Août 2003)

1.3.2 Les conséquences de l'épisode

Les conséquences de la canicule ont été multiples et désastreuses au niveau social, économique et environnemental.

Conséquences sociales

La canicule de 2003 est une des dix catastrophes naturelles qui a fait le plus de victimes en Europe depuis un siècle et c'est la plus importante des 50 dernières années (UNEP2004,[12]). Comme lors de toutes les vagues de chaleur le nombre de décès s'est accentué et ce sont les personnes âgées de plus de 75 ans qui ont été les plus en danger. Le Tableau 1.1 présente les estimations faites par les organismes de chaque pays en 2003 (UNEP2004,[12]).

Ce total de 30 000 morts a été revu à la hausse depuis et approche les 40 000 pour les deux premières semaines du mois d'Août. Pour tout l'été 2003 ce sont près de 70 000 décès additionnels qui furent relevés. L'augmentation de mortalité durant la deuxième semaine de la canicule d'Août a atteint les valeurs de 96,5 % en France et près de 40 % au Portugal, en Italie, en Espagne et au Luxembourg (Robine et al., 2007 [58]). Plus de 70 rapports et articles scientifiques ont été publiés sur ce sujet (Cheung et al., 2007 [14]) montrant l'intérêt porté par la communauté scientifique sur les conséquences sociales de cet épisode au caractère sans précédent.

Pays	Pertes
France	14 082
Allemagne	7000
Espagne	4200
Italie	4000
Royaume-Uni	2045
Pays-Bas	1400
Portugal	1300
Belgique	150

TAB. 1.1 – Pertes humaines engendrées par la canicule (source UNEP, 2004 [12]).

Conséquences économiques

Les fortes températures et le manque de précipitations ont affecté en priorité le domaine agricole. La production agricole fut en nette baisse comme le montre la Figure 1.5 avec comme secteur le plus touché le fourrage. Les pertes dans la production céréalière par rapport à l'année 2002 ont atteint 23 millions de tonnes soit une baisse de l'ordre de 10 %. En terme financier, les pertes cumulées de ces cinq pays approchent 10 à 11 milliards d'euros.

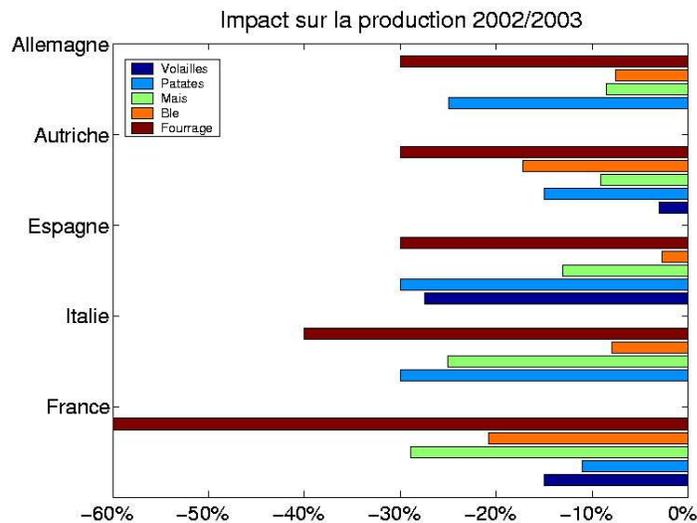


FIG. 1.5 – Impact de la canicule 2003 sur la production agricole de 5 pays européens (source UNEP, 2004 [12]).

Le secteur énergétique a aussi été durement affecté car la demande s'est fortement accrue avec l'utilisation massive de la climatisation. La France, principal exportateur d'électricité en Europe, a coupé plus de la moitié de ses exportations car le fonctionnement des centrales nucléaires fut réduit par le manque d'eau dans certains cas et par le dépassement du seuil de température de l'eau de refroidissement rejetée dans les fleuves dans d'autres. Malgré tout, quelques unes de ces centrales ont eu l'autorisation de continuer leur fonctionnement même si la température des eaux usées dépassait les normes. Les faibles débits fluviaux, une des origines de ce problème, sont une conséquence du manque de précipitations printannières.

Conséquences environnementales

La baisse de la production agricole est associée au fait que la végétation a souffert des conditions météorologiques. Le manque de précipitations a fait que les feux de forêt ont pris facilement de l'ampleur. 25000 départ de feux ont été enregistrés sur l'Europe, en majorité dans les pays méditerranéens. En tout, 647 069 ha de forêt européenne ont brûlé, avec 390 146 ha pour le seul Portugal (5,6 % de la surface forestière) et 127 525 ha pour l'Espagne.

La vague de chaleur a aussi atteint les plus hauts sommets européens. L'isotherme 0°C s'est élevé jusqu'à 4500 m d'altitude et donc très peu de sommets sont restés à l'écart du dégel. Les fortes températures et le manque de précipitations ont aussi eu un effet sur le bilan annuel des glaciers alpins. Les glaciers auraient perdu près de 3 m équivalent eau lors de l'été 2003 soit presque deux fois plus que l'année record de 1998 (Fig. 1.6). Les estimations mentionnent une perte volumique proche de 10 % du volume total.

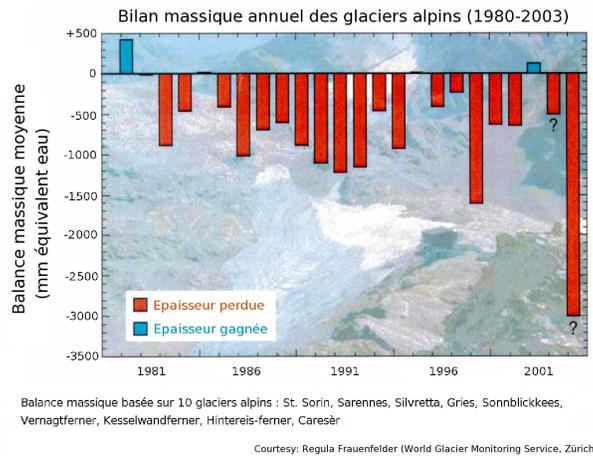


FIG. 1.6 – Pertes de masse annuelle de 10 glaciers alpins (1980-2003)(source UNEP, 2004 [12]).

1.4 Mesures MOZAIC

1.4.1 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 de l'aviation subsonique sur l'atmosphère, et plus particulièrement sur l'ozone troposphérique. Un autre objectif était de collecter une large base de données pour étudier les processus physiques et chimiques dans l'atmosphère et permettre ainsi de valider les modèles globaux de chimie-transport. De plus, les mesures aux altitudes de vol des avions (9 – 12 km), dans une partie de l'atmosphère (haute troposphère-basse stratosphère, UTLS) où la modélisation des processus était imparfaite, a amélioré la connaissance même de ces processus et le traitement par les modèles de la chimie et du transport à proximité de la tropopause (Marenco et al., 1998 [45]). Le programme MOZAIC a été lancé en Janvier 1993, grâce à un financement de la Communauté Européenne. Il en est à sa troisième phase et les résultats atteints ont largement dépassé les objectifs du cadre initial du programme. 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 du mois d’Août 1994, des mesures régulières d’ozone et de vapeur d’eau ont été réalisées à une échelle quasi globale (Marenco et al., 1998 [45]). En Septembre 1996, plus de 4300 vols avaient été réalisés, soit plus de 31 000 heures de vol, sur la majeure partie du globe, et principalement dans le couloir Nord- Atlantique. Pour la seconde phase, MOZAIC II, le 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_y. En Janvier 1999, 6000 vols supplémentaires avaient été réalisés pendant cette seconde phase, soient 42 000 heures de vol. La troisième phase, MOZAIC III, a débuté en Février 2000 (soutenue par le 5^{ème} programme de travail, PCRDT 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_y et les nouveaux systèmes d’acquisitions des mesures).

2° Continuer et étendre les études, en particulier sur la zone UTLS.

3° Valider et améliorer des modèles globaux de chimie et transports (CTM).

4° Améliorer notre connaissance sur l’impact environnemental des avions subsoniques.

En 2001, les mesures de CO (Nédélec et al., 2003 [48]) et de NO_y (Volz-Thomas et al., 2005 [79]) se sont rajoutées à celles sur l’ozone et la vapeur d’eau. A ce jour, plus de 25 000 vols ont été réalisés (180 000 heures de vol), sur la majeure partie du globe (Europe, Amérique du Nord, Asie, Amérique du Sud, Afrique). 90 % des mesures correspondent à l’altitude de vol de croisière des avions, soit 9 – 12 km. Le reste correspond aux atterrissages et décollages dans près de 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-globales des distributions à grande échelle d'ozone et de vapeur d'eau (Thouret et al., 1998a,b [72], [71]; Helten et al., 1998 [34]; Thouret et al., 2006 [70]) mais aussi des distributions verticales et temporelles en différents sites continentaux au voisinage des aéroports (Zbinden et al., 2006 [84]). En ce sens, il s'inscrit dans un réseau d'observation global. L'expérience acquise avec MOZAIC sert et servira pour le projet IAGOS-ERI déjà en cours. IAGOS-ERI « In-service Aircraft for a Global Observing System - European Research Infrastructure » se veut plus ambitieux que MOZAIC avec une flotte plus importante d'appareils (entre 10 et 20) situés sur tous les continents (<http://www.fz-juelich.de/icg/icg-2/iagos>, [78]). Les mesures in-situ de IAGOS plus nombreuses concerneront les gaz à effet de serre (Ozone, H₂O, CO₂), les gaz réactifs (CO, NO_y, NO_x), les aérosols ainsi que les particules nuageuses. Certaines de ces mesures seront transmises en temps réel avec un pas de temps de 15 minutes pour être utilisées dans les modèles opérationnels.

1.4.2 Qualité des mesures

L'analyseur d'ozone est un appareil à absorption UV à double colonne (ThermoElectron, 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 en température. Les caractéristiques des mesures d'ozone sont les suivantes : limite de détection 2 ppbv, 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 une meilleure qualité. 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 2,5 bars 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 proches du ppb, une membrane Nafion (Perma Pure Inc) a été installée pour assécher l’air avant la mesure.

La précision obtenue est de $\pm[5 \text{ ppbv} + 5 \text{ \%}]$, 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 H₂O 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) [71] 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 [71]) a montré une grande fiabilité sur les distributions verticales (0,9 ppbv d’écart moyens entre vols différents) et horizontales, et sur les radiosondages (1 ppbv d’écart sur des concentrations troposphériques). La vitesse verticale de l’avion étant de 5 à 7 m · s⁻¹, la résolution verticale des données est de 20 à 28 m. 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) [71] sur des comparaisons avec des radiosondages, notamment grâce à la grande résolution verticale des vols. Une étude d’inter-comparaison avec d’autres méthodes expérimentales réalisée par Nédélec et al. (2003) [48] a montré également la qualité des mesures de CO de MOZAIC.

L’analyseur des NO_y suit le format des modèles utilisés précédemment pour les instru-

ments aéroportés et est décrit par Volz-Thomas et al., 2005 [79]. Il associe un détecteur de chimiluminescence de NO avec un convertisseur catalytique en or des différents NO_y en NO fonctionnant à une température de 300°C. Le convertisseur présente une efficacité supérieure à 95 % pour NO₂ et HNO₃ et proche de 100 % pour HCN. Pendant les 30 premières minutes du vol, le convertisseur est nettoyé par chauffage à une température de 450°C. Seules les mesures de NO sont effectuées pendant ce laps de temps. Ensuite l'appareil enregistre les mesures des NO_y. Le temps de réponse de l'analyseur est de 1 s pour le NO₂ et de 150 s pour HNO₃. La limite de détection des NO_y est de 100 ppt. L'erreur statistique pour une mesure de NO_y de 4 s (en ppt) est donnée par la relation : $\Delta\text{NO}_y = \pm (A \times \mu(\text{NO}_y) + B)$ avec $A=0,07$, $60 \text{ ppt} < B < 80 \text{ ppt}$ et $\mu(\text{NO}_y)$ représentant la mesure de NO_y. Une étude de Pätz et al., 2006 [53] révèle un écart inférieur à 7 % entre les mesures de l'instrument MOZAIC et celles de l'instrument de recherche opéré par l'ETH-Zürich dans l'expérience SPURT. Le dépouillement des données de NO_y s'effectue à Jülich.

1.5 Le modèle FLEXPART

1.5.1 Présentation du modèle

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 a été mis au point pour répondre à certaines situations d'urgence ainsi que pour des applications en recherche. Il simule le transport, 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) [67] pour la version 6.2 de FLEXPART, version utilisée ici. Les champs d'analyses disponibles aux échéances 00 h, 06 h, 12 h, 18 h TU, et de prévisions à 03 h, 09 h, 15 h, 21 h TU de l'ECMWF avec 60 niveaux verticaux sigma et une résolution spatiale de 0,5° par 0,5° sont utilisés pour le calcul des trajectoires et des

paramètres diagnostiques de FLEXPART. Ces résolutions réduisent au maximum les erreurs d'interpolations des champs de vent inhérentes à tous les modèles lagrangiens (Stohl, 1998 [68]). 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 $50 \text{ m}^2 \cdot \text{s}^{-1}$) et une diffusivité turbulente verticale est paramétrisée dans la stratosphère (fixée à $0,1 \text{ m}^2 \cdot \text{s}^{-1}$, cf Legras et al., 2003 [40]). Un schéma convectif 1D de Emmanuel et Živković-Rothman (1999) [23] est également utilisé pour paramétriser les processus convectifs sous-maille. Ce schéma de convection est déclenché lorsque : $T_{vp}^{LCL+1} \geq T_v^{LCL+1} + T_{limite}$ avec

- 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 0,9 K.

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 :

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

où :

- $H(k)$ est la hauteur du niveau à hauteur constante k .
- ρ_{air} est la densité de l'air.
- ga est le champ de pesanteur.
- $P(k)$ est la pression du niveau sigma k .

- P_s est la pression de surface.
- $T_v(k)$ 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 mètres, soit en pressions 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 $287,05 \text{ J} \cdot \text{Kg}^{-1} \cdot \text{K}^{-1}$) calculé à partir des champs de température T et de densité ρ de l’ECMWF. La position en hauteur de la boîte est alors redéfinie entre les niveaux verticaux à hauteur constante.

1.5.2 Outils diagnostiques

Une simulation FLEXPART consiste à relâcher des particules disposées aléatoirement dans des boîtes définies en longitude, latitude et hauteur. Les particules sont soumises aux schémas d’advection et de turbulence au cours du temps. Elles présentent, au bout d’un certain temps, 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.

Le type de sortie de la plupart des simulations effectuées dans l’étude est basé sur une statistique des particules relâchées sur une grille de sortie pré-définie. Les paramètres dépendront du sens temporel de la simulation. Un temps de résidence des particules dans chaque maille de la grille sera visualisé en mode « backward » alors qu’en « forward » ce sera la concentration d’un composé chimique. Les valeurs de temps de résidence seront

représentées par rapport au temps de résidence maximal repéré dans la grille de sortie. Elles permettent de localiser et répertorier 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.

Une alternative ou un supplément d'information au temps de résidence est d'utiliser le calcul de centres mobiles nommés « clusters » disponibles dans FLEXPART (Stohl et al., 2002 [66]). Durant les simulations, un nombre de centres mobiles est défini par boîte. Par la suite, les centres mobiles seront désignés sous leur nom originel. L'analyse en clusters est une méthode dite « semi-objective » (Kalkstein et al. , 1987 [41]) employée ici pour déterminer les différentes positions qui caractérisent au mieux la position et la forme d'une rétroplume dans son ensemble. Cette technique, utilisée seule, constitue donc un bon moyen de réduire autant que possible les fichiers de taille conséquente de FLEXPART tout en maintenant le maximum d'informations nécessaires. 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 un nombre de positions particulières, représentatives de la distribution spatiale des particules. FLEXPART 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 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 tra-

ceur 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 [77]). Différents paramètres dynamiques moyens sont disponibles à partir de la moyenne des ces derniers 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.

Chapitre 2

La canicule européenne de 2003 vue par les avions MOZAIC

Ce chapitre présente les résultats de l'étude de la canicule européenne de 2003 obtenus à l'aide des données MOZAIC et de l'utilisation du modèle de transport Lagrangien des particules FLEXPART. L'analyse des observations MOZAIC va permettre de caractériser la pollution dans toute la troposphère. L'étude de la situation synoptique mettra en évidence les traits caractéristiques du transport pendant la période comprise entre le 2 et le 14 Août. Ensuite, les origines de la pollution seront recherchées et les contributions des sources anthropiques européenne, nord-américaine et issue des feux de biomasse portugais seront quantifiées. La possibilité d'un transport direct du Portugal vers Francfort dans les basses couches de l'atmosphère sera documentée. L'article soumis au journal ACP (Tressol et al., 2008 [73]) est inclus à la prochaine section. La première partie de ce chapitre en présente une synthèse en français. Elle est suivie par l'article même. Dans la seconde partie, nous développerons des résultats additionnels non publiés et acquis avec les mesures ainsi que les simulations effectuées à Paris et Vienne.

2.1 Cas d'étude

2.1.1 Synthèse de l'article

Introduction

L'été 2003 en Europe est connu pour ses températures très élevées spécialement pendant la canicule du début du mois d'Août. Les premières études ont fait apparaître des anomalies de températures, pour la période Juin-Août, comprises entre +3°C et +6°C avec un maximum centré sur les Alpes (Grazzini et al., 2003 [30]). Le paroxysme de l'été fut atteint pendant la vague de chaleur du début du mois d'Août des suites de l'amplification d'une onde de Rossby qui a renforcé l'anticyclone déjà présent. Le débat est lancé pour savoir si cette anomalie est exceptionnelle ou si elle est le signal d'un changement dans la distribution climatique. Un lien entre le déficit de précipitations durant l'hiver et le printemps sur l'Europe du Sud et la chaleur du début de l'été a été mis en évidence (Vautard et al., 2007 [76]).

Les conditions anticycloniques récurrentes durant l'été et leurs conséquences, comme le rayonnement ou le manque de vent, ont permis l'apparition de nombreux et intenses épisodes de pollution à l'ozone. Ces épisodes sont documentés essentiellement à la surface par les données des stations de mesures de la qualité de l'air. L'été 2003 présente l'épisode de plus forte pollution à l'ozone connu depuis 1994 (Fiala et al., 2003 [24]). L'été 1994 fut chaud et fortement pollué mais malgré les efforts fournis par la communauté européenne pour réduire les émissions pendant la décennie suivante, le nombre moyen d'heure excédant le seuil d'information ($> 180\mu\text{g}/\text{m}^3$) fut plus élevé en 2003 avec notamment 30% d'heure en plus en France. Nous allons voir que les profils verticaux réalisés par les avions MOZAIC dont nous disposons dans cette étude apportent un complément d'informations aux mesures de surface et fournissent une indication sur l'extension verticale du phénomène. De plus, la fréquence de ces profils est aussi un atout pour étudier le cycle diurne et le développement de la couche limite planétaire. Le traitement de ces informations vis-à-vis de la climatologie a mis en évidence la particularité de la vague de chaleur.

Cette étude présente les résultats de l'analyse des mesures effectuées par les avions MOZAIC durant la canicule de 2003. Ces résultats indiquent pour la première fois l'extension verticale de la pollution au-dessus de l'Europe atteignant jusqu'à 6 km d'altitude au plus fort de la canicule. Les variations de la hauteur atteinte par les polluants durant la vague de chaleur sont des indications complémentaires pour distinguer divers régimes dynamiques et ainsi mieux les détailler. L'investigation de l'origine des polluants a été mise en oeuvre par l'utilisation conjointe des données MOZAIC et des sorties du modèle de transport Lagrangien FLEXPART. L'étude de la dynamique de la canicule s'est avérée importante avec le rôle non négligeable d'une dépression dans le transport des polluants et le flux de sud engendré sur l'Europe. Les émissions de CO anthropique Nord-Américain et Européen sont comparées avec les émissions par les feux de biomasse.

Méthodologie

La période étudiée ici s'étend du 16 Juillet au 31 Août dans le but de comparer la canicule à deux quinzaines plus proches des normales. Les mesures lors de la période d'étude ont été effectuées par les 5 avions MOZAIC. Le jeu de données comprend les profils réalisés pendant les phases d'atterrissage et de décollage pour les 3 aéroports européens suivant (l'aéroport de Munich n'étant que sporadiquement visité durant l'été 2003) :

- Francfort (50°02'N-08°34'E-Allemagne),
- Paris (49°01'N-02°33'E, France) et
- Vienne (48°07'N-16°34'E-Autriche).

Un seul avion effectue les rotations à Paris et il en est de même pour Vienne. La plateforme allemande accueille 3 avions et le nombre de profils effectués est donc plus élevé. Par ailleurs, le seul avion équipé de l'analyseur de NO_y fait partie des trois situés à Francfort. Pendant la période d'étude de la canicule (45 jours), il y a eu 162 profils à Francfort, 47 à Paris et 52 à Vienne.

La période climatologique servant de référence s'étend sur les mois de Juillet et Août depuis le début des mesures en 1994. Les 3 aéroports utilisés présentent une étendue tem-

porielle équivalente pour effectuer la climatologie mais avec des nombres de profils fort différents. Nous bénéficions de plus de 10 ans de données pour les paramètres les plus anciens (l’ozone, la température, l’humidité relative, le vent) et d’une période plus restreinte de 3 ans pour le CO. Les NO_y présentent seulement 2 ans de données sur un seul avion. Il est alors difficile de parler de climatologie.

Dans le cas de Francfort, pour les paramètres présents depuis le début, un peu plus de 1600 profils permettent d’établir une climatologie et 550 profils sont utilisés pour le CO. Ces profils ont eu lieu de Août 1994 à Août 2004. En 2005, les avions effectuaient leur rotation à l’aéroport de Munich et les données de 2006 n’étaient pas disponibles au moment de l’étude. A Paris, la climatologie est calculée à partir de 830 vols pour la majorité des paramètres et à partir de 250 vols pour le CO sur la même période que celle utilisée pour Francfort, le fonctionnement de l’appareillage n’étant plus correct après 2004. Les mesures pour l’avion basé à Paris pendant l’été 2003 ne sont plus valables au-dessus de 7 km d’altitude des suites de dysfonctionnements dans l’appareillage. Pour Vienne, les données climatologiques dérivent de plus de 950 vols et 380 vols pour les espèces présentées précédemment avec une période comprise entre 1995 et 2005. Pour chaque ville, la climatologie s’étend sur 3 ans ou 10 ans suivant le paramètre pris en compte. Par la suite, les données de Francfort étant plus fréquentes il nous a été possible d’étudier les variations du cycle diurne ainsi que de la couche limite en utilisant diverses périodes temporelles sur lesquelles les données MOZAIC ont été moyennées.

L’étude de l’origine de la pollution européenne et de l’impact des diverses sources détectées sur celle-ci a été mise en oeuvre avec le modèle de dispersion Lagrangien FLEX-PART (Stohl et al., 2005 [67]). Chaque vol de la période d’étude a fait l’objet d’une simulation en mode « backward » sur 10 jours. Pour ce faire, chaque profil MOZAIC est découpé en boîte d’émission de taille $0,5^\circ \times 0,5^\circ \times 500$ m suivant la trajectoire de l’avion comme le présente la Figure 2.1. Avec ces dimensions, un profil type comprend une vingtaine de boîtes d’émission, chacune remplie de 20 000 particules. Les particules sont relâchées pendant 1 h autour du passage de l’avion dans la boîte considérée.

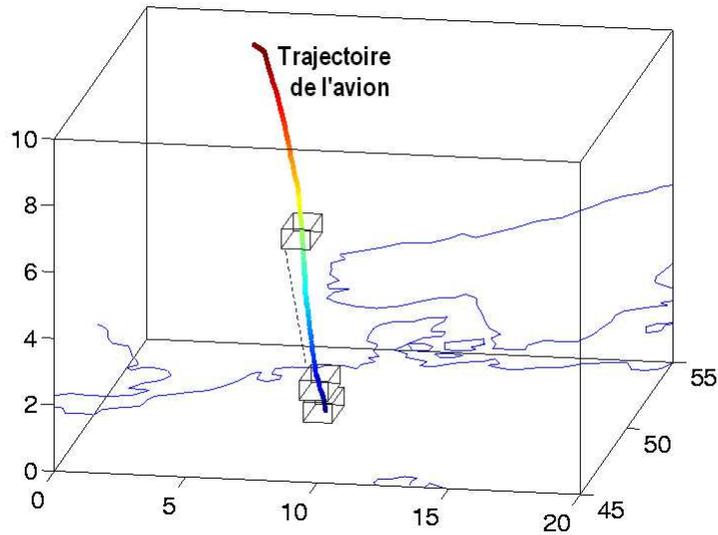


FIG. 2.1 – Découpage d'un vol MOZAIC et création de boîtes d'émission pour FLEXPART

Si le vol présente un profil particulier et nécessite une étude plus fine, il est possible de réduire la taille des boîtes d'émission et de discrétiser avec plus de précision les masses d'air. Nous pouvons aussi sélectionner, dans certains cas, une partie intéressante du vol (par exemple : pic de CO ou d'ozone ...) et ainsi uniquement analyser l'origine des particules issues de ces niveaux. Dans notre étude, nous avons utilisé les diagnostics de rétropanaches et de clusters. Les rétropanaches permettront de savoir si les masses d'air rencontrées par plusieurs vols successifs proviennent de la même région ou si il y a eu des changements dans les conditions atmosphériques et donc dans le transport des particules. Les rétropanaches fournissent des informations pour étudier la dynamique atmosphérique à grande échelle en les associant avec d'autres paramètres comme le géopotentiel. Les clusters seront utilisés essentiellement pour présenter la trajectoire d'une masse d'air avant qu'elle ne soit rencontrée par un des avions.

Nous avons aussi utilisé les simulations en mode « forward » dans le but de quantifier la contribution de l'émission du CO et de son transport sur les observations MOZAIC. Numériquement, ce mode fonctionne selon la même méthode que le mode « backward » à quelques détails près. Durant l'été 2003, d'importants incendies ont ravagé l'Europe

et en particulier le Portugal. L'impact de ces feux n'a pas encore été estimé dans les précédentes études et les effets sur la photochimie sont donc inconnus. Cependant, ces dernières études ont montré la présence de panaches de particules issues des incendies au-dessus de l'Europe (Pace et al., 2005 [51], Immler et al., 2005 [37]). Hodzic et al., 2007 [35] a suggéré par modélisation que les feux de biomasse ont provoqué une augmentation en PM10 (particules inférieures à 10 μm) sur l'Europe avec des valeurs atteignant $3 \mu\text{g} \cdot \text{m}^{-3}$ à $5 \mu\text{g} \cdot \text{m}^{-3}$ sur le bassin méditerranéen et sur le Bénélux.

Avec Flexpart, nous avons simulé en mode « forward » le transport du CO émis par les feux de biomasse Portugais ainsi que le CO émis par les émissions anthropiques en Europe et en Amérique du Nord. La comparaison entre les distributions de CO obtenues par émission et transport et les mesures de CO de MOZAIC nous donnera un indice supplémentaire pour conclure sur l'impact des feux en Europe et quantifier celui-ci en première approximation. La variation des concentrations observées en CO durant la canicule sera analysée en fonction des contributions des diverses sources simulées. Pour ces simulations en mode « forward », les boîtes d'émissions ont une taille horizontale de 1° par 1° en latitude-longitude. La hauteur de ces boîtes dépend du type d'émission simulée : de la surface à 3500 m d'altitude pour les incendies et jusqu'à 150 m du sol pour le CO anthropique. Dans tous les cas, c'est une quantité de 20 millions de particules qui est relâchée dans l'atmosphère. Le calcul du CO simulé est fait sur une grille latitude-longitude de 1° par 1° et sur 51 niveaux verticaux pour les deux types de simulations. En sortie nous obtenons, une concentration moyenne de CO selon le pas de temps en chaque maille de la grille.

La simulation des feux tient compte des variations journalières des surfaces brûlées sur le Portugal pour la période des feux les plus intenses (29 Juillet au 15 Août). J'ai développé un cadastre d'émissions journalier pour la période en utilisant la détection par satellite du récepteur MODIS et en la liant aux estimations de surfaces brûlées effectuées par Barbosa et al., 2003 [6]. Le nombre total de feux détectés par MODIS dans la zone géographique ($10 - 7^\circ\text{O}$; $36 - 42^\circ\text{N}$) durant la saison a été compté. Ces feux ont un indice de confiance de plus de 50 pour éviter les fausses alertes (Giglio, 2007 [29]). Le nombre total de ces

feux (2674) est relié à la surface totale brûlée dans le même temps (355 976 ha). Le rapport de ces deux nombres donne la surface brûlée par feu détecté (133,1 ha) en admettant que chaque incendie dévaste la même superficie. La quantité de CO émis par la suite, est définie par l'intermédiaire d'un facteur d'émission dépendant de la végétation. Ce facteur est de 5434 kgCO/ha dans notre cas et il correspond à ce qu'émet une végétation de type tempérée en proie aux flammes (Emission Inventory Guidebook [22]). Pendant la durée de la simulation, 1,63 Tg de CO est émis par les feux de biomasse portugais. Le détail du calendrier de ces émissions est donné dans le Tableau 1 de l'Article.

Les émissions anthropiques pour l'Amérique du Nord et pour l'Europe sont dérivées des émissions données par le cadastre EDGAR version 3.2 valide pour l'an 2000 ¹ (Olivier et al., 2002 [49]). 12,83 Tg de CO sont émis par l'Amérique du Nord et 10,75 Tg par l'Europe.

A ces simulations, nous en avons ajouté une sur l'ozone stratosphérique pour conclure quant à sa potentielle influence sur l'anomalie d'ozone troposphérique. Depuis sa version 6.2, FLEXPART permet à partir d'une relation linéaire entre l'ozone et le PV de tracer un ozone d'origine stratosphérique (Stohl et al., 2000 [69]; Cooper et al., 2005 [15]). Nous avons utilisé une relation ozone tourbillon potentiel de : $O_3/PV = 51 \text{ ppbv/pvu}$. Cette relation linéaire est basée sur les travaux de Roelofs et Lelieveld, 2000 [59] et de Narayana et al., 2003 [56], elle procure une valeur moyenne pour les mois de Juillet et Août en Europe. Le calcul d'ozone synthétique est fait sur une grille latitude-longitude de 1° par 1° sur 51 niveaux verticaux. A l'instant initial de la simulation, l'ensemble de la stratosphère $PV > 2 \text{ pvu}$ (seuil dynamique pour la tropopause) est remplie de 3 millions de particules. En tout, 20 millions de particules sont traitées sur toute la durée de la simulation. Comme dans le cas du CO, nous obtenons en sortie une concentration moyenne d'ozone d'origine stratosphérique selon le pas de temps en chaque maille de la grille.

¹EDGAR : Emission Database for Global Atmospheric Research
http://www.mnp.nl/geia/data/Carbon_Monoxide/

Résultats et discussion

Les mesures in-situ MOZAIC ont permis d'accéder à une description de la structure verticale de la troposphère pendant la canicule. La température présente une anomalie qui affecte les 10 premiers kilomètres de l'atmosphère avec des valeurs supérieures à $+5^{\circ}\text{C}$ et dépassant les $+10^{\circ}\text{C}$ en-dessous de 3 km d'altitude (Fig. 1, Article). Cette anomalie de température est constante du 2 au 14 Août, période que nous définissons comme la période caniculaire. Nous distinguons par la suite trois périodes : avant (16-31 Juillet), pendant (2-14 Août) et après la canicule (16-31 Août). L'analyse dynamique par l'intermédiaire de FLEXPART (Fig. 4, Article) met en évidence, pour les mesures effectuées en basse troposphère ($P > 500$ hPa), la faiblesse du flux d'Ouest pendant la vague de chaleur au profit d'un transport lent en provenance du Nord-Ouest africain. Pour les particules relâchées aux hautes altitudes ($P < 500$ hPa), le rétropanache indique plusieurs origines possibles pendant la canicule. Nous repérons une origine proche de la Floride montrant le transport trans-Atlantique, une origine au milieu de l'Atlantique, une autre origine dans le Nord-Ouest Africain résultant d'un flux de Sud ainsi qu'une participation locale illustrant le blocage sur l'Europe. Cette multitude de sources donne une information sur les conditions atmosphériques changeantes pendant la canicule. L'anomalie de température diminue autour du 7 Août en conséquence du passage d'une dépression. Cette dernière s'est creusée près des côtes marocaines à la fin du mois de Juillet et s'est déplacée lentement autour de l'anticyclone centré sur la France. Elle a eu pour effet de modifier les caractéristiques du transport de grande échelle pendant les 13 jours de la vague de chaleur. Par conséquent, trois sous-périodes ont été définies selon le placement et l'existence de la dépression : 2-5 Août, 6-8 Août et 9-14 Août. Les profils moyens de ces trois sous-périodes pendant la journée pour l'ozone et le CO présentent des différences résultantes à ces changements dynamiques pour tous les niveaux (Fig. 7, Article). La pollution s'étend jusqu'à 3 km pendant la première sous-période avec des valeurs moyennes supérieures à la climatologie de 40 ppbv pour l'ozone et 20 ppbv pour le CO. Lors de la seconde sous-période, l'amplitude de l'anomalie d'ozone reste la même mais l'extension verticale se réduit à 1,5 km. Enfin,

pour la dernière sous-période, la pollution atteint près de 6 km d'altitude avec la même intensité. La constance de tels niveaux de pollution pendant 13 jours est exceptionnelle mais l'extension verticale de la dernière sous-période l'est encore plus. Pendant la nuit, les niveaux d'ozone sont proches de la climatologie à proximité de la surface, conséquence de la forte titration dans l'environnement aéroportuaire (Pison et Menut, 2004 [55]), mais ceux-ci sont surmontés par une couche résiduelle fortement polluée. Les conditions atmosphériques accompagnant un anticyclone d'été, comme le fort ensoleillement et la faible ventilation, sont à l'origine de cette accumulation de polluants. Mais la dépression a entraîné dans son sillage les émissions des feux de biomasse qu'il est possible d'identifier avec les fortes valeurs de CO repérées dans la troposphère libre et les retropanaches issus de ces couches fortement polluées (Fig. 7e et 8b, Article). Les mesures de NO_y (Fig. 7c, Article) effectuées pendant la canicule sont inférieures à la climatologie. L'interprétation est délicate en raison du nombre restreint de profils et il est difficile d'affirmer si ces faibles rapports de mélange proviennent de la capture des NO_y par des aérosols suivie du lessivage ou de la déposition.

L'ozone en provenance de la stratosphère n'a que peu contribué aux niveaux d'ozone dans les basses couches mais son influence paraît plus importante pendant la dernière sous-période au-dessus de 4 km d'altitude (Fig. 9, Article).

Les simulations FLEXPART de CO anthropogénique nord-américain et européen mettent en évidence l'importante contribution européenne (30 % du CO mesuré) et la faiblesse de la contribution nord américaine via le transport trans-Atlantique. Une autre contribution importante peut être associée aux feux de biomasse portugais dont les panaches ont visiblement affecté l'atmosphère européenne (Fig. 12a, Article). Les émissions de CO par les feux de biomasse au Portugal sont simulées du 29 Juillet au 15 Août. L'impact de ces émissions est visible du 6 au 20 Août à Francfort avec les valeurs les plus importantes du 6 au 14 Août (Fig. 13, Article). La contribution moyenne du CO émis par les feux est de 35 % sur les niveaux des profils affectés à Francfort. La concordance temporelle entre la contribution des émissions de CO par les feux de biomasse et les anomalies de CO les plus fortes confirme l'impact additionnel des incendies de forêt Portugais sur les niveaux de pollution enregistrés à Francfort. Les valeurs de concentration des polluants, leur extension

verticale, l'origine de ceux-ci et le transport qui les a affecté sont autant d'informations nécessaires pour améliorer la modélisation de tels épisodes exceptionnels et ainsi mieux les prévoir.

2.1.2 Article : Air pollution during the 2003 European heat wave as seen by MOZAIC airlines

Air pollution during the 2003 European heat wave as seen by MOZAIC airliners

M. Tressol¹, C. Ordonez¹, R. Zbinden¹, J. Brioude², V. Thouret¹, C. Mari¹, P. Nedelec¹, J.-P. Cammas¹, H. Smit³, H.-W. Patz³, and A. Volz-Thomas³

¹Laboratoire d'Aérologie, UMR 5560, CNRS, Université de Toulouse, 14 Avenue E. Belin, 31400 Toulouse, France

²Chemical Sciences Division, Earth System Research Laboratory, NOAA, Boulder, Colorado, USA

³Institut für Chemie und Dynamik der Geosphäre II: Troposphäre, Forschungszentrum Jülich, Jülich, Germany

Received: 17 September 2007 – Published in Atmos. Chem. Phys. Discuss.: 13 November 2007

Revised: 4 March 2008 – Accepted: 14 March 2008 – Published: 15 April 2008

Abstract. This study presents an analysis of both MOZAIC profiles above Frankfurt and Lagrangian dispersion model simulations for the 2003 European heat wave. The comparison of MOZAIC measurements in summer 2003 with the 11-year MOZAIC climatology reflects strong temperature anomalies (exceeding 4 °C) throughout the lower troposphere. Higher positive anomalies of temperature and negative anomalies of both wind speed and relative humidity are found for the period defined here as the heat wave (2–14 August 2003), compared to the periods before (16–31 July 2003) and after (16–31 August 2003) the heat wave. In addition, Lagrangian model simulations in backward mode indicate the suppressed long-range transport in the mid- to lower troposphere and the enhanced southern origin of air masses for all tropospheric levels during the heat wave. Ozone and carbon monoxide also present strong anomalies (both +40 ppbv) during the heat wave, with a maximum vertical extension reaching 6 km altitude around 11 August 2003. Pollution in the planetary boundary layer (PBL) is enhanced during the day, with ozone mixing ratios two times higher than climatological values. This is due to a combination of factors, such as high temperature and radiation, stagnation of air masses and weak dry deposition, which favour the accumulation of ozone precursors and the build-up of ozone. A negligible role of a stratospheric-origin ozone tracer has been found for the lower troposphere in this study. From 29 July to 15 August 2003 forest fires burnt around 0.3×10^6 ha in Portugal and added to atmospheric pollution in Europe. Layers with enhanced CO and NO_y mixing ratios, advected from Portugal, were crossed by the MOZAIC aircraft in the free troposphere over Frankfurt. A series of forward and backward Lagrangian model simulations have been performed to investigate the origin of anomalies dur-

ing the whole heat wave. European anthropogenic emissions present the strongest contribution to the measured CO levels in the lower troposphere (near 30%). This source is followed by Portuguese forest fires which affect the lower troposphere after 6 August 2003 and even the PBL around 10 August 2003. The averaged biomass burning contribution reaches 35% during the affected period. Anthropogenic CO of North American origin only marginally influences CO levels over Europe during that period.

1 Introduction

Summer 2003 was one of the hottest in the history of Western Europe, with surface temperature exceeding by 2.4 °C the average surface temperature reported for the 1901–1995 period (Luterbacher et al., 2004). Over Central Europe, the mean air temperature anomalies at 2 m for June to August 2003 with respect to the 1958–2001 period were maximum over France and the Alpine region, and they ranged from 3 °C to 6 °C (Grazzini et al., 2003). In France, observed average temperature in Paris for summer 2003 was 3.6 °C above normal (Bessemoulin et al., 2004). Not only temperatures reached exceptional high levels, but also both the number of consecutive days during which temperatures exceeded the seasonal average and the spatial extent of the heat wave episode have never been reported before (Trigo et al., 2005). In August, the temperature increase peaked during the first two weeks due to a strong amplification of Rossby waves that reinforced the pre-existing anticyclone over Europe (Grazzini et al., 2003; Trigo et al., 2005). The long clear sky periods associated with the blocking conditions contributed to the increase in solar radiative heating over Europe (García-Herrera et al., 2005). Anomalous anticyclonic conditions during summer led to an increase in the monthly mean daily

Correspondence to: M. Tressol
(marc.tressol@aero.obs-mip.fr)

observed solar radiation at the ground of 1 kWh m^{-2} (+20%) with respect to the mean value for the 10 past years (Cros et al., 2004). Whether the nature of these anomalies is exceptional or whether it is a signal of changes in the climate distribution is still a debate. Recent studies based on regional climate modelling suggest that the summer 2003 could be a normal summer in the coming decades (Beniston, 2004; Schär et al., 2004). Based on meteorological records and mesoscale modelling, Vautard et al. (2007) emphasized the link between winter rainfall deficits in Southern Europe and the heat spreads northward throughout Europe in early summer.

Under extreme meteorological conditions of the 2003 heat wave, the chemical processes leading to ozone formation are perturbed compared to periods with more typical temperatures. The high temperature influences summer ozone because of its link with high radiation, stagnation of the air masses and thermal decomposition of peroxyacetylnitrate (PAN) (Sillman and Samson, 1995). Radiation favours photolysis of NO_2 , ozone and carbonyls yielding radical formation with subsequent involvement in ozone production. Stagnation of air masses allows the accumulation of pollutants in the planetary boundary layer (PBL) and in the residual layer during the night. Based on surface observations and trajectory analysis, Solberg et al. (2008) pointed out the impacts of these extremely high temperatures on air pollution and the extended residence time of the air parcels in the boundary layer, which are important factors for enhanced ozone production. Lee et al. (2006) established that the initial morning rises in ozone during the episode over London were caused by the collapse of the inversion layer and entrainment of air from aloft in the nocturnal residual layer polluted on a regional scale. Increased temperatures and solar radiation favoured biogenic emissions of isoprene with a potential for enhanced ozone chemistry in the boundary layer (Lee et al., 2006). High temperature and spring to summer precipitation deficit reduced ozone dry deposition (Vautard et al., 2005). All these processes favour the photochemical production of surface ozone and its accumulation. The differences in ozone concentrations during the heat wave period compared to the rest of August 2003 were confirmed by observations at surface European networks (Vautard et al., 2005; Solberg et al., 2008). Ozone concentration exceeded the public information threshold (1 h ozone concentration $> 180 \mu\text{g m}^{-3}$ or 84 ppbv) in 86% of the French survey pollution network (Elichegaray et al., 2003) and in 68% of European stations (Fiala et al., 2003). In Switzerland, the measured daily ozone maximum was 15 ppbv higher than in the reference period summer 1992–2002 (Ordóñez et al., 2005). In addition, the high temperatures and exceptional drought led to extensive forest fires on the Iberian Peninsula (Elias et al., 2006; Lyamani et al., 2006a,b; Hodzic et al., 2006, 2007). Solberg et al. (2008) suggested that fires contributed to the peak of ozone ground value observed in Northern Europe in August 2003. Pace et al. (2005) used MODIS observations be-

tween 2000 and 2004 to demonstrate that the summer 2003 forest fire aerosol episode was the longest and covered the largest area ever recorded. In a modelling study, wild fires caused an increase of PM_{10} over several regions in Europe by $3 \mu\text{g m}^{-3}$ to $5 \mu\text{g m}^{-3}$ for the Southern Mediterranean basin and the Benelux (Hodzic et al., 2007). The biomass burning aerosol layer in the mid troposphere was shown to produce a large increase in the heating rate of 2.8 K day^{-1} at 20 solar zenith angle within the biomass burning aerosol layer (Pace et al., 2005). Over Western Europe the smoke aerosol radiative forcing during August 2003 varies between 5 W m^{-2} and 25 W m^{-2} with the highest value in the presence of the smoke plume. Wildfire aerosols participate to increase the atmospheric stability and to enhance hot and dry conditions during summer 2003 (Pace et al., 2005; Hodzic et al., 2007).

The objective of this paper is to investigate for the first time the vertical extension and the origins of pollutants during the 2003 heat wave with a set of 162 profiles of ozone, carbon monoxide and relative humidity performed from 16 July to 31 August 2003 by 3 MOZAIC airliners over Frankfurt (Measurements of OZone, water vapour, carbon monoxide and nitrogen oxides by Airbus In-service airCRAFT, <http://mozaic.aero.obs-mip.fr/web/>), (Marenco et al., 1998). First, the main characteristics and the anomalies of meteorological parameters (temperature, wind speed, relative humidity) and of reactive gas concentrations (ozone, carbon monoxide and total nitrogen oxide) in vertical profiles above Frankfurt are investigated in relation to the meteorological situation and to the climatology. Then a Lagrangian dispersive model is used to investigate the origins of the main anomalies of pollutants during the episode. Section 2 describes the methods and measurements used in this paper. The meteorological situation is described in Sect. 3. Based on MOZAIC measurements and back-trajectory calculations, a description of the vertical extension of chemical tracers is documented in Sect. 4 together with the investigation of their origins. Section 5 provides a discussion on the relative contribution of forest fires versus other anthropogenic emissions to the CO levels observed by the MOZAIC aircraft in Frankfurt.

2 Method

2.1 MOZAIC measurements

Five commercial airliners were equipped by the MOZAIC program (Marenco et al., 1998) with ozone (O_3) and relative humidity (RH) instruments since 1994, and a carbon monoxide (CO) analyser was added in 2001. One aircraft carries an additional instrument to measure total odd nitrogen (NO_y) since 2001. Measurements are taken from take-off to landing, except for NO_y which is not measured in the lower troposphere during descents and in the whole troposphere during ascents. Based on the dual-beam UV absorption principle (Thermo-Electron, Model 49-103), the ozone

measurement accuracy is estimated at \pm (2 ppbv+2%) for a 4 s response time (Thouret et al., 1998). Based on an infrared analyser, the carbon monoxide measurement accuracy is estimated at \pm (5 ppbv + 5%) for a 30 s response time (Nedelec et al., 2003). 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 are described in Volz-Thomas et al. (2005) and in Pätz et al. (2006). Measurements for more than 26 000 long-haul flights are recorded in the MOZAIC data base (<http://mozaic.aero.obs-mip.fr/web/>) that is free-access for scientific use.

The summer period from 16 July to 31 August 2003 is analysed with respect to the MOZAIC climatology based on an 11-year dataset (1994–2004). During the episode of the heat wave (defined further down from 2 to 14 August 2003), deviations from the climatology will be referred as anomalies. We have chosen the MOZAIC data over Frankfurt airport because of its central location within the 2003 heat wave pattern and the steadily frequency of MOZAIC traffic (>2 vertical profiles per day). The interest of MOZAIC data over Paris is reduced because of a technical problem on the instrumentation. Vienna, the third European MOZAIC airport, was situated on the eastern edge of the anomalous anticyclonic conditions. Accordingly, MOZAIC data over Vienna confirm the eastern drift of anomalies observed in Frankfurt at the end of the episode (not shown).

The 1994–2004 MOZAIC climatology in July–August is based on 1600 profiles of temperature, wind speed, relative humidity and ozone. Over the period 2001–2004, about 550 profiles in July–August have CO measurements available to establish a climatology. The NO_y dataset is much more reduced with 35 profiles available for the August climatology based on 2002–2003 measurements, 6 of which being in the heat wave period. During summer in Frankfurt, the sunup is at about 04:00:00 UTC and the sunset is at about 19:00:00 UTC, so that at 09:00:00 UTC the planetary boundary layer development has already begun (local time is UTC plus 2 h). In order to take account of the diurnal cycle of trace gases in the planetary boundary layer (PBL), the MOZAIC climatology is derived across two periods of the day: a period representative of day-time data (09:00:00 UTC–18:00:00 UTC) and another one representative for night-time and early morning data (21:00:00 UTC–09:00:00 UTC). There are very few MOZAIC data at night in Frankfurt. With this classification, we end up with 89 flights representative of night and early morning observations as well as 73 flights representative of daytime observations, from 16 July to 31 August 2003. In time series of vertical profiles presented further down, MOZAIC data are averaged across these two time periods with anomalies calculated with respect to the corresponding climatology. The ground tracks of aircraft vertical profiles are included in a disk of 400 km radius around Frankfurt with a highest density in the north-west and northeast sectors. Distances from airport are about

400, 300, 200 and 100 km at 10–12, 8, 6, and 3 km altitude, respectively.

2.2 FLEXPART simulations

In order to characterize the different air masses reaching Frankfurt during the period of study, the Lagrangian model FLEXPART (version 6.2) is used in both backward and forward modes (Stohl et al., 1998, 2005). The model is driven by ECMWF analyses and forecasts allowing a dynamical forcing every 3 h (ECMWF, 1995). The ECMWF model version used for this study has 60 vertical levels from the surface up to 0.01 hPa with a 1×1 latitude longitude grid. Transport in FLEXPART includes the resolved winds and some parameterized subgrid motions. FLEXPART parameterizes turbulence by solving Langevin equations (Stohl and Thomson, 1999) and convection by using a buoyancy sorting principle base scheme (Emmanuel and Živković-Rothman, 1999; Seibert, 2001). PBL height calculation is made using the critical Richardson number concept.

In the backward mode for tracing the origin of air masses, sets of 20000 particles are fitted into boxes placed along the aircraft profiles with a vertical size of 250 m and a horizontal size of 0.5×0.5 . Retroplumes are initialized by releasing particles over 1 h time intervals. The backward mode results are used to highlight both air mass sources and air mass transport through the evolution of the retroplume geographic extension by changing atmospheric conditions.

In the forward mode, FLEXPART has been previously used for many objectives among which to show the intercontinental transport of CO from boreal forest fires (Damoahe et al., 2004) and to compare the impact of this long-range transport to that of regional CO anthropogenic emissions from Europe and North America (Forster et al., 2001). Our strategy here is to strengthen the results of the backward simulations by investigating the fate of some of the continental sources of CO (i.e., Europe and North America) and of the biomass fire CO sources over Portugal.

The anthropogenic CO (AN-CO) emissions from North America and Europe are prescribed by tagging the source regions based on the EDGAR version 3.2 emission dataset valid for 2000 (EDGAR: Emission Database for Global Atmospheric Research, http://www.mnp.nl/geia/data/Carbon_Monoxide/) (Olivier et al., 2002). We select EDGAR emission into the domain [125 W–70 W, 29 N–50 N] for North America and into the domain [10 W–40 E, 37 N–60 N] for Europe. The annual emissions are scaled to a 62-day period corresponding to the simulation emission period (1 July to 31 August 2003). During this period North America and Europe emit 12.83 Tg and 10.75 Tg of CO, respectively. In FLEXPART simulations, a set of 20×10^6 particles is used to initialize anthropogenic CO emissions released in 1×1 latitude-longitude boxes between 0 m and 150 m above ground level. Diurnal variations of anthropogenic emission are not taken into account, which leads to

Table 1. Daily emission of CO from fires. Geographical limits (36 N–42 N, 10 W–7 W).

Date	Mass (Gg)
29 Jul	37.6
30 Jul	41.2
31 Jul	41.2
1 Aug	8.0
2 Aug	97.6
3 Aug	562.7
4 Aug	282.1
5 Aug	16.6
6 Aug	27.5
7 Aug	41.9
8 Aug	49.9
9 Aug	34.0
10 Aug	42.7
11 Aug	47.7
12 Aug	99.8
13 Aug	77.4
14 Aug	113.6
15 Aug	6.5
Total	1628.0

an overestimation of the nighttime emission and underestimation of the daytime emission. Averaging the two periods is not perfect because of the reduced vertical mixing and the slower horizontal transport during the night. Neither chemical loss nor dry deposition of CO is parameterized.

The Portuguese biomass burning CO (BB-CO) emissions are simulated by taking account of the fire day to day variations during 29 July to 15 August 2003 period. We have counted the daily number of forest fires detected by MODIS during the period and the total number of detected fires from 1 January to 20 August 2003 into the [10 W–7 W, 36 N–42 N] geographic area. The MODIS Webfire Mapper (<http://maps.geog.umd.edu/firms/>) gives information (latitude, longitude) on the spotted fires for the day selected. We selected fires with a confidence value greater than 50 in order to avoid false alarm (Giglio, 2007). The total number of detected fires (2674) is linked to the total area burnt until 20 August 2003 (355 976 ha) found in (Barbosa et al., 2003). We consider that all detected fire spots burn an equal part of the total burnt area and we end up with 133.1 ha burnt by one fire spot. An emission factor for temperate forest, which corresponds to 5434 kg of CO per hectare burnt, is used (Emission Inventory Guidebook, 2006). During the simulated emission period (29 July to 15 August 2003) Portuguese biomass burning emits 1.63 Tg of CO. The fires are selected on a 1 × 1 latitude-longitude grid which is also the size of the release boxes. The 20 × 10⁶ particles are released uniformly between 0 km and 3.5 km above sea level. The details of location and intensity of emission are given in Table 1.

In the forward mode, a stratospheric ozone tracer can be initialized by a linear relationship with the potential vorticity (PV) and is then transported with the FLEXPART model (Stohl et al., 2000; Cooper et al., 2005). In this paper, this field is initialized in the model domain (140 W–49 E, 21 N–81 N) and at the model boundaries, and then advected with ECMWF winds. Again, a set of 20 × 10⁶ particles is used to initialize the stratospheric ozone tracer. This FLEXPART run began on 6 July 2003, 00:00:00 UTC. Criteria used to initialize the stratospheric ozone tracer are PV larger than 2 pvu (dynamical threshold for the tropopause) and height above 3 km. The condition on height is employed to avoid tagging a tropospheric particle that has got a high PV value by diabatic PV production in cloudy areas as a stratospheric-origin particle. Once a particle has gone across a boundary limit of the domain, it is removed from the simulation. Stratospheric particles are given a mass of ozone according to

$$M_{\text{O}_3} = M_{\text{air}} \times \text{PV} \times C \times 48/29 \quad (1)$$

where ($C = 45 \times 10^{-9} \text{ pvu}^{-1}$) is the ratio between the ozone volume mixing ratio and PV in the stratosphere at this time of the year, (M_{air}) is a threshold that a mass of air entering the model at a grid cell has to reach to create a trajectory particle at a random location at the boundary of the grid cell and PV is the potential vorticity value at the position of a stratospheric particle. The factor 48/29 converts volume mixing ratio into mass mixing ratio. The average relationship between ozone and PV in the lowermost stratosphere over Europe in July ($C = 45 \times 10^{-9} \text{ pvu}^{-1}$) is derived from Roelofs and Lelieveld (2000) and Narayana Rao et al. (2003). The stratospheric ozone is treated as a passive tracer, and its distribution in the troposphere is only due to transport from the stratosphere.

3 Meteorological situation

Figure 1 shows the temperature measurements and the associated anomalies with respect to the two periods of the day as explained in Sect. 2 for 16 July 2003–31 August 2003, from the ground up to 10 km altitude. Figure 1a clearly exhibits a period of high surface temperatures (above 25–26 C) starting on 2 August 2003 and lasting until 14 August 2003. Before and after this period, temperatures were characteristic of the summer season (around 20 C). Interestingly, Fig. 1b shows that the anomalies between 2 August 2003 and 14 August 2003 are in excess of 5 C and can extend throughout the whole troposphere. This temperature anomaly represents 2 standard deviations. Finally, it is worth noting that the temperature anomaly remained positive (above 3–4 C) in the free troposphere from 21 August to 28 August 2003. Considering these anomalies, our selected period of interest can be divided in three. The summer 2003 heat wave is defined here as the period of surface temperature anomalies greater than

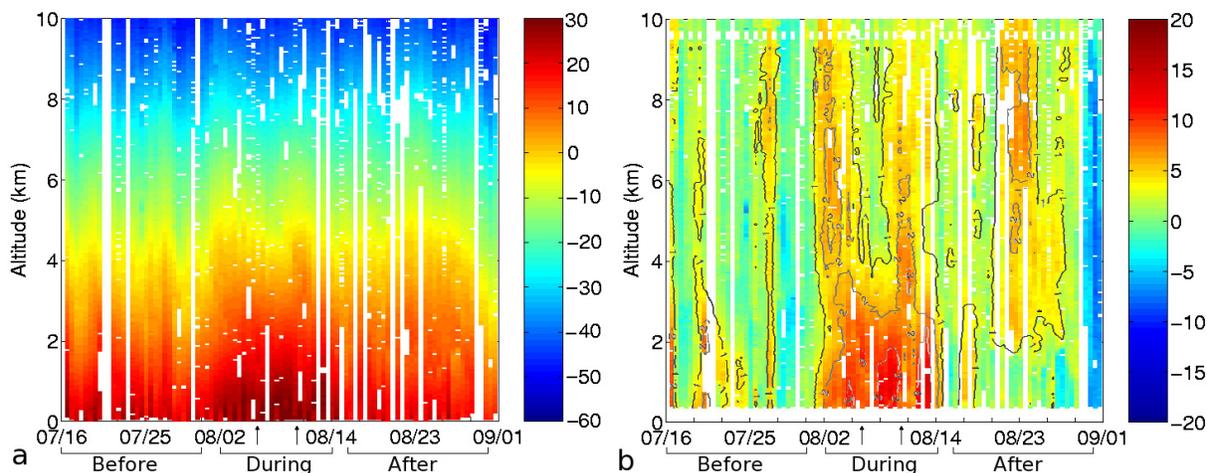


Fig. 1. Time series of MOZAIC vertical profiles of (a) temperature (°C) and (b) temperature anomaly (°C) from 16 July to 31 August 2003 over Frankfurt. Grey contour lines represent temperature anomalies normalised by the 11-year standard deviation of MOZAIC temperatures. Anomalies are derived versus the 11-year database. Vertical arrows indicate flights corresponding to Figs. 11 and 14.

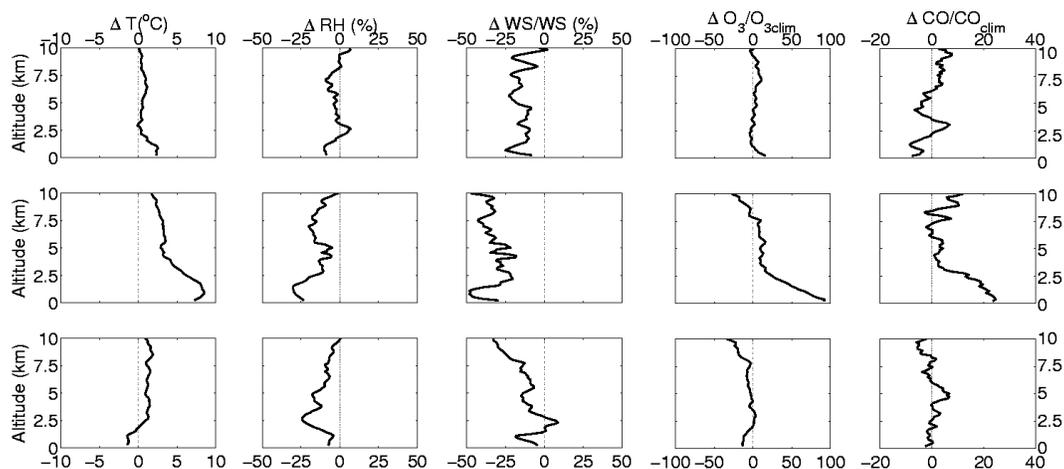


Fig. 2. Averaged vertical profiles derived from the deviations of MOZAIC observations in summer 2003 from the 1994–2004 summer climatology. Columns from left to right: temperature anomaly (°C), relative humidity anomaly (%), normalized wind speed anomaly (%), normalized ozone anomaly (%) and normalized CO anomaly (%). Rows: (top) 16–31 July period, (middle) 2–14 August 2003, (bottom) 16–31 August 2003. Anomalies are derived versus the 11-year database.

5 °C. This way, it starts on 2 August and lasts until 14 August. The periods 16 July to 31 July 2003 and 16 August to 31 August 2003 will be referred hereafter as before and after the heat wave, respectively.

In the planetary boundary layer (PBL), temperatures remained 10 °C above the climatological values between 2 August and 14 August. Temperature anomaly exceeded 3 standard deviations on the 5, 8 and 11 August in the PBL. In the free troposphere, temperature anomaly remains in excess of one standard deviation for the whole heat wave except on the 6, 7 and 8 August when anomaly is close to 0 °C. During a few days around 3 and 10 August, the 2 standard deviation threshold has been exceeded.

To further investigate the meteorological situation during summer 2003, Fig. 2 illustrates MOZAIC averaged vertical profiles of anomalies for temperature, relative humidity and normalized anomaly for wind speed. Before the heat wave period, the temperature anomaly already shows weak positive values in the PBL. The wind speed anomaly reveals that winds were 10% slower than climatological conditions throughout the troposphere while relative humidity oscillated around normal values. The 13 days of the heat wave period present the strongest anomalies for the three parameters. Temperature was on average 7 °C above normal near the ground and between 3 °C and 4 °C above normal from 4 km to 10 km altitude. Wind speed is lower than climatology

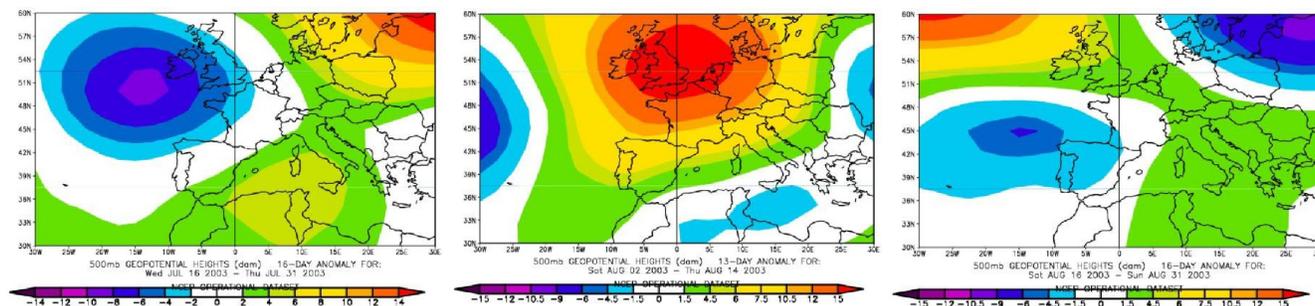


Fig. 3. Geopotential anomaly relative to 1979–1995 at 500 hPa from NCEP/NCAR reanalysis (left) 16–31 July 2003, (middle) 2–14 August 2003, (right) 16–31 August 2003.

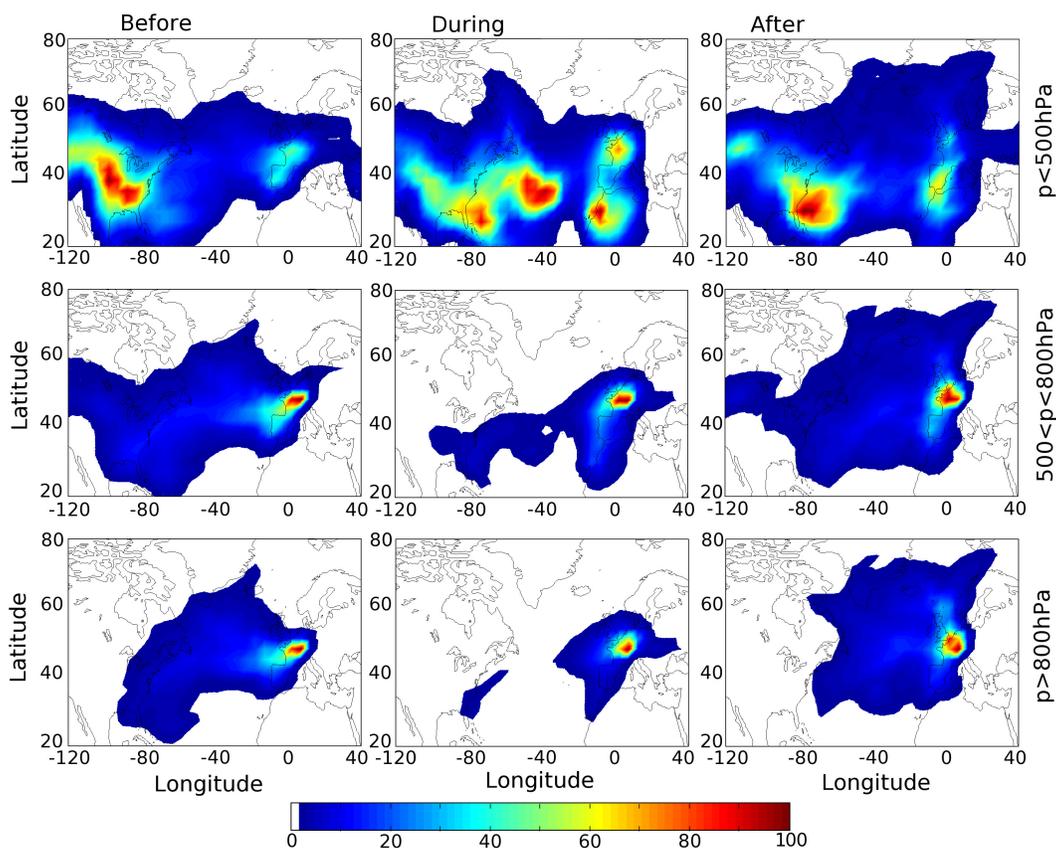


Fig. 4. Sensitivity function to emission input in the 0–3 km atmospheric column up to 10 days back. It is calculated as the residence times of air parcels in latitude–longitude boxes and values are given in the colour bar as percentages of the maximum. The larger percentage, the larger sensitivity air parcels have on the region with regards to emissions. Air parcels are initialized in boxes (0.5° C latitude–longitude, 250 m thickness) along the MOZAIC vertical profiles for 16 to 31 July 2003 (left), 2 to 14 August (center) and 16 to 31 August (right) within a 1-hour time interval. Particles are released from boxes with pressure lower than 500 hPa (top), in the 500–800 hPa range (middle) and larger than 800 hPa (bottom).

by 30% throughout the troposphere and relative humidity presents two deep minima, one at 1 km altitude and another one at around 7 km. These anomalous features, i.e. high temperatures, low wind speeds leading to large residence times, and clear sky make environmental conditions very favourable for ozone formation. After the heat wave period, tempera-

tures decrease rapidly towards climatological values. Relative humidity remained lower than usual in the free troposphere and wind speed in the upper troposphere.

The latter local observations are put into the wider context of the synoptic situation described by NCEP reanalyses (Kalnay et al., 1996) and FLEXPART simulations in

backward mode. Figure 3 presents the geopotential anomalies at 500 hPa from the NCEP reanalysis for the three periods defined as before. Anomalies are calculated from a 16-year climatology (1979–1995) based on a 5-day running mean of the annual cycle. In July, a mid-tropospheric trough digs in over Western Europe whereas Southern and Eastern Europe are under anticyclonic conditions. Western Europe is thus influenced by a south-westerly flow coming from the Central Atlantic. During the heat wave, a strong positive geopotential anomaly centred above England has settled over Europe. After the heat wave, the positive geopotential anomaly over Europe has disappeared.

Figure 4 illustrates the geographical coverage of the particle residence times for the period of interest in the 0–3 km altitude layer as simulated by FLEXPART initialized on every MOZAIC profile in Frankfurt. Different origins of these retroplumes show up depending on their arrival altitude and periods of time on MOZAIC profiles. Before and after the heat wave and for arrival altitudes in the middle and upper troposphere ($p < 500$ hPa), air masses are strongly influenced by the long-range transport across the Atlantic. Low pressure systems over the Eastern Atlantic favour strong westerly winds and efficient transport (Fig. 3). For arrival altitudes in the mid-troposphere ($500 < p < 800$ hPa), retro-plumes have similar behaviour with again the presence of trans-Atlantic transport. At the lowest levels ($p > 800$ hPa) some differences appear between the two latter periods with the presence after the heat wave of a northward extension (Iceland, Scandinavia) of the retro-plume. During the heat wave and for the upper troposphere, the retro-plume picture is more patchy with different possible origins of the air masses from the Eastern US, from the middle Atlantic (centre of the Azores high), from North-western Africa and Europe. For arrival altitudes in the lower troposphere, Fig. 4 highlights the weakness of winds by a less extended retro-plume and the southern origin of the air mass. Due to the persistence of a trough over the Atlantic (20° W) together with a ridge over Spain as described by García et al. (2002), there is a predominance of a southerly flow which brought air from Portugal and the Sahara to Europe.

As previously mentioned by Hodzic et al. (2006) and Solberg et al. (2008), the period of the heat wave is itself marked by changing atmospheric conditions. Indeed, Fig. 1b shows the passage of a colder air mass above 3 km altitude during the core of the heat wave. A weak extratropical low which moved around the anticyclone centre is responsible for this air mass change. It corresponds to a drop of the top of the PBL, from 2000 m altitude to 1200 m altitude (Fig. 5). The low appeared at the end of July over the Atlantic Moroccan coast and slowly reached Portugal on the 2 August 2003, then the South of United Kingdom on the 5 August 2003. Then, it took an easterly track above Belgium and the Netherlands, and arrived in Germany two days later. Given this sudden change of air mass properties, we define 3 sub-periods during the heat wave period (i.e. 2–5 August 2003, 6–8 August

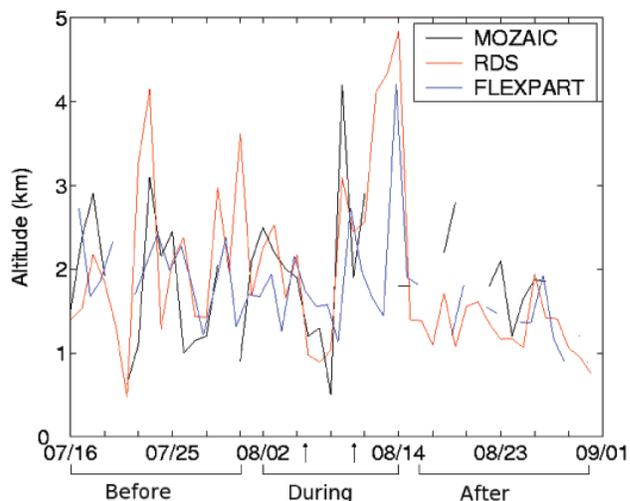


Fig. 5. Time series of planetary boundary layer height (km) as derived from MOZAIC profiles over Frankfurt (black), and radiosoundings at Idar-Oberstein, Stuttgart and Meiningen (red), and parameterized by FLEXPART for the grid cell covering Frankfurt (blue). MOZAIC profiles are selected between 09:30:00 UTC and 19:00:00 UTC. Radiosoundings are made at 12:00:00 UTC. Hours of FLEXPART diagnoses are those of MOZAIC flights.

2003 and 9–14 August 2003).

Figure 5 shows the time series of PBL heights over Frankfurt during the analyzed period. They have been derived from MOZAIC profiles and radiosounding data at 3 nearby meteorological stations as well as parameterized by FLEXPART. PBL heights are deduced from various indicators (temperature inversion, vertical gradients of relative humidity and potential temperature). Figure 6 presents three individual MOZAIC profiles, each one characteristic of one of the three sub-periods of the heatwave. The top of the PBL is at about 2.5 km altitude in the first sub-period, goes down to 1.1 km in the second sub-period, and rises to 4.5 km altitude during the third sub-period. The strong development of the PBL during the heat wave is associated with a feedback between soil moisture and deficit precipitation (Schär et al., 1999; Fisher et al., 2006). The soil moisture controls the energy balance between the earth surface and the atmosphere by modulating sensible and latent (evaporation) heat fluxes. A precipitation deficit like that of spring 2003 over Europe leads to dry soils, lower evapotranspiration, less latent cooling and fewer clouds, which in return drives anomalously warm soils, larger sensible heat fluxes and a more developed PBL. This was the typical situation during the first and third sub-periods of the heat wave. During the second sub-period of the heat wave, the decrease of the height of the top of the PBL is due to the ventilation of air masses by the low-pressure system coming from Morocco and Portugal. This observed drop of the top of the PBL is also captured by FLEXPART.

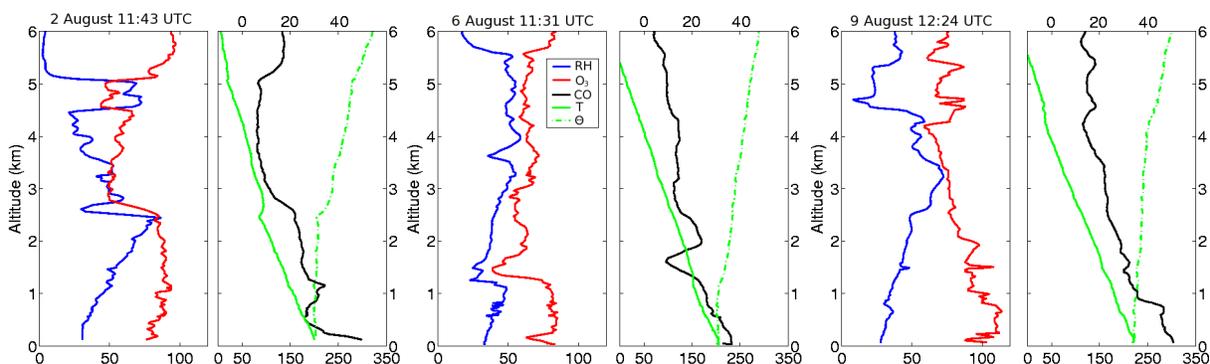


Fig. 6. Three sets of MOZAIC vertical profiles over Frankfurt, each one characteristic of one of the three sub-periods of the heat wave: 2 August 11:43:00 UTC (left), 6 August 11:31:00 UTC (center) and 9 August 12:24:00 UTC (right). The plots on the left show relative humidity (%), blue and ozone mixing ratio (ppbv, red). The plots on the right show temperature T (C, green line, top axis), potential temperature Θ (C, green dashed line, top axis) and carbon monoxide mixing ratio (ppbv, black, bottom axis). The top of the PBL is around 2500 m altitude (left), 1125 m (center) and 4500 m (right).

4 Characteristics of ozone and CO vertical distributions during the heat wave

To complete the description made with surface observations over Central Europe (Fiala et al., 2003; Vautard et al., 2005), O_3 and CO MOZAIC data are now investigated. For the three periods defined earlier during the summer 2003, Fig. 2 shows the normalized anomalies for ozone and CO based on the climatology from all MOZAIC observations (11 years for ozone and 3 years for CO, see Sect. 2 for more details). Before the heat wave, the ozone and CO mean profiles do not show any significant anomaly. During the heat wave, positive anomalies show up for the two species in the low troposphere and increase down to the surface. Near the surface, ozone is almost two times higher than normally and CO is more than 20% higher. Mid-tropospheric anomalies are not significant. In the upper troposphere, anomalies of ozone and CO have opposite variations that correspond to the raising of the tropopause height compared to the climatology and probably to the occurrence of biomass burning plumes in the upper troposphere. After the heat wave, ozone and CO profiles do not present any significant anomaly throughout the troposphere except for ozone above 8 km altitude where the normalized anomaly remains negative as observed during the heat wave period.

In the following, we analyse measurements from 04:00:00 UTC to 08:00:00 UTC (early morning observations) during the heat wave period as well as 3 other datasets from 08:00:00 UTC to 16:00:00 UTC (mid-day observations) during the three sub-periods of the heat wave (see end of Sect. 3). Early morning profiles averaged over the heat wave period are first compared to the MOZAIC climatology (Fig. 7a, b). The feature of interest that appears on the O_3 profile is the positive anomaly up to 30 ppbv in excess of the climatology in the residual layer at about 1 km altitude that rapidly decreases to zero close to surface. The positive

anomaly that persists into the night is indicative of a strong daytime formation of ozone in the boundary layer. The fact that there is no anomaly at the ground is a consequence of both the accumulated surface deposition during the night and the fast titration of ozone by NO emissions in the early morning near the airport (Pison and Menut, 2004). The CO burden in the residual layer is up to 40 ppbv in excess of the climatology over the heat wave period.

In the first sub-period of the heat wave (Fig. 7d, e), O_3 concentrations show a positive anomaly up to 40 ppbv in excess of the climatology in the planetary boundary layer (PBL). The ozone anomaly fills up the PBL up to 2.5 km altitude. The averaged CO profile displays a large variability in the middle and upper troposphere compared to the climatology. The positive departures are the signatures of biomass burning plumes coming from Portugal (see Sect. 5). The positive ozone anomaly of about 10 ppbv observed in the 5–8 km altitude layer is an indication that these plumes are photochemically active. The CO burden of the PBL in this time period exceeds the climatological value by up to 30 ppbv. During the passage of the weak extratropical cyclone (Fig. 7f, g), the top of the PBL drops down decreasing the depth of the ozone anomaly to only 1200 m though its intensity keeps the same. Biomass fire plumes with origin over Portugal may also be present in this air mass and descend down to 2.5 km. During the last heat wave sub-period (Fig. 7h, i), the rise in height of the top of the PBL is associated with the largest vertical extensions of O_3 and CO anomalies up to 6 km altitude. Elevated concentrations of the order of 80–90 ppbv are observed for ozone while the CO profile overpasses the climatology from 90 ppbv at the surface to 40–50 ppbv at 4 km altitude. In the upper troposphere, anomalies of ozone become negative while CO anomalies stay positive. It is in agreement with the raising of the tropopause height under anticyclonic conditions compared to the climatology.

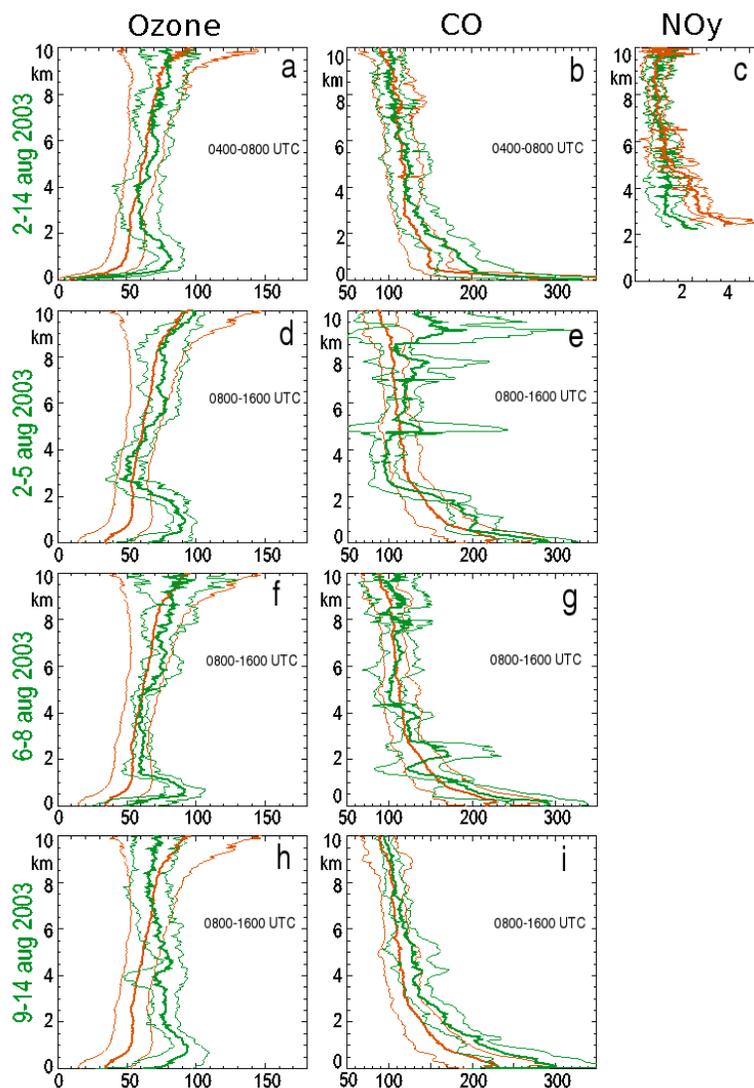


Fig. 7. Ozone (left), CO (middle) and NO_y profiles during the period and the sub-periods of the heat wave (green) and for the climatology (orange). Dots represent the standard deviation. NO_y measurements are averaged whatever the hour of the day. Units are ppbv.

Finally, Fig. 7c compares the NO_y August climatological profile and the average profile for the heat wave period. Caution in the interpretation is needed here because of the few profiles available (see Sect. 2). The NO_y concentrations during the heatwave are almost constant throughout the troposphere and are in fact lower than the climatological average in August. The MOZAIC NO_y measurements do not extend into the PBL, because the instrument is always shut off before landing (see Volz-Thomas et al., 2005). The variance of NO_y during the heat wave is similar to that of the climatology over Frankfurt in August. As the number of NO_y profiles is very limited during the heat wave, it is difficult to conclude on possible reasons, such as losses due to uptake on aerosol followed by washout or deposition, for this unexpected finding.

Figure 8 illustrates the time series of ozone and CO anomalies in vertical profiles during the heat wave period. Data are vertically averaged over 50-m layers and over the two daytime periods before to be compared to the corresponding climatologies. As expected, results show again elevated ozone overpassing the climatological value by more than 40 ppbv over the heat wave period, as well as the change in the vertical structure of the ozone anomaly due to the passage of the extratropical low with the anomaly trapped below 2 km altitude in the second sub-period. The structure of the CO anomalies in the time series bear some resemblance with the ozone one, with additional large mid- and upper-tropospheric anomalies (up to 150 ppbv) associated with plumes of biomass fires (see Sect. 5).

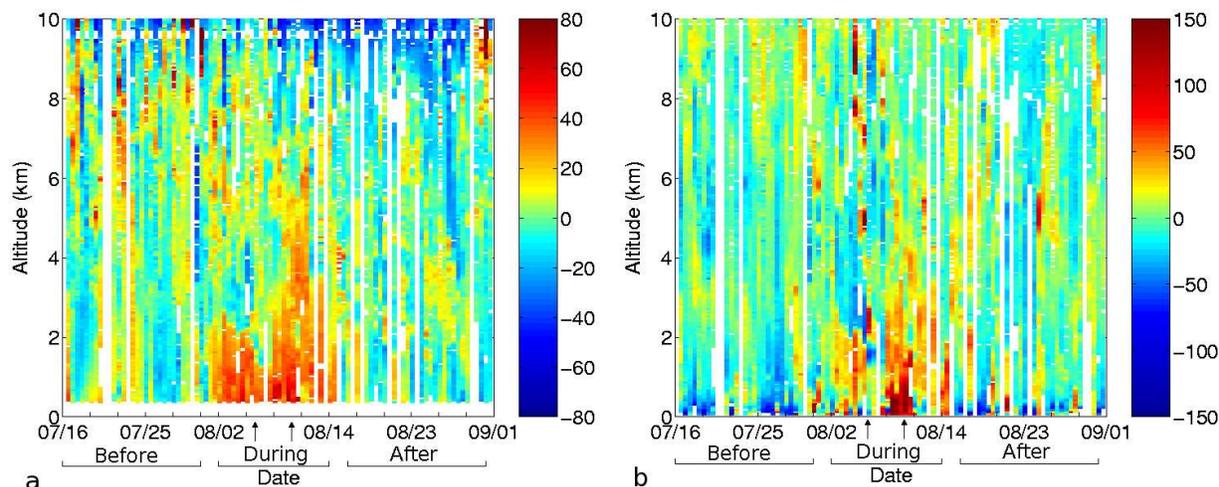


Fig. 8. Time series of MOZAIC vertical profiles of (a) ozone and (b) CO anomalies (ppbv) from 16 July to 31 August 2003 over Frankfurt. Anomalies are derived versus the 11-year database.

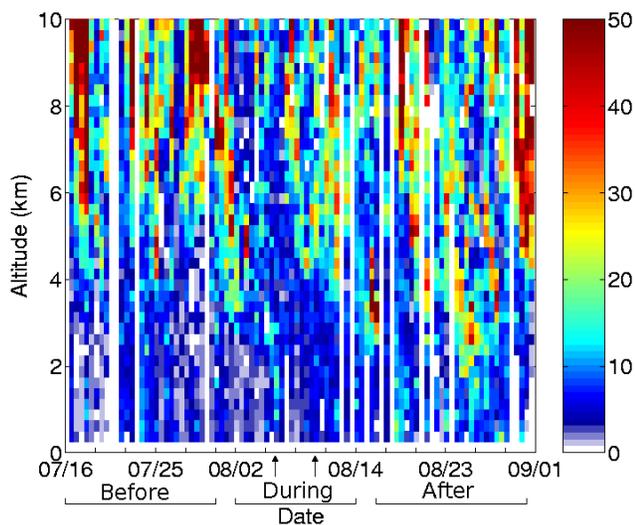


Fig. 9. Time series of vertical profiles of the FLEXPART stratospheric-origin ozone tracer over Frankfurt. Values are given as percentages of the MOZAIC ozone observations at Frankfurt (%).

5 Origins of ozone and CO maxima during the heat wave

In this section, we investigate the origins of the observed maxima of O_3 and CO using the FLEXPART model. The model is used in the forward mode to simulate the dispersion and transport of tagged sources which are the stratospheric ozone, CO from Portuguese biomass burning fires (BB-CO), and CO from anthropogenic emissions (AN-CO). In addition, the model is used in the backward mode to investigate the origins of CO anomalies observed along the MOZAIC profiles. Information on the simulations is in Sect. 2.2.

5.1 Stratospheric-origin ozone intrusions and anticyclonic subsidence

Figure 9 shows the modelled contribution of stratospheric-origin ozone to the MOZAIC observations. The stratospheric contribution below 4 km is insignificant (less than 10%) during the heat wave. Between 4 and 6 km altitude and during the last sub-period of the heat wave, patchy stratospheric contributions from 15% up to 30% are modelled. It indicates that the ozone anomaly that extends up to 6 km during this sub-period (Fig. 8a) may be partly due to stratospheric intrusions. Above 6 km altitude, many potential cases of stratospheric intrusions show up but they are outside the scope of the present study.

We further investigate the effect of the subsidence anomaly on ozone profiles. With the aid of particle backward trajectories, the average subsidence of the mid-tropospheric geopotential anomaly in the area can be assessed to about 400 m/day with extreme values up to 1000 m/day for very few particles. It is therefore plausible that this downward transport contributed to the positive ozone anomalies observed in the mid-troposphere. In addition, this mid-tropospheric subsidence combined with the rising of the top of the PBL during the third sub-period might have enabled the capture of fire plumes within the PBL.

5.2 Anthropogenic CO emission

A CO budget analysis on an annual mean has been made for Europe from a simulation of a global chemistry transport model (Pfister et al., 2004). Model simulations have been performed with the CO being tagged according to the emission type and the source region, with both a priori emissions and an optimized set of CO surface emissions derived from the inversion of CO retrievals of the Measurements of

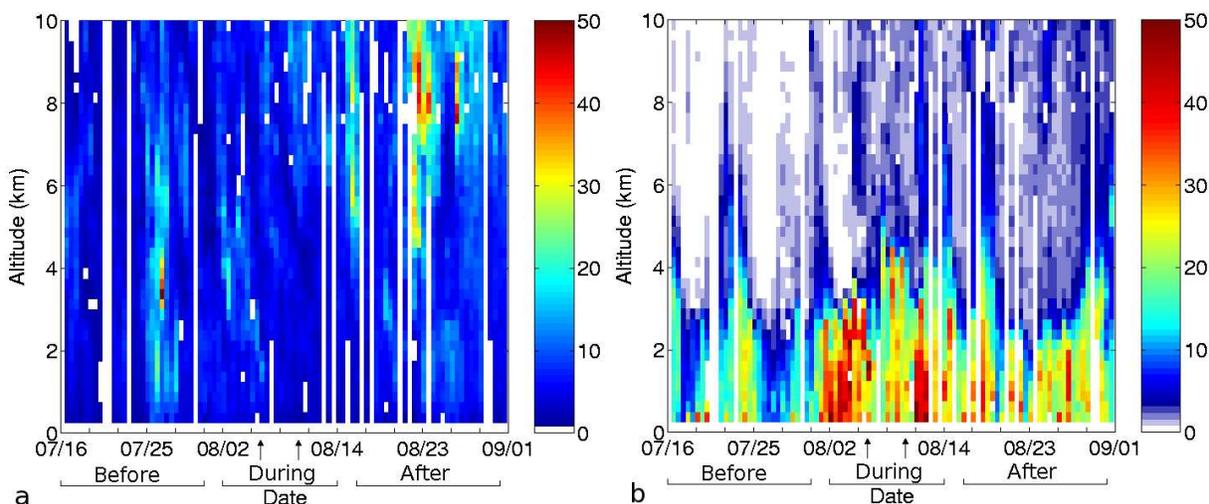


Fig. 10. Time series of vertical profiles of (a) North-American and (b) European FLEXPART anthropogenic CO tracer over Frankfurt. Values are given as percentages of the MOZAIC CO observations at Frankfurt (%).

Pollution in the Troposphere (MOPITT) remote sensing instrument. They have been used to diagnose the contributions of different processes and regions to the CO burden over Europe. Results show the predominant impact near the surface of the European source regions (37% of the total CO concentrations), compared to North America and Asia source regions (about 8% for each one), the main part of the rest (45%) being the contribution of photochemical CO. With increasing altitude, the contribution of the European source regions weakens (8% at 500 hPa), while the contributions of North American and Asian source regions gain in importance, reaching maximum contributions of 15% each at 500 hPa, the main part of the rest (55%) being the contribution of photochemical CO. Note that Pfister et al. (2004) include biomass burning and biogenic emissions in source regions.

With the more focused objective to compare contributions of AN-CO sources from North America and Europe and modelled BB-CO from Portuguese forest fires to observed CO, our approach includes the following limitations. Potential differences of EDGAR-based anthropogenic emissions between 2000 and 2003 are neglected. The annual emissions are scaled to emissions during the period of interest. There is no anthropogenic emission of CO elsewhere than over Europe and North America. There is no dry deposition of CO. We consider that the previous limitations may have little implication in our approach. More worrying is the influence of photochemistry on CO that is lacking, which prevents to assess the background of CO in the troposphere. This limitation includes the photochemical generation of CO by gas phase oxidation of VOCs. This contribution is about 10–15% near the surface (Pfister et al., 2004), ranging from CO mixing ratios of 20 ppbv under biogenic influence to 45 ppbv under anthropogenic influence (Griffin et al., 2007). It could

be particularly important in 2003 because of the extra evaporation of anthropogenic VOCs (Vautard et al., 2005).

Contributions of AN-CO sources from North America and Europe to observed CO are now investigated. The strong anticyclonic conditions that prevail over Europe during the heat wave shift the westerly flow to the North, so that one must expect a lowering of the contribution of North American pollution during this period. Indeed, results of our simulation (Fig. 10a) show an overall weak contribution (i.e. less than 10%) of AN-CO sources from North America. The highest North American contribution (about 15–20%) is found around 4 km altitude at the beginning of the heat wave period. The high modelled contribution of North American AN-CO for the mid- to upper-troposphere after the heat wave is out of the scope of this analysis.

European AN-CO emissions (Fig. 10b) lead to relatively strong contributions during the heat wave period. A maximum (minimum) in intensity of about 40% (20%) is produced over the first (second) sub-period, while during the third sub-period the contribution re-increases to about 30–40% and vertically extends up to 4 km altitude. This time evolution is coherent with the evolving meteorological conditions, in particular the decreasing contribution during the second sub-period at the expense of the BB-CO contribution as shown further down. Furthermore, the mean intensity of this contribution (about 30% below 2 km to 3 km altitude) for the whole heat wave is quite comparable to the previous modelling study (Pfister et al., 2004) despite the lack of biomass burning and biogenic emissions in this simulation. This may be the consequence of the stagnation of lower tropospheric air masses over Europe during this episode. The correlation between European AN-CO and observed CO values have been calculated. Given the limitations of our approach, the 0.5 to 0.7 correlation coefficients in the surface

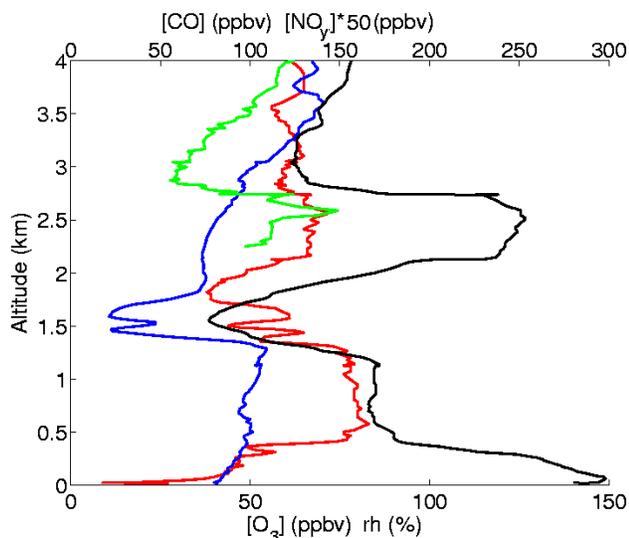


Fig. 11. MOZAIC profile at Frankfurt on 6 August 2003 08:40:00 UTC. Top axis: CO (black) mixing ratio and $50 \times \text{NO}_y$ (green) mixing ratio (ppbv); Bottom axis: ozone mixing ratio (ppbv, red) and relative humidity (%), blue).

layer during the heat wave period are indicative of a significant contribution of European sources to the measured CO mixing ratios, with a possible impact on ozone production.

5.3 Biomass burning CO emissions

Major source regions of biomass burning in Southern Europe as well as of Saharan dust and the subsequent transport of the polluted air masses have been pointed out in previous work based on surface ozone measurements, e.g. (Solberg et al., 2008), and surface aerosol characterization, e.g. (Immler et al., 2005; Pace et al., 2005). These papers suggest a potential impact of Portuguese forest fires over northern Europe. The time series of MOZAIC vertical profiles over Frankfurt and a FLEXPART simulation of BB-CO Portuguese emissions are further investigated in this section to compare the potential impact of the forest fire emissions relatively to the anthropogenic European emissions.

From Fig. 8b, several occurrences of strong CO anomalies are easily detected in the troposphere between 3 and 6 August 2003. As an example, we choose the CO anomaly of about 100 ppbv occurring between 2 and 3 km altitude on 6 August 2003 during the episode of the change of air mass, i.e. the second sub-period of the heat wave. The corresponding MOZAIC profile (Fig. 11) shows a CO layer (250 ppbv) between 2 km and 3 km altitude, well correlated with relative maxima of NO_y (3 ppbv) and ozone (70 ppbv). These values are very close to the ones measured during the third Lagrangian flight across an Alaskan forest fire plume aged of about a week over the North Atlantic and for which observed ozone levels increased by 17 ppbv over 5 days (Real

et al., 2007). In order to assess the origin of the CO layer, the FLEXPART Lagrangian model is used.

In the forward mode the transport of BB-CO emissions (Fig. 12a) shows the plume of biomass burning being embedded in the dynamics of the weak extratropical low, bypassing the western and northern edge of the anticyclone from Portugal to United Kingdom and then moving towards the south-east over Frankfurt. The MOZAIC aircraft at 2.5 km altitude is located inside the fire plume nearby a local maximum of BB-CO of about 100 ppbv. In the backward mode, Lagrangian trajectories are initialized where the CO mixing ratios exceed 150 ppbv between 1.5 km and 3 km altitude above Frankfurt. Figure 12b shows the emission sensitivity distribution up to 3 days back in the 0–3 km atmospheric column for trajectory particles arriving along the chosen piece of the MOZAIC flight path. Largest values are observed over western Spain and Portugal, indicating that fire emissions introduced into the atmospheric column above the region of Portuguese fires would have a strong influence on the measured concentrations.

From the observed levels of pollutants in the plume and in layers below and above, it is possible that O_3 has increased up to 20 ppbv during the transport. However, such an interpretation is problematic as several photochemical processes may interact during the transport of the biomass burning plume. O_3 changes are very dependent on temperature changes during the transport. Trajectory particles arriving at 2.5 km altitude on the MOZAIC profile were transported below 5 km, with 61.5% of it in the 0–3 km altitude layer, and 38.5% in the 3–5 km altitude layer. Hence, with most of the particles being transported at low altitudes, the chemical activity of this plume might involve the PAN decomposition at relatively high temperatures, including during the arrival phase over Frankfurt in the second sub-period of the heat wave for which FLEXPART indicates a descent (adiabatic heating) of the plume. In contrast, there was also considerable transport of fire smoke and Saharan dust in this period (Hodzic et al., 2006). Real et al. (2007) show that the influence of high aerosol loading on photolysis rates in a forest fire plume is a slowing down of the photochemistry (formation and destruction). Mixing with background concentrations is another process participating to the observed levels of pollutants in the plume. To sum up, this profile highlights that regional transport of CO from forest fires over Portugal might have affected the European PBL, although there is still a considerable gap of about 1 km depth to fill in between the biomass burning plume and the polluted residual layer at this time period of the heat wave over Frankfurt.

5.4 Discussion on the existence of fire-produced CO in the boundary layer

Here, after discussing the limitations in our approach, we further assess the potential of Portuguese fire plumes to pollute the PBL over Frankfurt. With regard to biomass fire

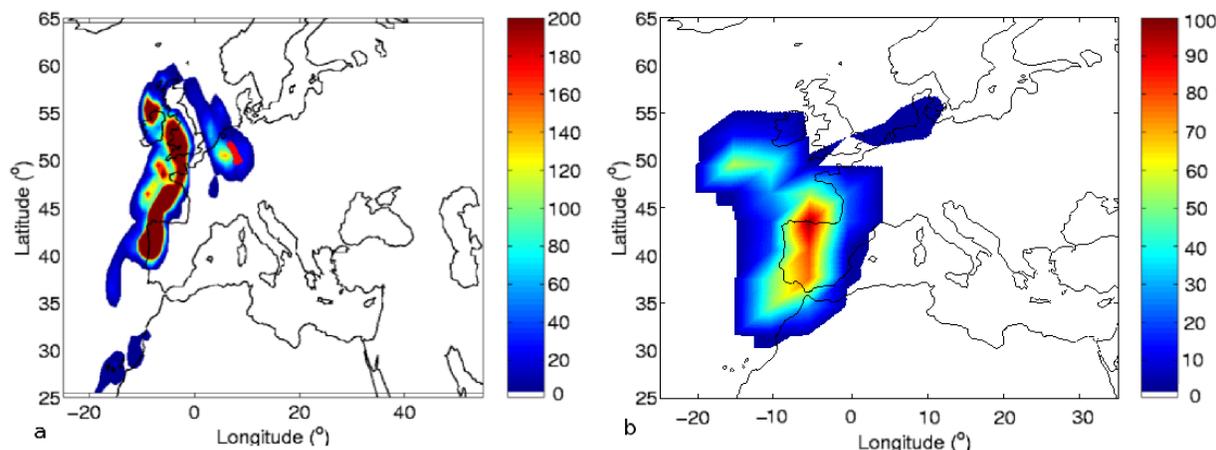


Fig. 12. (a) FLEXPART CO fire plume (ppbv) horizontal section at 2.5 km altitude on 6 August 2003 at the time of the MOZAIC profile shown on Fig. 11. The MOZAIC aircraft path around 2.5 km altitude is superposed in red. (b) Emission sensitivity distribution in the 0–3 km column for trajectory particles arriving along the MOZAIC profile displayed on Fig. 11. Particles were released only where the measured CO exceeded 150 ppbv. Residence times were calculated from arrival until 3 days back and values are given as percentage of the maximum.

emissions, the vegetation type is closer to the temperate forest (eucalytus and maritime pines) than to the Mediterranean scrubland in the central part of Portugal where fires were active. Accordingly, the simulation presented here, with a temperate forest emission factor of 5434 kgCO/ha, better matches with MOZAIC observations than another simulation (not shown) having the Mediterranean scrubland emission factor (1456 kgCO/ha). This second simulation severely underestimates observed CO levels elsewhere than over Portugal. With regard to injection heights, Immler et al. (2005) reported with lidar observations in Linderberg (Germany) layers of aerosol coming from Portugal throughout the troposphere in August 2003. MOZAIC observations show that CO plumes extend up to 10 km altitude. Fromm et al. (2000) have suggested that extreme convection triggered by forest fires may be able to inject aerosol into the stratosphere at high latitudes. In the present case, when progressing from Portugal to United Kingdom, the weak extratropical low was associated with deep convective cells and lightning activity as it can be seen with satellite images and with the European lightning network (not shown). Convection over Portugal or over the Bay of Biscay may have uplifted aerosols and CO emissions. In order to test the influence of injection height of biomass fire plumes, FLEXPART simulations have been made with 0–3.5 km or 0–6 km injection heights. Our sensitivity study (not shown) indicates that the FLEXPART simulation presented here with lower injection heights better displays BB-CO plumes crossed by MOZAIC aircraft than the one with higher injection heights.

Contributions of the prescribed Portuguese fire emissions to the CO measurements during the period of study are now discussed (Fig. 13). The first simulated BB-CO plumes arrive over Frankfurt during the second sub-period (6 August to 8 August), when northern Europe is under the influence

of the extratropical low. These plumes arrive with a delay of about one day compared to the MOZAIC time series and have BB-CO mixing ratios in the upper- (lower-) troposphere too weak (large) compared to measurements. Then, contributions from fire emissions are consistently found until 15 August 2003, and the last plume is found around 18 August 2003 after the end of the heat wave period. During the second sub-period of the heat wave, biomass burning can contribute to almost 80% of some of the observed CO mixing ratios at around 3 km. Both the too high and too low contributions in the lower troposphere and upper troposphere, respectively, might be explained by the absence of ECMWF simulated convection along trajectories or by deficiencies in the FLEXPART convective scheme. During the third sub-period, the contribution of fire emissions decreases to values below 40%, with maxima in the 1 km to 4 km altitude region.

Table 2 shows the average bias between MOZAIC observations and the sum of CO Flexpart simulations during the summer 2003 (16 July to 31 August 2003). Average bias is 105 ppbv within the PBL and 95 ppbv in the free troposphere. A large component of this bias comes from the CO background value that is lacking in our FLEXPART simulations. In a similar study of boreal forest fire emissions (Canada and European parts of Russia), Forster et al. (2001) estimated the CO background to about 97 ppbv. Subtracting about 90 ppbv in our case, in order to account for the CO background, lowers the bias to 15 ppbv within the PBL and to 5 ppbv in the free troposphere. With regards to the period of smoke plumes over Frankfurt, this corrected bias is close to zero during the third sub-period within the PBL. In the free troposphere, the corrected bias varies from –16 ppbv (second sub-period) to 6 ppbv (third sub-period). This indicates that the order of magnitude of CO associated with biomass burning is correctly estimated. The general concordance in

Table 2. CO mixing ratio (in ppbv) from MOZAIC and FLEXPART simulations. Last line presents the bias between CO MOZAIC measurements and the sum of FLEXPART simulated CO (AN-CO and BB-CO).

CO (ppbv)	Before				During				After	
	0.25–2		2–8		2–5 August		6–8 August		9–14 August	
Altitude (km)	0.25–2	2–8	0.25–3	3–8	0.25–1.25	1.25–8	0.25–3	3–8	0.25–2	2–8
MOZAIC observation	149	116	162	114	218	126	181	123	156	117
America AN-CO	8	7	10	7	8	7	6	8	9	10
Europe AN-CO	23	5	50	4	52	15	50	10	37	8
BB-CO	x	x	x	x	51	30	35	9	x	x
Bias	118	104	102	103	107	74	90	96	110	99

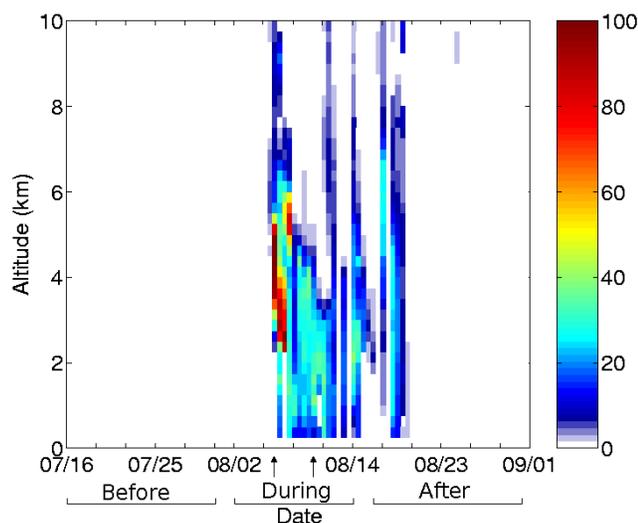


Fig. 13. Time series over Frankfurt of vertical profiles of Portuguese biomass burning CO transported with FLEXPART. Values are given as percentages of the MOZAIC CO observations (%).

time between the contribution of BB-CO (Fig. 13) and the largest MOZAIC CO anomaly (Fig. 8b) confirms the impact of Portuguese forest fires on the pollution level over Frankfurt.

During the third sub-period of the heat wave when the top of the PBL has risen up, we very tentatively look at signatures in MOZAIC profiles that could be representative of fire plumes being mixed inside the PBL. Figure 14 shows two MOZAIC vertical profiles sampled on 10 August 2003, 04:46:00 UTC and 08:34:00 UTC. According to Fig. 5, the top of the PBL has risen after the weak surface low has left central Europe, and it is at about 4.5 km height on 9 August 12:00:00 UTC and at about 2.5 km height on 10 August 12:00:00 UTC. In the first profile (Fig. 14a), the layer just below 3 km altitude contains relative maxima of O_3 , CO, NO_y , and relative humidity. About 4 h later, these relative maxima are observed at 2.2 km altitude (Fig. 14b) showing that the layer has been captured within the PBL during its diurnal

development. In backward mode for FLEXPART runs, particles were initialized in these layers and then being regrouped in 5 clusters along backward trajectories. For both profiles, results show that one of the clusters has passed over Portugal (Fig. 15). Although these results do not constitute a definitive evidence that Portuguese forest fires have polluted the PBL over Frankfurt, they support this hypothesis and challenge modellers to tackle this issue.

6 Conclusions

Commercial aircraft measurements of ozone, carbon monoxide and nitrogen oxide from the MOZAIC programme over Frankfurt (Germany) have been investigated during the strong heat wave that hit Europe in the first half of August 2003. The 11-year MOZAIC climatology is used to evaluate the anomalies of thermo-dynamical and chemical parameters. Differences between the heat wave period (2–14 August) and the periods before (16–31 July) and after (16–31 August) were highlighted according to the evolution of the meteorological situation. In early August, Europe was under strong anticyclonic conditions which diverted the westerlies to the North. The two weeks of the heat wave presented different air mass circulation associated with the movement of an extratropical low around the anticyclone centre, bringing Saharan and Portuguese air into northern Europe. After this episode, stagnant anticyclonic conditions prevailed. Temperature anomalies during the heat wave were found throughout the troposphere with values greater than climatology by 7 C in the lower troposphere and by 3.5 C in the mid- and upper-troposphere. Anomalies of wind speed (–30%) and of relative humidity (–25%) stand throughout the troposphere.

This situation allows the emergence of extremely favourable conditions to ozone formation over Europe. In addition to the basic condition due to anthropogenic emissions of ozone precursors, favourable conditions include the extended residence time of air parcels in the boundary layer, a reduction in surface dry deposition due to the drought (Vautard et al., 2005 and Solberg et al., 2008), and eventual additional contributions from enhanced biogenic isoprene

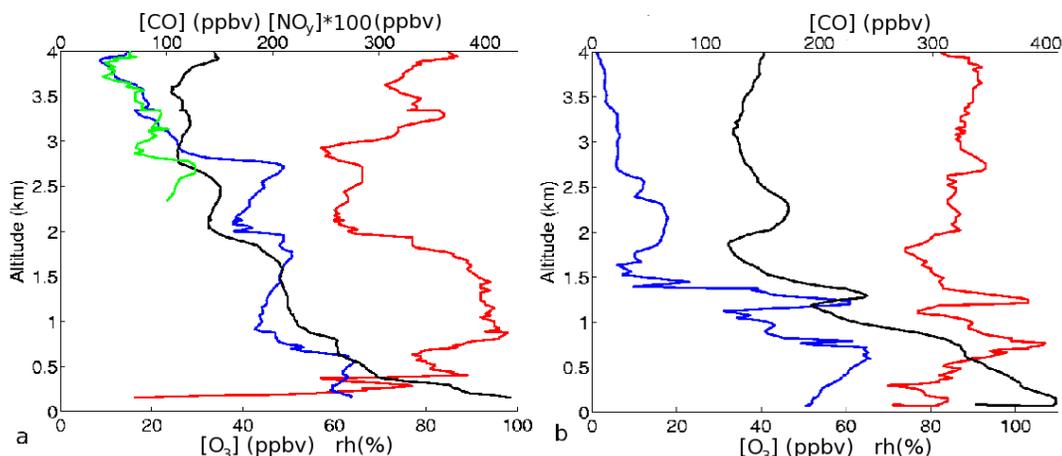


Fig. 14. MOZAIC profiles in Frankfurt, (left) on 10 August 2003 04:46:00 UTC and (right) on 10 August 2003 08:34:00 UTC. Top axis: CO mixing ratio (ppbv, black) and $100 \times \text{NO}_y$ mixing ratio (green, ppbv); Bottom axis: ozone mixing ratio (ppbv, red) and relative humidity (% , blue).

emissions over France and Germany and from biomass burning emissions from Portuguese fire forests (Solberg et al., 2008). For the first time, the present study gives access to a thorough description of the vertical structure of the pollutants thanks to the MOZAIC programme. Compared to the MOZAIC climatology, ozone observations in Frankfurt during the heat wave present strong anomalies within the planetary boundary layer. At night-time and early morning, the residual layer at 1 km altitude is composed of a peak anomaly of about +30 ppbv O_3 (peak absolute value of 80 ppbv). This anomaly collapses in the surface layer due to the accumulated surface deposition during the night and of the fast ozone titration by NO aircraft traffic emissions in the early morning near the Frankfurt airport. During the day, the entire planetary boundary layer is filled with an average ozone anomaly of about +40 ppbv O_3 (peak absolute value 90 ppbv). The CO measurements show chemically active biomass burning plumes in the mid- and upper-troposphere with origins over Portugal. CO observations overpass the climatology from 90 ppbv at the surface to 40–50 ppbv at 4 km altitude. During the passage of the extratropical cyclone in the heart of the heat wave period, the change of air masses and the lowering of the top of the planetary boundary layer reduces the height of the ozone polluted layer and allows biomass burning plumes to descend further down in the lower troposphere. The ozone and CO anomalies reach their greatest vertical extension up to 6 km altitude at the end of the heat wave period. The availability of frequent MOZAIC profiles during this episode has highlighted the extreme usefulness of routine aircraft observations for environmental monitoring. Efforts to stand out a durable infrastructure from the initial research project MOZAIC are pursued in the European project IAGOS (In-service Aircraft for a Global Observing System European Research Infrastructure, <http://www.fz-juelich.de/icg/icg-2/iagos>).

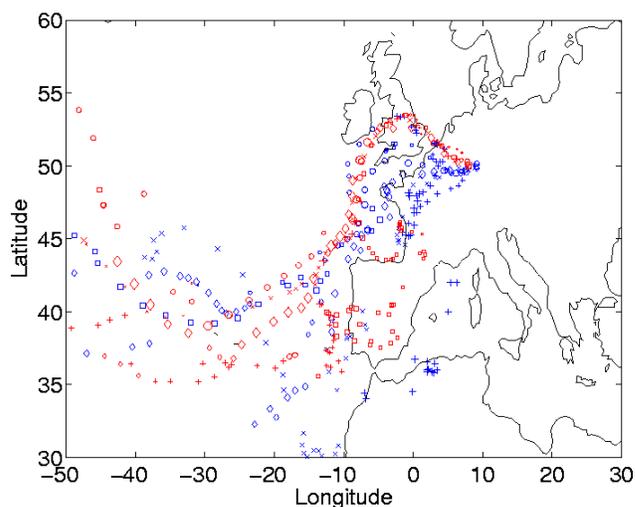


Fig. 15. Positions of FLEXPART clusters of trajectory particles initialized in 10-day backward simulations in CO layers observed on MOZAIC flights displayed on Fig. 14 (see text for details). Blue symbols are for 10 August 2003, 04:46:00 UTC flight, red ones are for 10 August 2003, 08:34:00 UTC flight). Over Portugal, clusters are 5 to 6 days old.

Lagrangian simulations of the transport of anthropogenic CO emissions from European and North American source regions and of biomass burning CO emissions from the equivalent area of 0.3×10^6 ha burnt over Portugal were performed in order to compare the relative contributions of source regions to the CO observations in the planetary boundary layer over Frankfurt. Results show the predominant contribution of European source regions (30%) to the CO levels for the whole heat wave. Averaged contribution of fires is stronger (35%) but emissions affect CO above Frankfurt levels only

after 6 August 2003. The general concordance in time between the contribution of biomass-burning origin CO and the largest MOZAIC CO anomaly, as well as the emission sensitivity distributions calculated from backward Lagrangian simulations initialised along MOZAIC CO anomalies, confirm the validity of the questioning about an additional impact of Portuguese forest fires on the pollution level over Frankfurt. This challenge for modellers is being tackled in the European GEMS project (Global Earth-system Modelling using Space and in-situ data, (http://www.ecmwf.int/research/EU_projects/GEMS/)).

Acknowledgements. This work was funded by the French national program LEFE-CHAT (Les Enveloppes Fluides et l'Environnement – Chimie Atmosphérique) from INSU-CNRS (Institut National des Sciences de l'Univers – Centre National de la Recherche Scientifique). M. Tressol is supported by EADS Grant from the foundation of the European Aeronautic Defence and Space Company. The authors acknowledge for the strong support of the European Commission, Airbus, and the Airlines (Lufthansa, Austrian, Air France) who carry free of charge the MOZAIC equipment and perform the maintenance since 1994. MOZAIC is presently funded by INSU-CNRS, Meteo-France, and FZJ (Forschungszentrum Jülich, Germany).

Edited by: P. Monks

References

- Barbosa, P., Libertà, G., and Schmuck, G.: The European Forest Fires Information System (EFFIS) results on the 2003 fire season in Portugal by the 20th of August, European Commission Report, Directorate General Joint Research Centre, Institute for Environment and Sustainability, Land Management Unit, 2003.
- Beniston, M.: The 2003 heat wave in Europe: A shape of things to come? An analysis based on Swiss climatological data and model simulations, *Geophys. Res. Lett.*, 31, L02202, doi: 10.1029/2003GL018857, 2004.
- Bessemoulin, P., Bourdette, N., Courtier, P., and Manach, J.: La canicule d'août 2003 en France et en Europe, *La météorologie*, 46, 25–33, 2004.
- Cooper, O. R., Stohl, A., Eckhardt, S., Parrish, D. D., Oltmans, S. J., Johnson, B. J., Nedelec, P., Schmidlin, F. J., Newchurch, M. J., Kondo, Y., and Kita, K.: A springtime comparison of tropospheric ozone and transport pathways on the east and west coasts of the United States., *J. Geophys. Res.*, 110, D05S90, doi: 10.1029/2004JD005183, 2005.
- Cros, S., Lefevre, M., Albuissou, M., and Wald, L.: From meteorological satellite data to solar radiation climatological products: the helioclim database, *Geophys. Res. Abstr.*, 6, 03853, 2004.
- Damoah, R., Spichtinger, N., Forster, C., James, P., Mattis, I., Wandinger, U., Beirle, S., Wagner, T., and Stohl, A.: Around the world in 17 days-hemispherical-scale transport of forest fire smoke from Russia in May 2003., *Atmos. Chem. Phys.*, 4, 1311–1321, 2004, <http://www.atmos-chem-phys.net/4/1311/2004/>.
- ECMWF: User Guide to ECMWF products 2.1, ECMWF Reading, UK, 1995.
- M. Tressol et al.: Pollution during 2003 European heat wave
- Elias, T., Silva, A. M., Belo, N., Pereira, S., Formenti, P., Helas, G., and Wagner, F.: Aerosol extinction in a remote continental region of the Iberian Peninsula during summer, *J. Geophys. Res.*, 111, D14204, doi:10.1029/2005JD006610, 2006.
- Elichegaray, C., Colosio, J., and Bouallala, S.: Premier bilan de La pollution photochimique observée en France au cours de l'été 2003, Tech. Rep., ADEME Département Air, 2003.
- Emission Inventory Guidebook, 2006: EMEP/CORINAIR Emission Inventory Guidebook, Tech. Rep., 2006.
- Emmanuel, K. A. and Živković-Rothman, M.: Development and evaluation of a convection scheme for use in climate models, *J. Atmos. Sci.*, 56, 1766–1782, 1999.
- Fiala, J., Cernikovský, L., de Leeuw, F., and Kurfuerst, P.: Air pollution by ozone in Europe in summer 2003. Overview of exceedances of EC ozone threshold values during the summer season April–August 2003 and comparisons with previous years, Tech. Rep., EEA Topic report, 2003.
- Fisher, E., Seneviratne, S., Vidale, P. L., Lüthi, D. and Schär, C.: Soil moisture - atmosphere interactions during the 2003 European summer heatwave, *Geophys. Res. Abstr.*, 8, 05985, 2006.
- Forster, C., Wandinger, U., Wotawa, G., James, P., Mattis, I., Althausen, D., Simmonds, P., O'Doherty, S., Gerard Jennings, S., Kleefeld, C., Schneider, J., Trickl, T., Kreipl, S., Jäger, H., and Stohl, A.: Transport of boreal forest fire emissions from Canada to Europe, *J. Geophys. Res.*, 106, 22 887–22 906, 2001.
- Fromm, M., Alfred, J., Hoppel, K., Hornstein, J., Bevilacqua, R., Shettle, E., Servranckx, R., Li, Z., and Stocks, B.: Observations of boreal forest fire smoke in the stratosphere by POAM, SAGE II, and lidar in 1998, *Geophys. Res. Lett.*, 27, 1407–1410, 2000.
- García, R., Prieto, L., Díaz, J., Hernández, E., and del Teso, T.: Synoptic condition leading to extremely high temperatures in Madrid, *Ann. Geophys.*, 20, 237–245, 2002, <http://www.ann-geophys.net/20/237/2002/>.
- García-Herrera, R., Díaz, J., Trigo, R. M., and Hernández, E.: Extreme summer temperatures in Iberia: health impacts and associated synoptic conditions, *Ann. Geophys.*, 23, 239–251, 2005, <http://www.ann-geophys.net/23/239/2005/>.
- Giglio, L.: Technical note: MODIS collection 4 active fire product user's guide version 2.3, 2007.
- Grazzini, F., Ferranti, L., Lalaurette, F., and Vitart, F.: The exceptional warm anomalies of summer 2003, *ECMWF Newsletters*, 99, 2–8, 2003.
- Griffin, R. J., Chen, J., Carmody, K., Vutukuru, S., and Dabdub, D.: Contribution of gas phase oxidation of volatile organic compounds to atmospheric carbon monoxide levels in two areas of the United States, *J. Geophys. Res.*, 112, D10S17, doi: 10.1029/2006JD007602, 2007.
- 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, D19, pp. 25 643–25 652, 1998.
- Hodzic, A., Vautard, R., Chepfer, H., Goloub, P., Menut, L., Chazette, P., Deuzé, J.-L., Apituley, A., and Couvert, P.: Evolution of aerosol optical thickness over Europe during the August 2003 heat wave as seen from CHIMERE model simulations and POLDER data, *Atmos. Chem. Phys.*, 6, 1853–1864, 2006, <http://www.atmos-chem-phys.net/6/1853/2006/>.
- Hodzic, A., Madronich, S., Bohn, B., Massie, S., Menut, L., and

- Wiedinmyer, C.: Wildfire particulate matter in Europe during summer 2003: meso-scale modeling of smoke emissions, transport and radiative effect., *Atmos. Chem. Phys.*, 7, 4043–4064, 2007, <http://www.atmos-chem-phys.net/7/4043/2007/>.
- Immler, F., Engelbart, D., and Schrems, O.: Fluorescence from atmospheric aerosol detected by a lidar indicates biogenic particles in the lowermost stratosphere, *Atmos. Chem. Phys.*, 5, 345–355, 2005, <http://www.atmos-chem-phys.net/5/345/2005/>.
- Kalnay, E., Kanamitsu, M., Kistler, R., Collins, W., Deaven, D., Gandin, L., Iredell, M., Saha, S., White, G., Woollen, J., Zhu, Y., Chelliah, M., Ebisuzaki, W., Higgins, W., Janowiak, J., Mo, K. C., Ropelewski, C., Wang, J., Leetmaa, A., Reynolds, E., Jenne, R., and Joseph, D.: The NCEP/NCAR 40-year reanalysis project., *B. Am. Meteorol. Soc.*, 77, 437–471, 1996.
- Labonne, M., Bréon, F.-M., and Chevallier, F.: Injection height of biomass burning aerosols as seen from a spaceborn lidar., *Geophys. Res. Lett.*, 34, L11806, doi:10.1029/2007GL029311, 2007.
- Lee, J. D., Lewis, A. C., Monks, P. S., Jacob, M., Hamilton, J. F., Hopkins, J. R., Watson, N. M., Saxton, J. E., Ennis, C., Carpenter, L. J., Carslaw, N., Fleming, Z., Bandy, B. J., Oram, D. E., Penkett, S. A., Slemr, J., Norton, E., Rickard, A. R., Whalley, L. K., Heard, D. E., Bloss, W. J., Gravestock, T., Smit, S. C., Stanton, J., Pilling, M. J., and Jenkin, M. E.: Ozone photochemistry and elevated isoprene during the UK heatwave of August 2003, *Atmos. Environ.*, 40, 7598–7613, 2006.
- Luterbacher, J., Dietrich, D., Xoplaki, E., Grosjean, M., and Wanner, H.: European seasonal and annual temperature variability, trends, and extremes since 1500, *Science*, 303, 1499–1503, 2004.
- Lyamani, H., Olmo, F. J., Alcántara, A., and Alados-Arboledas, L.: Atmospheric aerosols during the 2003 heat wave in southeastern Spain I: Spectral optical depth, *Atmos. Environ.*, 40, 6453–6464, 2006a.
- Lyamani, H., Olmo, F. J., Alcántara, A., and Alados-Arboledas, L.: Atmospheric aerosols during the 2003 heat wave in southeastern Spain II: Microphysical columnar properties and radiative forcing, *Atmos. Environ.*, 40, 6465–6476, 2006b.
- Marenco, A., Thouret, V., Nedelec, 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 vapour by Airbus in-service aircraft: The MOZAIK airborne program, An overview, *J. Geophys. Res.*, 103, 25 631–25 642, 1998.
- Narayana Rao, T., Kirkwood, S., Arvelius, J., von der Gathen, P., and Kivi, R.: Climatology of UTLS ozone and the ratio of ozone and potential vorticity over northern Europe, *J. Geophys. Res.*, 108, D22, doi:10.1029/2003JD00386, 2003.
- Nedelec, P., Cammas, J.-P., Thouret, V., Athier, G., Cousin, J.-M., Legrand, C., Abonnel, C., Lecoœur, F., Cayez, G., and Marizy, C.: An improved infra-red carbon monoxide analyser for routine measurements aboard commercial Airbus aircraft: Technical validation and first scientific results of the MOZAIK program, *Atmos. Chem. Phys.*, 3, 1551–1564, 2003, <http://www.atmos-chem-phys.net/3/1551/2003/>.
- Olivier, J., Berdowski, J., Peters, J., Bakker, J., Visschedijk, A., and Bloos, J.: Applications of EDGAR. Including a description of EDGAR 3.2: reference database with trend data for 1970–1995, RIVM report 773301001/NRP report 410 200 051, 2002.
- Ordóñez, C., Mathis, H., Furger, M., Henne, S., Hüglin, C., Staehelin, J., and Prévôt, A. S. H.: Changes of daily surface ozone maxima in Switzerland in all seasons from 1992 to 2002 and discussion of summer 2003, *Atmos. Chem. Phys.*, 5, 1187–1203, 2005, <http://www.atmos-chem-phys.net/5/1187/2005/>.
- Pace, G., Meloni, D., and di Sarra, A.: Forest fire aerosol over the Mediterranean basin during summer 2003, *J. Geophys. Res.*, 110, D21202, doi:10.1029/2005JD005986, 2005.
- Pätz, H.-W., Volz-Thomas, A., Hegglin, M. I., Brunner, D., Fischer, H., and Schmidt, U.: In-situ comparison of the NO_y instruments flown in MOZAIK and SPURT, *Atmos. Chem. Phys.*, 6, 2401–2410, 2006, <http://www.atmos-chem-phys.net/6/2401/2006/>.
- Pfister, G., Pétron, G., Emmons, L. K., Gille, J. C., Edwards, P. D., Lamarque, J.-F., Attie, J.-L., Granier, C., and Novelli, P. C.: Evaluation of CO simulations and the analysis of CO budget for Europe., *J. Geophys. Res.*, 109, D19304, doi:10.1029/2004JD004691, 2004.
- Pison, I. and Menut, L.: Quantification of the impact of aircraft traffic emissions on tropospheric ozone over Paris area., *Atmos. Environ.*, 38, 971–983, 2004.
- Real, E., Law, K. S., Weinzier, B., Fiebig, M., Petzold, A., Wild, O., Methven, J., Arnold, S., Stohl, A., Huntrieser, H., Roiger, A., Schlager, H., Stewart, D., Avery, M., Sachse, G., Browell, E., Ferrare, R., and Blake, D.: Processes influencing ozone levels in Alaskan forest fire plumes during long-range transport over the North Atlantic, *J. Geophys. Res.*, 112, D10S41, doi:10.1029/2006JD007576, 2007.
- Roelofs, G. J. and Lelieveld, J.: Model analysis of stratosphere-troposphere exchange of ozone and its role in the tropospheric ozone budget, in book *Chemistry and Radiation in the ozone layer*, 25–44, 2000.
- Schär, C., Lüthi, D., Beyerle, U., and Heise, E.: The soil precipitation feedback: a process study with a regional climate model, *J. Climate*, 12, 722–741, 1999.
- Schär, C., Vidale, P. L., Lüthi, D., Frei, C., Häberli, C., Liniger, M. A., and Appenzeller, C.: The role of increasing temperature variability in European summer heatwaves, *Nature*, 427, 332–336, 2004.
- Seibert, P.: Parametrisation of convective mixing in a Lagrangian particle dispersion model, *Proceedings of the 5th GLOREAM Workshop*, Wengen (CH), 24–26 September 2001.
- Sillman, S. and Samson, P. J.: Impact of temperature on oxidant photochemistry in urban, polluted rural and remote environments, *J. Geophys. Res.*, 100, 11 497–11 508, doi:10.1029/2005JD005986, 1995.
- Solberg, S., Hov, Ø., Søvde, A., Isaksen, I. S. A., Coddeville, P., De Backer, H., Forster, C., Orsolini, Y., and Uhse, K.: European surface ozone in the extreme summer 2003, *J. Geophys. Res.*, 113, D07307, doi:10.1029/2007JD009098, 2008.
- Stohl, A. and Thomson, D. J.: A density correction for Lagrangian particle dispersion models, *Bound.-Lay. Meteorol.*, 90, 155–167, 1999.
- Stohl, A., Hittenberg, M., and Wotawa, G.: Validation of the Lagrangian dispersion model FLEXPART against large scale tracer experiment data, *Atmos. Environ.*, 32, 4245–4264, 1998.
- Stohl, A., Spichtinger-Rakowsky, N., Bonasoni, P., Feldmann, H., Memmesheimer, M., Scheel, H. E., Trickl, T., Hübener, S.,

- Ringer, W., and Mandl, M.: The influence of stratospheric intrusions on alpine ozone concentrations., *Atmos. Environ.*, **34**, 1323–1354, 2000.
- Stohl, A., Forster, C., Frank, A., Seibert, P., and Wotawa, G.: Technical note: The Lagrangian particle dispersion model FLEX-PART version 6.2, *Atmos. Chem. Phys.*, **5**, 2461–2474, 2005, <http://www.atmos-chem-phys.net/5/2461/2005/>.
- Thouret, V., Marengo, A., Logan, J. A., Nedelec, P., and Grouhel, C.: Comparisons of ozone measurements from the MOZAIC airborne program and the ozone sounding network at eight locations, *J. Geophys. Res.*, **103**, 25 695–25 720, 1998.
- Trigo, R. M., García-Herrera, R., Diaz, J., and Trigo, I. F.: How exceptional was the early August 2003 heatwave in France?, *Geophys. Res. Lett.*, **32**, L10701, doi:10.1029/2005GL022410, 2005.
- Vautard, R., Honoré, C., Beekmann, M., and Rouil, L.: Simulation of ozone during the August 2003 heat wave and emission control scenarios, *Atmos. Environ.*, **39**, 2957–2967, 2005.
- Vautard, R., Yiou, P., D’Andrea, F., de Noblet, N., Viovy, N., Cassou, C., Polcher, J., Ciais, P., Kageyama, M., and Fan, Y.: Summertime European heat and drought waves induced by wintertime Mediterranean rainfall deficit, *Geophys. Res. Lett.*, **34**, L07711, doi:10.1029/2006GL028001, 2007.
- 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_y) aboard MOZAIC in-service aircraft: instrument design, operation and performance., *Atmos. Chem. Phys.*, **5**, 583–595, 2005, <http://www.atmos-chem-phys.net/5/583/2005/>.

2.2 Résultats complémentaires

Dans cette partie, nous présentons les résultats obtenus à Paris et à Vienne lors des diverses simulations. L'étude pour ces villes a été réalisée de la même manière que pour Francfort avec pour seule différence les limites techniques (pas de mesures au-dessus de 7 km pour Paris) et de fréquence (1 seul avion dans chaque cas).

2.2.1 Résultats dynamiques

La situation synoptique de ces villes est différente de celle de Francfort pendant la canicule. Paris est plus proche du centre de l'anomalie alors que Vienne est à la périphérie de celle-ci (Fig. 2.2).

L'analyse des données pour ces deux cités apportera des informations complémentaires sur l'évolution du phénomène. Les températures mesurées et leurs anomalies à Paris et à Vienne sont représentées par les séries temporelles de profils sur la Figure 2.3. A Paris, le signal en température de la canicule ressemble fortement à celui de Francfort avec l'observation des premières chaleurs le 2 Août pour finir le 14 Août. Du 6 au 14 Août, l'anomalie de température est concentrée en dessous de 4 km d'altitude avec une intensité proche de +15°C. L'extension verticale de l'anomalie de température vue à Francfort n'est pas visible ici. La subsidence anticyclonique plus importante à proximité du centre des hautes pressions peut expliquer ces observations. Malheureusement, nous ne pouvons discuter de l'anomalie pour des altitudes supérieures à 7 km en conséquence des problèmes d'appareillage exposés dans la partie 2.1.1. Pour sa part, la température à Vienne n'atteint pas les valeurs observées dans les deux autres villes (Fig. 2.3(c) et 2.3(d)). Autour du 5 Août, nous observons une période plus chaude mais l'anomalie de température ne dépasse pas 7°C. De telles anomalies se retrouvent avant le 2 Août mais aussi après le 14 Août. L'impact de la canicule à Vienne semble plus tardif à la vue des températures relevées autour du 14 Août ou l'anomalie rejoint les niveaux rencontrés à Paris et Francfort. Ces résultats sont en accord avec la situation synoptique et le placement du centre des géopotentiels élevés (Fig. 2.2).

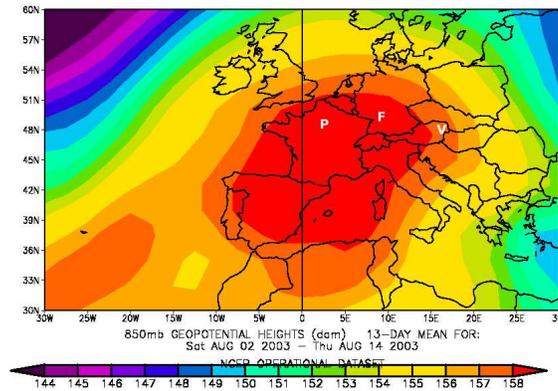


FIG. 2.2 – Géopotentiel (dam) à 850 hPa relatif à la période 1979-1995 d’après les réanalyses du NCEP/NCAR. La localisation géographique des 3 aéroports est indiquée : Paris (P), Francfort (F) et Vienne (V).

Avant la canicule, nous avons vu par l’intermédiaire des simulations FLEXPART en mode backward la prédominance d’un transport associé au flux d’ouest. Celui-ci apporte de l’air océanique et des dépressions provoquant quelques précipitations à Francfort et à Paris. Il est la caractéristique principale de la période. L’extension géographique des rétroplumes FLEXPART pour les particules initialisées à Paris ressemble à celle des panaches observés à Francfort. Pour cette période, le flux d’Ouest domine donc sur l’Europe Occidentale avec un transport rapide des particules au-dessus de l’Atlantique. Par contre, en Europe centrale le flux ne provient pas que de l’ouest mais il possède en plus une composante orientale. Les simulations backward sur les profils MOZAIC effectués à Vienne mettent en avant la dualité du transport dans cette région d’Europe (Fig. 2.4(a), 2.4(d) et 2.4(g)). La dynamique atmosphérique à Vienne n’est pas totalement la même qu’à Paris et Francfort.

Pendant la canicule, les rétropanaches des particules relâchées à Paris confirment les origines multiples des masses d’air croisées par les avions MOZAIC au-dessus de Francfort. Comme prévue de part la situation géographique et les anomalies de températures, les villes de Paris et Francfort sont affectées de la même manière par la canicule. Dans le cas de Vienne, les rétropanaches des particules initialisées le long des profils au-dessus de la ville mettent en évidence les mêmes origines (Centre de l’Atlantique, Sahara...) mais

présentent une source supplémentaire située en Turquie confirmant l'éloignement de la ville par rapport au centre de la zone caniculaire (Fig. 2.4(b), 2.4(e) et 2.4(h)). L'influence possible des sources de pollution du Sud-Est Européen ne doit pas être négligé dans le cas de Vienne.

Après la vague de chaleur, la circulation en flux d'Ouest est puissante et les trois villes sont affectées par celle-ci. Les panaches ne présentent pas de différences comme en témoigne ceux initialisés à Vienne (Fig. 2.4(c), 2.4(f) et 2.4(i)). Le retour du flux d'Ouest a balayé la pollution qui stagnait sur l'Europe et nous verrons ce signal sur Vienne dans ce qui suit.

2.2.2 Résultats sur la pollution

Les anomalies des rapports de mélange de l'ozone et du CO à Paris et à Vienne sont présentées sur la Figure 2.5.

A Paris, les anomalies positives significatives d'ozone (> 20 ppbv) dans la couche limite planétaire ne sont observées que pendant la canicule (Fig. 2.5(a)). Il est possible d'y distinguer les trois sous-périodes décrites dans l'Article. D'abord la pollution se trouve dans les 2 premiers kilomètres de l'atmosphère (+40 ppbv pour $z < 2,5$ km, 2 Août), puis à la faveur du passage dépressionnaire la pollution est cloisonnée à proximité de la surface (+40 ppbv pour $z < 1$ km, 6 Août) et enfin elle s'étend pour affecter tous les niveaux (+30 ppbv jusqu'au delà de $z=5$ km le 11 Août). Les anomalies de CO à Paris présentent les mêmes caractéristiques que celles d'ozone décrites précédemment. Les valeurs d'anomalie de rapport de mélange sont comprises ici entre +25 ppbv et +75 ppbv. Contrairement à Francfort, aucun panache à forte concentration de CO n'a été échantillonné dans la troposphère libre ce qui confirme le rôle du blocage anticyclonique en altitude. Les plus fortes valeurs d'ozone et de CO sont observées à proximité de la surface après le passage de la dépression comme dans le cas de Francfort.

A Vienne, les anomalies ne présentent pas les mêmes caractéristiques (Fig. 2.5(c) et 2.5(d)). La pollution à l'ozone durant la canicule ne se démarque pas de celle observée lors des autres périodes en terme d'intensité et d'extension verticale. Les valeurs atteignent les

+15 ppbv pour des altitudes inférieures à 3 km pendant la vague de chaleur. Les niveaux de pollution les plus élevées sont rencontrés le 14 Août (+35 ppbv pour $z < 4$ km). Contrairement à Paris et Francfort, le CO mesuré à Vienne présente un visage différent à celui de l'ozone. Il n'y a pas de signaux récurrents en surface indiquant une quelconque anomalie. Par contre, entre 5 et 8 km d'altitude, une anomalie persiste du 5 au 11 Août avec une intensité proche de 60 ppbv. En dessous de 4 km, le 14 Août est la journée la plus fortement polluée avec des concentrations atteignant 150 ppbv de plus que la climatologie. Une explication possible provient de la différence de transport. En altitude, le panache provenant des émissions des feux de biomasse continue son trajet après avoir été soulevé par la dépression. Les panaches de feux se déplaçant plus près de la surface ont été emprisonnés dans la circulation atmosphérique et n'ont pas atteint Vienne trop à l'écart. Par contre, la pollution de la couche limite planétaire a été balayée vers l'Est à la fin de la canicule. Ceci explique les forts niveaux corrélés d'ozone et de CO repérés à Vienne le 14 Août.

Les résultats des simulations Flexpart des émissions des feux de biomasse et des émissions anthropogéniques sont illustrées sur la Figure 2.6.

Les résultats de ces simulations sont en accord avec les observations précédentes et renforcent les hypothèses émises. Les émissions européennes contribuent plus fortement à la pollution pendant la canicule à Paris et s'étendent jusqu'à 5 km d'altitude (Fig. 2.6(a)). Il faut toutefois remarquer la persistance de fortes valeurs de concentration de CO européen après la canicule durant 5 jours et aussi à la fin de la période d'étude. Les panaches en provenance des feux de forêts portugais se retrouvent à Paris avec la même signature qu'à Francfort (Fig. 2.6(b)). A Vienne, les résultats diffèrent avec une contribution européenne équivalente à celle rencontrée pendant les autres périodes. Elle est même très faible du 10 au 13 Août alors que dans le même temps elle atteint près de 6 km plus à l'Ouest. Pour les panaches des feux, la situation ressemble dans un premier temps à ce qui a été observé à Francfort et Paris. A savoir un panache très concentré arrivant entre 2 et 6 km d'altitude (Fig. 2.6(d)). Ensuite, le transport associé au mouvement de la dépression pousse quelques panaches jusqu'à Vienne avec une concentration maximale de 50 ppbv. Dans un second temps, Vienne se retrouve à l'écart de la circulation anticyclonique et il n'y a plus

de panache provenant des feux (autour du 12 Août). Enfin, à la faveur du déplacement des masses d'air, la signature des émissions des feux est de nouveau visible à la fin de la canicule et même après avec la même intensité. C'est aussi à Vienne que les panaches s'observent le plus longtemps après la fin de la canicule en conséquence d'un transport plus direct passant au sud des autres cités.

L'apport de ces résultats permet de décrire plus précisément les événements et l'importance du piège que constitue la circulation anticyclonique pour la pollution. Cette étude met en lumière l'importance de prévoir de telles situations de blocage pour mettre en place des mesures préventives pour réduire les émissions liées aux activités anthropiques et aussi pour prévenir les risques d'extension de la pollution due aux incendies. Dans le chapitre qui suit, un modèle global de chimie transport a été utilisé pour détailler les processus rentrant en compte pour atteindre de tels niveaux de pollution et les éléments à fournir pour améliorer les résultats.

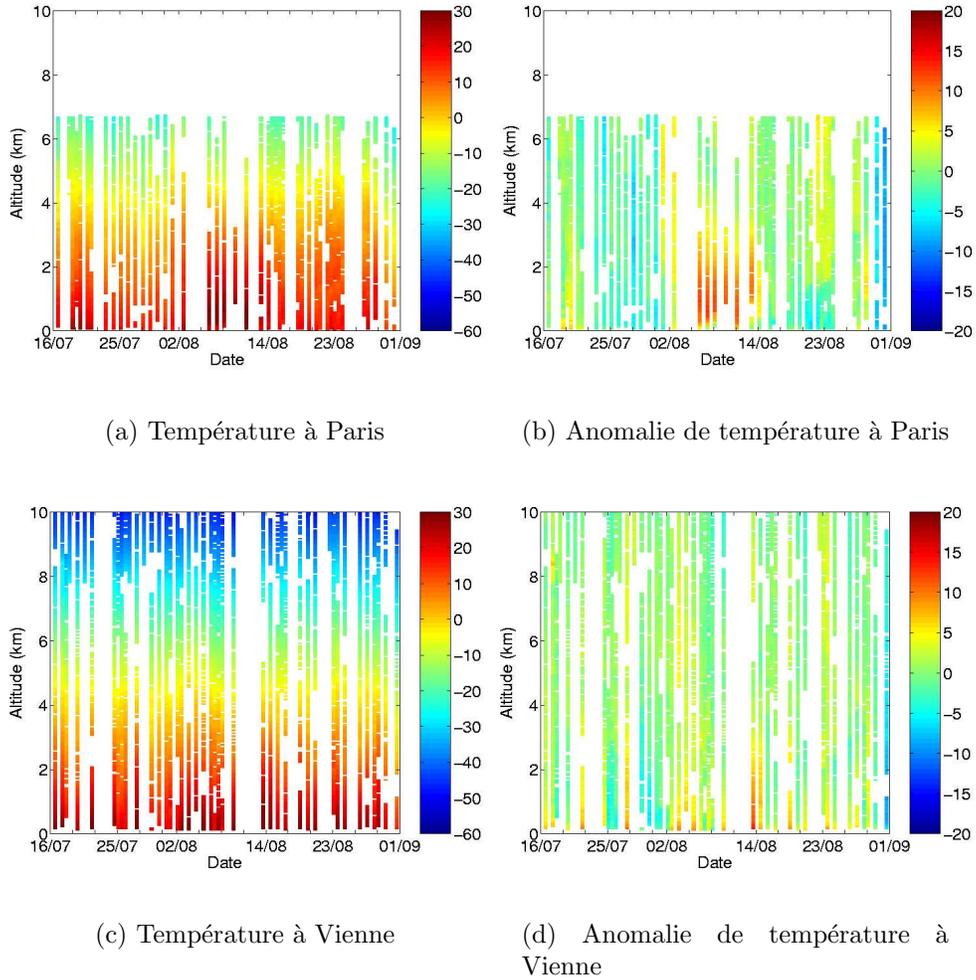


FIG. 2.3 – Série temporelle des profils verticaux MOZAIC de température et d’anomalie de température en (°C) du 16 Juillet au 31 Août 2003. Les anomalies sont calculées à partir des 10 ans de climatologie.

2.2 Résultats complémentaires

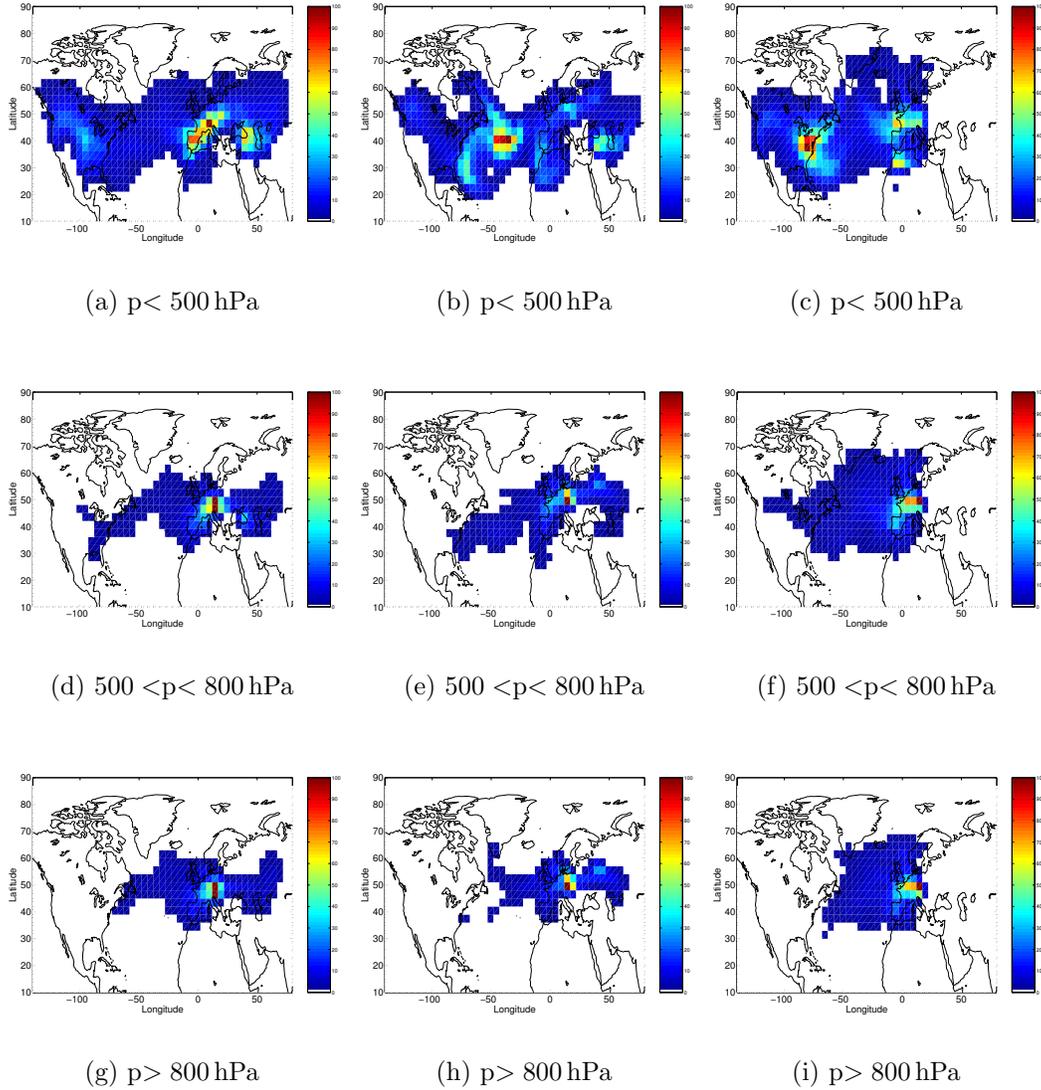
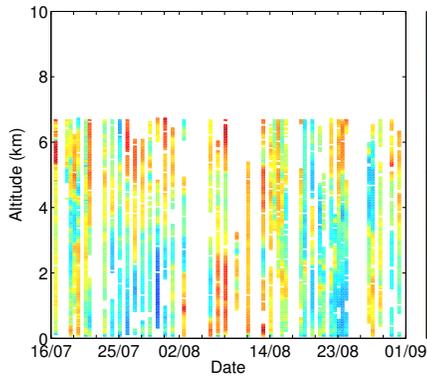
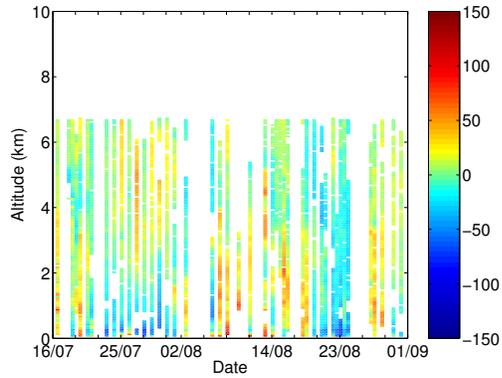


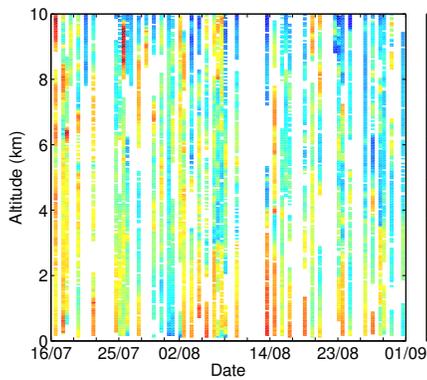
FIG. 2.4 – Distribution géographique, entre 0 km et 3 km, du temps de résidence des particules pour les différents niveaux d'initialisation MOZAIC à Vienne. De gauche à droite : avant (16-31 Juillet), pendant (2-14 Août) et après (16-31 Août) la canicule.



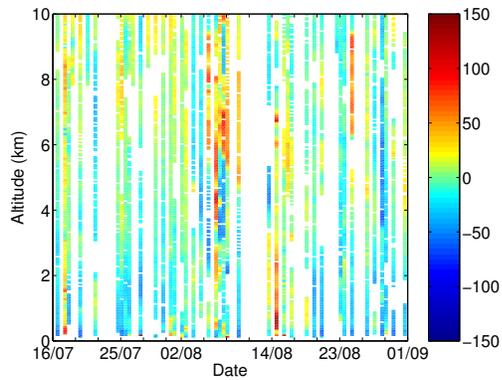
(a) Anomalie d'ozone à Paris



(b) Anomalie de CO à Paris



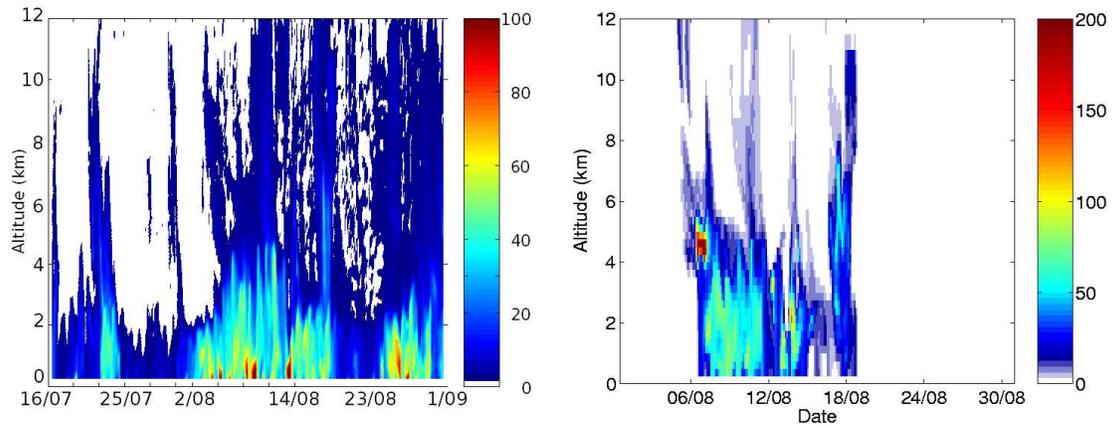
(c) Anomalie d'ozone à Vienne



(d) Anomalie de CO à Vienne

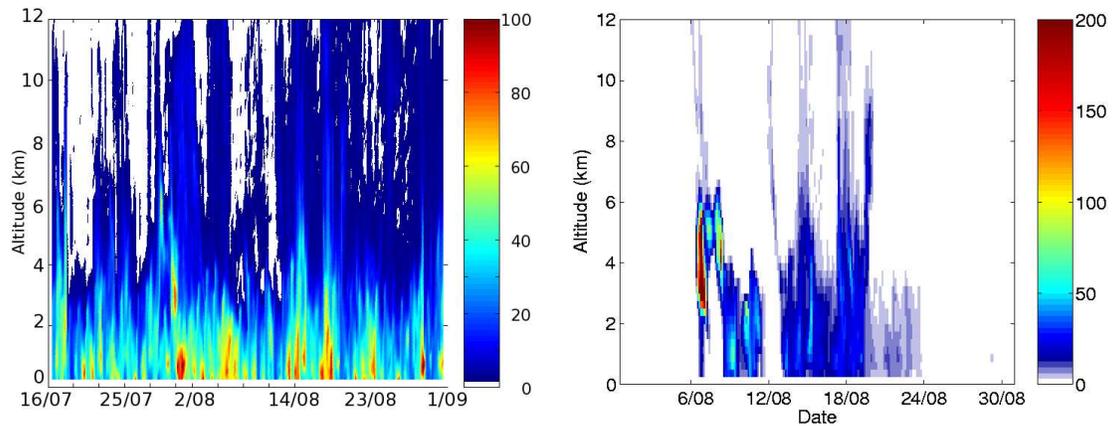
FIG. 2.5 – Série temporelle des profils verticaux MOZAIC des anomalies de rapport de mélange d'ozone et de CO (en pbv) du 16 Juillet au 31 Août 2003 à Paris et Vienne. Les anomalies sont calculées à partir des 10 ans de climatologie.

2.2 Résultats complémentaires



(a) CO européen à Paris

(b) CO feu à Paris



(c) CO européen à Vienne

(d) CO feu à Vienne

FIG. 2.6 – Série temporelle des profils verticaux du rapport de mélange du CO (en pbv), simulé avec FLEXPART, provenant des émissions anthropiques européennes et des feux de biomasse portugais, à Paris et Vienne.

Chapitre 3

Modélisation du bilan régional de l’ozone pendant la canicule

L’étude précédente m’a permis d’identifier les processus dynamiques favorables au transport de la pollution observée en Europe pendant la vague de chaleur de l’été 2003. Cette pollution est le fruit des sources locales anthropiques auxquelles s’ajoute le transport des émissions des feux de biomasse portugais favorisé par le déplacement de la dépression autour de l’anticyclone positionné sur la France. D’autres processus comme la diminution du puits d’ozone lié au dépôt sec ou l’accroissement des émissions biogéniques sont cependant nécessaires pour atteindre les niveaux de pollution observés (Vautard et al., 2005 [75]). Le recours à un modèle de chimie-transport est incontournable pour analyser l’impact relatif de ces processus sur l’ozone dans la couche limite et la troposphère libre. Pour réaliser ce travail, le modèle GEOS-Chem développé initialement à l’université d’Harvard et implémenté au LMCA (Laboratoire de Modélisation de la Chimie Atmosphérique) à l’EPFL (Ecole Polytechnique Fédérale de Lausanne) par le Dr I. Bey a été utilisé sur la période de l’été 2003. J’ai eu l’occasion d’analyser les résultats du modèle GEOS-Chem lors d’un séjour de deux mois (15/09/2007-18/11/2007) au LMCA pour cette étude exploratoire. La configuration du modèle utilisée pour cette étude préliminaire est présentée dans la section 3.2. Les résultats du modèle en terme de température, de vapeur d’eau,

d’ozone et de CO sont ensuite confrontés aux données MOZAIC pour la période de l’été 2003. Enfin divers scénarii sont proposés pour analyser la sensibilité des niveaux d’ozone et de CO simulés aux émissions anthropiques et aux feux de forêt.

3.1 Etat des modèles globaux

Dans cette section, il sera question de présenter les résultats des modèles globaux de chimie-transport (MCT) dans le cas des simulations d’ozone et de CO pour situer la qualité de ceux-ci et les paramètres à prendre en compte pour la suite. Dans l’étude comparative de plusieurs MCT de Schindell et al., (2006) [62], une sous-estimation du CO, à l’échelle globale, a été mise en lumière tout au long du cycle annuel. Pour l’hémisphère Nord, elle est maximale au printemps (40 ppbv à 500 hPa) et est attribuée en majorité à la sous-estimation des émissions par les fuels fossiles notamment en Asie de l’Est et par les feux de biomasse. D’autres facteurs comme la mauvaise distribution géographique des émissions de méthane, qui par oxydation produit du CO, ainsi que l’accumulation du CO en hiver lorsque les concentrations en OH sont faibles sont mis en cause dans cette sous-estimation. Le biais moyen entre les MCT et les observations est de 25 ppbv à 500 hPa pour les trois mois d’été. Il faut aussi prendre en compte que c’est pendant le mois de Juillet que les MCT présentent les plus faibles concentration en CO alors que le minimum est observé en Septembre. Ce caractère peut conduire à une sous-estimation de l’ozone dans les modèles dont il faut tenir compte par la suite. Dans le cas de l’ozone, les modèles retracent relativement bien les concentrations dans la troposphère avec une intensité comprise dans l’écart-type des observations pour les latitudes extratropicales de l’hémisphère Nord (Stevenson et al., 2006 [65]). L’intensité du cycle saisonnier est sous-estimée avec une sur-estimation des concentrations d’ozone de 10 ppbv en hiver à mettre en relation avec un cycle saisonnier d’émissions anthropiques trop faible ou avec des défaillances dans la modélisation de l’apport d’ozone stratosphérique. Pour l’été, les concentrations d’ozone ne diffèrent que très peu des mesures. Dans le cas de GEOS-Chem, l’étude de Auvray et Bey (2005) [4] évaluant la modélisation de l’ozone au-dessus de l’Europe a mis en évidence une sous-estimation des

concentrations pour l'été de 5 à 10 ppbv dans la troposphère libre. A la surface, le modèle sur-estime légèrement les niveaux moyens d'ozone de l'après-midi car il ne capture pas les épisodes de faibles concentrations.

GEOS-Chem a déjà été utilisé pour modéliser les niveaux d'ozone rencontrés pendant la canicule d'Août 2003 en Europe (Guerova et Jones, 2007 [33]). Cette étude se focalise seulement sur les concentrations d'ozone en surface et au site du Jungfraujoch en comparant les mois d'Août 2003 et 2004. Les résultats montrent une meilleure simulation des variations et de l'intensité des niveaux d'ozone en Août 2003 par rapport à Août 2004 en surface et en altitude. Mais ces résultats dénotent cependant des différences importantes au sein du mois d'Août 2003. En effet, les concentrations modélisées d'ozone en surface, moyennées sur l'Europe, sont sous-estimées de 6,5 ppbv pendant la première moitié du mois. En altitude, le biais est plus important mais reste inexpliqué. Le modèle indique un impact prédominant des sources anthropiques européennes dans les niveaux atteints par l'ozone (40 à 50 % soit 30 pbv) mais qui reste comparable à l'année 2004 sauf sur l'Europe de l'ouest et le golfe de Gascogne. La contribution des émissions biogéniques est deux fois plus importante en 2003 qu'en 2004 (10 % soit 5 – 6 ppbv) et les feux de biomasse ne semblent pas avoir eu d'effets hormis à proximité immédiate des foyers. La température modélisée présente des variations temporelles en accord avec les observations mais avec une forte sous-estimation atteignant -6°C à Bâle. Cette sous-estimation est attribuée à une résolution trop large du modèle ne pouvant pas prendre en compte les effets locaux et topographiques et les effets possibles sur les concentrations d'ozone ne sont pas indiqués. Enfin, cette étude ne présente pas les résultats de modélisation des processus physiques (dépôt sec, hauteur de la couche limite) et des concentrations des précurseurs (CO , NO_x) ayant pu jouer un rôle dans l'augmentation des concentrations observées en Europe.

3.2 Présentation du modèle

Le modèle GEOS-Chem est un modèle global de chimie transport couplant la chimie gazeuse et les aérosols suivant Bey et al. (2001) [9], Martin et al. (2003) [46] et Park et

al. (2004) [52] (<http://www.as.harvard.edu/chemistry/trop/geos>). Les simulations pour l’été 2003 ont été réalisées à partir de la version v7-03-06, pilotée par les observations météorologiques assimilées du « Goddard Earth Observing System » (GEOS-4) du service « Global Modeling and Assimilation Office » (GMAO) de la NASA. Les champs météorologiques de GEOS-4 fournissent la température, la pression de surface, le contenu en eau, les vents, les nuages, les précipitations, les flux massiques de convection, la hauteur de la couche de mélange et les propriétés de surface. Ces champs sont fournis avec un pas de temps de 6 heures, réduit à 3 heures pour les variables de surface et les hauteurs de mélange. La résolution horizontale du modèle utilisée ici est de $2^\circ \times 2,5^\circ$ en latitude-longitude. Sur la verticale, le modèle dispose de 30 niveaux s’étirant de la surface à une altitude où la pression est de 0,01 hPa. Dans la couche limite, les niveaux sont espacés d’approximativement 150 m. L’espacement des niveaux augmente avec l’altitude et il est de l’ordre de 1 km à 12 km d’altitude. L’advection et la convection sont gérées avec un pas de temps de 15 minutes. L’advection est issue du schéma semi-Lagrangien en forme de flux multidimensionnel de Lin and Rood, 1996 [43]. Pour la convection humide, le modèle utilise les flux de masse de convection, d’entraînement et de déentraînement d’après Allen et al. (1996) [2] [1]. La physique dans le système d’analyses de GEOS-4 est dérivée du « National Center for Atmospheric Research (NCAR) Community Climate Model, Version 3 (CCM3) » et du « Whole Atmosphere Community Climate Model (WACCM) » avec des modifications pour rendre possible l’assimilation des données (Bloom et al., 2005 [10]). Un mélange turbulent est assuré dans la couche limite planétaire dont le sommet est estimé de façon diagnostique à l’aide du nombre de Richardson (Bloom et al., 2005 [10]).

Dans GEOS-Chem, la chimie troposphérique inclut plus de 80 espèces et 300 réactions chimiques pour décrire la photochimie des O_x - NO_x -VOC (Horowitz et al., 1998 [36]). Les réactions hétérogènes sur les aérosols sont aussi modélisées et décrites par Jacob, 2000 [39] et Martin et al., 2003 [46]. Les fréquences des taux de photolyse sont extraites de l’algorithme FAST-J développé par Wild et al., 2000 [82]. Au dessus de la tropopause, diagnostiquée avec un critère sur le gradient de température de 2 K/km, une représentation simplifiée de la chimie est utilisée incluant les sources et les puits de NO_y , de CO et

de formaldéhyde. Le taux de production mensuel moyen pour les NO_y est fourni par le modèle bi-dimensionnel de Schneider et al., (2000) [60], avec l'information sur le rapport NO_x/HNO_3 pour partitionner les NO_y . Cette représentation même simplifiée de la chimie stratosphérique apporte une source de NO_y pour la troposphère. Le flux d'ozone stratosphérique à travers la tropopause est paramétrisé selon la méthode Synoz (« synthetic ozone ») proposé par MC Linden et al., (2000) [47].

Les émissions anthropiques de NO_x , de CO, d'hydrocarbures et de sulfures sont dérivées du cadastre GEIA (« Global Emissions Inventory Activity ») de 1985 avec les mises à jour des inventaires nationaux. Ces émissions sont ajustées à l'année voulue en utilisant des facteurs correctifs décrits dans Bey et al. (2001) [9]. Le modèle émet les espèces d'origine anthropique dans le premier niveau du modèle (de 107 m à 234 m approximativement) sauf pour les NO_x qui sont émis dans les deux premiers niveaux (de 107 m à 488 m approximativement) pour tenir compte des rejets par les cheminées industrielles. Les émissions biogéniques concernent les espèces suivantes : isoprène, alcènes (avec plus de 2 atomes de carbone), acétone, monoterpènes et méthyl buténol. Le modèle utilise l'algorithme MEGAN pour calculer les émissions biogéniques de façon pronostique en fonction des paramètres météorologiques et des propriétés de surface (Guenther et al., 2006 [31]). La combustion des biofuels est estimée d'après l'inventaire de Yevich et Logan, 2003 [83]. Les espèces issues de cette combustion sont : les NO_x , le CO, les alcanes (avec plus de 3 atomes de carbone), l'acétone, le méthyl éthyl cétone, l'acétaldehyde, les alcènes (avec plus de 2 atomes de carbone), le propane, le formaldéhyde et l'éthane. Les NO_x émis par les sols dans le modèle suivent la formulation de Wang et al., 1998 ([80]) prenant en compte le type de végétation, la température, l'historique des précipitations, l'utilisation de fertilisants et un facteur réductif provenant de la canopée. Les oxydes d'azote produits par les éclairs sont aussi pris en compte avec une distribution verticale des émissions, d'une résolution de 0,16 km (Pickering et al., 1998 [54]). La production des NO_x par les avions est aussi traitée par le modèle avec des émissions en moyennes mensuelles, en kg de $\text{NO}_x/4$ h. Cette production est basée sur les valeurs de Wang et al., 1998 ([80]). Le transport par les navires est une source importante de SO_2 qui est modélisée selon les valeurs décrites par Corbett et

al., 1999 [16]. Les inventaires climatologiques des émissions de gaz par les feux de biomasse proviennent de Duncan et al., 2003 [21]. Ils sont redistribués mensuellement dans le temps et l’espace en accord avec l’occurrence des feux détectés par le satellite AATSR (« Advanced Along Track Scanning Radiometer », Arino et Melinotte, 1995 [3]) pour tenir compte des variabilités saisonnières et interannuelles. La comparaison avec des données satellites a montré l’amélioration des simulations par l’apport de données journalières pour les feux dont l’implémentation dans GEOS-Chem est détaillée par Generoso et al., 2007 [28]. Les espèces prises en compte sont les mêmes que pour les émissions provenant de la combustion des biofuels. Dans le cas des feux, le modèle émet ces espèces à tous les niveaux compris dans la couche limite planétaire de façon homogène.

3.3 Simulation standard pour l’été 2003

La simulation standard correspond à une simulation basée sur les entrées et la physique type du modèle. Dans ce qui suit, seuls les 13 premiers niveaux verticaux des variables modélisées, correspondant à la région échantillonnée par les avions MOZAIC, seront utilisés. La simulation démarre le 1^{er} Janvier 2003 mais nous présenterons seulement les résultats pour l’été, période comprise entre le 1^{er} Juin et le 31 Août, avec un intérêt pour la période caniculaire affectant le début du mois d’Août. Les mesures effectuées au-dessus des trois aéroports sont prises en compte pour évaluer la simulation. Nous regarderons plus en détail la période d’étude utilisée dans le Chapitre précédent (16 Juillet au 31 Août cf. Chapitre 2).

Pour discuter de la représentativité du modèle, le coefficient de corrélation et le biais absolu entre le modèle et les observations ont été calculés à 800, 500 et 300 hPa. Les sorties du modèle fournissent les paramètres moyennés sur 24 h sauf pour la hauteur de la couche limite calculée entre 12 et 16 h, heure locale. Les observations issues des vols MOZAIC subissent le même traitement de moyennage. La comparaison avec les valeurs du modèle s’effectue pour la maille dans laquelle est situé l’aéroport à 800 et 500 hPa. A plus haute altitude, la trajectoire des vols tend à éloigner les avions de l’aéroport (durant l’été 2003

les avions sont en moyenne à 345 km de Francfort à 300 hPa), la moyenne d'un paramètre sera donc plus représentative d'une région et ne correspondra pas à une seule maille du modèle dans le cas où les avions se trouvent à l'opposé l'un de l'autre par rapport à la ville. Au niveau le plus élevé (300 hPa), les comparaisons entre modèle et observations seront effectuées par rapport à une moyenne sur les 9 mailles du modèle placées autour de la maille de l'aéroport.

3.3.1 Température et vapeur d'eau

En premier lieu, les températures durant l'été 2003 ont fait état d'importantes anomalies positives. Ces valeurs élevées de température sont correctement représentées par le modèle GEOS-Chem. La Figure 3.1 présente les variations de température pour la période d'étude pour 3 niveaux verticaux de pression définis selon $p=800$ hPa, 500 hPa et 300 hPa.

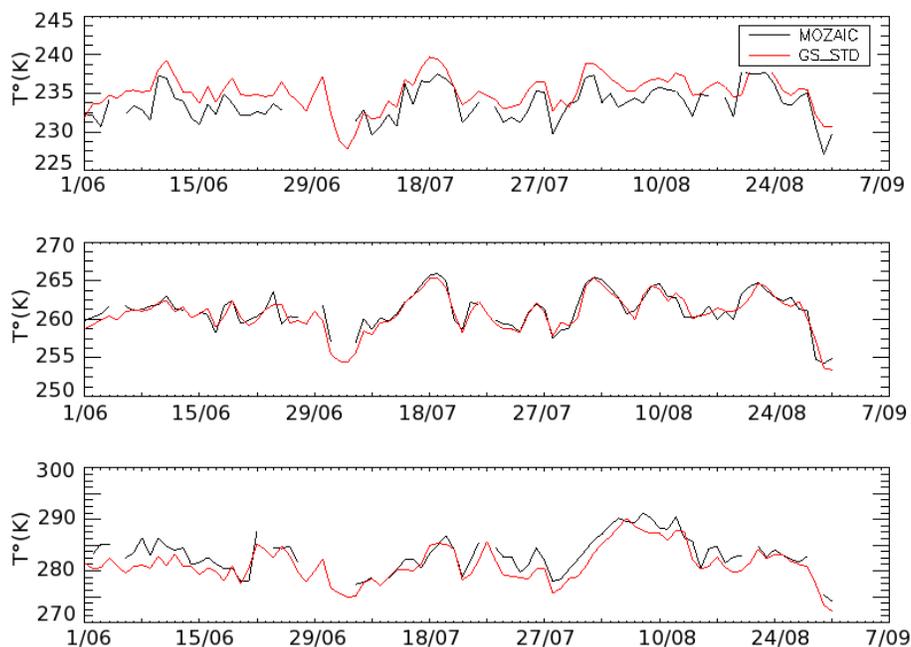


FIG. 3.1 – Evolution de la température (en K) à Francfort du 1^{er} Juin au 31 Août pour les niveaux de pression (de bas en haut : 800 hPa, 500 hPa et 300 hPa). La température MOZAIC est représentée en noir et la température GEOS-Chem en rouge.

L’évolution temporelle des températures pour l’été 2003 est bien représentée avec une forte augmentation pendant la canicule pour les trois niveaux observés. Le Tableau 3.1 résume les coefficients de corrélation à 800, 500 et 300 hPa. Les coefficients de corrélation sont élevés quelle que soit l’altitude avec des valeurs supérieures à 0,8. Cependant un biais est obtenu avec une sous-estimation par le modèle des températures dans la couche limite jusqu’à -2°C (-6°C dans l’étude de Guerova et al, 2007 [33]) et une sur-estimation des températures dans la haute troposphère jusqu’à $+2^{\circ}\text{C}$. Ce biais est confirmé par les comparaisons effectuées à Paris et Vienne. Les valeurs d’un biais de -2°C , trouvées en surface, se répercuteront sur les concentrations en ozone, de part la forte corrélation entre ces dernières et les températures. D’après l’étude d’Ordonez et al. (2005) [50] la température de l’après midi est le paramètre météorologique possédant le poids le plus important dans le maximum d’ozone journalier observé en surface y compris pour la période caniculaire. Dans les régions urbanisées, un changement de $+1^{\circ}\text{C}$ pour la température, quand celle-ci est supérieure à 300 K, peut se traduire par une augmentation de la concentration en ozone de 1,4 à $+8$ ppbv par l’intermédiaire de la décomposition du PAN (Sillman et Samson, 1995) [63]). A ce stade, les concentrations d’ozone modélisées seront donc inférieures à celles mesurées dans le plus bas niveau. A haute altitude, le biais positif peut avoir des conséquences sur l’activité chimique en favorisant la vitesse des réactions.

Niveau de pression (hPa)	800	500	300
Coefficient de corrélation	0,9081	0,9265	0,8441
Biais (GEOS-Chem - MOZAIC) (K)	-1,72	-0,27	1,75

TAB. 3.1 – Coefficient de corrélation et biais ($^{\circ}\text{C}$) entre les températures GEOS-Chem et MOZAIC pour Francfort et selon les 3 niveaux de pression du 1^{er} Juin au 31 Août.

Le rapport de mélange de l’eau ne présente pas de résultats aussi encourageants que ceux rencontrés précédemment pour les températures. Sur la Figure 3.2, le rapport de mélange de la vapeur d’eau modélisé par GEOS-Chem affiche une évolution temporelle cohérente à celle des mesures MOZAIC mais avec une intensité des variations mal représentée. Pour les deux niveaux les plus près de la surface, le coefficient de corrélation est compris entre 0,5 et 0,75

pour Francfort et Vienne. En altitude, l'air étant plus sec la modélisation devient beaucoup plus délicate et la variabilité intrinsèque est plus mal représentée comme le confirme les valeurs statistiques (Tableau 3.2). Les coefficients de corrélation sont respectivement de 0,32 et 0,43 pour Vienne et Francfort. Le rapport des valeurs entre Geos-Chem et MOZAIC est constant avec l'altitude avec une valeur proche de 0,85 traduisant un manque de vapeur d'eau d'approximativement 15 % dans le modèle pour les 2 niveaux les plus bas et ce pour chaque ville. Plus haut, le rapport atteint 0,79 et traduit un air plus sec dans le modèle de 21 %. Pendant la période caniculaire, la tendance est encore plus marquée et le modèle simule des rapports de mélange de la vapeur d'eau 20 % inférieurs à ceux mesurés par MOZAIC pour les niveaux 800 et 500 hPa. La sous-estimation systématique du rapport de mélange de la vapeur d'eau par le modèle induit une diminution du puits d'ozone par celle-ci selon l'équation 1.12a rappelée dans la Section 1.2.4. De ce fait, il existe une source potentielle de sur-estimation de l'ozone dans le modèle, notamment dans la couche limite.

Niveau de pression (hPa)	800	500	300
Coefficient de corrélation	0,7559	0,6248	0,4266
Biais (GEOS-Chem - MOZAIC) (g/kg)	-0,56	-0,14	-0,03

TAB. 3.2 – Coefficient de corrélation et biais (°C) entre les rapports de mélange de la vapeur d'eau GEOS-Chem et MOZAIC pour Francfort et selon les 3 niveaux de pression du 1^{er} Juin au 31 Août.

3.3.2 Monoxyde de carbone et ozone

Monoxyde de carbone

La représentation du monoxyde de carbone par le modèle semble plus délicate que pour les autres paramètres observés avec une sous-estimation récurrente à tous les niveaux. Les coefficients de corrélation entre les mesures MOZAIC et les valeurs simulées illustrent les difficultés du modèle à représenter l'évolution temporelle du CO pendant l'été. Les coefficients de corrélation et les biais entre la simulation et les mesures sont présentés dans le Tableau 3.3 pour les 3 niveaux de pression sélectionnés.

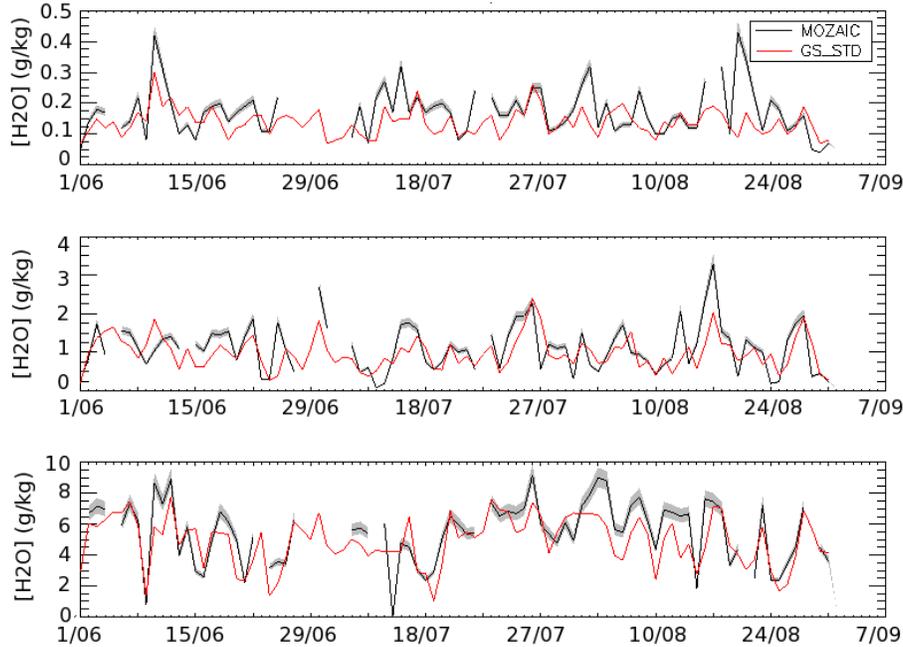


FIG. 3.2 – Evolution de la vapeur d’eau (en g/kg) à Francfort du 1^{er} Juin au 31 Août pour les niveaux de pression (de bas en haut : 800 hPa, 500 hPa et 300 hPa). Les valeurs pour MOZAIC sont représentées en noir et en rouge pour GEOS-Chem. La zone grisée présente l’erreur de mesure.

La modélisation du CO (Fig. 3.3) se dégrade avec l’altitude et le biais est maximum au milieu de la troposphère. La sous-estimation est forte à tous les niveaux avec respectivement -10% , -25% et -17% par rapport aux données MOZAIC à 800 hPa, 500 hPa et 300 hPa.

A 800 hPa, l’augmentation du CO pendant la première semaine de la canicule est bien représentée par le modèle mais après le 5 Août ce n’est plus le cas. Les conditions atmosphériques différentes entre ces deux périodes avec un changement de flux apportant de l’air en provenance du sud ramenant les émissions par les feux de biomasse Portugais sur l’Europe expliquent vraisemblablement cette différence. Comme on le verra, le cadastre standard d’émission par les feux n’étant pas journalier, l’apport supplémentaire de CO ne se fait pas au bon moment et n’est pas suffisant pendant la seconde semaine de la canicule. A 500 hPa, le modèle sous-estime pour toute la période d’étude les rapports de mélange de CO. A 300 hPa et après le 7 Août, les niveaux modélisés rejoignent ceux mesurés par

Niveau de pression (hPa)	800	500	300
Coefficient de corrélation	0,4005	0,1995	0,1274
Biais (GEOS-Chem - MOZAIC) (ppbv)	-23,61	-28,81	-17,12

TAB. 3.3 – Coefficient de corrélation et biais (ppbv) entre les rapports de mélange du CO provenant de GEOS-Chem et de MOZAIC pour Francfort et selon les 3 niveaux de pression du 1^{er} Juin au 31 Août.

MOZAIC. Une explication possible est la présence d'une anomalie légèrement négative des mesures par rapport à la climatologie (cf. Fig. 8b de l'Article) pour l'après canicule. Les conditions météorologiques de cette période (16-31 Août) semblent favorables à une meilleure modélisation du CO avec le retour du flux zonal trans-Atlantique. Ce comportement se retrouve sur les profils simulés pour les trois périodes (Fig. 3.4).

La comparaison des profils mesurés et observés illustre le déficit de CO dans le modèle à tous les niveaux avec des valeurs proches de 20 ppbv. Ces résultats sont en accord avec l'écart moyen de 25 ppbv entre les modèles globaux et les observations trouvé par Shindell et al., (2006) [62] à 500 hPa. En plus de l'écart général des modèles globaux, il faut ajouter une saison des feux en Russie particulièrement virulente ayant pu participer à créer une valeur de fond en CO encore plus élevée en affectant tout l'hémisphère Nord (Damoah et al., 2004 [20]; Generoso et al., 2007 [28]). Dans GEOS-Chem, l'écart avec les observations est maximal vers 4 km d'altitude pour les mois de Juin et Août avec une intensité proche de -40 ppbv s'expliquant ici en partie par une sous-estimation des émissions en Europe (anthropiques, feux de biomasse) et par une possible accumulation due aux temps de résidence plus long que la normale des masses d'air au-dessus du continent pour ces deux mois.

Ozone

Lors de l'été 2003, les épisodes de pollution se sont succédés sur toute l'Europe et ont atteint leur paroxysme pendant la canicule. La simulation standard GEOS-Chem rend bien compte des niveaux élevés d'ozone de l'été avec une évolution temporelle relativement bien représentée au niveau 800 hPa (Fig. 3.5). Mais la qualité des résultats diminue avec

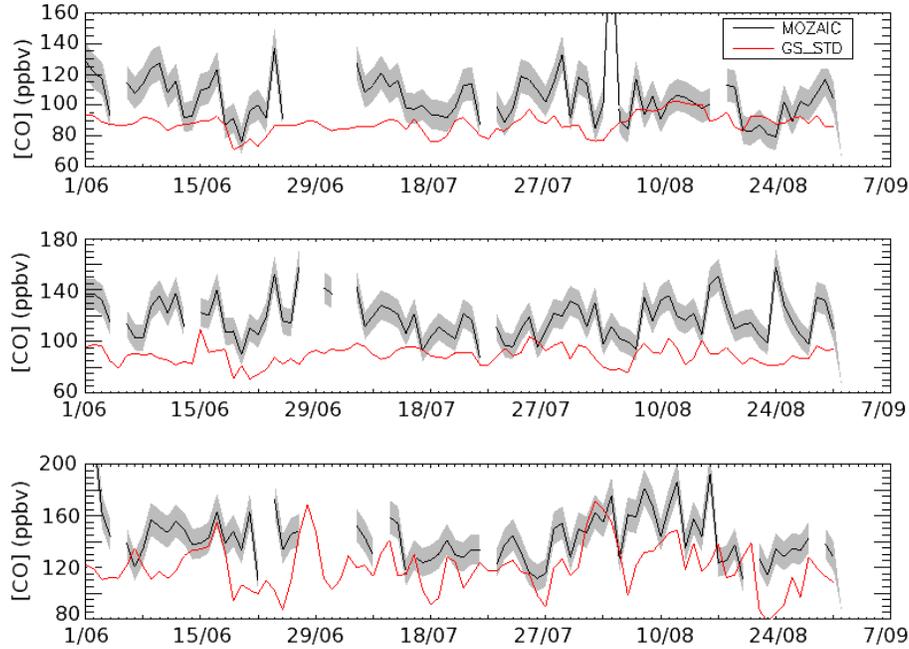


FIG. 3.3 – Evolution du rapport de mélange du CO (ppbv) à Francfort du 1^{er} Juin au 31 Août pour les niveaux de pression (de bas en haut : 800 hPa, 500 hPa et 300 hPa). Les valeurs pour MOZAIC sont représentées en noir et en rouge pour GEOS-Chem. La zone grisée présente l’erreur de mesure.

l’altitude avec notamment une sous-estimation maximale des valeurs simulées à 500 hPa comme le montre le Tableau 3.4 qui présente les coefficients de corrélation ainsi que le biais (en ppbv) pour l’ozone mesuré vis-à-vis de l’ozone modélisé à Francfort durant l’été.

Niveau de pression (hPa)	800	500	300
Coefficient de corrélation	0,7548	0,4274	0,1268
Biais (GEOS-Chem - MOZAIC) (ppbv)	-3,23	-9,71	-10,21

TAB. 3.4 – Coefficient de corrélation et biais (°C) entre les rapports de mélange de l’ozone provenant de GEOS-Chem et de MOZAIC pour Francfort et selon les 3 niveaux de pression.

Les deux périodes de fortes concentrations en ozone durant la canicule (2-5 Août et 8-14 Août) sont bien représentées à 800 hPa (Fig. 3.5). Pour ce niveau, les valeurs du coefficient de corrélation s’approchent de celles de l’étude de Guerova et al. (2007) [33] (coefficient de corrélation de 0,63 vis-à-vis des stations EIONET : « European Environment Information

3.3 Simulation standard pour l'été 2003

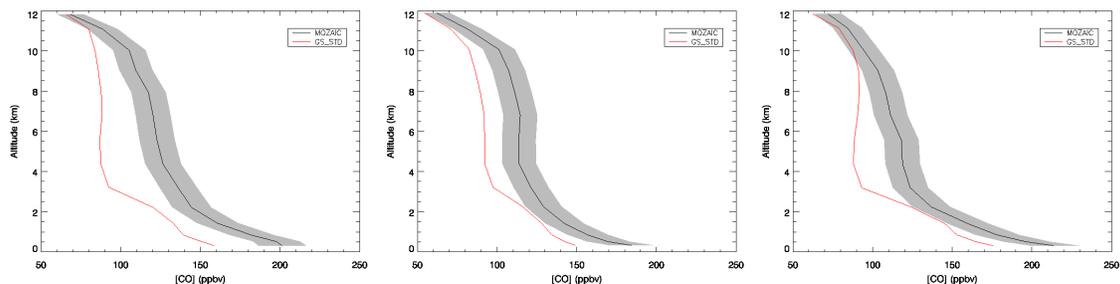


FIG. 3.4 – Profil du rapport de mélange du CO (ppbv) pour les données MOZARC (noir) et GEOS-Chem (rouge) pour les mois de Juin, Juillet et Août (de gauche à droite). La zone grisée présente l'erreur de mesure.

and Observation Network»). Par contre, l'évolution temporelle montre un certain retard de la modélisation à reproduire les forts gradients de concentration en ozone. A 500 hPa, la modélisation des trois mois d'été présente quelques difficultés. Ces dernières sont encore plus importantes à 300 hPa. L'évolution temporelle n'est pas concluante pour ces deux niveaux (500 et 300 hPa) et les biais sont particulièrement élevés comme l'avaient remarqué Auvray et Bey (2005) [4] pour l'année 1997. Pendant la canicule, une augmentation du rapport de mélange de l'ozone, à 800 hPa, est modélisé par GEOS-Chem en accord avec les observations. Il est intéressant de noter que malgré la sous-estimation du puits d'ozone par la vapeur d'eau, le modèle tend à sous-estimer les rapports de mélange de l'ozone dans la couche limite. Cette sous-estimation de l'ozone par le modèle est la conséquence probable de la sous-estimation des niveaux de monoxyde de carbone et des valeurs de température. A 500 hPa, l'augmentation d'ozone accompagnant la canicule est beaucoup moins bien modélisée. A noter que le biais y est plus faible pendant la seconde période avec des valeurs comprises entre -15 et -5 ppbv se réduisant avec le temps contre -25 ppbv pendant la première période. La stabilité des conditions atmosphériques durant la seconde période permet une stagnation des masses d'air et probablement une production « artificielle » de l'ozone dans le modèle réduisant ainsi l'intensité du biais (Guerova et Jones, 2007 [33]).

Les profils mensuels d'ozone pour les mois de Juin, Juillet et Août illustrent ce manque d'ozone dans la troposphère libre (Fig. 3.6)

Les variations entre les mois de l'été 2003 sont importantes et remarquables, la forme des

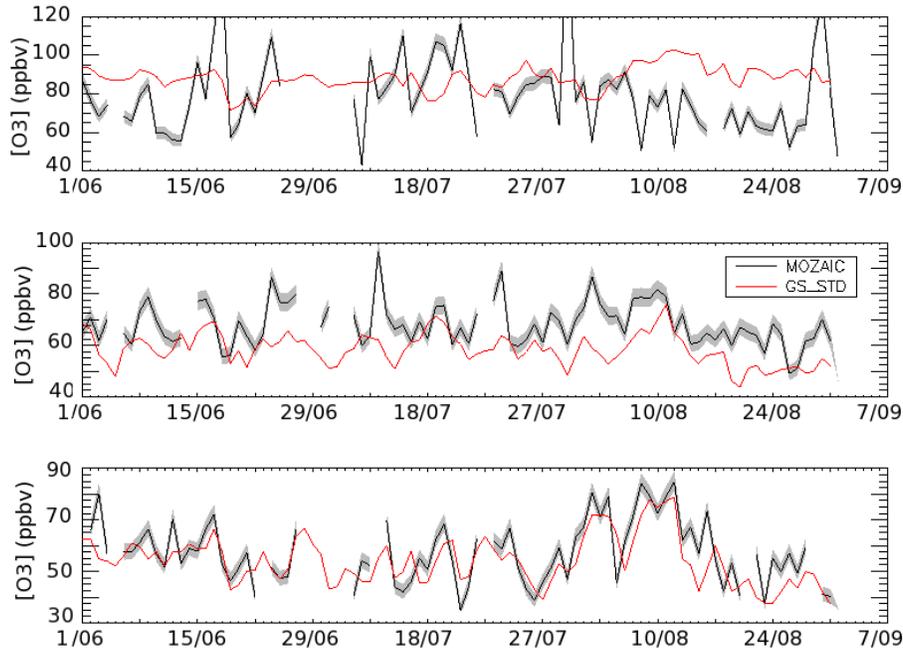


FIG. 3.5 – Evolution du rapport de mélange de l’ozone (ppbv) à Francfort du 1^{er} Juin au 31 Août pour les niveaux de pression (de bas en haut : 800 hPa, 500 hPa et 300 hPa). Les valeurs pour MOZAIC sont représentées en noir et en rouge pour GEOS-Chem. La zone grisée présente l’erreur de mesure.

profils en rend compte avec des évolutions fortement différentes avec l’altitude. Pour le mois de Juin, les valeurs des rapports de mélange observés et modélisés sont proches en-dessous de 2 km. Les résultats à ces altitudes sont encore meilleurs en Juillet où les concentrations issues de GEOS-Chem sont égales à celles observées. Nous devons toutefois noter que le mois de Juillet 2003 ne connut pas d’anomalies aussi fortes que les autres mois de cet été. Les niveaux atteints pendant ce mois sont plus proches de la climatologie. Au-delà de 2 km d’altitude, l’écart entre modélisation et observation augmente et le modèle sous-estime de plus de 5 ppbv. Pour le mois d’Août, l’augmentation de l’ozone simulée dans les basses couches n’est pas suffisante par rapport à celle mesurée par les avions. L’anomalie est très forte pendant le début du mois et malgré l’augmentation qui est correctement simulée (Fig. 3.5) le biais est plus important que pour les autres mois dans les basses couches. Au-dessus de ces altitudes, la différence reste équivalente à celle rencontrée pour les autres mois avec

3.3 Simulation standard pour l'été 2003

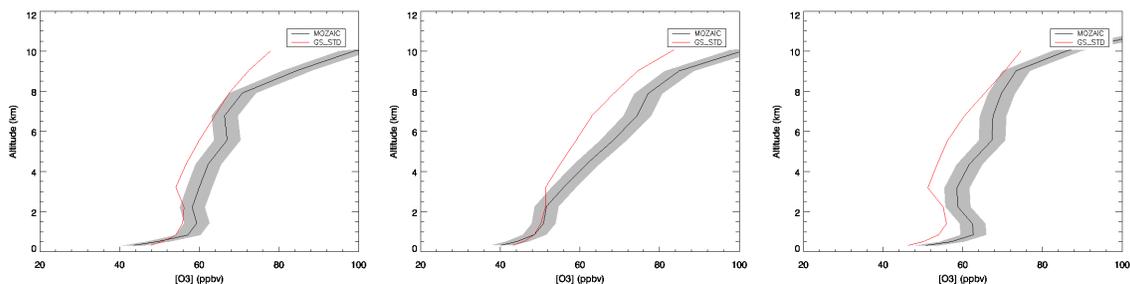


FIG. 3.6 – Profil du rapport de mélange de l’ozone (ppbv) pour les données MOZAIC (noir) et GEOS-Chem (rouge) pour les mois de Juin, Juillet et Août (de gauche à droite). La zone grisée présente l’erreur de mesure.

une intensité maximale entre 4 et 6 km au même niveau que pour le CO (cf. Section 3.3.2). Dans la suite, les processus ayant pu conduire à l’augmentation d’ozone pendant la vague de chaleur seront analysés.

3.3.3 Hauteur de la couche limite planétaire

Afin d’aider à l’interprétation des résultats du modèle en terme de mélange vertical des espèces chimiques, il est intéressant d’analyser la hauteur de la couche limite pendant la canicule. Ce paramètre est crucial car il détermine le piégeage et l’accumulation des espèces chimiques dans les conditions anticycloniques de la canicule. Lors de cette période, une anomalie dans la hauteur de la couche limite planétaire est attendue. Pendant la canicule, les conditions météorologiques exceptionnelles ont été favorables à une augmentation de la hauteur de la couche limite. Par l’intermédiaire de mesures LIDAR, d’anémomètres soniques, de radiosondages et d’aérosols une hauteur inhabituelle de la CLP de près de 5000 m a été observée dans les Alpes et à proximité (Lyon, Milan et Stuttgart) dans la seconde semaine de la canicule (Chapitre VII de la Thèse de Balin, 2004 [5]).

Ces résultats confortent nos estimations réalisées à partir des profils MOZAIC. Par exemple, la Fig 3.7 présente un des profils MOZAIC pris le 9 Août au-dessus de Francfort. Le décrochage de la température potentielle, le fort gradient négatif d’humidité relative et les changements des vitesses de vent font partie des indicateurs du sommet de la CLP les

plus courants. Ils nous indiquent une hauteur de CLP proche de 4,2 km d’altitude en début d’après midi. Une telle épaisseur de la couche limite n’est observée que pendant la seconde semaine de la canicule.

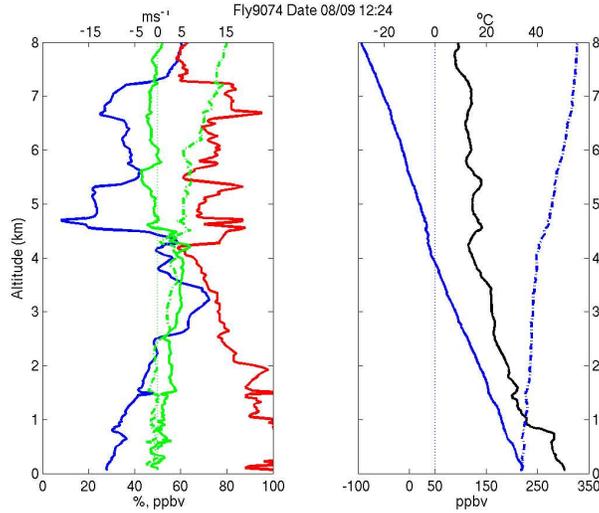


FIG. 3.7 – Profil MOZAIC pris le 9 Août 2003 entre 12h24 et 12h52 au-dessus de Francfort. A gauche : humidité relative (en bleu et %), ozone (en rouge et ppbv), vitesse du vent (en vert et $m \cdot s^{-1}$ zonal (ligne) et méridien (tiret) ; à droite : température ($^{\circ}C$), température potentielle (en pointillé et $^{\circ}C$) et le CO (en noir et ppbv)

Dans GEOS-Chem, le calcul de la hauteur de la couche limite planétaire (CLP) est réalisé à partir du nombre de Richardson et le diagnostic donne la valeur moyenne entre 12 h et 16 h locale (Figure 3.8). L’évolution de la hauteur de la CLP à Francfort ne présente aucune élévation permettant de déceler la présence d’une vague de chaleur de l’ampleur constatée au sein de l’été 2003. Cette évolution met en avant une CLP atteignant, au maximum, 3,3 km d’altitude avec une moyenne de 2,3 km. Le calcul de la hauteur de la CLP dans le modèle GEOS-Chem sous-estime donc les hauteurs de CLP observées. L’intensité de l’évènement avec en particulier les forts mouvements descendants des masses d’air associés à la circulation anticyclonique est peut être le facteur qui empêche le schéma de couche limite du modèle d’élever la hauteur de celle-ci aux altitudes observées. La sous-estimation de la hauteur de la couche mélangée favorise une accumulation de la pollution plus près de la surface dans le modèle en limitant les échanges avec la troposphère libre. Il est intéressant

de noter que malgré une plus faible épaisseur de la couche limite, le modèle sous-estime quand même les concentrations de CO près de la surface. Ce qui oriente la réflexion vers une sous-estimation des émissions de CO qui sera discutée dans la section 3.4.

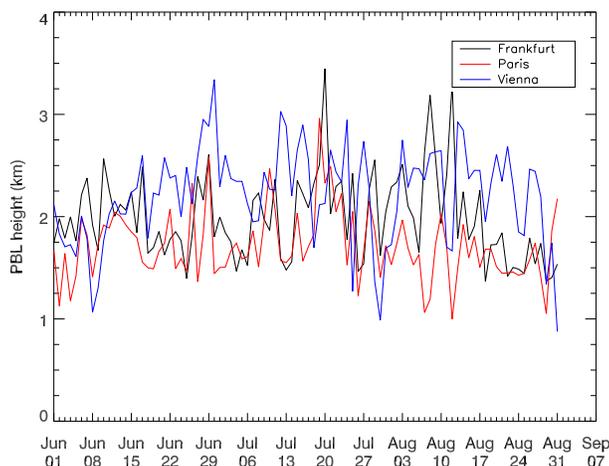


FIG. 3.8 – Evolution de la hauteur de la couche limite (en km) à Francfort (noir), Paris (rouge) et Vienne (bleu) du 1^{er} Juin au 31 Août modélisée par GEOS-Chem entre 12 et 16 h.

3.3.4 Emissions biogéniques

La pollution à l’ozone étant mieux représentée à proximité de la surface qu’en altitude, il est opportun d’observer le comportement des émissions ayant pu jouer un rôle dans la production d’ozone. Le modèle GEOS-Chem est couplé à l’algorithme MEGAN qui permet de calculer les émissions de la végétation en fonction des conditions météorologiques (température, rayonnement...) et de surface (type de végétation, type de sols...) Guenther et al., 2004 [31]. Dans le modèle, les espèces émises par ordre d’importance sont l’isoprène, les monoterpènes, le propène, l’acétone et le methyl buténol. La reproduction de ces émissions par le modèle est essentielle dans la mesure où celles-ci ont pu jouer un rôle non négligeable dans les niveaux atteints par l’ozone. L’évolution temporelle, visible sur la Figure 3.9(a) est très intéressante avec une croissance des émissions tout au long de l’été avec un maximum

atteint pendant la canicule et plus précisément lors de la première semaine. Il est difficile de comparer les résultats des simulations avec des mesures pour l'isoprène. En effet, ce dernier a un cycle diurne marqué et les mesures EMEP (Solberg et al., 1995 [64]) dont nous disposons ne sont effectuées que sur quelques dizaines de minutes dans la journée et même au milieu de forêts dans certains cas. C'est à ces endroits que les émissions sont les plus fortes et que l'on retrouvera donc les concentrations les plus élevées. Evidemment GEOS-Chem ne représente pas les valeurs atteintes de concentration d'isoprène en pleine forêt. Néanmoins les niveaux modélisés sont du bon ordre de grandeur et leur évolution temporelle indique correctement les épisodes de fortes concentrations. Un exemple est présenté sur la Figure 3.9(b) avec les rapports de mélange de l'isoprène modélisé et mesuré à Schmüke (centre de l'Allemagne). Le modèle reproduit donc bien l'augmentation des émissions biogéniques associée aux conditions météorologiques exceptionnelles de cette période. Cet apport de composés organiques volatils dans le modèle a participé à l'élévation des rapports de mélange de l'ozone près de la surface observé pendant la canicule avec une contribution proche de 8% sur une large partie de l'Europe (Guerova et Jones, 2007 [33]).

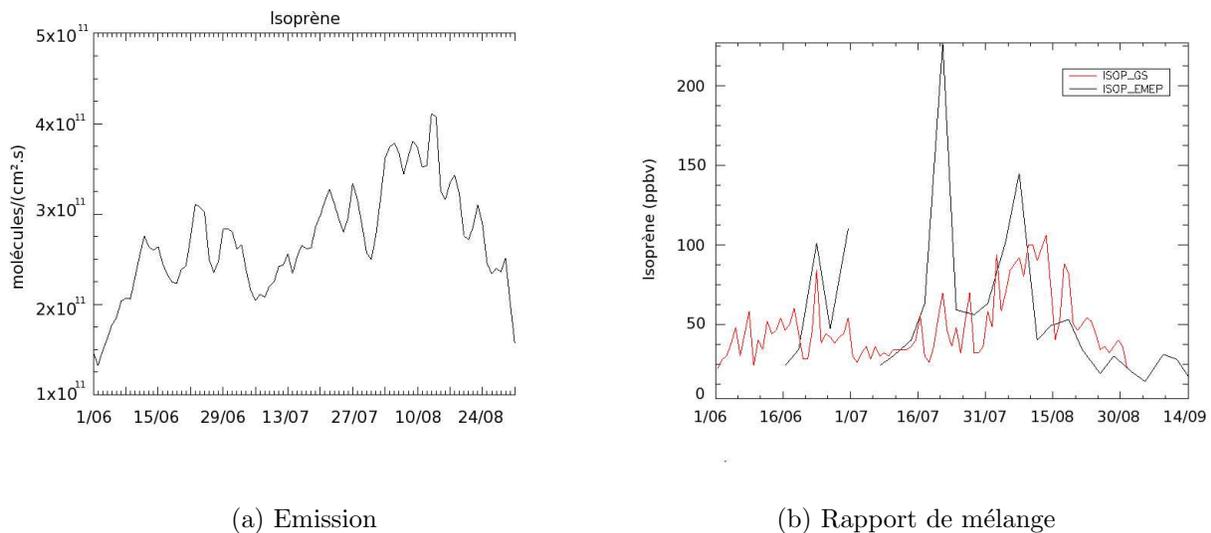


FIG. 3.9 – (a) Evolution temporelle des émissions d'isoprène moyennées sur l'Europe du 1^{er} Juin au 31 Août ($\text{molecules} \cdot \text{cm}^{-2} \cdot \text{s}^{-1}$). (b) Evolution temporelle du rapport de mélange de l'isoprène modélisé (rouge) et mesuré (noir) en pptv à Schmüke.

3.3.5 Dépôt sèche de l'ozone

Après avoir discuté des sources possibles ayant conduit à la production d'ozone, il faut s'intéresser aux modifications de la capacité des puits durant la canicule. L'activité de la déposition sèche est intimement liée aux conditions météorologiques et à l'état de la végétation. Le déficit de précipitations significatives en Europe de l'Ouest en 2003 pendant le printemps et l'été a fragilisé la végétation. A ce déficit, nous pouvons associer les températures élevées qui ont conduit à une diminution de la déposition sèche de l'ozone. Dans les simulations effectuées avec le modèle CHIMERE par Vautard et al., 2005 [75] une augmentation de la résistance par un facteur 2, liée à la fermeture des stomates de la végétation pour lutter contre les fortes températures, a dû être mise en place pour reproduire les pics d'ozone journaliers.

Les valeurs typiques de vitesse de déposition d'ozone en été varient entre 0,6 et 0,9 cm/s pour une irradiance solaire de 500 W/m^2 selon la végétation rencontrée (Wesely et Hicks, 2000 [81]). Pour l'été 2003, le modèle GEOS-Chem ne calcule pas de vitesse de déposition, en moyenne journalière, supérieure à 0,35 cm/s (Fig. 3.10).

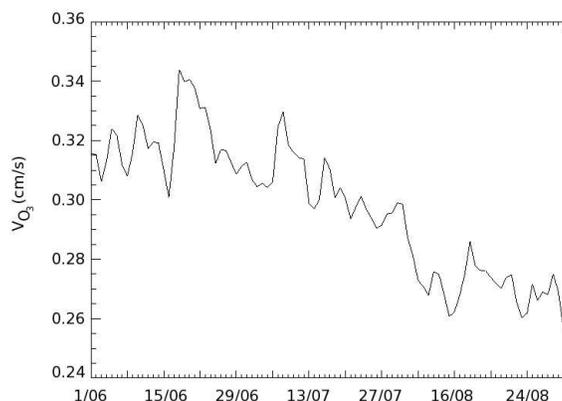


FIG. 3.10 – Evolution temporelle de la vitesse de déposition de l'ozone simulée (en cm/s) du 1^{er} Juin au 31 Août moyennée sur l'Europe.

Les vitesses de déposition de l'ozone en sortie de GEOS-Chem sont donc inférieures aux valeurs typiques. Ces valeurs semblent correspondre à ce qui s'est produit lors de

l’été 2003 avec un fort stress sur la végétation. Au mois de Juin, la vitesse de déposition présente des variations autour d’une valeur moyenne constante. Pour le mois suivant, nous observons une décroissance continue provenant certainement d’une réponse de la végétation aux faibles précipitations ainsi que de la diminution du rayonnement suivant le cycle solaire. La canicule qui arrive ensuite se distingue sur la Figure 3.10 par un décrochage brutal des vitesses de déposition vers des valeurs plus faibles de l’ordre de 0,26-0,27 cm/s, ce qui est pratiquement deux fois plus faible que les valeurs typiques. Ce décrochage est une conséquence des fortes températures à laquelle la végétation répond par une fermeture des stomates. Le modèle reproduit donc bien la décroissance du puits par dépôt sec qui contribue à l’augmentation de l’ozone simulé dans la couche limite. L’effet conjugué dans le modèle de l’augmentation des émissions biogéniques et de la diminution de la vitesse de dépôt s’explique par l’étendue des régions affectées par ces changements. En effet, le ralentissement de la vitesse de dépôt affecte la majeure partie de l’Europe jusqu’à proximité de la Russie alors que l’accroissement des émissions biogéniques est plus régional en se produisant exclusivement du Sud-Ouest au Nord-Est de la France ainsi que sur les Balkans.

3.4 Tests de sensibilité

La comparaison entre le modèle GEOS-Chem et les mesures in-situ MOZAIC a révélé une sous-estimation importante des rapports de mélange de CO dans la couche limite et la troposphère libre. Le déficit de CO dans la troposphère libre est probablement une conséquence des sous-estimations des émissions en surface dans les modèles globaux discutées dans la Section 3.1. Cette hypothèse est discutée dans cette section avec une analyse de sensibilité à différents cadastres d’émissions anthropiques et par les feux de forêt. Les émissions européennes de CO ont été testées avec deux cadastres différents : le cadastre de la simulation standard et le cadastre EMEP. Pour les feux, nous avons comparé le cadastre standard (émissions mensuelles) avec un cadastre d’émissions journalières dérivé des données du satellite AATSR. La quantité d’espèce émise par les feux dans l’atmosphère a fait l’objet de deux simulations. La première de ces deux simulations reprend le cadastre

d'émission journalier précédent avec une quantité d'espèce émise triplée sur l'Europe. La seconde simulation utilise l'évolution temporelle du cadastre d'émission journalier développé dans le chapitre 2 à l'aide du « Webfire Mapper » en utilisant la quantité d'espèce émise pour la période du 29 Juillet au 15 Août par la simulation précédente. L'augmentation par un facteur trois est justifiée par la différence de quantité de CO émise par les feux portugais entre la simulation standard et le cadastre utilisé dans le chapitre 2 (0,513 Tg contre 1,6 Tg de CO du 29 Juillet au 15 Août).

Les simulations seront nommées par la suite :

- STD : simulation standard (courbe rouge).
- EMEP : simulation avec le cadastre d'émission anthropogénique EMEP pour l'Europe (courbe verte).
- NOBB : simulation sans les feux de biomasse sur l'Europe (courbe bleue).
- NOBBEMEP : simulation sans les feux de biomasse et avec le cadastre EMEP sur l'Europe. Elle ne sera pas présentée ici de part son apport limité (courbe jaune).
- DD : simulation avec un cadastre journalier d'émissions par les feux développé à partir des observations du satellite AATSR (courbe grise).
- DDX3 : simulation précédente avec les émissions multipliées par 3 (courbe cyan).
- EMX3 : simulation précédente avec les quantités émises journalièrement adaptées à la période comprise entre le 29 Juillet et le 15 Août (courbe rose, cf. Chap 2).

La Figure 3.11 présente les valeurs journalières des émissions anthropogéniques sommées sur les mailles européennes (10 °O-50 °E ; 30 °N-60 °N) et des émissions par les feux de forêt sommées sur les mailles portugaises (10 °O—7 °O ; 37 °N-42 °N).

3.4.1 Sensibilité aux émissions anthropiques

En remplaçant les émissions anthropiques européennes de la simulation de référence par le cadastre EMEP, des changements sont attendus car la répartition géographique et la quantité émise de polluants varient. Les émissions EMEP remplacent à partir du 1^{er} Mai les émissions de la simulation standard. La quantité d'espèces émises par jour sur

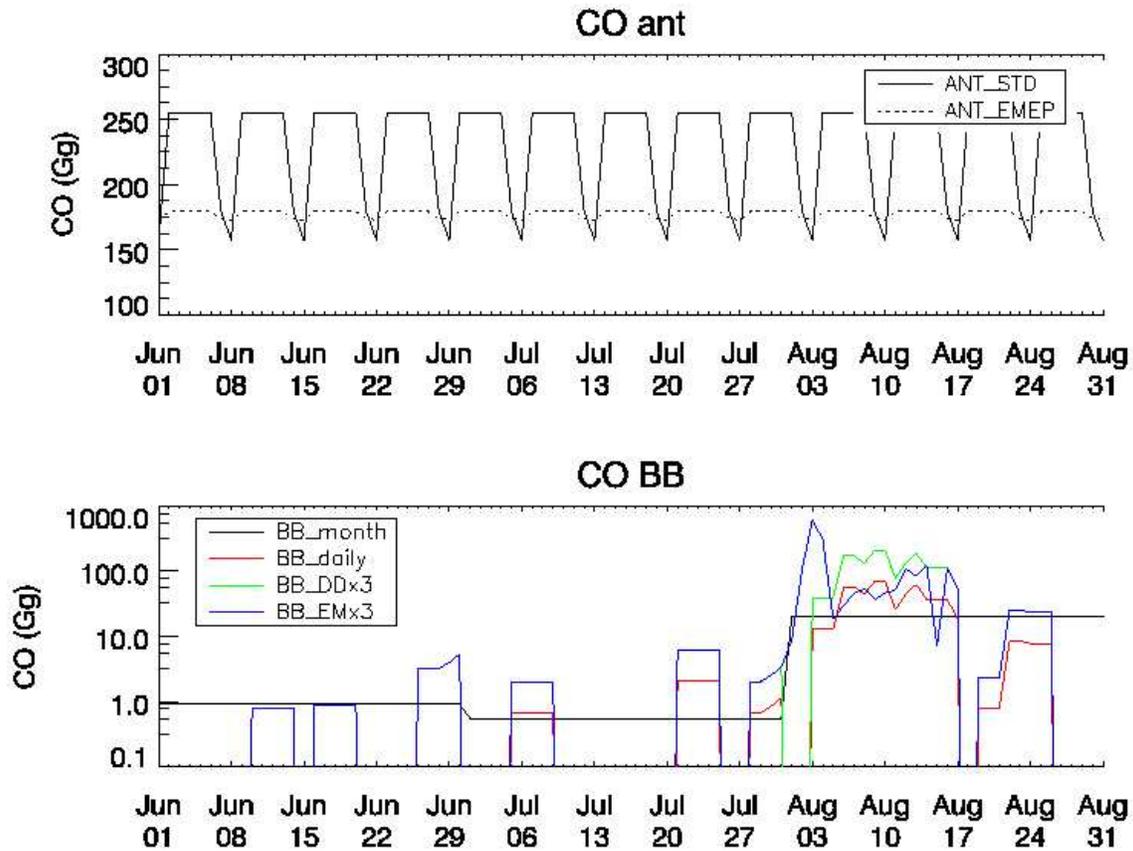


FIG. 3.11 – En haut : Evolution temporelle de la somme des émissions de CO (en Gg) anthropiques européennes (10°O - 50°E ; 30°N - 60°N) . En bas : somme des émissions de CO (Gg) par les feux de biomasse au Portugal (10°O - 7°O ; 37°N - 42°N).

l'Europe est plus faible avec le cadastre EMEP. Il y a aussi des variations entre les jours ouvrés et chomés d'une même semaine (Fig. 3.11). En réponse à ces plus faibles émissions, le biais du CO modélisé avec les valeurs MOZAIC augmente jusqu'à 29 ppbv à Francfort, 37 ppbv à Paris et 23 ppbv à Vienne pour le niveau 800 hPa. Cette différence est très nettement visible sur la Figure 3.12 à 800 hPa où la courbe représentant la simulation EMEP (courbe verte) montre de fortes sous-estimations dès lors que la situation météorologique engendre une augmentation de la concentration d'origine anthropique européenne (autour du 16 juin, du 28 juin et pendant la canicule). Le coefficient de corrélation augmente sensiblement à Paris et Vienne mais ce résultat n'est pas visible à Francfort. Ce caractère est

probablement le résultat d'une répartition géographique légèrement meilleure des émissions dans le cadastre EMEP. En définitive, l'influence du cadastre EMEP est négligeable sur l'évolution temporelle du CO qui n'est pas modifiée par rapport à la simulation STD. Par contre, le changement de cadastre réduit fortement la quantité de CO présente dans la basse troposphère. A plus hautes altitudes, les valeurs du biais (21 ppbv à Francfort) et du coefficient de corrélation ne sont pas significativement modifiées par rapport à la simulation standard.

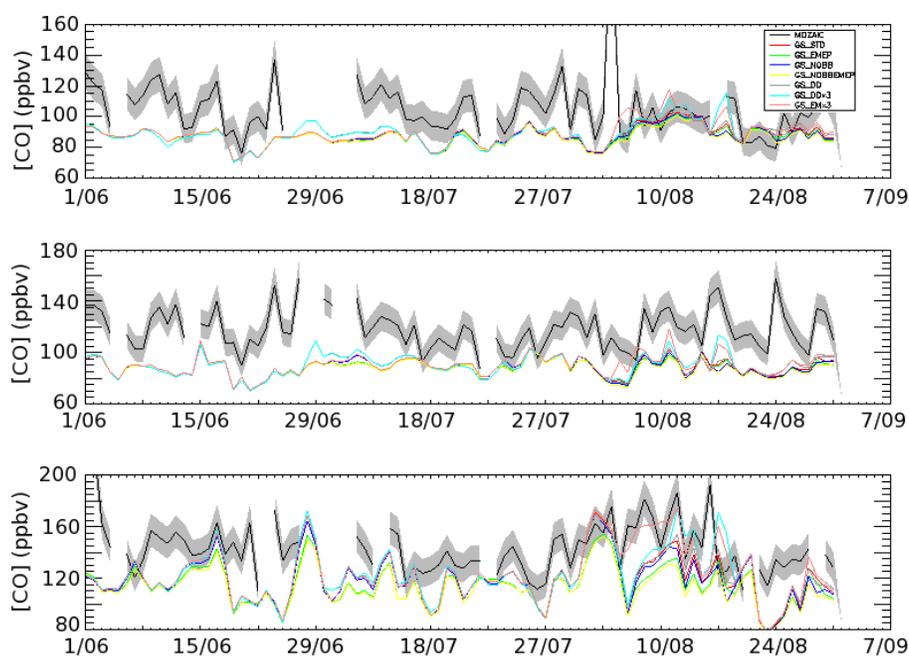


FIG. 3.12 – Evolution du rapport de mélange du CO (ppbv) à Francfort du 1^{er} Juin au 31 Août pour les niveaux de pression (de bas en haut : 800 hPa, 500 hPa et 300 hPa).

3.4.2 Sensibilité aux émissions par les feux de forêt

Le chapitre 2 a mis en lumière l'importance d'utiliser une information quotidienne sur la répartition des feux et des hauteurs d'injection adaptées pour la prise en compte des émissions par les feux de forêt pendant la canicule 2003. L'objectif de ce paragraphe est de tester la sensibilité des distributions de CO simulées avec différents cadastres d'émissions

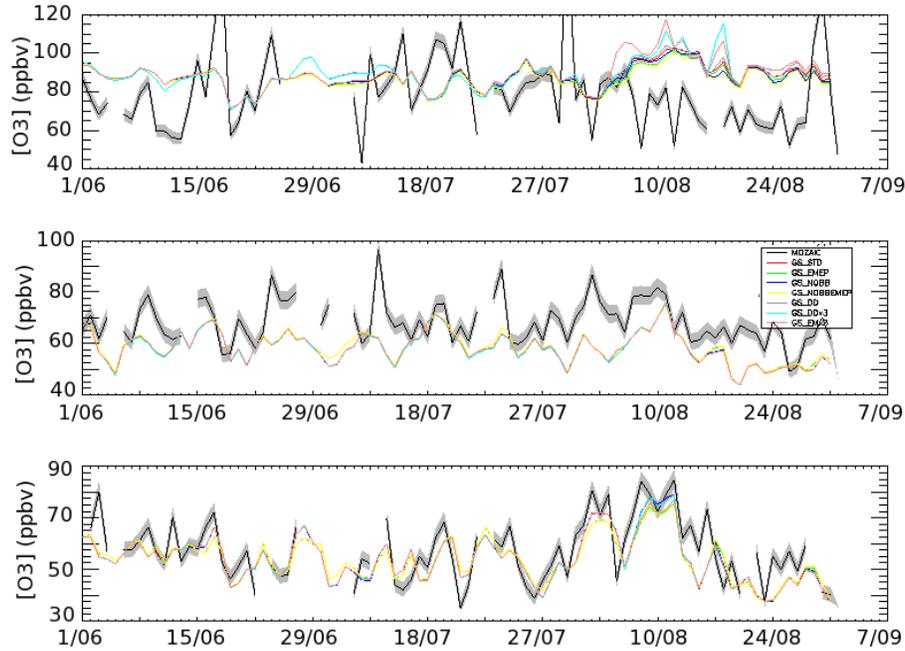


FIG. 3.13 – Evolution du rapport de mélange de l’ozone (ppbv) à Francfort du 1^{er} Juin au 31 Août pour les niveaux de pression (de bas en haut : 800 hPa, 500 hPa et 300 hPa).

par les feux de forêt ayant de meilleures résolutions temporelles et spatiales que le cadastre utilisé par défaut.

Tout d’abord, la non prise en compte des émissions par les feux, illustrée par la comparaison entre les simulations NOBB et STD, révèle une sensibilité qui n’affecte que la couche limite pour le CO et qui est très faible partout pour l’ozone (Fig. 3.12 et 3.13). Le coefficient de corrélation entre le CO mesuré et le CO modélisé dans la simulation NOBB est dégradé à 800 hPa et le biais augmente de 2 ppbv pour chaque ville au même niveau. Pour les deux autres niveaux (500 et 300 hPa), les changements observés dans les données statistiques sont trop faibles pour indiquer la possibilité d’un effet du CO provenant des feux. Les émissions des feux de biomasse impactent donc seulement les basses couches de la troposphère dans la simulation standard.

La prise en compte du cadastre journalier d’émissions avec les observations AATSR n’améliore pas la simulation. En effet, la comparaison entre les simulations STD et DD

n'indique pas de différences notables. Il en est de même avec une multiplication par 3 des émissions associées aux feux de forêt (simulation DDX3). Elle ne suffit pas à réduire l'écart entre le CO simulé et observé sur l'Europe. Finalement, seule la simulation EMX3 avec le calendrier des émissions établi au chapitre 2 améliore la modélisation du CO. Le coefficient de corrélation, à 800 hPa à Francfort sur l'été, passe de 0,40 pour la simulation standard à 0,45. Dans cette simulation, le biais présente une réduction sensible spécialement pendant la canicule avec une amélioration de 15 ppbv par rapport à la simulation standard à 800 hPa pour Francfort et Paris. A Vienne, la réduction du biais n'atteint pas l'intensité précédente, en conséquence d'un impact plus faible des feux (vu dans la Section 2.2). Ceci renforce les résultats du Chapitre 2 quant à l'impact du transport des panaches portugais sur la qualité de l'air à Francfort. L'amélioration des concentrations en CO approche 10 % de la valeur moyenne du CO et concerne plus de 50 % du biais. Ce résultat documente aussi sur la capacité d'un MCT global comme GEOS-Chem à reproduire l'émission et le transport des panaches de feux de biomasse dans un cadre régional européen.

Pour les niveaux 500 hPa et 300 hPa, le biais durant la canicule décroît de 3 ppbv par rapport à la simulation standard. Cette absence d'impact significatif hors de la couche limite planétaire peut s'expliquer par plusieurs facteurs. Pendant la période des incendies (29 Juillet-15 Août), la couche limite au Portugal est diagnostiquée à une hauteur moyenne de 1,9 km avec un maximum à 2,5 m. Cette hauteur étant aussi la hauteur d'injection des feux, il est donc difficile d'observer un impact dans la troposphère libre avec un transport exclusif des panaches dans la couche limite. Une modification de la hauteur d'injection avec des émissions au-dessus de la couche limite planétaire aurait apporté effectivement des améliorations pour la modélisation des panaches, comme l'a montré Generoso et al. (2007) [28]. Un autre facteur pourrait être lié à une mauvaise représentation schématique dans le modèle des thermiques de la couche limite et de leur effet de ventilation avec la troposphère libre, particulièrement dans le cas de la canicule pendant lequel le forçage dynamique par subsidence du blocage anticyclonique est un forçage synoptique bien représenté dans la simulation. Aussi le soulèvement frontal et la convection associés à la dépression qui remonte du Maroc peuvent être des facteurs mal représentés de part la taille des mailles du

modèle vis-à-vis de la dépression. Enfin, il ne faut pas écarter la possibilité de phénomènes pyro-convectifs seuls capables d’expliquer les panaches observés par les avions MOZAIC au-dessus de 8 km d’altitude à Francfort. Compte tenu de ces considérations, il est probable que l’impact des émissions par les feux sur la photochimie de l’ozone affectera seulement les niveaux d’altitude inférieurs à 2,5 km dans la simulation EMX3.

La Figure 3.14 illustre les différences des rapports de mélange de l’ozone entre la simulation EMX3 et la simulation STD ainsi que les rapports de mélange de l’ozone dans la simulation STD moyennés sur la période caniculaire (2-14 Août). En surface, les différences les plus importantes sont obtenues au nord-ouest de l’Europe (Iles Britanniques et Bénélux) sous le vent des zones sources du Portugal identifiables par les fortes concentrations en CO (Figure 3.16). Il est intéressant de noter que dans le cas d’émissions plus fortes (EMX3), le panache issu des feux de forêt du Portugal se caractérise par des valeurs d’ozone plus faibles en surface de plus de 2 ppbv. Les rapports de mélange de NO_x dans le panache en surface sont généralement supérieurs à 2 ppbv (Figure 3.15). Le régime chimique dans le panache est donc saturé en NO_x en surface. L’ajout de NO_x dans la simulation EMX3 de 100 à plus de 400 pptv induit alors une production moindre d’ozone en surface. Cet effet de diminution de la production d’ozone est particulièrement marqué au-dessus des zones sources du Portugal où les rapports de mélange des NO_x sont augmentés de plus de 400 pptv dans la simulation EMX3. Le ralentissement de la production de l’ozone en surface dans le panache des feux peut aussi être la conséquence de la diminution des taux de photolyse sous l’effet de l’augmentation de la quantité d’aérosols (Real et al., 2007 [57]).

A 2000 m d’altitude, le panache des feux du Portugal est caractérisé par une augmentation de la production de l’ozone de +2 ppbv. A cette altitude, les rapports de mélange en NO_x sont généralement inférieurs à 500 pptv dans les deux simulations EMX3 et STD, sauf sur la région du Bénélux où le blocage anticyclonique piège la pollution dans la couche limite et où les rapports de mélange des NO_x sont supérieurs à 500 pptv. Les deux simulations prognostiquent donc des régimes limités en NO_x . Dans la région des panaches de feux de biomasse, l’augmentation des rapports de mélange en NO_x dans le cas EMX3 se traduit par une augmentation de la production d’ozone (jusqu’à +2 ppbv). Cette augmentation

de la production d’ozone dans EMX3 ne s’étend pas géographiquement sur la région du Bénélux et de Francfort où, au contraire, une baisse de la production d’ozone est observée. L’apport même minime (50 à 100 pptv) de NO_x dans EMX3 sur cette région où la distribution de NO_x est maximale est-il suffisant pour se rapprocher du régime de saturation et limiter alors la production d’ozone comme le montre GEOS-Chem ? Il semblerait que ce ne soit pas le cas à la vue des sondages MOZAIC comme celui de la Figure 11 de l’Article qui montrent que le panache de CO à 2,5 km d’altitude à Francfort est associé à une augmentation d’ozone bien corrélée avec CO et NO_y et dépasse d’environ 10 ppbv les valeurs au-dessus ou en-dessous du panache. Les possibilités techniques de GEOS-Chem, compte tenu des caractéristiques de la simulation semblent atteintes ici. Il est donc normal de se demander si seul un modèle régional peut atteindre cet objectif.

L’utilisation du modèle GEOS-Chem montre ainsi que deux régimes de production d’ozone existent dans le panache des feux du Portugal. Près de la surface, un régime saturé en NO_x induit une production moindre d’ozone lorsque des rapports de mélange plus importants sont imposés à la suite d’une augmentation des émissions par les feux. Au sommet de la couche limite au contraire, le régime devient limité en NO_x comme en témoigne une production d’ozone accrue dans le cas d’émissions par les feux plus importantes.

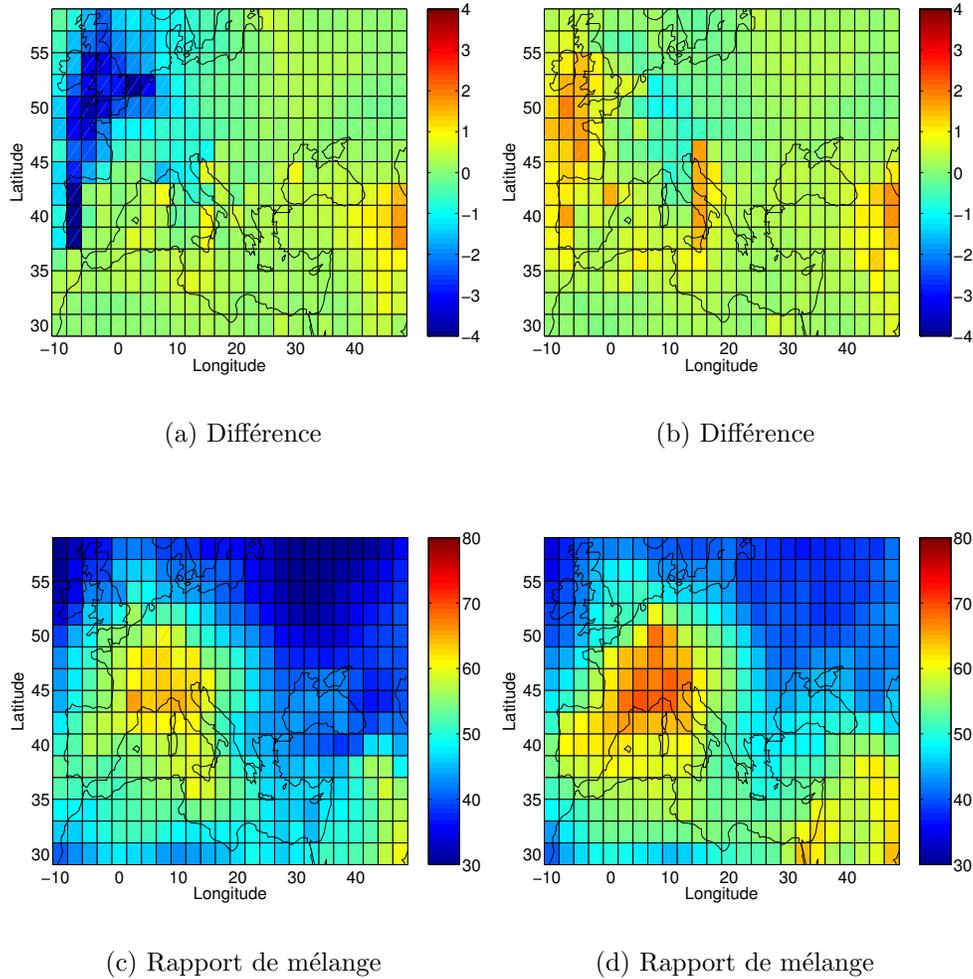


FIG. 3.14 – En haut : Différence des rapports de mélange d’ozone (en ppbv) moyennée sur la période caniculaire (2-14 Août) entre la simulation EMX3 et la simulation STD pour les niveaux 1 (sol) et 5 (2000 m) du modèle (de gauche à droite).

En bas : Rapport de mélange d’ozone (en ppbv) moyenné sur la période caniculaire (2-14 Août) pour la simulation STD et pour les 2 niveaux.

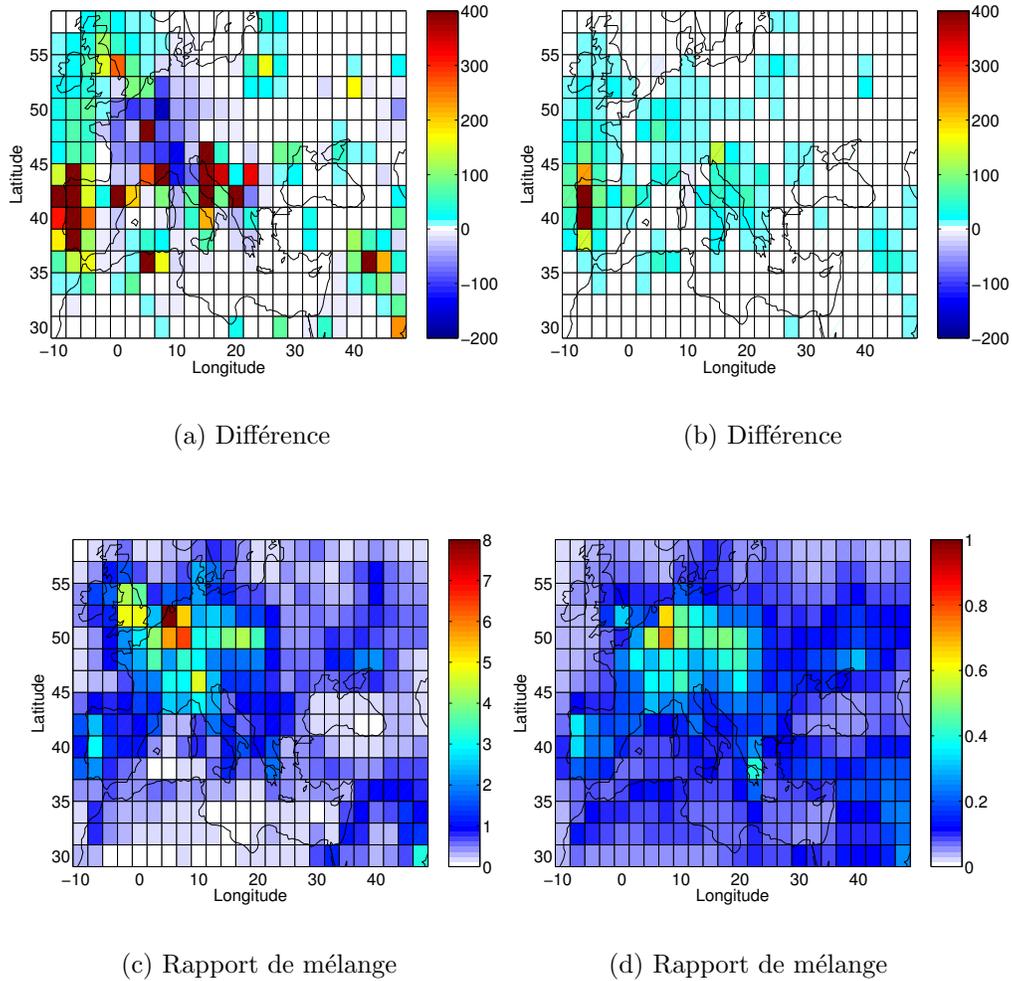


FIG. 3.15 – En haut : Différence des rapports de mélange des NO_x (en pptv) moyennée sur la période caniculaire (2-14 Août) entre la simulation EMX3 et la simulation STD pour les niveaux 1 (sol) et 5 (2000 m) du modèle (de gauche à droite).

En bas : Rapport de mélange des NO_x (en ppbv) moyenné sur la période caniculaire (2-14 Août) pour la simulation STD et pour les 2 niveaux.

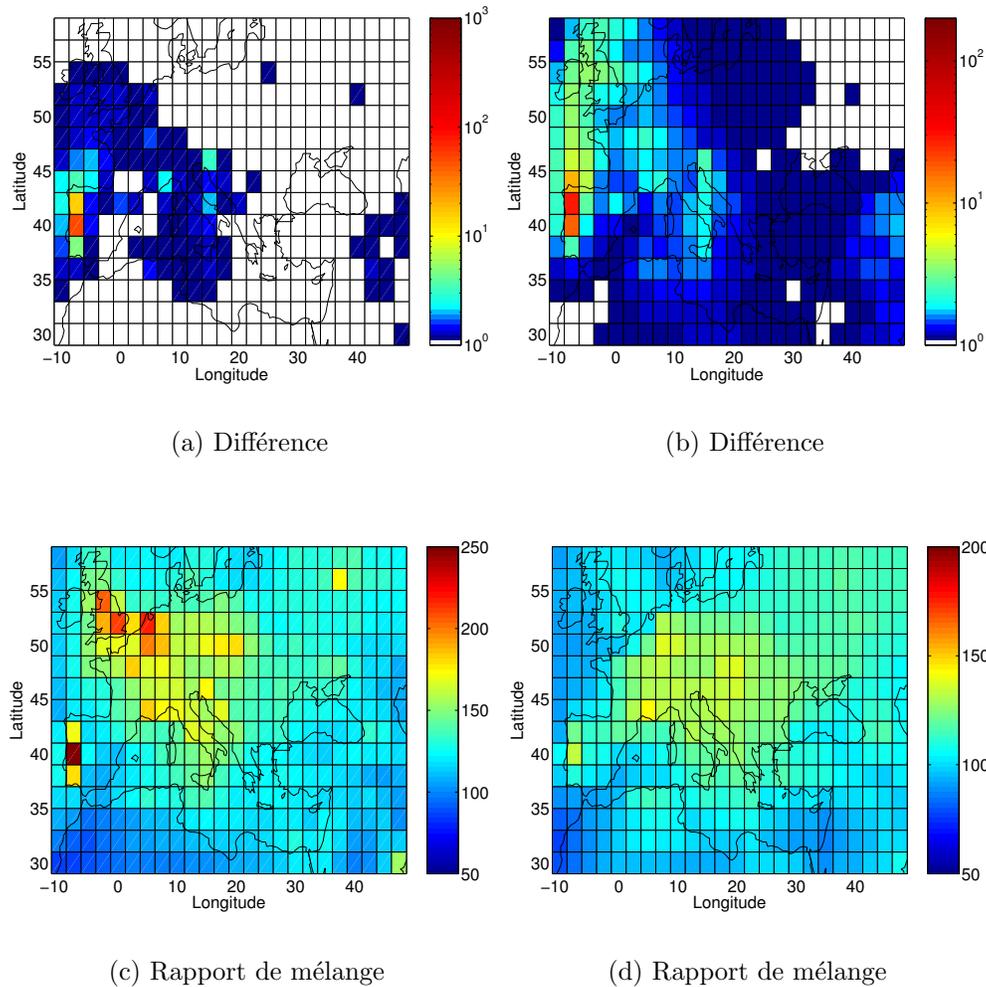


FIG. 3.16 – En haut : Différence des rapports de mélange de CO (en ppbv) moyennée sur la période caniculaire (2-14 Août) entre la simulation EMX3 et la simulation STD pour les niveaux 1 (sol) et 5 (2000 m) du modèle (de gauche à droite).

En bas : Rapport de mélange de CO (en ppbv) moyenné sur la période caniculaire (2-14 Août) pour la simulation STD et pour les 2 niveaux.

3.5 Conclusion

Cette étude exploratoire avec le modèle global GEOS-Chem montre que celui-ci reproduit correctement les conditions atypiques de température et d’ozone élevés dans la couche limite, caractéristiques de la période de la canicule 2003. La canicule est correctement perçue par le modèle avec le changement de régime à l’intérieur même de celle-ci comme le montre les coefficients de corrélation (Tableau 3.5). Par contre, un biais dans les valeurs modélisées de température existe allant de -2 à 1,5 °C de 800 à 300 hPa.

L’augmentation de l’ozone dans la couche limite est principalement favorisée par le piégeage dynamique des masses d’air associé au blocage anticyclonique. Cette augmentation est aussi le résultat des effets conjugués d’un accroissement des émissions biogéniques et d’une diminution du dépôt sec qui ont pu se produire en même temps à cause des différences entre les zones géographiques affectées par ces deux phénomènes. Mais ce dernier ne parvient pas tout à fait à reproduire correctement le développement maximal de la hauteur de la couche limite observée au cours de l’été 2003, ce qui a pour effet de concentrer « artificiellement » la pollution. L’extension verticale de cette pollution est donc sous-estimée avec plusieurs causes possibles dont celle liée à la mauvaise représentation dans le modèle du développement des puissants thermiques pendant la canicule, au contraire de la bonne représentation du forçage synoptique de la subsidence anticyclonique. Ces derniers faits apportent un bonus pour le score de GEOS-Chem sur les concentrations d’ozone dans la couche limite planétaire dont la pollution est essentiellement d’origine anthropique.

Le modèle sous-estime systématiquement les concentrations de CO et les premiers tests de sensibilité sur les émissions anthropiques et sur les feux de forêt montrent en général peu d’impact. Seule exception à cette étude, l’utilisation du cadastre d’émission développé particulièrement pour les feux du mois d’Août 2003 permet d’améliorer notablement les simulations de CO dans la couche limite en Europe du Nord, comme le montre le Tableau 3.5 avec une réduction du biais à tous les niveaux.

L’impact des émissions plus importantes de NO_x dans les panaches de feux a pour effet de diminuer la production d’ozone près de la surface et de l’augmenter au sommet

Température			
Niveau de pression (hPa)	800	500	300
r (STD-MOZAIC)	0,5440	0,8145	0,4125
Biais (STD-MOZAIC) (K)	-1,98	-0,1	1,53
Monoxyde de carbone			
r (STD-MOZAIC)	0,2629	0,6377	-0,1634
r (EMX3-MOZAIC)	0,6239	0,3911	-0,2534
Biais (STD-MOZAIC) (ppbv)	-21,89	-28,28	-16,37
Biais (EMX3-MOZAIC) (ppbv)	-2,20	-22,58	-10,38
Ozone			
r (STD-MOZAIC)	0,6674	0,2936	-0,2339
r (EMX3-MOZAIC)	0,6678	0,2845	-0,1997
Biais (STD-MOZAIC) (ppbv)	-3,66	-12,77	-0,22
Biais (EMX3-MOZAIC) (ppbv)	-4,69	-12,65	-0,56

TAB. 3.5 – Coefficient de corrélation et biais entre GEOS-Chem et MOZAIC pour Francfort et selon les 3 niveaux de pression du 2 au 14 Août.

de la couche limite sauf sur les régions les plus sévèrement polluées. Aucune production d'ozone n'a été modélisée à Francfort alors que des profils MOZAIC en font état lors de la traversée de panaches en provenance des incendies. L'effet des feux reste contenu à la basse troposphère dans le modèle, conséquence du traitement de leurs émissions qui sont limitées par construction à la couche limite planétaire. La modélisation de la dépression et des phénomènes convectifs associés sont aussi des facteurs limitants pour le soulèvement des panaches. Une résolution plus fine améliorerait certainement les processus de transport qu'ont subit les émissions par les feux. En plus d'utiliser une meilleure la résolution, la hauteur d'injection des feux doit être modifiée pour ne pas limiter les émissions à la seule couche limite. Les possibilités techniques de GEOS-Chem, compte tenu des caractéristiques de la simulation, semblent donc atteintes ici.

Conclusion

La canicule qui a sévi en Europe au début du mois d'Août 2003 a eu des conséquences importantes sur les niveaux de pollution mesurés au sol. Dans un contexte de changements climatiques où l'apparition d'évènements exceptionnels comme la canicule tendrait à être plus fréquente (Luterbacher et al., 2004 [44]), il est nécessaire de comprendre les différents facteurs climatiques, humains, naturels mis en jeu dans l'augmentation des concentrations de polluants atmosphériques. Ce travail de thèse a eu pour but de détailler l'évènement de 2003 avec ses causes, d'en améliorer la connaissance pour repousser les limitations des modèles actuels.

J'ai utilisé la base de données MOZAIC pour effectuer ce travail. En 2003, cinq avions commerciaux Airbus A340 ont fourni des mesures d'ozone, de CO, d'oxydes d'azote de température et d'humidité. Ces avions volent en moyenne une fois par jour et en 2003 trois aéroports furent régulièrement desservis : Francfort (3 avions), Paris et Vienne (1 seul avion dans chaque ville). Ceci permet à la base de données MOZAIC d'avoir une large couverture temporelle et spatiale de la canicule européenne de 2003. Paris et Francfort étaient sensiblement sous les mêmes conditions atmosphériques et à proximité du centre de l'anomalie. Vienne était plus à l'écart, en périphérie des hautes pressions. J'ai utilisé les données collectées pour détailler la canicule ainsi que ses anomalies vis-à-vis de la climatologie.

L'utilisation conjointe des données MOZAIC et du modèle de transport Lagrangien FLEXPART a permis de documenter l'épisode de la canicule en terme de distribution spatio-temporelle de l'ozone et de ses précurseurs. L'extension verticale de la pollution, sa

durée et l'importance du transport régional dans celle-ci, avec un impact des émissions anthropiques et des feux de forêts du Portugal sur l'Europe de l'Ouest, sont mis en évidence. La canicule a affecté toute la troposphère avec des anomalies de température (+5°C) s'étendant jusqu'à la tropopause. La pollution s'est aussi étendue verticalement mais sans jamais atteindre les niveaux vus pour la température. Pendant les 13 jours de la canicule (2-14 Août), les rapports de mélange de l'ozone ont atteint une valeur de 85 ppbv, soit 30 ppbv de plus que la climatologie, en dessous de 2 km et affectant la troposphère libre jusqu'à 6 km autour du 11 Août. Le CO présente des anomalies d'intensité comparable à celles vues pour l'ozone (+40 ppbv) mais avec en plus des panaches dans la troposphère libre où la concentration approche les 300 ppbv. L'étude dynamique de la canicule a distingué trois sous-périodes à l'intérieur de celle-ci liées aux conditions météorologiques résultant du déplacement d'une perturbation, provenant des côtes marocaines, autour de l'anticyclone centré sur l'Europe et de son comblement sur l'Allemagne. J'ai pu étudier les origines de la pollution pendant ces trois sous-périodes en simulant les émissions anthropiques européennes et nord-américaines dérivées du cadastre EDGAR et en simulant les émissions par les feux de biomasse portugais pour lesquelles un cadastre a été développé à partir de données de surfaces brûlées et de détection par satellite. Ces simulations FLEXPART ont mis en évidence l'importance de la contribution régionale à la pollution. Les émissions européennes sont responsables de près de 30 % de la pollution par le CO. Mais la pollution est la plus forte lorsque les panaches de feux atteignent les villes, au début de la 3^{ème} sous-période. Ce transport s'est d'abord produit en altitude avec les panaches observés du 4 au 6 Août puis probablement à l'intérieur même de la couche limite planétaire européenne. L'anticyclone a piégé les émissions européennes et les émissions de feux favorisant ainsi leur accumulation dans les basses couches de part la subsidence associée à cette circulation.

Pour compléter l'analyse et intégrer l'ensemble des processus j'ai utilisé des simulations réalisées avec le modèle global de chimie-transport GEOS-Chem. Plusieurs tests ont été effectués dans le but de déterminer l'impact des émissions repérées dans l'étude précédente sur la chimie troposphérique et en particulier l'ozone pendant l'été 2003 et plus précisément lors de la canicule. La simulation standard représente les variations et les niveaux de

CONCLUSION

température avec un coefficient de corrélation proche de 0,9 et un biais compris entre -2°C à 800 hPa et $+2^{\circ}\text{C}$ à 300 hPa. La modélisation des niveaux d’ozone se détériore avec l’altitude avec des coefficients de corrélation passant de 0,75 à 0,12 de 800 à 300 hPa. Les concentrations sont légèrement sous-estimées avec 4 ppbv de moins en moyenne que les mesures MOZAIC à 800 hPa. Les facteurs ayant pu jouer un rôle dans l’augmentation des concentrations d’ozone pendant la canicule ont été analysés. La vitesse de déposition de l’ozone modélisée présente un minimum pendant la vague de chaleur associée aux conditions météorologiques anticycloniques et au niveau de stress élevé de la végétation. Ce ralentissement est modélisé sur une grande partie de l’Europe. Les pertes d’ozone se sont amenuisées et cet ozone a été stocké dans la basse troposphère tout en étant piégé dans la circulation anticyclonique. Les émissions biogéniques ont augmenté sensiblement pendant la canicule de part leur dépendance à la température. Le modèle présente un maximum d’émission, sur la France et les Balkans, pendant la vague de chaleur. La production d’ozone a ainsi pu être favorisée pendant la canicule par la présence accrue de ces précurseurs. Pour le CO, la modélisation n’est pas aussi bonne avec des biais compris entre -30 et -15 ppbv à 500 et 300 hPa. Les changements effectués dans les cadastres d’émission des feux de biomasse ont particulièrement amélioré la modélisation du CO pour la période d’intérêt avec l’utilisation d’un calendrier plus représentatif et émettant une quantité de CO accrue. Les divers tests effectués ont souligné la faible dépendance de l’ozone à des changements dans les émissions. La modélisation des émissions par les feux de forêt n’a pas abouti à une production supplémentaire d’ozone en surface. L’apport supplémentaire de NO_x , par les émissions des feux de biomasse au-dessus d’une Europe déjà fortement polluée, a conduit à favoriser le régime de saturation et s’est conclu par une destruction plus importante de l’ozone dans les plus bas niveaux.

La contribution des émissions anthropiques européennes sur les niveaux de CO mesurés pendant la canicule est majoritaire avec une valeur moyenne de 30 %. L’impact additionnel du CO en provenance des feux est estimé à 35 % mais leur effet n’apparaît qu’après le 6 Août. Le reste du CO s’apparente à un niveau de fond (CO anthropique et des feux des régions non prises en compte dans l’étude) particulièrement élevé en 2003. L’augmentation

de la concentration d’ozone pendant la canicule est le résultat des conditions climatiques anormales avec une participation majoritaire des émissions européennes anthropiques puis des effets cumulés des émissions biogéniques européennes et du dépôt sec. Des simulations effectuées à l’échelle régionale doivent être menées pour quantifier plus précisément l’impact des feux de forêt portugais sur les niveaux d’ozone. Il a été possible d’identifier cet impact sur plusieurs profils MOZAIC.

Ce travail montre l’intérêt d’utiliser conjointement les données MOZAIC avec le modèle de transport Lagrangien FLEXPART pour étudier la dynamique atmosphérique mais aussi l’importance d’une origine probable dans les niveaux de pollution. Une perspective de ce travail est déjà en cours avec le programme GEMS («Global and regional Earth-system (Atmosphere) Monitoring using Satellite and in-situ data») dont le but est de créer le premier système opérationnel global de prévision de la dynamique et de la chimie atmosphérique à court et moyen terme. L’étude de la canicule doit permettre d’améliorer les modèles utilisés lors de tels évènements extrêmes (GEOS-Chem, MOZART, TM5, MOCAGE) pour pouvoir les prévoir et mettre en oeuvre les plans de restrictions adaptés à la situation pour limiter la pollution.

Bibliographie

- [1] D. J. Allen, P. Kasibhatla, A. M. Thompson, R. B. Rood, B. G. Doddridge, K. E. Pickering, R. D. Hudson, and S.-J. Lin. Transport-induced interannual variability of carbon monoxide determined using a chemistry and transport model. *Journal of Geophysical Research*, 101(D22) :28655–28670, 1996.
- [2] D. J. Allen, R. B. Rood, A. M. Thompson, and R. D. Hudson. Three-dimensional ²²²Rn calculations using assimilated meteorological data and a convective mixing algorithm. *Journal of Geophysical Research*, 101(D3) :6871–6882, 1996.
- [3] O. Arino and J. M. Melinotte. Fire index atlas. *Earth Observation Quarterly*, 50 :11–16, 1995.
- [4] M. Auvray and I. Bey. Long-range transport to europe : Seasonal variations and implications for the european ozone budget. *Journal of Geophysical Research*, 110(D11303), 2005.
- [5] I. Balin. *Measurement and analysis of aerosols, cirrus-contrails, water vapor and temperature in the upper troposphere with the Jungfraujoch lidar system*. PhD thesis, Ecole Polytechnique Fédérale de Lausanne, 2004.
- [6] P. Barbosa, G. Libertà, and G. Schmuck. The european forest fires information system (EFFIS) results on the 2003 fire season in portugal by the 20th of august, 2003.
- [7] R. Basu and J. M. Samet. Relation between elevated ambient temperature and mortality : A review of the epidemiologic evidence. *Epidemiologic Reviews*, 24(2), 2002.
- [8] P. Bessemoulin, N. Bourdette, P. Courtier, and J. Manach. La canicule d’août 2003 en france et en europe. *La météorologie*, 46 :25–33, 2004.
- [9] I. Bey, D. J. Jacob, R. M. Yantosca, J. A. Logan, B. D. Field, A. M. Fiore, Q. Li, H. Y. Liu, L. J. Mickley, and M. G. Schultz. Global modeling of tropospheric chemistry with assimilated meteorology : Model description and evaluation. *Journal of Geophysical Research*, 106(D19) :23073–23096, 2001.
- [10] S. Bloom, A. da Silva, D. Dee, M. Bosilovich, J.-D. Chern, S. Pawson and S. Schubert, M. Sienkiewicz, I. Stajner, W.-W. Tan, and M.-L. Wu. Documentation and validation of the goddard earth observing system (GEOS) data assimilation system version-4. Technical report, NASA/TM-2005-104606, 2005.
- [11] P. Bloomfiel, J. Andrew Royle, L. J. Steinberg, and Q. Yang. Accounting for meteorological effects in measuring ozone urban levels and trends. *Atmospheric Environment*, 30(17) :3067–3077, 1996.

-
- [12] A. De Bono, P. Peduzzi, G. Giuliani, and S. Kluser. Impact of summer 2003 heat wave in europe, 2004.
- [13] L. Camalier, W. Cox, and P. Dolwick. The effects of meteorology on ozone in urban areas and their use in assessing ozone trends. *Atmospheric Environment*, 41 :7127–7137, 2007.
- [14] S. L. Cheung, J.-M. Robine, H. Van Oyen, C. Griffiths, and F. R. Herrmann. The 2003 heat wave in europe, a review of the literature. Technical report, EU Community Action Programme for Public Health, 2007.
- [15] O. R. Cooper, A. Stohl, S. Eckhardt, D. D. Parrish, S. J. Oltmans, B. J. Johnson, P. Nedelec, F. J. Schmidlin, M. J. Newchurch, Y. Kondo, and K. Kita. A springtime comparison of tropospheric ozone and transport pathways on the east and west coasts of the united states. *Journal of Geophysical Research*, 110(D05S90), 2005.
- [16] J. J. Corbett, P. S. Fischbeck, and S. N. Pandys. Global nitrogen and sulfur inventories for oceangoing ships. *Journal of Geophysical Research*, 104(D03) :3457–3470, 1999.
- [17] W. M. Cox and S. Chu. Meteorologically adjusted ozone trends in urban areas : a probabilistic approach. *Atmospheric Environment*, 27B :425–434, 1993.
- [18] P. J. Crutzen. Photochemical reactions initiated by and influencing ozone in the troposphere. *Tellus*, 26 :47–57, 1974.
- [19] P. J. Crutzen. *Tropospheric Ozone : Overview*, pages 185–216. D. Reidel Publ. Comp., Dordrecht, in tropospheric ozone, regional and global scale interactions by i.s.a. isaksen edition, 1988.
- [20] R. Damoah, N. Spichtinger, C. Forster, P. James, I. Mattis, U. Wandinger, S. Beirle, T. Wagner, and A. Stohl. Around the world in 17 days-hemispherical-scale transport of forest fire smoke from russia in may 2003. *Atmospheric Chemistry and Physics*, 4 :1311–1321, 2004.
- [21] B. N. Duncan, R. V. Martin, A. C. Staudt, R. Yevich, and J. A. Logan. Interannual and seasonal variability of biomass burning emissions constrained by satellite observations. *Journal of Geophysical Research*, 105(D2) :4100, 2003.
- [22] EMEP/CORINAIR emission inventory guidebook, 2006.
- [23] K. A. Emmanuel and M. Živković-Rothman. Development and evaluation of a convection scheme for use in climate models. *Journal of Atmospheric Sciences*, 56 :1766–1782, 1999.
- [24] J. Fiala, L. Cernikovsky, F. de Leeuw, and P. Kurfuerst. Air pollution by ozone in europe in summer 2003. overview of exceedances of ec ozone threshold values during the summer season april-august 2003 and comparisons with previous years. Technical report, EEA Topic report, 2003.
- [25] J. Fishman, S. Solomon, and P. J. Crutzen. Observational and theoretical evidence in support of a significant in-situ photochemical source of tropospheric ozone. *Tellus*, 31 :432–446, 1979.

- [26] C. Forster, U. Wandinger, G. Wotawa, P. James, I. Mattis, D. Althausen, P. Simmonds, S. O'Doherty, S. Gerard Jennings, C. Kleefeld, J. Schneider, T. Trickl, S. Kreipl, H. Jäger, and A. A. Stohl. Transport of boreal forest fire emissions from canada to europe. *Journal of Geophysical Research*, 106 :22887–22906, 2001.
- [27] R. García, L. Prieto, J. Díaz, E. Hernández, and T. del Teso. Synoptic condition leading to extremely high temperatures in madrid. *Annales Geophysicae*, 20(D19) :237–245, 2002.
- [28] S. Generoso, I. Bey, J.-L. Attié, and F.-M. Bréon. A satellite- and model-based assessment of the 2003 russian fires : Impact on the arctic region. *Journal of Geophysical Research*, 112(D15302), 2007.
- [29] L. Giglio. *MODIS collection 4 active fire product user's guide version 2.3*, 2007.
- [30] F. Grazzini, L. Ferranti, F. Lalaurette, and F. Vitart. The exceptional warm anomalies of summer 2003. *ECMWF Newsletters*, 99 :2–8, 2003.
- [31] A. Guenther, T. Karl, P. Harley, C. Wiedinmyer, P. I. Palmer, and C. Geron. Estimates of global terrestrial isoprene emission using megan (model of emissions of gases and aerosols from nature). *Atmospheric Chemistry and Physics*, 6 :3181–3210, 2006.
- [32] A. B. Guenther, P. R. Zimmerman, P. C. Harley, R. K. Monson, and R. Fall. Isoprene and monoterpene emission rate variability–model evaluations and sensitivity analyses. *Journal of Geophysical Research*, 98, 1993.
- [33] G. Guerova and N. Jones. A global model study of ozone enhancement during the august 2003 heat wave in europe. *Environmental Chemistry*, 4(5) :285–292, 2007.
- [34] M. Helten, H. G. J. Smit, W. Sträter, D. Kley, P. Nedelec, M. Zöger, and R. Busen. Calibration and performance of automatic compact instrumentation for the measurement of relative humidity from passenger aircraft. *Journal of Geophysical Research*, 103(D19) :25643–25652, 1998.
- [35] A. Hodzic, S. Madronich, B. Bohn, S. Massie, L. Menut, and C. Wiedinmyer. Wildfire particulate matter in europe during summer 2003 : meso-scale modeling of smoke emissions, transport and radiative effect. *Atmospheric Chemistry and Physics*, 7 :4043–4064, 2007.
- [36] L. W. Horowitz, J. Liang, G. M. Gardner, and D. J. Jacob. Export of reactive nitrogen from north america during summertime : Sensitivity to hydrocarbon chemistry. *Journal of Geophysical Research*, 103 :13451–13476, 1998.
- [37] F. Immler, D. Engelbart, and O. Schrems. Fluorescence from atmospheric aerosol detected by a lidar indicates biogenic particles in the lowermost stratosphere. *Atmospheric Chemistry and Physics*, 5 :345–355, 2005.
- [38] D. J. Jacob. *introduction to atmospheric chemistry*. Princeton University Press, 1999.
- [39] D. J. Jacob. Heterogeneous chemistry and tropospheric ozone. *Atmospheric Environment*, 34 :2131–2159, 2000.

-
- [40] B. Legras and B. Joseph and F. Lefèvre. Vertical diffusivity in the lower stratosphere from lagrangian back-trajectory reconstructions of ozone profiles. *Journal of Geophysical Research*, 108(D18) :1029, 2003.
- [41] L. S. Kalkstein, G. Tan, and J. A. Skindlov. An evaluation of three clustering procedures for use in synoptic climatological classification. *Journal of Climate and Applied Meteorology*, 26(6) :717–730, 1987.
- [42] E. Kalnay, M. Kanamitsu, R. Kistler, W. Collins, D. Deaven, L. Gandin, M. Iredell, S. Saha, G. White, J. Woollen, Y. Zhu, M. Chelliah, W. Ebisuzaki, W. Higgins, J. Janowiak, K. C. Mo, C. Ropelewski, J. Wang, A. Leetmaa, E. Reynolds, R. Jenne, and D. Joseph. The NCEP/NCAR 40-year reanalysis project. *Bulletin of American Meteorological Society*, 77 :437–471, 1996.
- [43] S.-J. Lin and R. B. Rood. Multidimensional flux form semi-lagrangian transport schemes. *Monthly Weather Review*, 124 :2046–2070, 1996.
- [44] J. Luterbacher, D. Dietrich, E. Xoplaki, M. Grosjean, and H. Wanner. European seasonal and annual temperature variability, trends, and extremes since 1500. *Science*, 303 :1499–1503, 2004.
- [45] A. Marenco, V. Thouret, P. Nedelec, H. 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 airborne program, an overview. *Journal of Geophysical Research*, 103(D19) :25631–25642, 1998.
- [46] R. V. Martin, D. J. Jacob, R. M. Yantosca, M. Chin, and P. Ginoux. Global and regional decreases in tropospheric oxydants from photochemical effects on aerosols. *Journal of Geophysical Research*, 108(D3), 2003.
- [47] C. A. McLinden, S. C. Olsen, B. Hannegan, O. Wild, M. J. Prather, and J. Sundet. Stratospheric ozone in 3-d models : A simple chemistry and the cross-tropopause flux. *Journal of Geophysical Research*, 105 :14653–14665, 2000.
- [48] 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 infra-red carbon monoxide analyser for routine measurements aboard commercial airbus aircraft : Technical validation and first scientific results of the mozaic program. *Atmospheric Chemistry and Physics*, 3 :1551–1564, 2003.
- [49] J. G. J. Olivier, J. J. M. Berdowski, J. A. H. W. Peters, J. Bakker, A. J. H. Visschedijk, and J. J. Bloos. Applications of EDGAR. including a description of EDGAR 3.2 : reference database with trend data for 1970-1995. *RIVM report 773301001/NRP report 410 200 051*, 2002.
- [50] C. Ordóñez, H. Mathis, M. Furger, S. Henne, C. Hüglin, J. Staehelin, and A. S. H. Prévôt. Changes of daily surface ozone maxima in switzerland in all seasons from 1992 to 2002 and discussion of summer 2003. *Atmospheric Chemistry and Physics*, 5 :1187–1203, 2005.
- [51] G. Pace, D. Meloni, and A. di Sarra. Forest fire aerosol over the mediterranean basin during summer 2003. *Journal of Geophysical Research*, 110(D21202), 2005.

- [52] R. J. Park, D. J. Jacob, B. D. Field, R. M. Yantosca, and M. Chin. Natural and transboundary pollution influences on sulfate-nitrate-ammonium aerosols in the united states : Implication for policy. *Journal of Geophysical Research*, 109(D15204), 2004.
- [53] H.-W. Pätz, A. Volz-Thomas, M. I. Hegglin, D. Brunner, H. Fischer, and U. Schmidt. In-situ comparison of the no_y instruments flown in MOZAIC and SPURT. *Atmospheric Chemistry and Physics*, 6 :2401–2410, 2006.
- [54] K. E. Pickering, Y. Wang, W. K. Tao, and C. Price. Vertical distribution of lightning NO_x for use in regional and global chemical transport models. *Journal of Geophysical Research*, 103 :31203–31216, 1998.
- [55] I. Pison and L. Menut. Quantification of the impact of aircraft traffic emissions on tropospheric ozone over paris area. *Atmospheric Environment*, 38 :971–983, 2004.
- [56] T. Narayana Rao, S. Kirkwood, J. Arvelius, P. von der Gathen, and R. Kivi. Climatology of UTLS ozone and the ratio of ozone and potential vorticity over northern europe. *Journal of Geophysical Research*, 108(D22, 4703), 2003.
- [57] E. Real, K. S. Law, B. Weinzier, M. Fiebig, A. Petzold, O. Wild, J. Methven, S. Arnold, A. Stohl, H. Huntrieser, A. Roiger, H. Schlager, D. Stewart, M. Avery, G. Sachse, E. Browell, R. Ferrare, and D. Blake. Processes influencing ozone levels in alaskan forest fire plumes during long-range transport over the north atlantic. *Journal of Geophysical Research*, 112(D10S41), 2007.
- [58] J.-M. Robine, S. L. Cheung, S. Le Roy, H. Van Oyen, and F. R. Herrmann. Report on excess mortality in europe during summer 2003. Technical report, EU Community Action Programme for Public Health, 2007.
- [59] G. J. Roelofs and J. Lelieveld. Model analysis of stratosphere-troposphere exchange of ozone and its role in the tropospheric ozone budget, 2000.
- [60] H. R. Schneider, D. B. A. Jones, M. B. McElroy, and G.-Y. Shi. Analysis of residual mean transport in the stratosphere 1. model description and comparison with satellite data. *Journal of Geophysical Research*, 105(D15) :19991–20012, 2000.
- [61] J. Seinfeld and S. Pandis. *Atmospheric chemistry and physics. From Air Pollution to Climate Change*. John Wiley and Sons, Inc, 1998.
- [62] D. T. Shindell, G. Faluvegi, D. S. Stevenson, M. C. Krol, L. K. Emmons, J.-F. Lamarque, G. Pétron, F. J. Dentener, K. Ellingsen, M. G. Schultz, O. Wild, M. Amann, C. S. Atherton, D. J. Bergmann, I. Bey, T. Butler, J. Cofala, W. J. Collins, R.G. Derwent, R. M. Doherty, J. Drevet, H. J. Eskes, A. M. Fiore, M. Gauss, D. A. Hauglustaine, L. W. Horowitz, I. S. A. Isaksen, M. G. Lawrence, V. Montanaro, J.-F. Müller, G. Pitari, M. J. Prather, J. A. Pyle, S. Rast, J. M. Rodriguez, M. G. Sanderson, N. H. Savage, S. E. Strahan, K. Sudo, S. Szopa, N. Unger, T. P. C. van Noije, and G. Zeng. Multimodel simulations of carbon monoxide : Comparison with observations and projected near-future changes. *Journal of Geophysical Research*, 111(D19306), 2006.

-
- [63] S. Sillman and P. J. Samson. Impact of temperature on oxidant photochemistry in urban, polluted rural and remote environments. *Journal of Geophysical Research*, 100(D6) :11497–11508, 1995.
- [64] S. Solberg, C. Dye, N. Schmidbauer, and D. Simpson. Evaluation of the VOC measurement programme within EMEP. Technical report, Norwegian Institute for Air Research., 1995.
- [65] D. S. Stevenson, F. J. Dentener, M. G. Schultz, K. Ellingsen, T. P. C. van Noije, O. Wild, 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. J. Eskes, A. M. Fiore, M. Gauss, D. A. Hauglustaine, L. W. Horowitz, I. S. A. Isaksen, M. C. Krol, J.-F. Lamarque, M. G. Lawrence, V. Montanaro, J.-F. Müller, G. Pitari, M. J. Prather, J. A. Pyle, S. Rast, J. M. Rodriguez, M. G. Sanderson, N. H. Savage, D. T. Shindell, S. E. Strahan, K. Sudo, and S. Szopa. Multimodel ensemble simulations of present-day and near-future tropospheric ozone. *Journal of Geophysical Research*, 111(D08301), 2006.
- [66] 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. *Atmospheric Environment*, 36 :4635–4648, 2002.
- [67] A. Stohl, C. Forster, A. Frank, P. Seibert, and G. Wotawa. *Technical note : The Lagrangian particle dispersion model FLEXPART version 6.2*, 2005.
- [68] A. Stohl, M. Hittenberg, and G. Wotawa. Validation of the lagrangian dispersion model FLEXPART against large scale tracer experiment data. *Atmospheric Environment*, 32 :4245–4264, 1998.
- [69] A. Stohl, N. Spichtinger-Rakowsky, P. Bonasoni, H. Feldmann, M. Memmesheimer, H. E. Scheel, T. Trickl, S. Hübener, W. Ringer, and M. Mandl. The influence of stratospheric intrusions on alpine ozone concentrations. *Atmospheric Environment.*, 34 :1323–1354, 2000.
- [70] V. Thouret, J.-P. Cammas., B. Sauvage, G. Athier, R. Zbinden, P. Nedelec, P. Simmon, 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.
- [71] V. Thouret, A. Marenco, J. A. Logan, P. Nedelec, and C. Grouhel. Comparisons of ozone measurements from the MOZAIC airborne program and the ozone sounding network at eight locations. *Journal of Geophysical Research*, 103(D19) :25695–25720, 1998.
- [72] V. Thouret, A. Marenco, P. Nedelec, and C. Grouhel. Ozone climatologies at 9-12 km altitude as seen by the MOZAIC airborne program between september 1994 and august 1996. *Journal of Geophysical Research*, 103(D19) :25653–25679, 1998.
- [73] M. Tressol, C. Ordóñez, R. Zbinden, J. Brioude, V. Thouret, C. Mari, P. Nédélec, J.-P. Cammas, H. Smit, H.-W. Pätz, and A. Volz-Thomas. Air pollution during european

- heat wave 2003 seen by mozaic airliners. *Atmospheric Chemistry and Physics*, 8 :2133–2150, 2008.
- [74] R. M. Trigo, R. García-Herrera, J. Diaz, and I. F. Trigo. How exceptional was the early august 2003 heatwave in france? *Geophysical Research Letters*, 32(L10701), 2005.
- [75] R. Vautard, C. Honoré, M. Beekmann, and L. Rouil. Simulation of ozone during the august 2003 heat wave and emission control scenarios. *Atmospheric Environment*, 39 :2957–2967, 2005.
- [76] R. Vautard, P. Yiou, F. D’Andrea, N. de Noblet, N. Viovy, C. Cassou, J. Polcher, P. Ciais, M. Kageyama, and Y. Fan. Summertime european heat and drought waves induced by wintertime mediterranean rainfall deficit. *Geophysical Research Letters*, 34, 2007.
- [77] D. Vogelesang and A. Horslag. Evaluation and model impacts of alternative boundary layer height formulations. *Boundary Layer Meteorology*, 81 :245–269, 1996.
- [78] A. Volz-Thomas. In-service aircraft for global observations - the future. *IGACTivities Newsletter*, 37 :18–22, 2007.
- [79] 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.
- [80] Y. Wang, D. J. Jacob, and J. A. Logan. Global simulation of tropospheric o_3 – NO_x –hydrocarbon chemistry. 1. model formulation. *Journal of Geophysical Research*, 103(D9) :10713–10725, 1998.
- [81] M. L. Wesely and B. B. Hicks. A review of the current status of knowledge on dry deposition. *Atmospheric Environment*, 34 :2261–2282, 2000.
- [82] O. Wild, X. Zhu, and M. J. Prather. Fast-j : Accurate simulation of in- and below-cloud photolysis in tropospheric chemistry models. *Journal of Atmospheric Chemistry*, 37 :245–282, 2000.
- [83] R. Yevich and J. A. Logan. An assessment of biofuel use and burning of agricultural waste in the developing world. *Global Biogeochemical Cycles.*, 17(4) :245–282, 2003.
- [84] R. Zbinden, J.-P. Cammas, V. Thouret, P. Nedelec, F. Karcher, and P. Simon. Mid-latitude tropospheric ozone columns from the MOZAIC program : climatology and interannual variability. *Atmospheric Chemistry and Physics*, 6 :1053–1073, 2006.