



HAL
open science

Modélisation à haute résolution du transport de polluants à longue distance

Antoine Auby

► **To cite this version:**

Antoine Auby. Modélisation à haute résolution du transport de polluants à longue distance. Sciences de l'environnement. Université Pierre et Marie Curie - Paris VI, 2012. Français. NNT: . tel-00735198

HAL Id: tel-00735198

<https://theses.hal.science/tel-00735198>

Submitted on 25 Sep 2012

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.

THÈSE de DOCTORAT DE L'UNIVERSITÉ
PARIS VI - PIERRE ET MARIE CURIE

Spécialité : Physico-chimie de l'atmosphère

École Doctorale des Sciences de l'Environnement d'Île de France

Présentée par **ANTOINE AUBY**¹
pour obtenir le grade de Docteur de l'UPMC

Sous la direction de **Kathy Law** et **François Ravetta**.

Sujet de la thèse :

**Modélisation à haute résolution
du transport de polluants à longue distance**

Soutenue le 19 Janvier 2012

	<i>Devant un jury composé de :</i>	
M ^{me} Laurence PICON	Laboratoire de Météorologie Dynamique	Présidente
M. Steve ARNOLD	University of Leeds	Rapporteur
M. Jean-Luc ATTIE	Laboratoire d'Aérodynamique	Rapporteur
M ^{me} Elsa REAL	INERIS	Examineur
M. Bernard LEGRAS	Laboratoire de Météorologie Dynamique	Examineur invité
M ^{me} Kathy LAW	LATMOS	Directrice de thèse
M. François RAVETTA	LATMOS	Directeur de thèse

1. Laboratoire Atmosphères, Milieux, Observations Spatiales
Institut Pierre-Simon Laplace
4, place Jussieu, boîte 102, 75252 Paris Cedex 05, France
antoine.auby@latmos.ipsl.fr

Résumé

La pollution de l'air peut être transportée sur des distances de plusieurs milliers de kilomètres par la dynamique de grande échelle. Elle affecte ainsi le climat et la qualité de l'air loin des régions sources. Durant leur transport, les panaches de pollution voient leur composition altérée par le mélange avec l'air environnant. Les modèles globaux eulériens utilisés pour calculer les bilans d'export de polluants ne représentent pas bien le transport des panaches du fait de leur faible résolution, ce qui induit des erreurs dans le calcul de ces bilans et dans les vitesses de réaction du fait de la non-linéarité de la photochimie atmosphérique. Cette thèse a pour but de contribuer à améliorer la compréhension et la quantification du mélange subi par les panaches de pollution dans la troposphère libre lors du transport à longue distance, et sa représentation dans les modèles numériques. Elle se focalise sur l'Arctique, une région vulnérable au changement climatique, où la distribution des gaz à effet de serre et des aérosols est fortement influencée par le transport de polluants depuis les moyennes latitudes. Les travaux effectués s'organisent autour de trois études de cas de transport dans la troposphère arctique, dans le cadre de la campagne aéroportée POLARCAT durant l'été 2008. Les résultats obtenus permettent d'estimer que l'intensité du mélange dans cette région est plus faible qu'aux moyennes latitudes. Ils montrent également qu'une approche lagrangienne permet de reproduire la variabilité des concentrations dans les panaches âgés, de simuler le transport des structures de petite échelle, et d'évaluer la variabilité de l'évolution des concentrations en ozone dans les panaches induite par les différents scénarios de mélange. Les résultats de ces modèles lagrangiens permettent aussi de jauger les performances des modèles globaux eulériens en terme de transport des polluants en Arctique, et de définir la résolution spatiale nécessaire pour représenter ce transport de façon satisfaisante. Les trois études présentées concordent sur l'importance de combiner les approches lagrangienne et eulérienne pour simuler le transport à longue distance dans les modèles numériques.

Abstract

Air pollution can be transported between continents by large-scale atmospheric dynamics, where it can impact climate and regional air quality far from emission regions. During transport, concentrations in polluted plumes are affected by mixing with the background. Impacts of long-range pollution on climate and air quality are usually quantified using global Eulerian models, that tend to overestimate mixing due to their low resolution. This induces errors in the simulated export of pollutants, and in the reaction rates due to the non-linearity of atmospheric chemistry. This thesis aims to better understand and quantify mixing of pollutant plumes in the free troposphere during long-range transport, and its representation in numerical models. It focuses on the Arctic, which is a region vulnerable to climate change, and where greenhouse gases and aerosol distributions are strongly influenced by transport of pollution from mid-latitudes. The work focuses on three case studies of transport into the Arctic troposphere during the POLARCAT campaign, in summer 2008. Results include estimates of the intensity of mixing in the Arctic troposphere, which was found to be lower than in mid-latitudes. The results also show that a Lagrangian modelling approach is able to reproduce the variability in observed concentrations in aged plumes, to simulate the transport of small-scale structures, and to evaluate the variability of ozone evolution in pollutant plumes due to differences in mixing scenarios. The model results are also used to assess pollutant transport simulated by global models in the Arctic, and to define the resolution needed for more accurate simulations. Overall, the results highlight the necessity to combine Lagrangian and Eulerian approaches to improve the representation of long-range pollution transport in numerical models.

Remerciements

Tout d'abord, je voudrais remercier le Service d'Aéronomie, en la personne de son directeur Alain Hauchecorne, pour m'avoir accueilli pendant ces trois ans et fourni de bonnes conditions de travail. Entre temps, ce laboratoire est devenu le LATMOS (Laboratoire Atmosphères, Milieux, Observations Spatiales), dont je remercie la directrice Danièle Hauser, ainsi que le directeur adjoint Jacques Pelon.

Ma thèse fait partie du projet franco-allemand INTAS financé par le DFG et le CNRS, que je voudrais remercier pour m'avoir donné, ainsi qu'à trois autres doctorants, l'occasion de travailler sur le transport de polluants à longue distance.

Merci également à l'Université Pierre et Marie Curie où j'ai pu m'inscrire en thèse, ainsi qu'à l'Ecole Doctorale des Sciences de l'Environnement en Île de France, son directeur Hervé Le Treut et sa gestionnaire Laurence Touchon.

Lors de ma thèse, j'ai eu la chance d'être encadré par Kathy Law et François Ravetta. Je les remercie de m'avoir fait confiance en me donnant ce sujet de thèse, d'avoir guidé mes premiers pas en tant que chercheur et bien sûr pour leurs conseils, leur disponibilité et leur patience. Merci aussi pour leur soutien dans les moments difficiles, sans lequel je n'aurais sans doute pas pu finir cette thèse.

Je remercie également les membres de mon jury de thèse, et tout particulièrement Bernard Legras et Steve Arnold qui m'ont fait l'honneur de participer à mon comité de thèse. Merci également à Jean-Luc Attié d'avoir accepté d'être rapporteur, à Laurence Touchon de présider le jury et à Elsa Real d'en être examinatrice.

Les études présentées ici se sont faites en collaboration avec le DLR Oberpfaffenhofen, près de Munich. Je tiens à remercier Hans Schlager de m'avoir permis d'utiliser les données qu'ils ont récoltées durant la campagne POLARCAT. Merci à Anke Roiger pour son aide et sa bonne humeur et à Sebastian Bauer pour ses explications sur l'expérience PERTRAS.

Je remercie tout le personnel du LATMOS Jussieu pour leur accueil et leur convivialité, et particulièrement les autres thésards : Elsa et sa clochette, Audrey et ses discussions enflammées, Christophe et Lionel avec leurs blagues, Sébastien, Christophoros, Matthieu, Perrine, Idir, Julien, Rémi, Manos, Cyn-die, Kristell. Bon courage à ceux qui n'ont pas encore soutenu.

Merci à Jean-Christophe pour avoir accepté que son bureau soit transformé en annexe de la machine à café, à Jennie pour son énergie, à Jaime

pour les post-it, à Jihane pour ne pas avoir frappé trop fort, à Thomas pour ses conseils de survie en cas d'invasion zombie.

Merci à Gérard Ancellet qui m'a accueilli dans son bureau, à Slimane Bekki qui a accepté de m'engager pour travailler pendant un mois sur le projet OPALE et à Philippe et Olivier pour leur soutien informatique.

Je tiens à remercier particulièrement Jacques Lefrère, dont les enseignements et l'enthousiasme m'ont donné envie de me lancer dans la programmation scientifique ainsi que pour son incroyable disponibilité pour aider les autres chercheurs face à leurs bugs, sans quoi le laboratoire, et une bonne partie de Jussieu, s'effondrerait sûrement.

Un grand merci à ma famille et mes amis, et particulièrement à mon épouse qui m'a soutenu inconditionnellement pendant ces trois ans.

Merci et pardon aux 42 personnes que j'ai dû oublier.

Enfin, merci à vous qui lisez ce document.

Table des matières

1	Introduction	11
2	La Pollution à longue distance	15
2.1	Composition de l'atmosphère	16
2.2	Sources de la pollution	17
2.2.1	Combustibles fossiles	18
2.2.2	Émission de polluants d'origine non-fossile	19
2.3	Transport des polluants à longue distance	21
2.3.1	Régions de l'atmosphère concernées par la pollution	21
2.3.2	Circulation générale de la troposphère	23
2.3.3	Injection des polluants dans la troposphère libre	24
2.3.4	Diffusion et étirement des panaches	27
2.3.5	Temps de transport caractéristiques de la pollution dans la troposphère libre	27
2.4	Chimie de l'ozone et de ses précurseurs	29
2.4.1	Production d'ozone	29
2.4.2	Destruction d'ozone	30
2.4.3	Réservoirs de NOx	31
2.4.4	Bilan chimique global d'ozone	32
2.4.5	Evolution chimique dans les panaches	32
2.5	Cas particulier de l'Arctique	34
2.5.1	Sensibilité climatique	34
2.5.2	La pollution atmosphérique en Arctique	34
2.5.3	La campagne POLARCAT	37
3	Modéliser la pollution à longue distance	45
3.1	Approches eulérienne et lagrangienne	45
3.2	Modéliser le mélange dans l'atmosphère	47
3.2.1	Diffusion et étirement des panaches	47
3.2.2	Qu'est-ce que le mélange?	49
3.2.3	Différentes approches pour modéliser le mélange	50

4	Modélisation du transport et du mélange de panaches âgés en Arctique	59
4.1	Résumé de l'étude	60
4.1.1	Cas étudié	60
4.1.2	Simulation du transport du panache avec un modèle global eulérien	60
4.1.3	Reconstructions lagrangiennes de filaments du panache asiatique	61
4.1.4	Distributions des concentrations et intensité du mélange	62
4.1.5	Diffusion et résolution du modèle global	63
4.2	Manuscrit de l'article	63
5	Étude de la dispersion d'un panache artificiel dans la troposphère arctique	95
5.1	Introduction	95
5.2	L'expérience PERTRAS	97
5.2.1	Contexte scientifique	97
5.2.2	Déroulement de l'expérience PERTRAS et mesures effectuées	98
5.3	Simulation de la dispersion du traceur à l'aide d'un schéma de panache gaussien	102
5.3.1	Méthodologie utilisée	104
5.3.2	Croissance gaussienne du panache de traceur	107
5.3.3	Sensibilité au coefficient de diffusion de la série temporelle du PFC le long du vol d'échantillonnage	109
5.3.4	Simulation de la quantité de traceur totale le long du vol	112
5.4	Reconstructions lagrangiennes à haute résolution	116
5.4.1	Méthodologie des reconstructions lagrangiennes	116
5.4.2	Comparaison avec le schéma de panache gaussien	117
5.5	Conclusions	119
6	Influence du scénario de mélange sur l'ozone lors du transport d'un panache de polluants en Arctique	121
6.1	Introduction	121
6.2	Cas de connexion lagrangienne étudié	123
6.2.1	Méthodologie	123
6.2.2	Présentation du cas	125
6.2.3	Simulation du transport du panache par le modèle eulérien régional WRF-chem	130
6.3	Simulation de l'évolution des concentrations le long du lien lagrangien	132

6.3.1	Méthodologie	132
6.3.2	Chimie seule	133
6.3.3	Influence du mélange	135
6.3.4	Corrélations CO/O ₃	139
6.4	Conclusions	141
7	Conclusion et perspectives	145

Chapitre 1

Introduction

Le phénomène de pollution atmosphérique n'est pas uniquement lié à l'humanité : en effet, des phénomènes naturels comme les éruptions volcaniques ou les feux de forêt affectent la composition de l'atmosphère de façon nuisible pour les êtres vivants.

La pollution due aux activités humaines, ou pollution anthropique, est devenue significative avec les débuts de l'industrialisation. Toutefois, il a fallu attendre des événements catastrophiques comme le grand smog de Londres de 1952 (qui aurait causé environ 4000 décès) pour que se développe une prise de conscience collective de la pollution atmosphérique en tant que problème de santé publique.

Elle est responsable d'affections graves, comme des troubles respiratoires, l'asthme, des affections pulmonaires obstructives chroniques, des maladies cardio-vasculaires et le cancer des poumons (OMS, 2000).

De plus, la pollution atmosphérique affecte le bilan radiatif de la Terre : tout d'abord, certains polluants sont des gaz à effet de serre, comme l'ozone. Ensuite, l'impact radiatif des aérosols est une source d'incertitude importante dans les études sur le changement climatique, en raison de leur double intervention dans les bilans radiatifs : directement par absorption du rayonnement, et indirectement par leur participation à la formation de nuages.

Enfin, les polluants peuvent affecter la surface. Par déposition sèche, l'ozone provoque des dommages à la végétation (nécroses, diminution de la croissance, Castell). Les pluies acides, provoquées par les oxydes de soufre et d'azote, induisent une augmentation de l'acidité des eaux de surface et polluent les sols, diminuant la résistance de la flore.

De nos jours, de nombreux Etats disposent d'organismes de surveillance de la qualité de l'air, ainsi que des moyens de réduire les émissions anthropiques en cas d'épisodes importants de pollution.

Ces mécanismes de régulation ne concernent que les émissions anthropiques de polluants, et sont prévus pour lutter contre la pollution dite “locale”, c’est-à-dire quand les zones polluées sont proches des sources d’émission. Toutefois, la circulation atmosphérique peut provoquer l’export de polluants atmosphériques à longue distance, jusqu’à plusieurs milliers de kilomètres des sources.

Cette pollution à longue distance se produit dès que les masses d’air polluées sont soulevées hors de la couche limite atmosphérique vers la troposphère libre, où l’advection est plus intense. Ce soulèvement se fait souvent par le biais de systèmes frontaux, mais peut aussi être provoqué par l’activité convective, les brises de mer et orographiques ou par chauffage pour les panaches issus de feux de biomasse.

Les nuages de pollution prennent alors la forme de panaches de plusieurs centaines de kilomètres de long et de plusieurs centaines de mètres de haut, et sont transportés sur des distances de quelques milliers de kilomètres sous le vent. Ces panaches vont provoquer un accroissement des niveaux de pollution loin des sources, facilitant dans les régions densément peuplées le dépassement des seuils de concentration définis par l’Organisation Mondiale pour la Santé (OMS) pour la santé humaine (Wild and Akimoto, 2001). Les panaches de polluants affectent également les régions où les émissions sont faibles, comme en Arctique où elle serait la cause principale du phénomène d’ ”Arctic haze” (Greenaway, 1950; Barrie, 1986; Stohl et al., 2007).

Lors du transport à longue distance, le cisaillement du vent provoque l’étirement et la filamentation des panaches, ce qui a pour effet d’intensifier les gradients de concentration. A l’inverse, les mouvements turbulents de petite échelle vont à l’encontre de ces gradients en mélangeant le contenu de masses d’air proches. Ce processus, qu’on nomme simplement mélange, est intensifié dans les zones de forte turbulence comme la couche limite atmosphérique et les zones frontales.

La combinaison de l’étirement et de la filamentation des panaches avec le mélange turbulent induit une dilution des panaches de polluants dans leur environnement, et donc à la réduction des concentrations dans les panaches, mais aussi l’export de la pollution vers des zones géographiques nettement plus étendues que la taille initiale du panache. (Ottino, 1989; Pudykiewicz, 1998)

L’impact du transport à longue distance peut être étudié à l’aide de modèles eulériens globaux de chimie-transport, toutefois la représentation des processus avec ces outils est difficile : la diffusion numérique due à la faible résolution spatiale des modèles globaux (typiquement 1 à 2° horizontalement) empêche de représenter les échelles typique de ces interactions, ce qui induit

une surestimation du mélange, une mauvaise représentation des gradients de concentration et des erreurs dans les temps de vie des espèces réactives en raison de la non-linéarité de la chimie atmosphérique. (Pyle and Zavody, 1990; Tan et al., 1998; Wild and Prather, 2006)

L'utilisation de modèles lagrangiens permet de s'affranchir des problèmes liés à la diffusion numérique, ainsi que de représenter les structures de petite échelle dans les panaches et de simuler explicitement des processus comme le mélange lors du transport à longue distance (e.g. Methven et al. (2003), Real et al. (2007)).

Cette thèse porte sur le transport à longue distance de polluants dans la troposphère libre et l'évolution des concentrations des gaz traces dans les panaches de polluants lors de ce transport. L'étude se focalise sur le mélange lors du transport à longue distance, sa représentation dans les modèles numériques et son impact sur les concentrations des traceurs, mais aussi la production d'ozone dans les panaches. Le travail effectué s'axe autour de trois études de cas de transport dans la troposphère Arctique, une région vulnérable au changement climatique (Anisimov et al., 2007) et où le transport à longue distance joue un rôle important dans la composition atmosphérique (Stohl, 2006). Ces études s'inscrivent dans le cadre de la campagne POLAR-CAT (Polar Study using Aircraft, Remote Sensing, Surface Measurements and Models, of Climate, Chemistry, Aerosols, and Transport). L'objectif est de répondre aux questions suivantes :

- **Quelle est l'intensité du mélange lors du transport dans la troposphère Arctique ?**
- **Quelles sont les complémentarités des modèles lagrangiens et eulériens en matière de transport des panaches de pollution ?**
- **Comment le scénario de mélange affecte-t-il l'évolution des concentrations en ozone dans les panaches ?**

Cette introduction sera suivie par un rappel sur la nature des polluants caractéristiques de la pollution à longue distance, leur origine, ainsi que sur les processus dynamiques et chimiques intervenant lors du transport (chapitre 2). Les particularités de l'Arctique vis-à-vis de cette pollution seront également présentées.

Le chapitre 3 portera sur la modélisation de la pollution à longue distance. Il commencera par un rappel des discussions précédentes sur l'utilisation de points de vue eulériens ou lagrangiens pour simuler le transport à longue distance. La modélisation du mélange en particulier sera ensuite discutée à l'aide de schémas issus de divers modèles numériques.

Les résultats obtenus seront présentés en trois parties :

- *Étude d'un cas de transport transarctique d'un panache de polluants.* L'accent sera mis sur l'estimation de l'intensité du mélange à l'aide des distributions des concentrations dans le panache, mais aussi sur la performance des modèles globaux pour simuler le transport des panaches âgés, et sur les perspectives d'amélioration possibles pour les représenter (chapitre 4).
- *Travail effectué sur les résultats d'une expérience d'injection de traceur passif dans la troposphère libre au-dessus du Groenland.* L'intensité du mélange sera ici estimée à l'aide d'un modèle d'injection mis au point pour cette étude. La stratégie d'échantillonnage sera également discutée (chapitre 5).
- *Étude de l'impact du mélange sur l'évolution des concentrations en ozone dans un panache de feux de biomasse nord-américain lors de son transport vers le Groenland.* Dans ce but, on utilisera un modèle de chimie lagrangien couplé aux résultats d'un modèle régional eulérien de chimie-transport afin de simuler la photochimie et le mélange dans le panache (chapitre 6).

En conclusion, le chapitre 7 résumera la contribution de ces études aux questions scientifiques ci-dessus, ainsi que les perspectives de recherches qu'elles ouvrent pour prolonger le travail effectué et pour améliorer la représentation du mélange dans les modèles numériques.

Chapitre 2

La Pollution à longue distance

Ce chapitre présente les concepts nécessaires à l'étude de la pollution à longue distance. On s'attachera tout d'abord à définir ce terme.

On dispose en France d'une définition juridique de la pollution atmosphérique dans la loi sur l'air et l'utilisation rationnelle de l'énergie de 1996 : *“l'introduction par l'homme, directement ou indirectement, dans l'atmosphère et les espaces clos, de substances ayant des conséquences préjudiciables de nature à mettre en danger la santé humaine, à nuire aux ressources biologiques et aux écosystèmes, à influencer sur les changements climatiques, à détériorer les biens matériels, à provoquer des nuisances olfactives”*.

Cette définition peut paraître contestable du point de vue de la recherche. Elle permet toutefois de mettre en avant deux notions essentielles : tout d'abord, la pollution est une perturbation de la composition atmosphérique, de plus les polluants ont un effet néfaste, que ce soit sur la santé humaine, l'environnement ou sur le climat.

L'émission des polluants se fait essentiellement à la surface de la Terre, avec une variabilité horizontale importante. Du fait de la dynamique atmosphérique, ces polluants peuvent être exportés loin de leurs sources, ce qui provoque une augmentation de leur concentration en aval. C'est ce phénomène qu'on désigne par le terme “pollution à longue distance”.

Dans ce chapitre, on s'attachera tout d'abord à présenter les principaux polluants, ainsi que leurs sources. Ensuite, on se penchera sur la dynamique du transport à longue distance, avant de décrire la chimie de l'ozone. Enfin, une section sera dédiée à l'Arctique et ses particularités du point de vue de la pollution à longue distance, ainsi qu'à la campagne POLARCAT, focalisée sur l'étude du transport de polluants dans cette région.

2.1 Composition de l'atmosphère

L'atmosphère terrestre est essentiellement composée de diazote, N_2 , et de dioxygène, O_2 , en moyenne à des proportions molaires respectives de 78.1% et 20.9% (par rapport à l'atmosphère sèche, source : NASA). Ces proportions varient très peu, excepté dans la haute atmosphère, et ne sont généralement pas affectées par la pollution.

A ces deux constituants majoritaires s'ajoute un grand nombre de composés minoritaires, avec des rapports de mélange allant de plusieurs centaines de parties par million (ppmv) à quelques parties par trillion (pptv). On les distingue généralement selon leur durée de vie dans l'atmosphère.

L'eau est également présente dans l'atmosphère, que ce soit en phase gazeuse ou condensée dans les nuages. Le cycle de l'eau est une composante essentielle du système climatique, participant aux transferts d'énergie, mais aussi à la chimie atmosphérique, permettant les réactions en phase aqueuse au sein des nuages. Le contenu en eau est très variable, mais elle est principalement concentrée dans la basse troposphère, où elle atteint des rapports de mélange de plusieurs milliers de ppmv.

Les composés à longue durée de vie principaux sont l'argon (9340 ppmv), mais aussi des gaz à effet de serre comme le dioxyde de carbone, CO_2 (380 ppm en moyenne, avec un temps de vie de quelques années) et le méthane, CH_4 (environ 1.7 ppm, temps de vie 9 ans). Parmi ces composés se trouvent également les chlorofluorocarbones (CFC, temps de vie de quelques décennies) responsables des trous d'ozone en Antarctique et en Arctique.

L'atmosphère contient aussi des espèces à plus courte durée de vie, qui tiennent un rôle particulièrement important dans la pollution atmosphérique bien que présents en concentrations nettement plus faibles que les composés précédemment cités. En effet, de nombreux composés dangereux pour la santé, favorisant asthme et infections respiratoires, provoquant les pluies acides et dégradant la végétation par déposition, entrent dans cette catégorie. On distingue parmi ces espèces l'ozone O_3 , le monoxyde de carbone CO , les oxydes d'azote NO_y , les composés organiques volatiles COV ou les oxydes de soufre SO_x .

Parmi les espèces à courte durée de vie, on inclut également les aérosols, qui affectent aussi la santé humaine, mais ont également un double effet sur le transfert radiatif, en absorbant le rayonnement (effet direct), et en participant à la formation de nuages (effet indirect). La faible durée de vie des aérosols dans l'atmosphère, de l'ordre de la semaine, est due principalement au lessivage et au dépôt sec, et dépend de la taille des particules.

Les différences dans les temps de vie des différents constituants de l'atmosphère s'accompagnent de différences dans leurs répartitions spatiales, comme

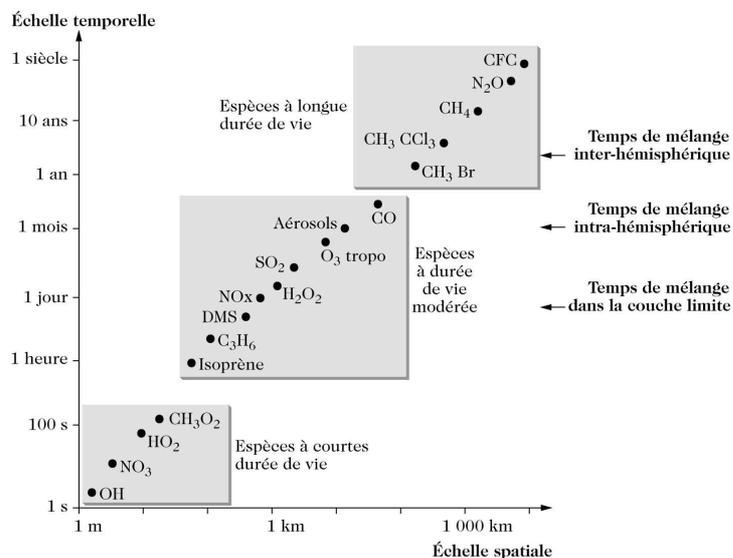


FIGURE 2.1 – Temps de vie et échelles spatiales de variation typiques des concentrations pour différentes espèces. Source : Delmas et al. (2005)

illustré par la figure 2.1 : plus une espèce a une longue durée de vie, plus elle sera mélangée largement dans l’atmosphère. Les principaux polluants (O_3 , CO, NO_x, aérosols) présentent la particularité d’avoir un temps de vie suffisamment long (d’un jour à quelques semaines) pour pouvoir être transportés sur des distances importantes par la dynamique atmosphérique, et suffisamment court pour maintenir une variabilité spatiale des concentrations dans la troposphère. Il est donc nécessaire pour étudier la pollution atmosphérique de bien connaître à la fois ses sources, mais aussi la dynamique responsable de son transport et les processus affectant les concentrations pendant celui-ci.

2.2 Sources de la pollution

La notion de pollution suppose qu’elle est d’origine anthropique, l’émission des polluants est donc fortement liée à la démographie et à l’économie, et présente donc des inhomogénéités spatiales importantes. Il existe toutefois d’autres sources de la pollution, certaines ne font pas intervenir l’homme, comme les soulèvement de poussières désertiques, d’autres sont à la fois provoquées par les activités humaines et présentes naturellement, comme les feux de biomasse ou l’émission de méthane par les sols.

Il est important de noter que, dans la perspective du changement cli-

matique, les activités humaines perturbent l'atmosphère dans son ensemble, rendant floue la limite entre pollution naturelle et anthropique. Il est donc plus pertinent de classer les sources de pollution selon le processus responsable de leur émission et selon la nature des polluants émis.

Pour étudier le transport des polluants, il est important de mettre en évidence les régions où les émissions sont les plus importantes, qu'on appelle régions sources. On peut ainsi se focaliser sur les chemins de transport principaux de la pollution à longue distance. Toutefois, il est également nécessaire de quantifier les émissions au niveau global afin de calculer les bilans d'import et d'export de polluants.

2.2.1 Combustibles fossiles

La pollution anthropique se fait principalement par l'utilisation de combustibles fossiles (pétrole, charbon, gaz naturel) pour la production d'énergie, les transports, le chauffage et l'industrie. Elle est fortement liée à la densité de population et l'activité économique, et plus des trois quarts de la consommation de ces combustibles se fait dans les pays industrialisés de l'hémisphère nord.

Le CO est fréquemment utilisé comme traceur de la pollution issue de la combustion, car il est presque exclusivement émis de cette manière. Il a de plus un temps de vie est relativement long, de l'ordre de deux mois selon la capacité oxydante de l'atmosphère. Il ne faut toutefois pas oublier qu'il est produit par tout type de combustion de matière carbonée.

La figure 2.2 montre la répartition des émissions de CO anthropique selon l'inventaire EDGAR pour l'année 2000. Les sources de pollution les plus importantes se trouvent dans l'hémisphère Nord : la côte Est des États-Unis, l'Europe, la péninsule indienne et l'Asie du Sud-Est. On peut aussi noter des sources moindres en Afrique du Sud, autour du Golfe de Guinée, et en Amérique du Sud.

La combustion de fuel fossile produit, en plus du CO₂ et du CO, des oxydes de soufre et d'azote, principalement sous forme de SO₂ et NO, mais aussi des composés organiques volatiles et des particules de suie et de carbone organique. La pollution anthropique est également souvent marquée par des concentrations importantes en ozone, dont les NO_x et les COV sont des précurseurs.

L'émission de polluants par combustion de fuel se fait aussi loin des régions sources par le biais du transport aérien. Ces émissions se font en grande partie au niveau de la tropopause et ont une durée de vie fortement accrue en comparaison des émissions équivalentes en surface. Les bateaux sont également une source de polluants et peuvent contribuer à la pollution atmo-

EDGAR - Total anthrop. co emission flux - year 2000, month 1

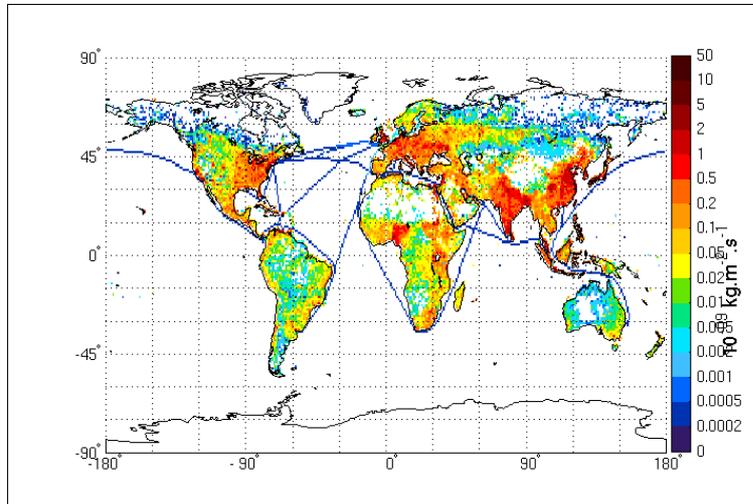


FIGURE 2.2 – Emission annuelle de CO anthropique lors de l'année 2000 selon l'inventaire EDGAR (Source : EC-JRC/PBL. EDGAR version 4.1. <http://edgar.jrc.ec.europa.eu/>, 2010).

sphérique dans des régions où on en trouve peu de sources (Granier et al., 2006).

2.2.2 Émission de polluants d'origine non-fossile

Les sources de polluants uniquement anthropiques comportent les émissions industrielles (hors combustibles fossiles), qui sont en général mineures, exceptés pour certains composés comme les chlorofluorocarbones (CFC, responsables de la destruction d'ozone stratosphérique), qui ne sont produits que par voie industrielle.

Les feux de biomasse produisent, comme l'utilisation de combustibles fossile, du CO_2 et du CO, mais aussi des COV et des particules de suie et de carbone organique. La figure 2.3 montre la répartition des sources de CO par feux de biomasse en 2004 selon l'inventaire GFED. Elles se trouvent principalement en Amérique du Sud et en Afrique, avec des sources moindres en Indonésie, Australie, Alaska et Sibérie, et présentent une importante variabilité interannuelle. Il faut noter que les feux de biomasse ne sont pas une source de pollution d'origine exclusivement naturelle, mais sont aussi provoqués par l'homme par déforestation, chauffage ou combustion des résidus agricoles. Le

changement climatique pourrait augmenter la fréquence des feux.

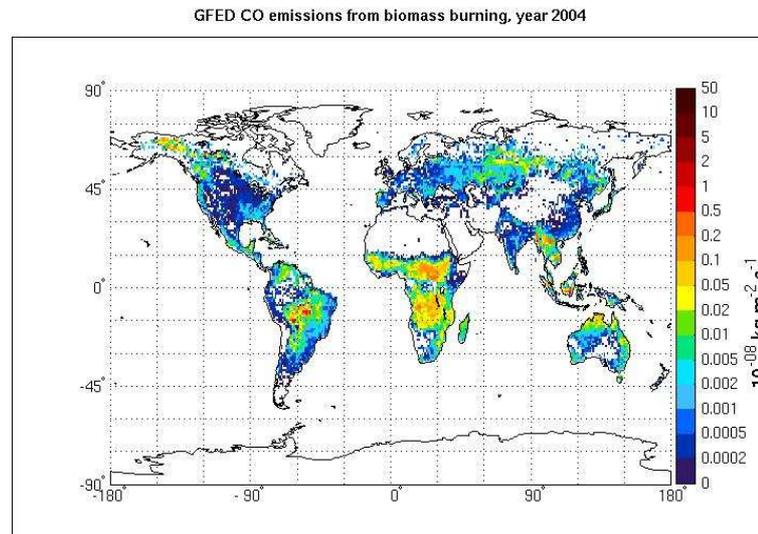


FIGURE 2.3 – Emission annuelle de CO par feux de biomasse lors de l'année 2004 selon l'inventaire GFED v2 (Randerson et al., 2007).

Dans les régions sèches, le vent provoque le soulèvement de poussières désertique. En raison d'une forte charge en aérosols, les panaches générés affectent le transfert radiatif ainsi que la formation de nuages. La source la plus importante de cette pollution est le Sahara (Middleton and Goudie, 2001), mais les émissions sont également importantes en Asie (désert de Gobi), en Australie et en Amérique du Sud.

La source principale de COV dans l'atmosphère est la végétation, avec des émissions cinq fois plus intenses que celles d'origine anthropique. Elles sont dues au métabolisme des plantes et le type de composé produit varie selon la famille de végétaux. Ces émissions sont dominées par la production d'isoprène (C_5H_8), essentiellement par les arbres à feuilles caduques. Les résineux, quand à eux, émettent surtout des composés terpéniques. Les incertitudes sur les émissions de COV sont particulièrement grandes, bien qu'ils représentent 40% en masse des carbones détectés.

Le cycle de l'azote, qui permet de transformer dans les sols l'azote organique en azote minéral assimilable par la végétation, est une source d'oxydes d'azote dans l'atmosphère (NO par nitrification, N_2O par dénitrification), ainsi que d'ammoniac (NH_3) si le milieu est suffisamment basique ($pH > 8$).

Dans les zones anaérobies, la décomposition de matière organique dans les sols est une source importante de méthane. Elle se produit dans les fo-

rêts inondées tropicales ou boréales, mais aussi dans les rizières, décharges d'ordures et lacs de barrages. Les bactéries responsables de ces émissions se trouvent également dans le tube digestif des animaux, notamment les termites et les ruminants, qui contribuent à la production de méthane.

Lors des orages, la foudre provoque la décomposition du diazote et du dioxygène en NOx, émis en majorité sous forme de NO (mécanisme de Zeloditch, Delmas et al. (2005)). L'incertitude sur les émissions issues de ce processus est à ce jour importante, alors qu'elles pourraient représenter une source de l'ordre de 10 Tg d'azote par an.

2.3 Transport des polluants à longue distance

Une fois émis dans l'atmosphère, les polluants peuvent être transportés sur de longues distances. Ce transport est la combinaison de processus d'échelles très différentes provoquant le soulèvement, l'advection et la subsidence des panaches, mais aussi des déformations de leur structure et des échanges de matière avec leur environnement.

2.3.1 Régions de l'atmosphère concernées par la pollution

La quasi-totalité des sources de la pollution se trouvent au niveau du sol, son transport se fait donc principalement dans les basses couches de l'atmosphère : la couche limite atmosphérique (CLA, entre le sol et 0.5 à 3 km) et la troposphère libre (du sommet de la couche limite à la tropopause, à 8-18 km), comme résumé sur la figure 2.4. Dans certains cas, les polluants peuvent être injectés au-dessus de la tropopause dans la basse stratosphère, mais cela ne concerne qu'une faible partie des polluants émis.

Dans la CLA, la circulation est influencée par les frottements avec la surface, ce qui fait que le vent y est en général plus faible que dans le reste de l'atmosphère. De plus, le chauffage radiatif au niveau du sol et le cisaillement y génèrent d'importants flux turbulents qui redistribuent la chaleur, l'humidité et la quantité de mouvement dans la CLA. L'intensité de ces flux régit l'épaisseur de la CLA, qui varie de quelques centaines de mètres à 3 km selon l'intensité du rayonnement au sol et les conditions météorologiques. Elle présente de plus un cycle journalier marqué, avec une couche limite mélangée très turbulente pendant la journée, qui subsiste pendant la nuit sous la forme d'une couche résiduelle (moins turbulente) au-dessus de la couche limite nocturne stable.

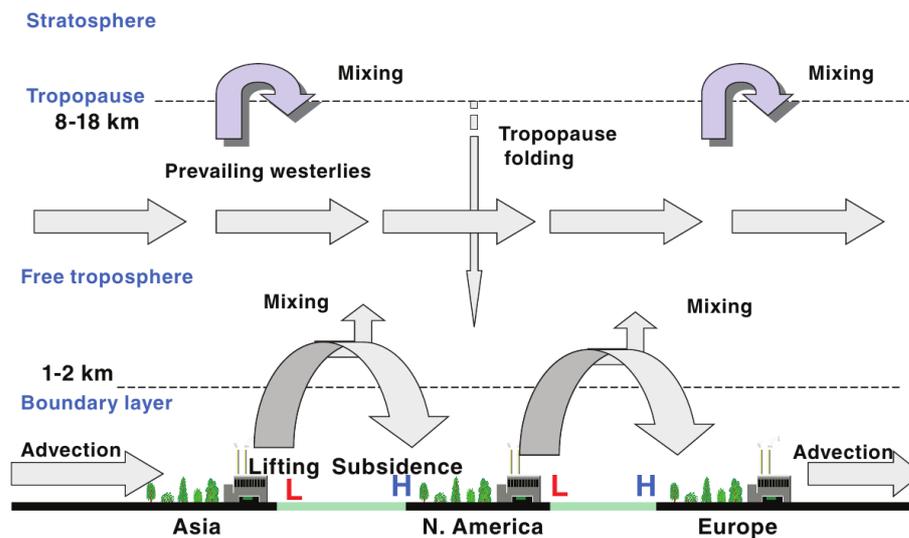


FIGURE 2.4 – Schéma des processus dynamiques principaux régissant le transport à longue distance aux moyennes latitudes de l’hémisphère nord (NRC, 2010).

Du fait des flux turbulents, la dispersion des polluants est intense dans la CLA. Le temps de mélange vertical caractéristique est de l’ordre de quelques dizaines de minutes, ce qui fait que les concentrations de la plupart des polluants peuvent être considérées comme homogènes verticalement (sauf pour les espèces très réactives chimiquement). Les panaches pollués sont donc rapidement dispersés dans la CLA, et y sont de plus sujets à une advection faible, ce qui n’est pas propice au transport à longue distance.

Au-dessus de la CLA se trouve la troposphère libre, nommée ainsi car elle n’est pas influencée directement par la surface de la Terre, ce qui fait que l’advection y est plus rapide que dans la CLA. C’est une couche généralement stable, avec un gradient de température verticale d’environ -6.5 K/km . Le cisaillement peut toutefois y provoquer localement de la turbulence qui joue un grand rôle dans le mélange lors du transport de polluants. La troposphère libre est particulièrement propice au transport de polluants à longue distance car les panaches peuvent y être transportés sur de grandes distances en subissant une dispersion limitée, tout en étant suffisamment proches de la surface pour pouvoir y être déposés.

Dans la troposphère libre, les panaches de pollutions se présentent loin des sources sous la forme de couches minces, d’une épaisseur de l’ordre de quelques centaines de mètres, du fait de l’advection différentielle (Newell et al., 1999). La variabilité du mélange joue un grand rôle dans la distribution

de ces couches dans la troposphère (Colette and Ancellet, 2006).

2.3.2 Circulation générale de la troposphère

On désigne par “circulation générale” les mouvements moyens de l’atmosphère. Elle ne décrit pas les chemins de transport qui seront effectivement suivis par les panaches, mais donne les caractéristiques générales de la dynamique atmosphérique.

Le rayonnement solaire reçu à la surface de la Terre est inégalement réparti, il est plus intense près de l’équateur et faible au niveau des pôles. Ce gradient zonal de chauffage radiatif est le moteur de la circulation générale méridienne de la troposphère, qui redistribue l’énergie de l’équateur vers les pôles. Il s’agit d’une circulation lente, à laquelle s’ajoute une circulation zonale généralement bien plus rapide.

La circulation tropicale est dominée par la cellule de Hadley (figure 2.5), caractérisée par une convection importante au niveau de la zone de convergence intertropicale produisant des précipitations intenses. Les masses d’air ainsi soulevées sont transportées en direction des pôles puis redescendent vers la basse troposphère au niveau des tropiques. Une partie d’entre elles retourne vers l’équateur pour boucler la cellule de Hadley, le reste continuant vers les pôles.

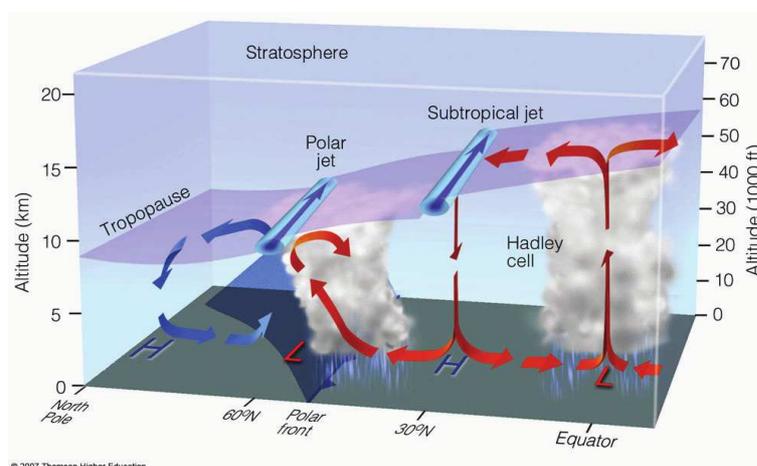


FIGURE 2.5 – Coupe méridienne des grandes cellules de circulation dans l’Hémisphère Nord. (NRC, 2010)

Du fait de la force de Coriolis, la circulation tropicale associée à la branche inférieure de la cellule de Hadley se fait vers l’Ouest, le long des alizés.

Au niveau des tropiques, près de la tropopause, on trouve une paire de courants d'ouest très intenses : les jet-stream sub-tropicaux. Les vents y sont très intenses, permettant aux masses d'air associées de faire le tour de la Terre en environ 10 jours. Deux autres courants identiques, nommés jet-stream polaires se trouvent autour de 60° nord et sud. Les jet-stream se déplacent durant l'année, étant plus proches de l'équateur en hiver et des pôles en été.

En plus des jet-stream, la circulation aux moyennes latitudes est caractérisée par la présence de zones de haute et de basse pression (figure 2.6) autour desquelles s'oriente la circulation à basse altitude. La moyenne troposphère est marquée par de forts vents d'ouest s'orientant vers le nord ou le sud autour des anticyclones et dépressions.

Les régions les plus propices à la formation de systèmes frontaux sont situées, dans l'Hémisphère Nord, à l'est de l'Asie et de l'Amérique du Nord (en raison des forts contrastes de température entre continents et océans) et en aval des grandes chaînes de montagne comme les Alpes ou les Montagnes Rocheuses. Ces régions coïncident généralement avec d'importantes émissions anthropiques de polluants.

Après leur formation, les systèmes frontaux se déplacent sous l'influence des vents dans la haute troposphère, en général vers l'est. On trouve donc des régions (storm tracks) traversées préférentiellement par les dépressions, en Atlantique Nord, dans le Pacifique Nord, dans l'Océan Indien mais aussi autour de l'Arctique.

Le mouvement vertical moyen aux moyennes latitudes présente une subsidence d'air issu de la cellule de Hadley près des tropiques, et une ascension de l'air autour de 60° au-dessus d'air froid polaire (figure 2.6). On nomme cette circulation cellule de Ferrell, par analogie avec la cellule de Hadley.

Au-dessus de 60° , on tend à observer une ascension des masses d'air près des cercles polaires et une subsidence au niveau des pôles, formant la cellule polaire. La circulation est en moyenne caractérisée par des vents d'Ouest autour de zones de basse pression près des pôles.

2.3.3 Injection des polluants dans la troposphère libre

La plupart des polluants sont émis au niveau du sol dans la couche limite atmosphérique qui n'est pas un milieu très propice au transport à longue distance en raison d'une advection faible et d'importants flux turbulents, comme vu ci-dessus. Les échanges de matière au sommet de la CLA sont le plus souvent faibles, bien qu'ils puissent être favorisés par les variations de hauteur de la couche limite, notamment à la tombée de la nuit. Dans le cas général, il faut faire appel à d'autres processus pour soulever les polluants

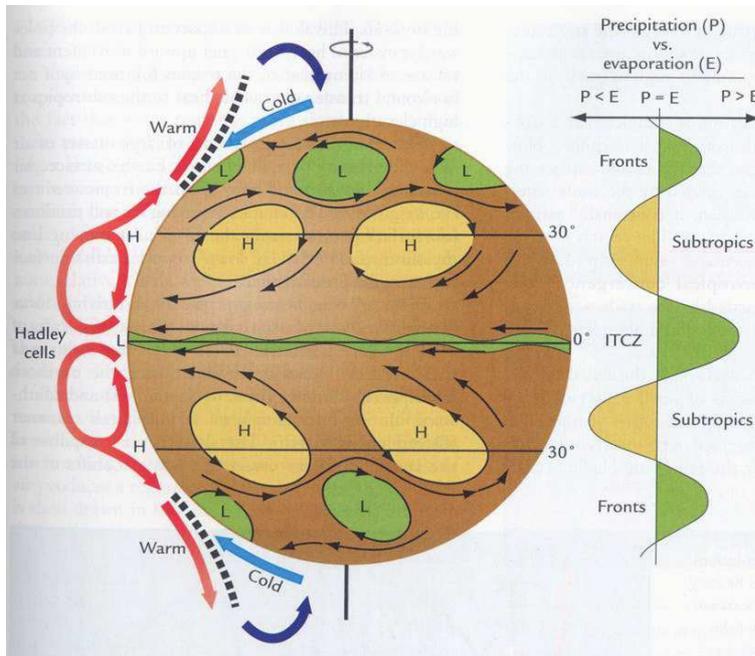


FIGURE 2.6 – Représentation idéalisée de la circulation générale de la troposphère. NRC (2010)

dans la troposphère libre.

Aux moyennes latitudes, le soulèvement des polluants se fait souvent par le biais de systèmes frontaux, dont les zones de formation principales coïncident souvent avec d'importantes sources de pollution. Ils sont composés d'un courant sec (dry intrusion, DI) provoquant l'injection de masses d'air stratosphérique riches en ozone dans la troposphère et de deux courants : le cold conveyor belt (CCB) et le warm conveyor belt (WCB) comme le montre le schéma figure 2.7. Ces deux courants permettent le soulèvement de masses d'air depuis la couche limite vers la troposphère libre (Cooper et al., 2001). Les systèmes frontaux s'étendent sur plusieurs centaines de kilomètres, ce qui leur permet de soulever des polluants à partir de régions sources étendues.

Parmi les autres processus de soulèvement, on trouve les brises de mer. Provoquées par le chauffage différentiel entre l'océan et les continents, elles forment des cellules de circulation atteignant 3 km ce qui permet l'injection de polluants dans la troposphère libre. On observe un phénomène similaire en région montagneuse, où les variations de température sont dues aux différences d'altitude; la brise orographique permet ici aux polluants d'être

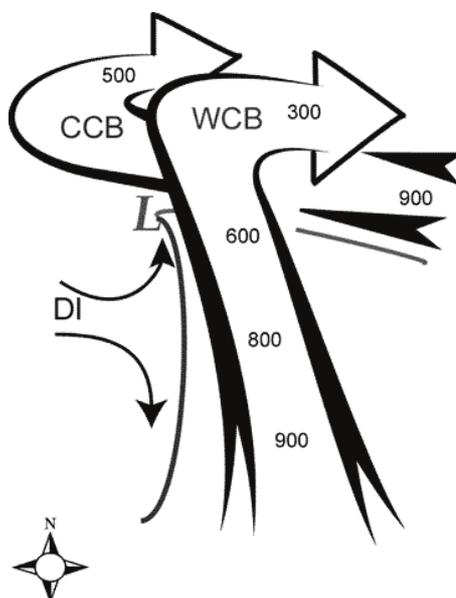


FIGURE 2.7 – Schéma d'un système frontal centré sur une zone de faible pression de surface L. Les lignes partant de cette zone vers le Sud et l'Est indiquent respectivement les fronts chaud et froid. Les nombres indiquent les pressions typiques dans les différents courants associés : le warm conveyor (WCB), le cold conveyor (CCB) et la dry intrusion (DI). Source : Kiley and Fuelberg (2006)

transportés au-delà de reliefs qui bloquent l'advection le reste du temps.

L'activité convective est aussi responsable du soulèvement de polluants hors des basses couches. Les déséquilibres thermiques entre la surface et l'atmosphère provoquent une instabilité permettant l'ascension des masses d'air depuis la surface. Souvent, ce soulèvement induit la condensation de l'humidité qu'elles contiennent, et donc la formation de nuages.

L'instabilité peut être générée par le réchauffement radiatif de la surface, mais aussi par le passage de masses d'air froides en altitude (comme un cold conveyor belt dans un système frontal). La convection est intense près de l'équateur (c'est le moteur de la cellule de Hadley), mais aussi au-dessus des continents en été. Les masses d'air peuvent être soulevées depuis la couche limite jusqu'à la tropopause lors d'évènements convectifs intenses comme les orages convectifs (Doswell, 2001).

Concernant les panaches issus de feux de biomasse, le dégagement de chaleur dû au feu peut favoriser le soulèvement du panache, particulière-

ment dans des conditions propices à la convection, on parle alors de pyroconvection. Ce phénomène s’observe notamment en région boréale, comme montré par Fromm et al. (2000) et Damoah et al. (2006). La présence de concentrations importantes de suie dans ces panaches provoque également leur chauffage par absorption du rayonnement, ce qui contribue à leur ascension.

2.3.4 Diffusion et étirement des panaches

Lors du transport, la structure des panaches de pollution évolue sous l’effet de deux processus dynamiques : l’advection différentielle tend à étier les panaches, ce qui conduit à la formation de structures fines et très étendues loin des sources (Newell et al., 1999). A l’inverse, le mélange turbulent tend à homogénéiser les concentrations entre masses d’air voisines, et donc à dissiper les panaches dans leur environnement.

La turbulence de petite échelle dans l’atmosphère augmente l’efficacité de la diffusion moléculaire d’un ordre de grandeur, on parle alors de diffusion turbulente. Si elle intervient dans des zones de gradient de concentration, elle permet de réduire ces gradients, on parle alors de mélange turbulent. Ce phénomène est souvent considéré comme intermittent (Shraiman and Siggia (2000)), et est principalement provoqué par le cisaillement dans la troposphère libre.

Si on se place à des échelles de temps et d’espace grandes devant celles des tourbillons turbulents, on peut assimiler la diffusion turbulente à un mouvement Brownien, comme la diffusion moléculaire.

L’advection différentielle facilite le mélange turbulent entre le panache et son environnement en augmentant leur “surface de contact”, bien qu’on ne puisse pas strictement utiliser ce terme, la frontière entre masses d’air n’étant pas une surface définie mais un gradient de concentration plus ou moins prononcé.

Ce phénomène est très prononcé au bord des panaches agés, qui présentent des structures complexes sous forme de filaments du fait de l’advection différentielle.

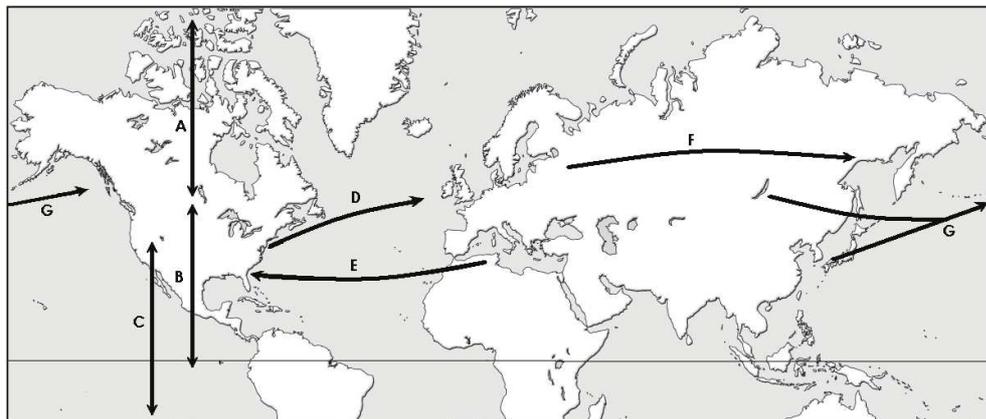
2.3.5 Temps de transport caractéristiques de la pollution dans la troposphère libre

Aux moyennes latitudes, où se trouvent la majorité des sources de pollution, la troposphère libre est le lieu d’une advection importante dominée par

des vents d'Ouest. Les panaches peuvent ainsi être transportés d'un continent à l'autre dans les moyennes latitudes, mais aussi être exportées vers l'Arctique ou les tropiques.

La figure 2.8 illustre les principaux chemins de transport affectant l'Amérique du Nord, et indique les temps de transport caractéristiques associés à ces chemins. Les échanges intercontinentaux dans les moyennes latitudes (D, E, F, G) se font sur des durées de l'ordre d'une à deux semaines, et sont donc nettement plus rapides et donc plus intenses qu'avec les tropiques (B, 1-2 mois) et surtout l'hémisphère sud (C, 1 an).

Les échanges entre les moyennes latitudes et l'Arctique (A, 1-4 semaines) se font sur des échelles de temps proche du transport intercontinental à l'intérieur des moyennes latitudes. De ce fait, la troposphère boréale est susceptible d'être fortement influencée par les sources de pollution aux moyennes latitudes.



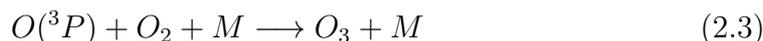
	Chemin	Temps de transport
A	Moyennes latitudes - Arctique	1-4 semaines
B	Moyennes latitudes - Tropiques	1-2 mois
C	Hémisphère Nord - Sud	1 an
D	Amérique du Nord - Europe	3-13 jours
E	Amérique du Nord - Afrique	1-2 semaines
F	Europe de l'Est - Asie	1-2 semaines
G	Asie - Amérique du Nord	4-17 jours

FIGURE 2.8 – Principaux chemins de transport de polluants à longue distance affectant l'Amérique du Nord (sommet), avec les échelles de temps caractéristiques pour les différents chemins (bas). Source : NRC (2010)

2.4 Chimie de l’ozone et de ses précurseurs

L’évolution des concentrations de nombreux polluants dans les panaches est aussi affectée par la chimie atmosphérique. En effet, de nombreux polluants émis comme les oxydes d’azote sont réactifs et il existe des polluants dits secondaires, produits de la transformation d’autres composés. Le plus important d’entre eux étant l’ozone O_3 , qui se trouve au coeur du système chimique troposphérique.

On regroupe sous le terme de NO_x le monoxyde d’azote (NO) et le dioxyde d’azote (NO_2). Ils sont émis principalement sous forme de NO et sont en équilibre photochimique avec l’ozone, ce qu’on peut schématiser par le cycle suivant :



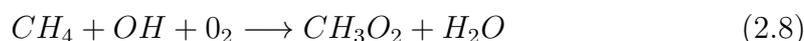
Ce cycle est suffisamment rapide pour qu’on suppose les concentrations en NO et NO_2 à l’équilibre quasi-stationnaire. Comme il est de bilan nul pour l’ozone, d’autres réactions doivent intervenir pour qu’il y en ait production ou destruction.

2.4.1 Production d’ozone

Pour modifier l’équilibre chimique entre NO , NO_2 et O_3 ci-dessus, et donc aboutir à la production où la destruction d’ozone, il faut faire intervenir d’autres réactions. Cela peut se faire en produisant des radicaux HO_2 , CH_3O_2 et RO_2 (R désignant tout radical alkyle ayant deux atomes de carbone ou plus) qui consomment du NO selon :



Ces trois réactions produisent du NO_2 , dont la photolyse aboutit à la formation d’ozone. Ces radicaux sont produits par l’oxydation de CO et CH_4 par OH :



De façon similaire, l'oxydation des COV par OH produit des radicaux RO₂. L'oxydation de CO et CH₄ est lente devant celle des COV, ce qui fait de ces derniers une source importante d'ozone troposphérique.

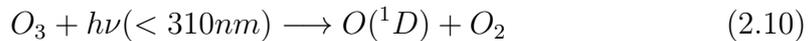
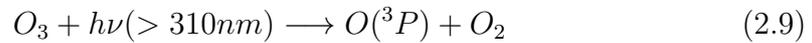
Il est important de noter que les radicaux ne réagissent de façon majoritaire avec NO que si ce dernier est présent en quantités suffisantes, en général autour de 20 pptv. Si ce n'est pas le cas, ils réagiront avec d'autres radicaux ou avec l'ozone.

La réaction entre radicaux HO₂ produit ainsi du peroxyde d'hydrogène, H₂O₂, très soluble dans l'eau, et donc sujet au lessivage. S'il n'est pas lessivé, il peut être source de radicaux OH par photolyse, ou de HO₂ par oxydation par OH.

Le formaldéhyde HCHO, qui est produit par l'oxydation du méthane, est une source de radicaux HO₂ par photolyse et peut donc être considéré comme une source d'ozone.

2.4.2 Destruction d'ozone

Dans l'atmosphère, l'ozone subit une photolyse produisant du dioxygène (O₂) et un atome d'oxygène dont le niveau d'excitation dépend de l'énergie du rayonnement :



L' O(³P) produit se recombine rapidement en ozone (réaction 2.3 ci-dessus). Par contre, à plus grande énergie, la photolyse libère un atome d'oxygène dans un état excité, O(¹D), qui est source de radicaux OH en présence d'humidité. Les rayonnements de longueur d'onde inférieure à 300 nm ne pénétrant pas dans la troposphère, la production d'O(¹D) y est donc limitée par le rayonnement disponible dans la bande (300 ;310) nm, et est bien plus faible que dans la moyenne atmosphère. Toutefois, la forte humidité dans la troposphère y permet la production de radicaux OH par ce biais.

L'ozone est également détruit par réaction avec les radicaux, OH et HO₂, permettant leur interconversion :



La destruction d’ozone peut également se faire indirectement par modification du ratio NO_2/NO . C’est notamment le cas près des sources où les NO_x sont produits majoritairement sous forme de NO à des concentrations proches de celles d’ozone et peuvent en consommer des quantités importantes (ce phénomène est nommé titration).

A la surface, l’ozone peut être absorbé par les sols et la végétation, ce qui peut constituer un puits important, bien qu’il ne s’agisse pas strictement d’une perte chimique.

La vitesse de dépôt dépend de facteurs dynamiques (et donc de l’accessibilité de la surface pour les molécules déposées) et du type de sol ou de végétation sur lequel le dépôt se fait. Dans les terres agricoles, la vitesse de déposition de l’ozone est de quelques dixièmes de cm/s et est d’un ordre de grandeur plus faible dans les déserts (Delmas et al., 2005).

2.4.3 Réservoirs de NO_x

L’oxydation du NO_2 produit de l’acide nitrique (HNO_3). C’est une espèce peu réactive chimiquement et très soluble, il est donc en général lessivé avant de contribuer à la régénération des NO_x (par photolyse ou oxydation par OH), ce qui en fait de sa production un puits de NO_2 et donc indirectement d’ozone.

En présence d’acétaldéhyde (CH_3CHO), sa réaction avec NO_2 provoque la formation de proxy-acetyl-nitrate (PAN, $\text{CH}_3\text{COO}_2\text{NO}_2$). L’acétaldéhyde est lui-même produit par l’oxydation de nombreux hydrocarbures, on trouve donc du PAN en concentrations importantes dans les panaches d’origine naturelle, particulièrement dans ceux issus de feux de biomasse.

Le PAN se décompose en NO_2 , mais l’intensité de cette réaction dépend fortement de la température. Il peut de plus être photolysé ou oxydé par des radicaux OH . Selon l’altitude, le temps de vie du PAN varie fortement : dans la haute troposphère, il est de plusieurs mois, dû principalement à la photolyse ou la réaction avec OH . A l’inverse, dans la basse troposphère, la température plus élevée rend la dissociation thermique plus efficace, donnant au PAN un temps de vie de 30 minutes environ à 25°C .

Si du PAN est présent dans un panache dans la haute troposphère, il consiste en un réservoir de NO qui sera libéré rapidement si les masses d’air associées descendent dans la couche limite. C’est donc une source potentielle d’ozone.

On regroupe généralement les espèces azotées : NO_x , HNO_3 , PAN, et des espèces minoritaires comme N_2O_5 , NO_3 et HNO_4 sous le sigle NO_y . Sa

concentration est conservée quand il n'y a pas de pertes par déposition ou sous l'effet du mélange.

2.4.4 Bilan chimique global d'ozone

Les nombreuses réactions entrant en compte dans la production et la destruction de l'ozone forment un système complexe et non-linéaire. En supposant les cycles d'inter-conversion rapides comme étant à l'équilibre, on peut toutefois simplifier le bilan chimique de l'ozone en un terme de production et un terme de perte (en notant k les constantes de réaction, et J_{1D} le taux de photolyse d'ozone produisant un atome d'oxygène dans son état excité) :

$$P(O_3) = (k[HO_2] + k[CH_3OO] + k[ROO])[NO] \quad (2.14)$$

$$L(O_3) = (k[H_2O]J_{1D} + k[HO_2] + k[OH])[O_3] \quad (2.15)$$

La production est ici dûe à la réaction de NO avec des radicaux, et la perte d'ozone est le fait de sa photolyse aux courtes longueurs d'onde en présence d'humidité, ainsi que des réactions avec OH et HO₂.

La non-linéarité du système, ainsi que le nombre important de réactions et d'espèces entrant en jeu rendent sa résolution analytique très difficile. C'est pour cette raison que l'évolution chimique de l'atmosphère est en général simulée à l'aide de modèles numériques.

Stevenson et al. (2006) présente une intercomparaison de 26 modèles globaux sur le bilan d'ozone troposphérique, comme présenté sur la table 2.4.4. La production nette d'ozone dans la troposphère, définie comme la différence entre $P(O_3)$ et $LP(O_3)$, et qui leur est en général nettement inférieure, est estimée ainsi à 442 Tg/an et l'apport stratosphérique à 552 Tg/an, ces sources s'équilibrent à peu près avec la déposition sèche (1003 Tg/an). Il faut de plus noter que la production photochimique in situ est neuf fois supérieure à l'import stratosphérique.

2.4.5 Evolution chimique dans les panaches

On utilise souvent la production nette d'ozone comme indicateur de l'évolution chimique des panaches. En effet, l'ozone est en soi un des polluants les plus importants en matière d'impact sur la santé humaine et sur l'environnement, mais il est de plus au coeur du système chimique troposphérique.

La production nette d'ozone dépend de la composition initiale du panache, mais également du mélange pendant le transport, ainsi que de son altitude et de l'éventuel lessivage.

Sources (Tg O ₃ /an)	
Production photochimique	5110 ± 606
Import stratosphérique	552 ± 168
Puits (Tg O ₃ /an)	
Perte chimique	4668 ± 727
Déposition sèche	1003 ± 200
Budget (Tg O ₃ /an)	344 ± 39
Temps de vie (jours)	22.2 ± 2.2

TABLE 2.1 – Bilan d’ozone troposphérique établi à l’aide d’une intercomparaison de 26 modèles, d’après Stevenson et al. (2006).

Pour illustrer les différences dans la chimie de l’ozone dans les panaches lors du transport, on fait appel aux études de deux panaches, l’un d’origine anthropique (Real et al. (2008)), l’autre issu d’un feu de biomasse (Real et al. (2007)), lors de leur transport au-dessus de l’Atlantique Nord à l’aide du même modèle de chimie lagrangien.

Le panache anthropique, issu du nord-est des Etats-Unis et transporté à basse altitude, présente une perte moyenne d’ozone de l’ordre de 5 ppbv/jour. Pour expliquer cette perte, il est nécessaire de prendre en compte le mélange, mais aussi la déposition sèche et humide, 80% de la perte d’ozone étant due au lessivage du HNO₃. La capacité oxydante du panache est suffisamment importante pour être un puits de CO deux fois plus fort que le mélange.

Le panache issu d’un feu de biomasse en Alaska fut, quand à lui, transporté dans la moyenne/haute troposphère. Il présente une augmentation des concentrations en ozone de 17 ppbv sur 5 jours associée à une décroissance significative des concentrations en CO. La production d’ozone est ici induite par la décomposition thermique des importantes quantités de PAN présentes initialement dans le panache. Il est une fois de plus nécessaire de prendre en compte le mélange pour expliquer l’évolution chimique du panache. Enfin, les aérosols présents dans le panache pourraient réduire de plus de 20% les taux de photolyse du NO₂ et de l’ozone.

L’évolution des concentrations dans les panaches lors du transport ne peut donc pas être estimée à priori en fonction du type de pollution considéré : il faut connaître non seulement sa composition initiale, mais aussi le contexte dynamique du transport, et surtout évaluer l’intensité du mélange et les concentrations de fond associées.

2.5 Cas particulier de l'Arctique

L'Arctique désigne la région la plus septentrionale de la Terre, on y inclut l'Océan Arctique ainsi que le nord des terres l'environnant. Entouré par la Fédération de Russie, l'Alaska, le Canada, le Groenland et la Scandinavie, elle a une grande importance géopolitique en raison de gisements d'hydrocarbures et des voies maritimes qu'y peuvent s'y ouvrir en été.

C'est une région peu habitée dans laquelle on trouve peu de sources de polluants, bien que l'ouverture des routes maritimes est susceptible d'augmenter les émissions locales et donc d'y accentuer la pollution (Granier et al., 2006).

On trouve des sources importantes de polluants dans les régions bordant l'Arctique, comme on peut le voir sur les figures 2.2 et 2.3. Pour la pollution anthropique, les émissions sont particulièrement intenses à l'est de l'Amérique du Nord, en Europe et à l'est de l'Asie. On trouve également des sources de pollution par feux de biomasse en Canada et en Sibérie.

2.5.1 Sensibilité climatique

L'Arctique est une région singulière du point de vue climatique. En effet, la glace de mer et la banquise groenlandaise réfléchissent le rayonnement solaire. Une réduction de leur couverture sur l'Arctique perturbe donc le bilan radiatif, induisant un réchauffement favorable à la fonte des glaces. Ce phénomène forme une rétroaction positive du changement climatique.

Des observations récentes indiquent que la glace de mer arctique a diminué de façon alarmante lors des trente dernières années, comme montré par les travaux du National Snow and Ice Data Center (NSIDC) dont est issue la figure 2.9. On y voit que la surface de glace durant les étés 2007 et 2011 était de 20 à 35% plus réduite que la moyenne des années 1979-2000.

Il est donc crucial de bien connaître les processus modifiant le bilan radiatif en Arctique, notamment la déposition des aérosols qui modifie l'albédo de la glace. Le transport de panaches de pollution dans la troposphère libre pourrait également perturber ce bilan radiatif (Law and Stohl (2007)).

2.5.2 La pollution atmosphérique en Arctique

En raison du peu de sources de pollution en Arctique, le transport de polluants depuis les moyennes latitudes est un acteur essentiel de la composition atmosphérique boréale.

Toutefois, les surfaces isentropes forment un dôme au-dessus de la basse troposphère arctique qui force les masses d'air exportées depuis les moyennes

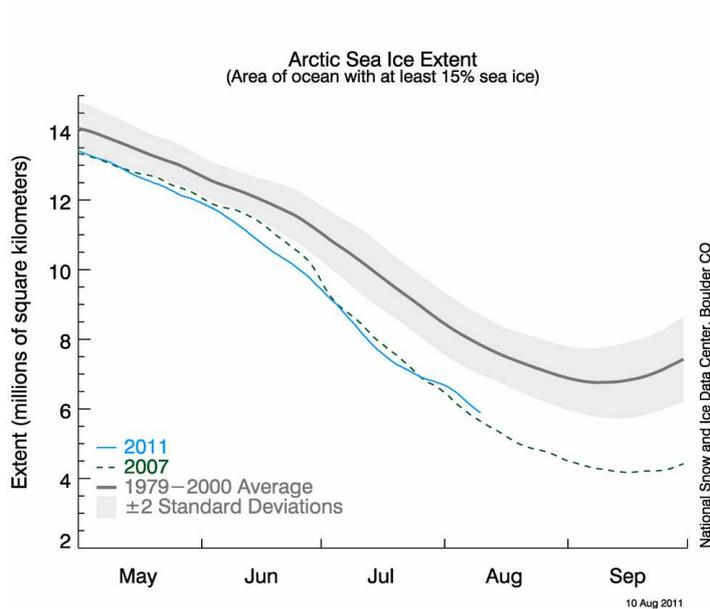


FIGURE 2.9 – Evolution saisonnière de la superficie de la glace de mer en Arctique pour les années 1979-2000 (gris, avec enveloppe correspondant au double écart-type), 2007 (vert) et 2011 (bleu). Source : site web du NSIDC, <http://nsidc.org/arctocsseaicnews>

latitudes à remonter vers la haute troposphère pendant leur transport au-dessus de l'Arctique. Ce dôme isole la basse atmosphère boréale du reste de l'atmosphère, mais il peut s'étendre aux moyennes latitudes de l'Eurasie en hiver comme montré par la figure 2.10, ce qui permet aux polluants qui y sont émis d'être transportés vers la basse atmosphère boréale.

Stohl (2006) présente une étude du transport depuis les principales régions d'émission de polluants vers la basse troposphère Arctique, et met en évidence trois chemins majeurs :

- Transport rapide (environ 4 jours) à basse altitude suivi d'une ascension au-dessus du front Arctique quand il est situé loin du Nord, principalement en hiver. Ce chemin peut être suivi par la pollution anthropique d'origine européenne et est également le plus fréquent pour les panaches issus de feux de biomasse boréaux. L'ascension des masses d'air (et les précipitations en résultant) ayant lieu au-dessus de 70°N, ce qui est provoque la déposition des aérosols et des polluants solubles.
- En hiver, transport d'air froid à basse altitude suivi de refroidissement diabatique par la surface, prenant 10-15 jours. Ce chemin permet de transporter des masses d'air polluées depuis l'Europe et le Nord de

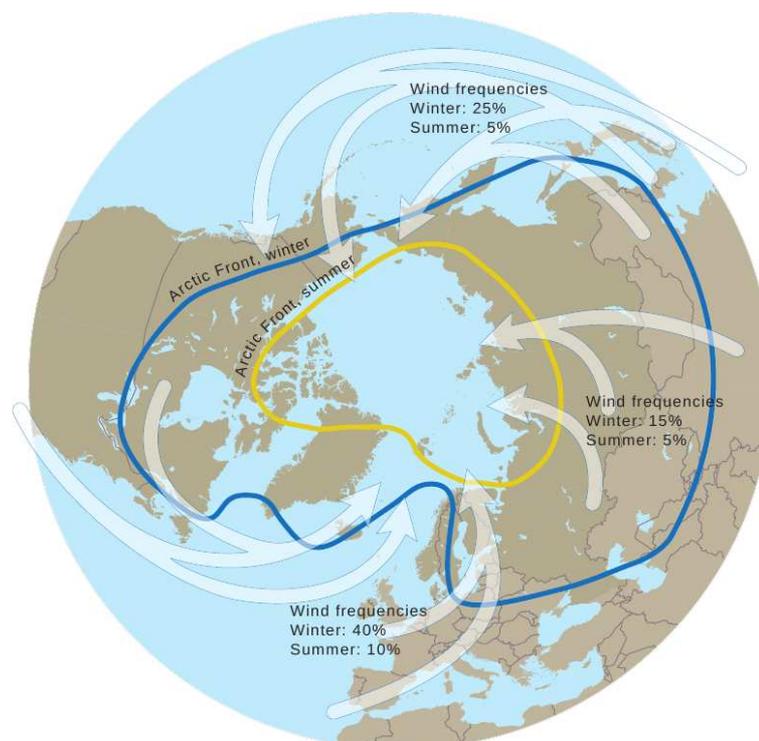


FIGURE 2.10 – Chemins de transport principaux des moyennes latitudes vers l’Arctique, avec la position du front arctique en été et en hiver. Source : AMAP (Arctic Monitoring and Assessment Program)

l’Asie au-dessus de la Sibérie vers l’Arctique.

- Ascension des panaches près des sources suivie soit de transport à haute altitude, soit de cycles de subsidence et d’ascension, puis finalement descente des masses d’air à travers le dôme polaire par refroidissement diabatique. C’est le mode de transport le plus fréquent des panaches nord-américains et est-asiatiques vers l’Arctique. Le lessivage est alors susceptible d’avoir lieu hors du cercle polaire, ce qui limite l’import de polluants par cette route.

Stohl (2006) conclut que la pollution en Arctique est dominée par les émissions européennes, à l’exception du carbone suie. Pour ce dernier, les feux de biomasse boréaux (principalement en Sibérie) sont une source au moins aussi importante que celles d’origine anthropique. Toutefois, cette question n’est pas encore totalement élucidée.

L’import de polluants d’origine eurasiennne en hiver dans la basse tropo-

sphère arctique provoque le phénomène de brouillard arctique (Arctic haze). Il est composé principalement d'un mélange de particules de sulfate et organiques, mais également d'ammonium, de nitrates, de poussières et de carbone suie (Quinn et al., 2002). Il s'observe en hiver, disparaissant à la surface en avril. Le brouillard arctique peut être issu de l'import de pollution anthropique européenne, mais également de panaches issus de feux de biomasse comme montré par Stohl et al. (2007).

La forte quantité de particules dans le brouillard arctique absorbe et diffuse le rayonnement solaire, réduisant la visibilité et perturbant localement le bilan radiatif, d'autant plus si les particules sont déposées sur la glace. Enfin, c'est un puits de radicaux HO₂ et réduit donc la capacité oxydante de l'atmosphère, ce qui augmente le temps de vie de nombreux polluants (Lelieveld, 2010), mais l'amplitude de ces effets est encore assez mal connue. De plus, les observations in situ montrent que les tendances des concentrations en particules sont différentes selon les types d'aérosols, avec une réduction de la charge en sulfates et une augmentation du carbone suie et des nitrates au début des années 2000 (Quinn et al., 2007). L'évolution de l'impact des différentes sources de polluants sur la brume arctique (anthropiques, feux de biomasse) et des chemins de transport pourrait expliquer ces observations.

2.5.3 La campagne POLARCAT

Le projet POLARCAT (Polar Study using Aircraft, Remote Sensing, Surface Measurements and Models, of Climate, Chemistry, Aerosols, and Transport) regroupe plusieurs campagnes de mesure, d'analyse de données et de modélisation dans le cadre de l'année polaire internationale (IPY) en 2008. L'objectif en est d'étudier le transport en Arctique de polluants issus de sources anthropiques et de feux de biomasse, afin d'y mesurer l'impact de cette pollution sur la composition de l'atmosphère et le climat.

Les moyens d'observation mis en oeuvre comportent des avions de recherche, un bateau, des stations au sol et des satellites durant deux saisons (printemps et été). La figure 2.11 montre les plans de vol des différents avions durant la campagne d'été ainsi que les colonnes moyennes de CO. On y voit que les sources de pollution étaient très intenses en Asie et en Amérique du Nord, mais aussi que l'Arctique présentait des niveaux de pollution non négligeables, même loin des sources.

Les différentes campagnes participant au projet sont :

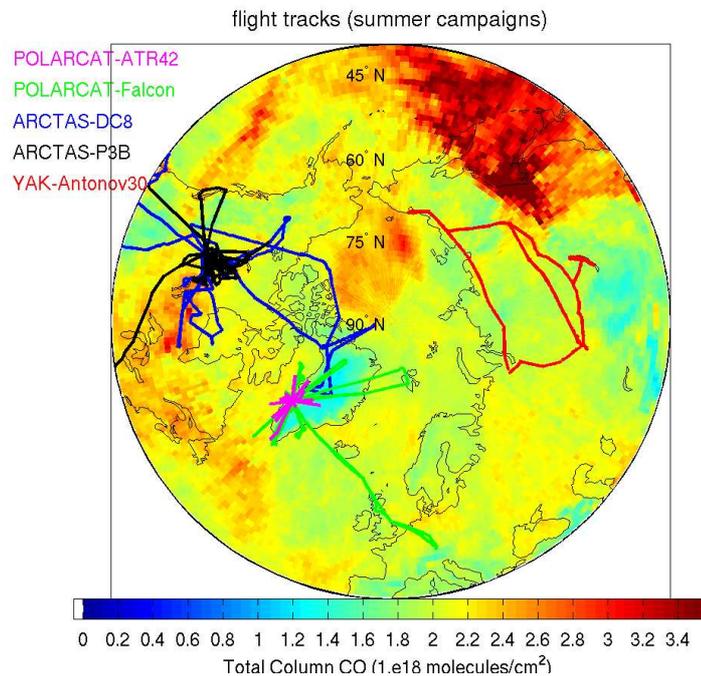


FIGURE 2.11 – Carte des colonnes de CO moyennes durant la campagne d’été au-dessus de l’Arctique mesurées par l’instrument IASI. Les plans de vol de différents avions de recherche pendant la campagne d’été y sont indiqués par les lignes de couleur. Source : Pommier et al. (2010)

POLARCAT-France et POLARCAT-GRACE

La partie française du projet se déroula entre le 30 mars et le 14 avril 2008 à Kiruna, au Nord de la Suède, puis du 30 juin au 14 juillet à Kangerlussuaq sur la côte Ouest du Groenland.

Les principaux objectifs de la campagne de printemps ont été d’étudier le front arctique, le transport des polluants provenant de l’Europe et de l’Asie vers l’Arctique, ainsi que les interactions aérosols-nuages et l’impact des aérosols sur le forçage radiatif (Adam de Villiers et al., 2010). Les vols de l’avion français ATR-42 ont permis de mesurer les concentrations in situ en ozone, monoxyde de carbone et vapeur d’eau, ainsi que des profils d’ozone à l’aide d’un lidar. Les propriétés des aérosols ont également été mesurées in-situ et par lidar.

La campagne d’été, comportant également des vols de l’ATR-42, fut consacrée à l’étude d’émissions de feux de biomasse et du transport de panaches de pollution, ainsi qu’à leur impact sur la composition de la tropo-

sphère arctique. Les deux parties de la campagne permirent de valider les observations spatiales de CO par l'instrument IASI (Pommier et al., 2010).

Cette campagne coïncida avec le volet allemand de POLARCAT, GRACE (Greenland Aerosol and Chemistry Experiment), du 30 juin au 18 juillet, basé lui aussi à Kangerlussuaq. Des vols du Falcon-20 du DLR (Deutsches Zentrum für Luft- und Raumfahrt) permirent d'observer dans les panaches les concentrations en ozone, CO, vapeur d'eau, NO, NO₂, PAN, NO_y, ainsi que le taux de photolyse du NO₂ et les concentrations et taille des aérosols.

POLARCAT-GRACE fut également le cadre de l'expérience d'injection de traceur passif PERTRAS (PERfluorocarbon TRAcier Sampling), ayant pour but d'étudier le mélange dans la troposphère libre arctique. Cette expérience sera présentée plus en détails dans le chapitre 5.

YAK-AEROSIB

Projet commun franco-russe, la campagne YAK-AEROSIB (Airborne Extensive Regional Observations in SIBERIA) permet d'effectuer des vols de l'avion russe Antonov-30 en Sibérie en juillet 2008 (Paris et al. (2008)). Des mesures in situ de nombre d'aérosols, de CO₂, CO, ozone et vapeur d'eau ont été faites durant des vols faisant une grande boucle autour de la Sibérie, comme on peut voir sur la figure 2.11. Des panaches de feu de forêt furent ainsi observés, particulièrement lors du vol du 11 juillet (Paris et al. (2009)).

ARCPAC et ARCTAS

Au printemps, la NOAA (National Oceanic and Atmospheric Administration) a mené entre les 3 et 23 avril 2008 la mission ARCPAC (Aerosol, Radiation and Cloud Processes affecting Arctic Climate), coordonnée avec la mission POLARCAT et la station de Barrow (Alaska) de la NOAA. La campagne était basée à Fairbanks, en Alaska, avec pour objectif l'étude de la chimie, de l'optique et de la microphysique des aérosols, et des espèces en phase gazeuse afin de déterminer leurs sources (Warneke et al., 2009; Fisher et al., 2009). L'avion WP-3D mesura à cette occasion les concentrations en de nombreux polluants (CO, CO₂, ozone, vapeur d'eau, NO, NO₂, PAN, NO_y, SO₂, COV et halogènes) ainsi que les propriétés microphysique et d'extinction optique des aérosols.

La seconde campagne américaine, ARCTAS (Arctic Research of the Composition of the Troposphere from Aircraft and Satellites) fut menée au printemps et en été par la NASA (National Aeronautics and Space Administration) à l'aide des avions DC-8 et P-3B (Jacob et al., 2010). La campagne de printemps fut basée à Fairbanks, comme ARCPAC, et complétait ses ob-

jectifs avec des vols dédiés à la détection du brouillard arctique, du forçage radiatif des aérosols et aux études de la pollution anthropique. La campagne d'été était basée à Cold Lake, au Canada, et fut axée sur les feux de biomasse boréaux et l'impact de leur transport à longue distance sur l'atmosphère arctique. Le P-3B a fourni des mesures de CO et de propriétés optiques des aérosols et le DC-8 mesurait les concentrations d'un grand nombre de molécules dont l'ozone, le CO, les composés azotés, des radicaux et de nombreux COV et OCOV.

Premiers résultats

Une édition spéciale du journal Atmospheric Chemistry and Physics (ACP) de l'European Geosciences Union est dédiée à POLARCAT. Bien que tous les résultats du projet n'y soient pas publiés, elle comporte au moment où ces lignes sont écrites plus de 40 articles dont la liste se trouve à l'adresse suivante : http://www.atmos-chem-phys-discuss.net/special_issue104.html. D'autres articles ont également été publiés dans les revues *Journal of Geophysical Research* et *Geophysical Research Letters*.

Voici quelques résultats importants obtenus sur le transport des panaches de pollution et la chimie atmosphérique en Arctique :

Les premiers résultats sur la chimie de l'ozone au printemps en Arctique ont montré une destruction continue d'O₃ dans les 100 premiers mètres de la couche limite au-dessus de l'Océan Arctique, au large de l'Alaska, pour des températures allant de -22 à -10°C (Neuman et al., 2010). Gilman et al. (2010) a montré que la variabilité de l'ozone au printemps au-dessus de cet océan est fortement liée à l'oxydation des halogènes.

Selon Fisher et al. (2009), la pollution au printemps en Arctique est majoritairement liée aux émissions anthropiques en Asie, à l'exception de la pollution de surface qui se voit également influencée par les sources européennes. Le transport de la pollution asiatique en Arctique semble de plus anticorréllé avec l'intensité d'El Niño. Les masses d'air observées durant la campagne de printemps de POLARCAT-France, en Scandinavie, étaient influencées par les émissions européennes pendant la première partie de la campagne, puis par les feux de biomasse et un mélange de pollution asiatique et de poussières pendant la seconde partie, selon Adam de Villiers et al. (2010).

Alvarado et al. (2010) a montré que les facteurs d'émissions de NOx associés aux panaches de feux de biomasse observés durant la campagne ARCTAS en été sont environ quatre fois plus faibles que les valeurs obtenues lors de précédentes études de feux boréaux. De plus, environ 40% de ces NOx furent convertis en PAN dans les premières heures après émission. Les résultats d'un modèle global montrent que les panaches étudiés ne présentent

pas de production d’ozone significative.

Sessions et al. (2011) étudie l’influence de l’altitude d’injection des panaches de feux de biomasse sur les chemins de transport avec un modèle eulérien méso-échelle et montre que les panaches observés durant l’été dans le cadre d’ARCTAS avaient été injectés au-dessus de la couche limite, mais en-dessous de 3-5 km d’altitude.

Schmale et al. (2011) et Quennehen et al. (2011) présentent des observations en été de composition chimique et distribution en taille des aérosols au-dessus du Groenland, dans le cadre de POLARCAT-France. Ces résultats montrent que la charge en aérosols dans la troposphère libre boréale est similaire à ce qu’on observe typiquement au-dessus de l’Europe entre les mois de mai et novembre (Schneider et al., 2006; Schmale et al., 2010) malgré le fait que l’export de polluants vers l’Arctique est souvent associé à un lessivage des particules. Dans les panaches d’origine nord-américaine, les aérosols observés sont principalement constitués, en terme de masse, par des sulfates et des composés organiques, le carbone suie étant présent sous forme de particules de petites taille (mode d’Aitken) et contribue donc peu en terme de masse à la fraction particulaire de ces panaches (Quennehen et al., 2011). Le temps de vie des aérosols est estimé par Schmale et al. (2011) comme étant de l’ordre de 9 jours.

La validation des observations spatiales de CO par l’instrument IASI est présentée par Pommier et al. (2010). Il permet d’observer le transport de la pollution à travers l’arctique, de détecter les feux de biomasse et, dans certains cas, de donner une estimation de la structure verticale des panaches. L’instrument est toutefois moins performant au-dessus de surfaces de neige ou de glace.

Les observations du DLR Falcon-20 présentées par Roiger et al. (2011) montrent la présence de pollution dans la basse stratosphère arctique, avec des concentrations de CO, PAN et H₂O atypiques à cette altitude (respectivement 138 ppbv, 330 ppbv et 81 ppmv). L’utilisation du modèle lagrangien de dispersion FLEXPART montre que les masses d’air observées sont un mélange de pollution anthropique est-asiatique et d’air stratosphérique riche en ozone.

Sodemann et al. (2011) étudie le transport depuis l’Asie au-dessus du pôle de deux panaches composés d’un mélange de pollution anthropique est-asiatique et issue de feux de biomasse sibériens. Le second panache entre en Arctique le 6 juillet sous l’influence d’une zone frontale, et sera traversé par le NASA DC-8 près du pôle le 9 juillet. Deux modèles sont utilisés pour simuler le transport de ce panache : FLEXPART (lagrangien) et TOMCAT (modèle global eulérien de chimie transport). Les modèles représentent bien les structures de grande échelle, mais à petite échelle le modèle eulérien ne

peut pas reproduire la variabilité des observations, contrairement au modèle lagrangien. Sodemann et al. (2011) souligne également le rôle important de l'averaging kernel lors de comparaison d'observations spatiales avec les résultats de modèles. Des filaments issus du panache asiatique ont été par la suite observés par le DLR Falcon près du Groenland les 12 et 13 juillet, ils seront le sujet de l'étude présentée dans le chapitre 4.

Résumé des points importants du chapitre

La pollution atmosphérique est en grande partie due à l'utilisation de combustibles fossiles par l'homme, mais d'autres sources importantes existent, comme les feux de biomasse. Les émissions les plus importantes se font dans l'hémisphère Nord.

La pollution n'est pas un phénomène uniquement local : les polluants peuvent être transportés sur de longues distances et affecter la composition atmosphérique à plusieurs milliers de kilomètres de leurs sources. Pour que ce transport soit efficace, il faut que les polluants soient soulevés hors de la couche limite, le plus souvent sous l'influence de systèmes frontaux ou de la convection profonde.

Pendant le transport, les concentrations des divers polluants évoluent du fait de la dynamique atmosphérique : l'advection différentielle étire les panaches et provoque leur filamentation, tandis que le mélange turbulent permet aux masses d'air proches d'échanger leurs constituants.

Les concentrations dans les panaches évoluent également sous l'effet de la chimie atmosphérique dont la compréhension est nécessaire pour expliquer l'évolution de l'ozone.

Les processus affectant les concentrations en polluants durant le transport sont complexes, souvent non-linéaires, et ne peuvent pas être étudiés à partir des seules observations. Il est donc nécessaire d'utiliser des modèles numériques pour les représenter et évaluer leur impact sur les panaches lors du transport à longue distance.

Chapitre 3

Modéliser la pollution à longue distance

On dispose de nos jours de nombreux moyens de mesurer la composition de l'atmosphère, que ce soit grâce à des satellites, des stations de mesure, des ballons et avions de recherche. Toutefois, ces observations sont limitées dans le temps et dans l'espace, et ne suffisent pas à comprendre l'ensemble des processus régissant la composition atmosphérique. On fait donc appel à des modèles numériques, contraints par les observations, afin de simuler ces processus.

On a vu dans le chapitre précédent qu'on trouve des sources de pollution sur tous les continents, particulièrement dans l'hémisphère nord. Du fait des mouvements de l'atmosphère, les polluants peuvent être transportés sur des distances de plusieurs milliers de kilomètres, on ne peut donc étudier la composition atmosphérique dans une région sans prendre en compte les sources de polluants externes pouvant l'influencer. De ce fait, on a besoin de modèles permettant de simuler la pollution à l'échelle globale afin d'étudier la composition de l'atmosphère et le transport à longue distance.

Dans ce chapitre, on présentera tout d'abord les caractéristiques des approches eulérienne et lagrangienne en terme de transport à longue distance, et la problématique scientifique qui en découle. On présentera ensuite le mélange dans l'atmosphère du point de vue de la modélisation du transport, ainsi que différentes approches utilisées dans les modèles pour le représenter.

3.1 Approches eulérienne et lagrangienne

Pour modéliser le transport des polluants l'atmosphère, comme pour tout domaine faisant appel à la mécanique des fluides, on peut prendre deux points

de vue différents :

En approche eulérienne, on considère un point de l'espace, et on étudie les masses d'air passant par ce point. Dans les modèles numériques, cela revient à discrétiser l'espace sous forme d'une grille recouvrant le domaine étudié. On simule par la suite le transport, les émissions, les réactions chimiques et tous les autres processus affectant les polluants dans chacun des points de cette grille.

En approche lagrangienne, on se focalise sur des masses d'air en particulier, dont on simule le transport et les variations de la composition individuellement.

Du fait de ces particularités, les deux types de modèles sont le plus souvent utilisés dans des buts différents : les modèles eulériens peuvent simuler la composition atmosphérique sur l'ensemble d'une région, permettant par exemple de calculer des bilans d'import/export de polluants. Les modèles lagrangiens, quant à eux, sont en général utilisés pour étudier des cas particuliers de transport, comme par exemple pour suivre l'évolution d'un panache.

Dans les modèles eulériens, le temps de calcul est fortement dépendant de la résolution des grilles utilisées pour discrétiser l'espace. De ce fait, les modèles globaux de chimie-transport ont en général des résolutions horizontales supérieures à 1° en longitude et en latitude. Comme la composition atmosphérique est moyennée dans chacune de ces grilles, elles ne permettent pas de simuler la variabilité des concentrations aux échelles inférieures à la résolution du modèle, comme montré par Tan et al. (1998).

Ce phénomène est appelé diffusion numérique, et est responsable d'erreurs dans les budgets des gaz traces (Pyle and Zavody, 1990), mais aussi dans les taux de réactions en raison de la non-linéarité de la chimie atmosphérique (Wild and Prather, 2006).

Les effets de la diffusion numérique peuvent être fortement réduits en utilisant des modèles de méso-échelle, dont les résolutions sont nettement plus fines que celles des modèles globaux. Ces modèles ne sont en général pas utilisés sur des périodes très longues, mais permettent de simuler la composition atmosphérique avec une résolution satisfaisante lors d'évènements de transport dans une région ciblée.

Les modèles lagrangiens ne sont pas affectés par la diffusion numérique, ils permettent donc de simuler la variabilité à petite échelle des concentrations (Stohl et al., 1998). Ils permettent, de plus, de simuler la chimie atmosphérique et le mélange séparément de l'advection, et donc d'étudier spécifiquement ces processus (i. e. Real et al. (2007)).

Les champs dynamiques (vent, pression . . .) doivent être calculés de façon eulérienne, on ne peut donc simuler le transport par les modèles lagrangiens sans les résultats d’un modèle météorologique eulérien. Les résultats obtenus par approche lagrangienne sont donc sensibles aux erreurs dans les champs dynamiques utilisés et les trajectoires calculées peuvent être sujettes à des erreurs de position de $\pm 20\%$ (Stohl et al., 2004, 2005).

La mauvaise représentation du mélange dans les modèles globaux eulériens est une source d’erreur importante dans le calcul des bilans d’export de polluants, ce processus n’y étant simulé que par la diffusion numérique due à la résolution du modèle. Il est donc nécessaire de faire appel à d’autres types de modèles pour l’étudier et pour trouver des moyens d’améliorer sa représentation dans les modèles globaux.

3.2 Modéliser le mélange dans l’atmosphère

Le mélange est un phénomène complexe issu de la combinaison de la diffusion moléculaire qui provoque l’échange de constituants entre deux masses d’air proches, de la turbulence qui favorise cet échange au sein des mouvements de petite échelle qui la caractérisent et des mouvements de grande échelle qui mettent en contact des masses d’air de composition différente. Étant donné les différences d’échelle entre ces trois processus, il est difficile de simuler explicitement le mélange, on fait donc appel à des paramétrisations qui peuvent être très différentes selon le type d’étude effectuée.

3.2.1 Diffusion et étirement des panaches

L’évolution des concentrations C des polluants dans les panaches du fait de la dynamique atmosphérique seule est donnée par l’équation d’advection diffusion :

$$\frac{\partial C}{\partial t} + \mathbf{u}(\mathbf{x}, t) \cdot \nabla C = D\Delta C \quad (3.1)$$

On distingue un terme d’advection : $\mathbf{u}(\mathbf{x}, t) \cdot \nabla C$ et un terme de diffusion : $D\Delta C$.

Diffusion turbulente

On notera que le terme de diffusion tend directement à réduire les gradients de concentration, la solution de l'équation 3.1 sans le terme d'advection en partant d'un état initial $C(x, t) = \delta x$ est d'ailleurs une fonction gaussienne selon la seconde loi de Fick (simplifiée à une seule dimension spatiale) :

$$C(x, t) = \frac{1}{\sqrt{4\pi Dt}} e^{-\frac{x^2}{4Dt}} \quad (3.2)$$

Dans l'atmosphère, le mélange dû à la diffusion moléculaire serait de faible intensité sans la présence des autres processus dynamiques, comme la turbulence, car il s'agit d'un processus de courte portée qui demande de mettre en contact des masses d'air de composition différentes pour être efficace.

On peut toutefois utiliser le formalisme de la diffusion moléculaire pour modéliser la turbulence, particulièrement dans la troposphère libre. En effet, les mouvements turbulents ont un effet similaire au mouvement Brownien si on se place à une échelle de temps supérieure à celle des tourbillons (Pumir et al., 2000). Le coefficient de diffusion dépend alors de l'intensité de la turbulence.

Cette paramétrisation permet de modéliser la turbulence à l'échelle synoptique (Huber et al., 2001), ce qui la rend très utile pour étudier le transport à longue distance.

Étirement et filamentation

Lors du transport, la structure des panaches évolue sous l'effet de l'advection différentielle : le cisaillement tend à étirer les panaches, ce qui conduit à la formation de structures fines et très étendues loin des sources (Newell et al., 1999).

La formation de ces structures facilite le mélange turbulent entre le panache et son environnement, en étendant en quelque sorte leur "surface de contact". Il faut toutefois noter que ce terme est une vue de l'esprit, la frontière entre les masses d'airs n'étant pas une surface définie, mais un gradient de concentration plus ou moins prononcé.

Ce phénomène est prononcé au bord des panaches âgés, qui présentent des structures complexes sous forme de filaments du fait de l'advection différentielle.

La combinaison du cisaillement et de la diffusion accélère ainsi la décroissance des concentrations dans les panaches. Rastigejev et al. (2010) a étudié

cet effet avec la diffusion numérique dans les modèles eulériens, comme illustré par la figure 3.1, qui indique les concentrations (rapportées à la concentration initiale) au coeur d'un panache lors de son transport dans un flux convergent-divergent idéalisé, selon un modèle eulérien et en utilisant différentes résolutions spatiales. On remarque que la décroissance des concentrations est beaucoup plus rapide aux basses résolutions, avec des valeurs environ deux fois plus faibles au bout de 200 heures dans la grille $4^\circ \times 5^\circ$ que dans la grille $1^\circ \times 1.25^\circ$.

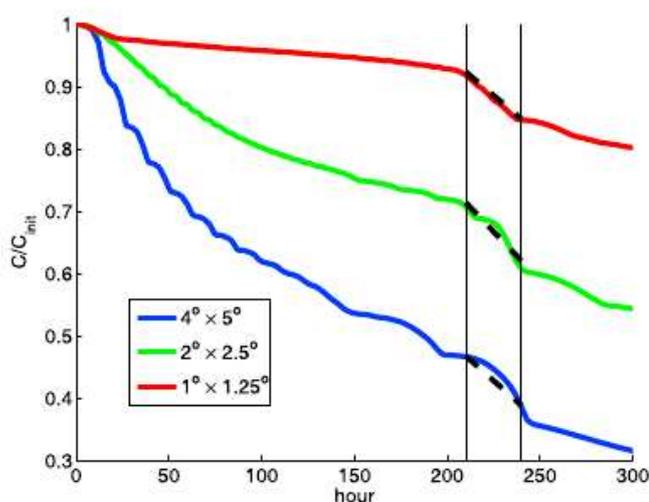


FIGURE 3.1 – Décroissance des concentrations au coeur d'un panache selon le modèle eulérien GEOS-chem, dans un flux convergent-divergent idéalisé, avec des grilles de résolution différentes. D'après Rastigejev et al. (2010).

3.2.2 Qu'est-ce que le mélange ?

Lors du transport de polluants à longue distance, la composition des panaches de pollution et de leur environnement sont très variables du fait des origines diverses des masses d'air associées, mais aussi des processus affectant les concentrations pendant leur transport.

Le mélange turbulent provoque l'échange de constituants entre masses d'air voisines et participe donc à la réduction de la variabilité des concentrations lors du transport. Aux échelles spatiales du transport à longue distance, on le symbolise en général par un terme de diffusion dans l'équation d'advection-diffusion 3.1, car les flux turbulents ne peuvent être résolus explicitement.

En pratique, l'inclusion de ce terme dans les modèles est problématique, car ce terme est non-linéaire du point de vue des concentrations et on ne dispose pas d'informations suffisantes sur leur variabilité à petite échelle.

Il est donc nécessaire pour simuler le mélange dans l'atmosphère de faire appel à des paramétrisations. Elles peuvent être très différentes selon le modèle utilisé et les processus étudiés.

3.2.3 Différentes approches pour modéliser le mélange

Modèles eulériens

Dans les modèles eulériens globaux, le mélange n'est en général pas paramétrisé, car la discrétisation de l'espace provoque une perte de la variabilité des concentrations sous-grille. Ce phénomène, appelé diffusion numérique, est inévitable et provoque la surestimation du mélange (Tan et al., 1998) pour les tailles de grille utilisée habituellement dans les CTM (supérieures à 1° horizontalement). L'utilisation de schémas d'advection sophistiqués permet toutefois de réduire ces erreurs (Prather et al., 2008).

On associe un coefficient de diffusion D_n à ce phénomène, caractéristique de son intensité. Il est donné par la fermeture de Smagorinski (Smagorinski (1963)), en fonction des résolutions spatiale (Δx) et temporelle (Δt) du modèle, en notant k la constante de van Kalman, λ l'exponent de Lyapunov et K une constante définie par l'utilisateur, la valeur par défaut étant de $3 \cdot 10^{-3}$ dans le modèle MM5 (pour Fifth-Generation Penn State/NCAR Mesoscale Model) :

$$\Delta x = \sqrt{D_n \Delta t (K + \frac{1}{2} k^2 \lambda \Delta t)^{-1}} \quad (3.3)$$

Pour les modèles à haute résolution, de l'ordre de 10 km spatialement, la diffusion numérique peut être suffisamment faible pour qu'il soit nécessaire d'inclure un schéma de mélange. Les modèles globaux actuels sont loin d'atteindre ces résolutions, mais ce peut être le cas avec les modèles régionaux.

Modèle de photochimie de trajectoire

Ce type de modèle se focalise sur l'étude de l'évolution des concentrations dans une masse d'air en particulier, généralement un panache. Le chapitre 6 de cette thèse présentera des résultats obtenus avec le modèle CiTTyCAT (Cambridge Tropospheric Trajectory Model), qui simule la photochimie dans une masse d'air lors de son transport et permet également de prendre en

compte l'impact de la déposition (sèche et humide), des émissions et du mélange sur les concentrations (Wild et al., 1996; Pugh et al., 2011).

On modélise ici la masse d'air étudiée comme une boîte homogène, dont les concentrations sont initialisées à l'aide d'observations, de résultats d'un autre modèle ou fixées arbitrairement dans le cas d'études de sensibilité. Cette boîte suit une trajectoire définie par l'utilisateur (ou reste stationnaire), ce qui détermine les variables dynamiques (pression, température, humidité) dont le modèle a besoin. Les taux de réaction chimique et de photolyse sont calculés et intégrés le long de cette trajectoire et on peut leur adjoindre des termes de perte issus d'autres processus comme les dépositions sèche et humide.

Le mélange se fait ici par échange de constituants entre la masse d'air étudiée et des concentrations de fond C_0 . Dans CiTTyCAT, ces échanges se font selon un temps de mélange T_{mix} fixé par l'utilisateur selon :

$$\frac{\partial C}{\partial t_{mix}} = \frac{C - C_0}{T} \quad (3.4)$$

Ce schéma possède l'avantage de se focaliser uniquement sur les concentrations, sans faire intervenir de termes dynamiques, et est donc adapté aux études focalisées sur la chimie atmosphérique, notamment de l'ozone. La figure 3.2 montre un exemple de résultat qu'on peut obtenir avec ce type de modélisation, d'après Real et al. (2007), la prise en compte du mélange permet de simuler des concentrations en meilleur accord avec les observations (barres verticales rouges) que sans mélange.

Il faut toutefois noter que le choix des concentrations de fond est parfois problématique, car l'environnement des masses d'air polluées peut évoluer de façon importante du fait de l'étirement et de la filamentation des panaches, et on ne dispose généralement pas d'observations de cette variabilité durant tout le transport. Une approche possible consiste à utiliser les résultats d'un modèle de chimie-transport eulérien pour calculer les concentrations de fond (Evans et al., 2000).

Modèle de dispersion de particules

Le mélange étant un processus turbulent, on peut le traiter de façon strictement dynamique. C'est ce que fait le modèle lagrangien de dispersion de particules FLEXPART (Stohl et al., 2005).

Cette approche part du fait qu'une masse d'air est le résultat du mélange d'air issu d'origines différentes et le modèle calcule un ensemble de rétro-trajectoires à partir de la masse d'air étudiées, la dispersion des trajectoires

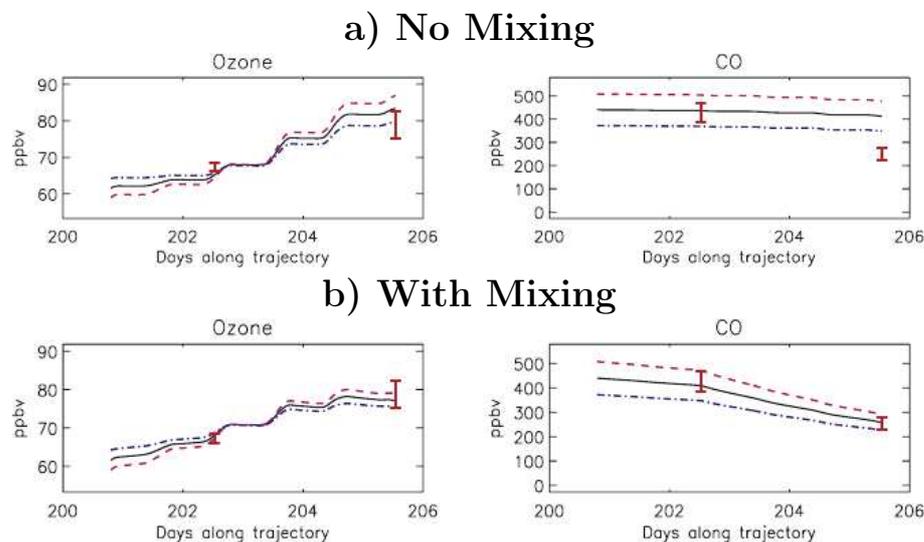


FIGURE 3.2 – Rapports de mélange en ozone et CO simulés dans un panache issu de feux de forêt en Alaska lors de son transport dans la troposphère libre au-dessus de l’Atlantique Nord. Les simulations ont été effectuées avec le modèle CiTTyCAT sans (a) et avec (b) mélange. Source : Real et al. (2007).

permettant de représenter les régions sources influençant la composition atmosphérique en aval. Un exemple de résultat obtenu avec ce type de modèle est donné figure 3.3 issue de Ravetta et al. (2007).

De façon similaire, le modèle peut être utilisé vers les temps positifs pour simuler la dispersion de masses d’air, par exemple depuis une zone d’émission.

Ce type de modèle peut inclure des termes de perte comme les dépôts sèche et humide ou la désintégration radioactive, mais ne simule pas la chimie le long des trajectoires.

Dans ce cas, la diffusion turbulente est simulée sous la forme de perturbations stochastiques du vent, ω (m/s), dont la variance dépend du coefficient de diffusion D et du pas de temps du modèle, dt , selon :

$$\langle \omega^2 \rangle = \frac{2D}{dt} \quad (3.5)$$

Le coefficient de diffusion dans FLEXPART contient une composante fixe (différente selon qu’on se trouve dans la couche limite, la troposphère libre ou la stratosphère) et une composante dépendant de la variabilité du vent autour de chaque parcelle.

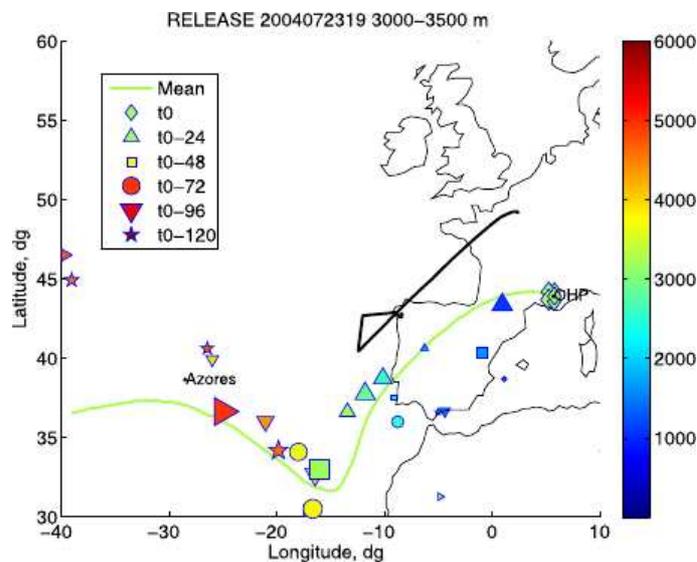


FIGURE 3.3 – Carte de la rétrotrajectoire moyenne d’un nuage de parcelles relâchées au niveau de l’Observatoire de Haute Provence (OHP) le 23 juillet 2004 à 19 entre 3 et 3.5 km d’altitude, selon une simulation du modèle FLEXPART. Les positions de 5 clusters sont indiquées toutes les 24 heures. Source : Ravetta et al. (2007).

Reconstructions stochastiques

La valeur du coefficient de diffusion turbulent peut être difficile à déterminer et varie selon les conditions météorologiques. Pour le contraindre, Legras et al. (2003) a mis au point une méthodologie de reconstruction stochastique lagrangienne d’observations.

Elle utilise une version modifiée de FLEXPART, TRACZILLA, où le coefficient de diffusion est un paramètre fixé par l’utilisateur. Des ensembles de rétrotrajectoires sont calculés à partir de points de mesure, avec plusieurs valeurs du coefficient de diffusion vertical D_v , comme schématisé par la figure 3.4 (Legras et al., 2005).

On affecte aux rétrotrajectoires des concentrations en un traceur supposé conservé durant le transport (CO pour la troposphère, O_3 et N_2O pour la stratosphère) à l’aide d’une estimation de la composition de l’atmosphère quelques jours avant la mesure, habituellement issue d’un CTM eulérien global.

Les concentrations le long des trajectoires sont moyennées pour obtenir la concentration reconstruite en chaque point de mesure. Les séries temporelles

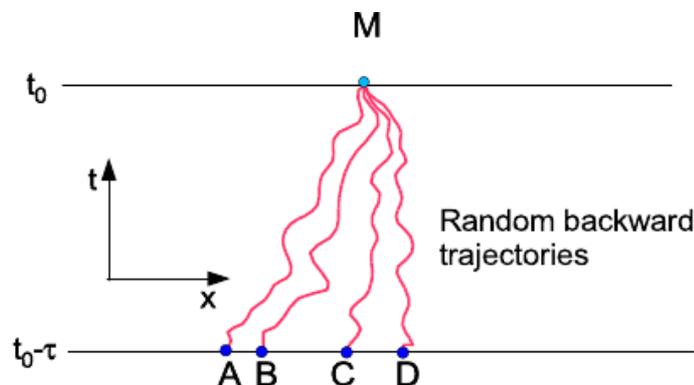


FIGURE 3.4 – Schéma conceptuel des reconstructions stochastiques lagrangiennes. Les positions des trajectoires issues de M sont indiquées au temps $t_0 - \tau$ par les points A, B, C et D. Le rapport de mélange du traceur reconstruit en M au temps t_0 est la moyenne des concentrations au temps $t_0 - \tau$ en A, B, C et D. Source : Legras et al. (2005).

de concentrations ainsi reconstruites, sont sensibles au coefficient de diffusion, comme on peut le voir sur l'exemple présenté figure 3.5.

On calcule alors les reconstructions pour plusieurs valeurs de D_v . La valeur du coefficient de diffusion pour laquelle les reconstructions sont les plus proches des observations est alors la plus représentative du mélange subi par les masses d'air.

Les reconstructions stochastiques ont d'abord été développées pour la stratosphère, mais furent adaptées à la troposphère par Piss0 et al. (2009). Des reconstructions de CO furent calculées le long de vols d'avions de recherche ayant intercepté un panache de feu de biomasse pendant son transport au-dessus de l'Océan Atlantique Nord, dans le cadre de la campagne ICARTT.

Pisso et al. (2009) estime le coefficient de diffusion vertical entre 0.35 et $2.7 \text{ m}^2\text{s}^{-1}$ et sa composante horizontale de l'ordre $10^4 \text{ m}^2\text{s}^{-1}$. Peu d'autres estimations de D_v ont été effectuées dans la troposphère libre, celle de Schumann et al. (1995), basée sur la dispersion de panaches d'avion, donne une valeur d'environ $0.6 \text{ m}^2\text{s}^{-1}$ située dans l'intervalle obtenu avec les reconstructions par Piss0 et al. (2009).

Le coefficient de diffusion horizontale, quant à lui, a été estimé entre 1 et $5 \cdot 10^4 \text{ m}^2\text{s}^{-1}$ par des études antérieures (Gifford, 1982; Sillman et al., 1990; Mauzerall et al., 1998). Ces valeurs ont été obtenues en étudiant des panaches proches des régions sources, et dans la basse troposphère ou dans la couche

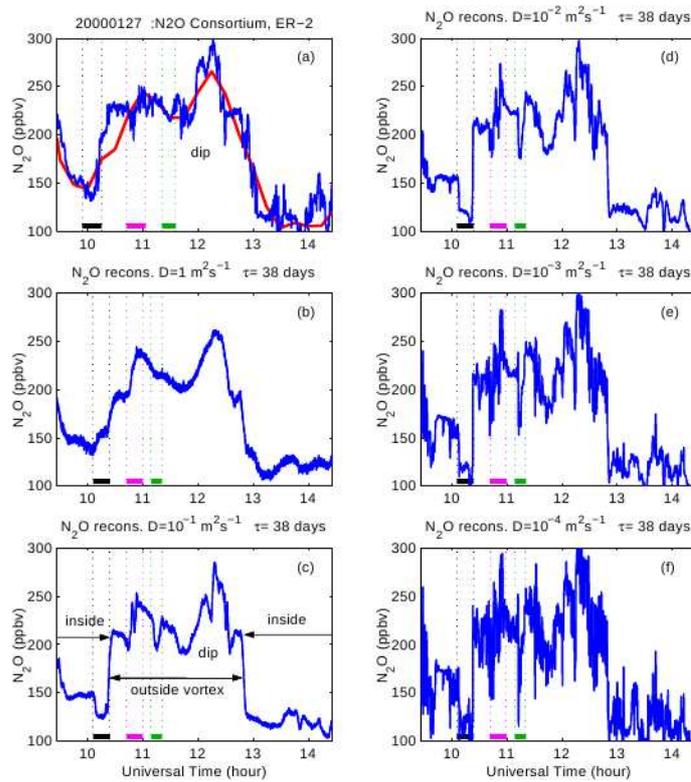


FIGURE 3.5 – Séries temporelles des rapports de mélange en N_2O observés (en haut à gauche) et reconstruits avec plusieurs valeurs du coefficient de diffusion vertical le long du vol du 27 Janvier 2000 du NASA ER-2. Les rapports de mélange en N_2O le long des trajectoires sont initialisés avec des résultats du modèle global eulérien REPROBUS (REactive Processes Ruling the Ozone BUDget in the Stratosphere) 38 jours avant la mesure, et les concentrations qu’il simule le long du vol sont indiquées par une ligne rouge. Source : Legras et al. (2005).

limite, le mélange est alors gouverné par la turbulence à petite échelle et est peu influencé par l’advection à grande échelle. L’estimation de D_h par ces études est légèrement supérieure à celle de Pisso et al. (2009), qui a étudié un cas où le transport était gouverné par l’advection à l’échelle synoptique plus que par la turbulence locale.

En utilisant l’équation 3.3, Pisso et al. (2009) a pu déterminer qu’un modèle global eulérien devrait avoir une résolution horizontale de l’ordre de 40 km pour que la diffusion numérique ait une intensité comparable à l’estimation de D_v obtenue grâce aux reconstructions.

L'étude montre aussi que la méthode de reconstruction lagrangienne doit être de préférence utilisée sur des observations de panaches bien identifiés, avec des concentrations en CO importantes (plus de 400 ppbv dans ce cas lors de la première interception du panache). L'étude présentée dans le chapitre 4 de cette thèse montre qu'il est possible de l'appliquer à un cas de transport de panache âgé et filamenté, en se basant sur la distribution des concentrations plutôt que sur leurs séries temporelles.

Reconstructions stochastiques avec chimie

Les reconstructions stochastiques permettent de bien rendre compte des différentes régions sources influençant des mesures in-situ. Toutefois, elles sont limitées à des traceurs conservés durant le transport, comme les NOy, ou dont les temps de vie sont longs devant sa durée, comme le CO.

Real et al. (2010) présente une méthode permettant de prendre en compte la chimie atmosphérique lors de reconstructions, illustrée figure 3.6. Le modèle, nommé ZooM-CiTTy, se base sur des trajectoires calculées par TRACZILLA, initialisées cette fois avec les concentrations de toutes les espèces chimiques disponibles à l'aide du modèle eulérien global MOCAGE (Modèle de Chimie Atmosphérique de Grande Échelle), et simule leur évolution chimique à l'aide du modèle CiTTyCAT.

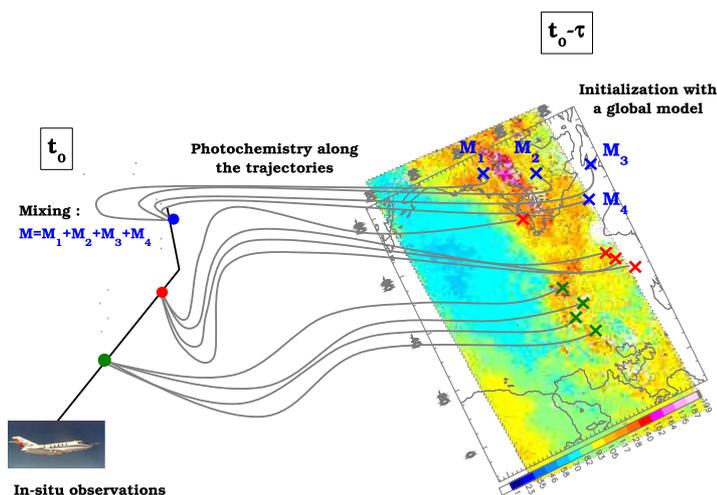


FIGURE 3.6 – Schéma conceptuel du modèle ZooM-CiTTy, d'après Real (2008).

Cette méthode permet de reproduire les séries temporelles de concentration en ozone ainsi que les corrélations O_3/CO de façon nettement plus satisfaisante que les modèles globaux, comme le montre la figure 3.7. Elle montre également que la production d’ozone en bord de panache peut être entachée d’erreurs de l’ordre de 50% dans les modèles globaux en raison de la diffusion numérique.

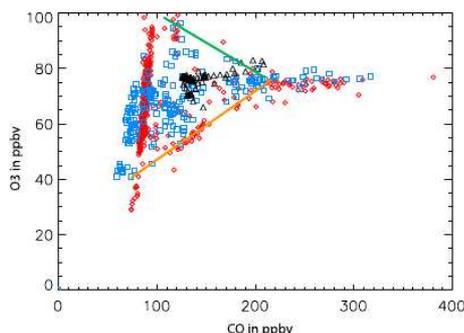


FIGURE 3.7 – Correlations entre rapports de mélange de CO et d’ozone le long du vol du DLR Falcon le 22 juillet 2004, dans les observations in-situ (rouge), simulées par MOCAGE (noir) et reconstruites par ZooM-CiTTY (bleu). Les lignes orange et verte indiquent les lignes de mélange. Source : Real et al. (2010).

Le principal défaut de cette modélisation vient du fait que les compositions chimiques le long des trajectoires ne sont mélangées qu’à la fin de la simulation. La prise en compte du mélange entre les trajectoires pendant le transport devrait permettre d’améliorer significativement les performances de ZooM-CiTTY.

Panaches lagrangiens sous-grille

Certaines formes d’émission anthropiques, comme les panaches de cheminée ou issus d’avions et de bateaux (Schumann et al., 1995) se font sous forme de structures de petite échelle qui ne peuvent être résolues par les modèles eulériens.

On traite alors ces panaches de façon lagrangienne, leur croissance suivant en général une loi gaussienne suivant la seconde loi de Fick (équation 3.2). Le panache est ensuite dilué dans la grille du modèle eulérien quand il atteint une taille suffisante (Korsakissok and Mallet, 2010).

Résumé des points importants du chapitre

Etudier le transport à longue distance demande de faire appel à des modèles numériques.

Pour quantifier l'export/import de polluants, on utilise en général des modèles globaux eulériens. Toutefois, la diffusion numérique due à la discrétisation de l'espace provoque des erreurs dans le budget des polluants et dans les taux de réaction chimiques.

On peut simuler les processus non-linéaires de façon satisfaisante avec des modèles lagrangiens, particulièrement lors d'études de cas.

La simulation du mélange est complexe et doit être paramétrisée. L'approche choisie dépend du type d'étude, et des processus mis en avant.

La paramétrisation choisie peut se focaliser sur les concentrations, afin d'étudier en priorité la chimie atmosphérique (modèle CiTTyCAT), ou sur la dynamique afin de mettre en avant les origines des masses d'air et les chemins de transport (modèle FLEXPART). On peut aussi combiner ces deux approches (modèle ZooM-CiTTy) afin de prendre en compte à la fois la chimie et la diversité des régions sources.

L'intensité du mélange peut être estimée à l'aide de reconstructions stochastiques (modèle TRACZILLA) d'observations de panaches de pollution.

Bien que des avancées importantes aient été faites dans les dernières années en matière de représentation du mélange dans les modèles, certains aspects du mélange sont encore mal connus, ou mal pris en compte par ceux-ci. C'est notamment le cas pour les panaches âgés, qui présentent des structures filamentées que même les modèles à haute résolution ont du mal à représenter, mais qui jouent un rôle important dans les bilans d'ozone. De plus, le mélange est peu étudié en Arctique, malgré le fait que les concentrations de fond y sont souvent significativement plus faibles que celles à l'intérieur des panaches, mêmes âgés, et qu'il y est donc un facteur prépondérant de l'évolution des concentrations dans les panaches.

Chapitre 4

Modélisation du transport et du mélange de panaches âgés en Arctique

Dans les chapitres précédents, on a noté l'importance du mélange dans l'évolution des concentrations en polluants lors du transport à longue distance. Aux échanges entre le panache et son environnement liés aux flux turbulents s'ajoutent l'étirement et la filamentation du panache en raison de l'advection différentielle. Ces processus sont difficiles à prendre en compte dans les modèles et sont souvent perturbés par la diffusion numérique dans les modèles eulériens globaux utilisés pour quantifier les bilans de polluants liés au transport.

On a vu également que l'Arctique est une région singulière du point de vue du transport à longue distance, du fait du faible nombre de sources de polluants qu'on y trouve, mais également de sa sensibilité aux perturbations climatiques.

Le présent chapitre rapporte une étude sur la filamentation d'un panache de polluants asiatique lors de son transport au travers de l'Arctique, effectuée à l'aide de modèles lagrangiens et eulériens. L'objectif de cette étude est d'évaluer la capacité de ces deux types de modèles à représenter le transport de ce panache, de reproduire la variabilité des concentrations observées dans les filaments qui en sont issus, ainsi que de donner une estimation de l'intensité du mélange dans la troposphère arctique. Le chapitre se compose d'un résumé de l'étude, suivi d'une copie du manuscrit de l'article (Auby et al., 2011).

4.1 Résumé de l'étude

Pour quantifier l'impact de la pollution à longue distance sur le climat et la qualité de l'air en Arctique, on utilise généralement des modèles globaux eulériens de chimie-transport. Toutefois, les performances de ces modèles sont entachées d'erreurs dues à la diffusion numérique, qui affectent les bilans d'export de polluants calculés, ainsi que les taux de réaction photochimiques durant le transport. Il est donc nécessaire d'améliorer les modèles globaux de façon à réduire ces erreurs.

4.1.1 Cas étudié

Lors de la campagne POLARCAT, en 2008, des mesures in situ dans des panaches de polluants furent effectuées dans la troposphère libre arctique à l'aide d'avions de recherche. Elles sont combinées à des observations spatiales et des outils de modélisation afin de caractériser les sources des panaches, les chemins de transport et leur impact en aval sur la composition atmosphérique.

Ainsi, un panache de polluants fut observé au-dessus du Pôle Nord le 9 juillet par le NASA DC8. Ce panache, d'origine asiatique, a été transporté au-dessus du pôle sous l'effet d'un système frontal situé au nord de la Sibérie (Sodemann et al., 2011). Un autre avion, le DLR Falcon, a observé des filaments issus de ce panache le 12 et le 13 juillet au-dessus du Groenland.

Des rétrotrajectoires calculées avec le modèle FLEXPART confirment le lien lagrangien entre les masses d'air observées le 13 juillet et le panache asiatique et montrent également une influence à 9 jours non négligeable (environ 30% des parcelles) de la moyenne troposphère au nord de l'Alaska, peu polluée.

Lors de ces deux vols du DLR Falcon, un traceur passif artificiel fut injecté dans les filaments du panache asiatique, puis échantillonné, dans le cadre de l'expérience PERTRAS (PERfluorocarbon TRAcier Sampling). L'étude de la dispersion du panache de traceur sera présentée dans le chapitre suivant.

4.1.2 Simulation du transport du panache avec un modèle global eulérien

A l'aide d'observations in-situ dans le panache, on évalue la représentation du transport des polluants dans la troposphère arctique par le modèle global de chimie-transport, LMDz-INCA. On dispose de champs de concentration en CO calculés directement par le modèle, mais également d'analyses issues

de l'assimilation de colonnes de CO mesurées par l'instrument IASI sur le satellite METOP-A (Pommier et al., 2010).

En confrontant les résultats obtenus avec les observations du DC8 le 9 juillet dans le panache, on constate que le modèle seul peine à reproduire le panache. Toutefois, l'assimilation de données satellites permet de nettement améliorer la distribution des concentrations de CO.

Les 12 et 13 juillet, le panache est agé et filamenté, et les observations faites par le DLR Falcon montrent une forte variabilité dans le rapport de mélange du CO au-dessus du Groenland. LMDz-INCA ne peut ici pas reproduire cette variabilité et sous-estime les concentrations en CO. L'assimilation de colonnes de CO permet de réduire fortement l'erreur commise sur la concentration moyenne, mais la variabilité du CO reste sous-estimée.

Dans ce cas, les structures observées sont très fines et la diffusion numérique induite par la résolution du modèle global ($3.75^\circ \times 1.875^\circ$ horizontalement) ne permet pas de les reproduire. On fait donc appel à des méthodes lagrangiennes, qui ne sont pas affectées par cette diffusion numérique pour approfondir l'étude de la filamentation du panache et l'évaluation des performances du modèle global.

4.1.3 Reconstructions lagrangiennes de filaments du panache asiatique

Les mesures de CO le long du vol du 13 juillet sont reconstruites à l'aide de la méthode de reconstruction lagrangienne diffusive de Legras et al. (2003), décrite plus en détails dans le chapitre précédent, en initialisant les trajectoires à l'aide de champs de concentration de CO simulés par LMDz-INCA avec assimilation.

Les reconstructions ont été calculées avec des coefficients de diffusion verticaux (D_v) allant de 0.001 à $10 \text{ m}^2\text{s}^{-1}$, sur une section du vol où les filaments de panache ont été observés à une altitude de 5-6 km à l'ouest du Groenland. Cette section du vol est celle où fut échantillonné le panache de traceur artificiel de l'expérience PERTRAS (dont la dispersion est étudiée dans le chapitre 5).

Si on applique une diffusion de faible intensité ($0.1 \text{ m}^2\text{s}^{-1}$ ou moins), les reconstructions présentent une succession de masses d'air polluées (jusqu'à 200 ppbv de CO) entourées d'air plus propre (100-120 ppbv). Les pics de CO les plus prononcés correspondent aux coefficients de diffusion les plus faibles, et donc à des filaments de panache ayant subi un mélange faible.

Les structures reconstruites sont significativement plus étendues que celles observées. Bien que le point de vue lagrangien permette de simuler efficace-

ment l'advection différentielle, les reconstructions ne peuvent pas reproduire des structures aussi fines que celles qu'on observe dans les filaments du panache. On notera d'ailleurs que les filaments reconstruits ne voient pas leur taille réduite quand on fait diminuer D_v en dessous de $0.1 \text{ m}^2\text{s}^{-1}$.

Si on applique un coefficient de diffusion élevé ($D_v > 1 \text{ m}^2\text{s}^{-1}$), les concentrations en CO reconstruites sont sous-estimées et présentent peu de variabilité. Le mélange intense a ici un effet similaire à celui de la diffusion numérique du modèle global, qui empêche de reproduire les structures de petites échelle dans les panaches. Les distributions des concentrations en CO du modèle global et reconstruites avec $D_v=10 \text{ m}^2\text{s}^{-1}$ sont d'ailleurs similaires.

La position des parcelles le 4 juillet (quand les concentrations en CO sont initialisées) pour $D_v=10 \text{ m}^2\text{s}^{-1}$ montre que l'influence du panache asiatique n'est alors pas prépondérante sur les masses d'air reconstruites, contrairement à ce qu'on peut voir avec un mélange moins intense. Une diffusion trop intense peut ainsi perturber la représentation des régions sources influençant les concentrations en CO, et ainsi mener à une mauvaise représentation des chemins de transport.

4.1.4 Distributions des concentrations et intensité du mélange

Afin de quantifier la variabilité du CO le long du vol, les distributions cumulées de ses concentrations observées et simulées sont calculées. On applique ensuite à ces distributions la régression d'une fonction sigmoïde (intégrale d'une fonction gaussienne), afin de calculer une concentration médiane et un écart-type (C_0 et σ , ppbv) caractéristiques des distributions.

La concentration reconstruite médiane est peu sensible aux variations de D_v si ce dernier est inférieur à $1 \text{ m}^2\text{s}^{-1}$, variant entre 130 et 134 ppbv, et décroît selon D_v quand la diffusion est plus intense (108 ppbv pour $D_v=10 \text{ m}^2\text{s}^{-1}$). L'écart-type, σ , décroît selon D_v d'une valeur de 22.7 ppbv pour $D_v=0.001 \text{ m}^2\text{s}^{-1}$ jusqu'à 1.8 ppbv pour $D_v=10 \text{ m}^2\text{s}^{-1}$.

Les valeurs de C_0 et σ observées sont reconstruites au mieux en utilisant un coefficient de diffusion vertical situé entre 0.01 et $0.2 \text{ m}^2\text{s}^{-1}$. Cette estimation est sensiblement inférieure à celle faite avec une méthodologie similaire par Pisso et al. (2009), entre 0.35 et $2.7 \text{ m}^2\text{s}^{-1}$, à l'aide de reconstructions de concentrations en CO dans un panache de feux nord-américain lors de son transport à travers l'Atlantique Nord. Toutefois, les cas étudiés sont très différents, les mesures reconstruites par Pisso et al. (2009) ayant été faites au coeur d'un panache très pollué avec des concentrations en CO atteignant 600 ppbv, tandis que la présente étude se focalise sur des filaments de panache

agés de 9 jours donc les concentrations en CO n'excèdent pas 170 ppbv.

L'estimation du coefficient de diffusion par les reconstructions lagrangiennes est donc sensible au vieillissement du panache. Prendre en compte l'intermittence et/ou l'inhomogénéité du mélange dans les reconstructions pourrait permettre de réduire cette sensibilité.

4.1.5 Diffusion et résolution du modèle global

A l'aide de la fermeture de Smagorinski, présentée dans le chapitre 3 (équation 3.3, page 50), on peut définir la résolution du modèle global nécessaire pour que sa diffusion numérique soit équivalente à l'estimation faite par le biais des reconstructions lagrangiennes.

On obtient des valeurs proches de 10 km pour la résolution horizontale, et 200 m pour la résolution verticale (40 km et 500 m respectivement dans l'étude de Pisso et al. (2009)). Ces valeurs sont similaires aux résultats obtenus par Rastigejev et al. (2010) en étudiant le taux de décroissance des concentrations dans les panaches, concluant qu'il faudrait une résolution horizontale de quelques kilomètres pour bien simuler ces taux de décroissance.

Les modèles globaux eulériens actuels nécessiteraient des temps de calcul prohibitifs pour supporter des résolutions de cet ordre, il est donc nécessaire de trouver d'autres moyens de traiter le transport des panaches avec ces outils. Une solution prometteuse consiste à inclure un traitement lagrangien des panaches dans les modèles eulériens, afin de garder les avantages des deux approches.

En résumé, les résultats obtenus montrent la difficulté de simuler la variabilité des concentrations dans les panaches âgés avec des modèles globaux eulériens, même si l'assimilation d'observations par satellite permet de mieux représenter les niveaux moyens. Toutefois, il s'est avéré possible de reproduire la variabilité des concentrations en couplant les résultats du modèle global avec un modèle de dispersion lagrangien, ce qui a également permis d'estimer le coefficient de diffusion vertical entre 0.02 et 0.1 m²s⁻¹ dans la troposphère arctique. Enfin, ces résultats indiquent qu'il faudrait une résolution spatiale irréaliste en terme de temps de calcul pour pouvoir simuler une diffusion de cette intensité avec un modèle global eulérien, il paraît donc nécessaire de coupler ce type de modèle avec des outils lagrangiens afin de mieux simuler le transport des panaches âgés.

4.2 Manuscrit de l'article

Modelling transport and mixing of aged pollution plumes in the Arctic

A. Auby¹, K.S. Law¹, F. Ravetta¹, M. Pommier^{1,2}, H. Schlager³, C. Clerbaux¹, M. George¹, and G. S. Diskin⁴

¹UPMC Univ. Paris 06; Univ. Versailles St-Quentin; CNRS/INSU; LATMOS-IPSL, Paris, France

²Matthieu's new affiliation

³Institut für Physik der Atmosphäre, Deutsches Zentrum für Luft- und Raumfahrt, Oberpfaffenhofen, Germany

⁴NASA Langley Research Center, USA

Abstract.

The mixing and dilution of an Asian pollutant plume during transport across the Arctic is studied using Lagrangian multiple parcel reconstructions and global chemistry-transport model simulations. The plume was sampled as part of IPY PO-
5 LARCAT during flights near the North Pole on 9 July 2008 by the NASA DC-8 and
and the German DLR Falcon-20 flying west of Greenland on 12 and 13 July 2008.
The Lagrangian reconstructions are performed using a modified version of FLEX-
PART including stochastic perturbations to the wind field and initialized with CO
concentrations from a global model, LMDz-INCA, including assimilation of IASI
10 CO total column data. Lagrangian reconstructions of CO observations on 13 July of
the aged polluted air mass embedded in cleaner air are able to reproduce observed
variability. Statistical analysis of the reconstructed and observed CO distributions in
terms of mean concentrations and standard deviations allows estimation of vertical
diffusion coefficients or mixing rates in the Arctic free troposphere which best fit
15 the observations (0.02-1.0 m² s⁻¹). The Lagrangian reconstructions are also used to
evaluate results from the global model which is unable to reproduce observed mean
concentrations in the aged polluted air. Even including assimilation of IASI CO, the

model has difficulties reproducing observed CO variability 8 to 9 days downwind from the Asian source region. Analysis of the results also shows that excessive
20 mixing and dilution, as is the case in coarse resolution global models, leads to unrealistic representation of pollution transport. It may also lead to incorrect attribution of sources since air masses may follow incorrect transport paths. Results are also used to estimate that Eulerian models need to be run at resolutions of around 10 km horizontally and 200 m vertically in order to reproduce observed trace gas variability
25 in aged pollutant plumes in the Arctic.

1 Introduction

Long-range transport of air pollution from source regions affects atmospheric composition downwind where it can impact climate change and regional air quality as well as ecosystems following deposition (HTAP, 2010). Global models are the
30 tools used to quantify such impacts since they contain representations of the processes governing the sources and sinks of air pollutants such as tropospheric ozone and aerosols. Such models, usually based on Eulerian formulations, are used to estimate the impacts of particular emission sources on global chemical composition and its change over time. For example, as part of the recent Task-Force on the
35 Hemispheric Transport of Air Pollutants (HTAP, 2010), global models were used to estimate that between 32 and 45% of ozone over emission regions in the Northern Hemisphere originates from inter-continental transport. Nevertheless, global chemistry transport models (CTMs) still have problems simulating long-term changes in tropospheric ozone (Lamarque et al., 2010). This is partly due to the large un-
40 certainties related to temporal trends in emissions (Granier et al., 2011) but is also due to uncertainties in model treatments of processes such as photochemistry and wet/dry deposition. Model transport of ozone and its precursors are also subject to errors in the treatment of sub-grid scale processes such as deep convection as well as errors related to large-scale advection of trace species.

45 Observations of polluted plumes in the free troposphere show well-defined quasi-horizontal thin layers (Newell et al., 1999) produced by differential advection, stir-

ring and stretching. The thickness of these layers is usually of the order of 1 km (Colette and Ancellet, 2006), making them sensitive to small-scale mixing and dilution. Eulerian global CTMs, currently run at resolutions of around 1° in the horizontal and 1-2 km in the vertical, are often too coarse to represent such features leading to overestimation of mixing and smearing out of small-scale features (Tan et al., 1998) as a result of artificial numerical diffusion. Errors related to the latter are related to model resolution (Prather et al., 2008) including interactions between model velocity fields and numerical diffusion that can lead to enhanced plume decay rates especially at coarse resolutions (Rastigejev et al., 2010). Errors related to resolution can also lead to systematic errors in calculated reaction rates associated with non-linear atmospheric chemistry (Wild and Prather, 2006; Real et al., 2010).

Observed small-scale variability in atmospheric composition can be recovered from large-scale fields, for example from a global CTM using Lagrangian methods such as reverse domain filling (e.g. Methven et al. 2003) due to inherent information contained in the meteorological fields (Methven and Hoskins, 1999). Legras et al. (2003) developed a methodology derived from reverse domain filling trajectories and including a parametrization for turbulent diffusion, that consisted of reconstructing observed atmospheric tracers in order to quantify the intensity of the mixing in the stratosphere. Stochastic perturbations in the horizontal or vertical winds were used to determine effective diffusivities which gave the best fit to the observations. This methodology was adapted to the free troposphere by Pisso et al. (2009) and used to examine mixing and dilution of an Alaskan biomass burning plume during transport across the North Atlantic. The results from that study were also used to estimate that Eulerian CTMs need to be run at resolutions of at least 40 km horizontally and 500 m vertically in order to capture the long-range transport of that pollutant plume (Pisso et al., 2009). Further analysis of this case, including ozone photochemistry, showed that significant errors in coarse resolution simulations can arise especially at plume edges (Real et al., 2010).

In this study, we focus on transport of pollution plumes to the Arctic since this is a region undergoing rapid climate change and where short-lived pollutants, such as ozone and aerosols, may be making an important contribution to warming (e.g.

Koch et al. 2011). Evaluation of global chemistry transport models (CTMs) against data showed that models tend to underestimate carbon monoxide, an important ozone precursor and transport tracer, over source regions in the lower and mid troposphere, (e.g. Fisher et al. 2009, Alvarado et al. 2010) as well as downwind over the Arctic (Shindell et al., 2008; Tilmes et al., 2011; Sodemann et al., 2011). These discrepancies have been attributed to underestimation of emissions, (e.g. Asian anthropogenic emissions, or summertime boreal fire emissions over Alaska), CO destruction by OH and errors related to pollution transport. Shindell et al. (2008) also noted that global models show substantial differences in, for example, transport of pollutants across the Arctic to Greenland during summer. Global model results also differ from simulations using Lagrangian CO simulations FLEXPART (Stohl, 2006). The cross-polar transport pathway for Asian pollution was examined recently by Sodemann et al. (2011) using data collected in summer 2008 during International Polar Year (IPY) activity Polar Study using Aircraft, Remote Sensing, Surface Measurements and Models, of Climate, Chemistry, Aerosols, and Transport (POLARCAT). They noted that the Arctic is highly stratified with stirring processes leading to increased filamentation during transport of aging plumes making it a difficult region for global CTMs to simulate. Such cases of pollutant transport from Asia across the Arctic are also interesting because they may ultimately lead to in the transport of pollution to other continents such as Europe or North America.

Here, we analyse an event of cross-polar transport of Asian pollution (4-13 July 2008) which was observed downwind west of Greenland. Lagrangian CO reconstructions, based on the work of Pisso et al. (2009), are used to provide information about the intensity of the mixing experienced by aging pollutant plume filaments during transport in the free troposphere over the Arctic. The Lagrangian reconstructions are also used to evaluate results from a global chemistry model, LMDz-INCA that was run with and without assimilation of IASI CO data. Statistical measures are explored in order to assess measured and modelled variability of CO concentrations in aged polluted air masses. Results are also used to estimate resolutions needed in global models to correctly simulate such long-range transport events and compared to previous work.

The data and methodology used in this study are described in section 2 and the
110 pollution transport event is presented in section 3. Comparison of global model sim-
ulations, run with and without IASI CO assimilation, and the in-situ observations
are discussed in section 4. In section 5, Lagrangian CO reconstructions are used
to estimate vertical diffusivities (mixing rates) during transport and to assess global
model behaviour. Conclusions are provided in section 6.

115 2 Data and methodology

2.1 POLARCAT campaign

As part of POLARCAT-IPY, a series of aircraft campaigns were executed in spring
and summer 2008 in order to characterize pollution plumes of different origin dur-
ing transport into the Arctic in terms of chemistry, aerosol processes, and radiative
120 impacts. During the summer campaign, in-situ aircraft observations were gathered
over North America, Greenland and Siberia over a period of several weeks. During
summer 2008, the German contribution, POLARCAT-GRACE (GReenland Aerosol
and Chemistry Experiment) was based in Kangerlussuaq, western Greenland, using
the DLR Falcon-20 (30 June to 18 July 2008). The Falcon measurements included
125 O₃, CO, CO₂, H₂O, NO, NO₂, PAN, NO_y, jNO₂ (Roiger et al., 2011) as well as
aerosol concentrations and size. CO was measured with vacuum ultraviolet (UV)
fluorescence technique using an AEROLASER instrument (Baehr et al., 2003). The
NASA DC-8 also flew as part of the Arctic Research of the Composition of the Tro-
posphere from Aircraft and Satellites (ARCTAS) experiment during summer 2008
130 making measurements over Canadian boreal fires and in the Arctic (Jacob et al.,
2010). Many trace gas and aerosol measurements were collected including CO
measured using a tunable diode laser absorption (TDLAS, Sachse et al. 1987).

In this paper, we analyse aircraft CO data collected on 9 July by the DC-8 and the
DLR Falcon on 12 and 13 July 2008 (see Figure 1) in air masses showing signatures
135 of aged pollution influence (i.e. enhanced concentrations of CO, PAN etc.) inter-
dispersed with cleaner air masses having tropospheric or upper tropospheric lower

stratospheric (UTLS) signatures (i.e. lower CO). Data from the DC-8 flight on 9 July was included in the study of Sodemann et al. (2011). They evaluated 2 events of cross-polar transport using comparison of FLEXPART CO tracer runs and
 140 results from a global CTM (TOMCAT) against in-situ aircraft data and Infrared Atmospheric Sounding Interferometer (IASI) CO total column data. The higher resolution FLEXPART CO tracer simulations were able to better capture plume structures compared to the global model. Part of the Asian pollution transported across the Pole was also observed in the UTLS over northern Greenland on 10
 145 July 2008 (Roiger et al., 2011). Here, we focus on the tropospheric part of this Asian pollution plume as it was transported further downwind off the west coast of Greenland where it was observed on 12 and 13 July by the DLR Falcon.

2.2 Reconstruction methodology

The methodology used here is similar to ensemble stochastic diffusive reconstructions, developed in Legras et al. (2003), and adapted to the free troposphere by
 150 Pisso et al. (2009). In-situ measurements were reproduced by calculating multiple backward parcels from measurement points along a flight track. In this study, we focus on reconstruction of CO from the DLR Falcon flight on 13 July 2008. 2000 parcels were launched every 20 seconds along the flight and run backwards for 9
 155 days. CO concentrations were initialized at the end points of the trajectories on the 4 July 2008 using fields from a global model, LMDz-INCA (see next section). Reconstructed CO concentrations were obtained by averaging the concentrations of all the air parcels arriving at the measurement point. Note that the reconstructed concentrations are only affected by mixing during transport. Chemical decay is
 160 neglected considering that the lifetime of CO is longer (2-3 months) than the duration of the simulated transport (8-9 days in this case). In order to represent turbulent mixing, trajectories are calculated including a stochastic perturbation, ω , in the wind field. The variance of ω is proportional to the diffusion coefficient D , knowing the model's integration time step dt :

$$165 \quad \langle \omega^2 \rangle = \frac{2D}{dt} \quad (1)$$

Trajectories are calculated using a modified version of the Lagrangian particle dispersion model FLEXPART v8.0 (Stohl et al., 2005), using meteorological analysis fields at 0.5° resolution from the European Center for Medium-Range Weather Forecasts (ECMWF). The numerical singularity at the North Pole is avoided using a
170 grid change to a polar stereographic projection north of 86°N . The diffusion scheme in FLEXPART, based on variability in the large-scale wind around air parcels, was switched off for the reconstruction calculations but not for the calculations of mean air mass origin discussed in section 3 (figure 2).

2.3 LMDz-INCA

175 CO concentrations were initialized at the starting points of the trajectories using concentration fields from the LMDz-INCA global model. INCA (INteractions Chimie-Aérosols) is a chemistry and aerosol model coupled to the Laboratoire de Meteorologie Dynamique (LMD) General Circulation Model, LMDz. LMDz-INCA accounts for emissions, transport, photochemistry, and scavenging (dry deposition and washout)
180 of chemical species and aerosols (Folberth et al., 2006). The model resolution is 3.75×1.875 degrees in longitude and latitude, respectively, with 19 sigma-p hybrid vertical levels. The dynamical part of the model was nudged with winds from ECMWF to enable comparison with in-situ observations. The model was run with emissions from Lamarque et al. (2010) corresponding to the year 2000. Boreal fire
185 emissions are from Global Fire Emissions Database version 2 (GFEDv2) (van der Werf et al., 2006). Further details about the runs, including the emissions, are given in Klonecki et al. (2011). We also make use of results from Klonecki et al. (2011) where IASI CO total column data was assimilated into the model. The IASI instrument, a high resolution nadir looking thermal infrared (IR) sounder launched
190 on board the METOP-A satellite, has 14 daily orbits and a large scanning swath of 2200 km across the track. It provides global Earth coverage twice a day making it well suited for the analysis of long-range transport (e.g. Clerbaux et al. 2009; Pommier et al. 2010). Total column CO data together with vertically integrated averaging kernels were assimilated into LMDz-INCA. Data north of 75°N , showing
195 uncharacteristic values due to low surface temperatures and therefore weak signal

to noise ratios (Pommier et al., 2010), were not assimilated. Likewise, data with high surface emissivities above 0.98 over ice were not assimilated into the model runs discussed here.

3 Identification of source regions and transport pathways

200 In order to investigate the origin of air masses sampled in the region of the flights conducted by the DLR Falcon, standard FLEXPART simulations were performed. Figure 2 shows results for the 13 July. Two thousand back trajectories were calculated over a period of 9 days starting at 71N, 56W at an altitude of 5 km. Mean trajectory paths are shown together with the position every 24h of 5 clusters representative of the parcel positions. A main transport path starting in eastern Asia
205 in the lower troposphere (3-4 km) and passing over the North Pole to Greenland is evident. However, the cluster positions also show transport of air from the region north of Alaska. Around 70% of the sampled air mass originate from low altitudes (1-2 km) over eastern Asia, with the remaining 30% stayed north of Alaska in the
210 mid troposphere (6-7 km) during several days. The separation between these two features occurred between 96h (downward triangles) and 120h (stars) before the flight on 13 July 2008. The origin of the air masses is discussed in more detail in section 5 in relation to the Lagrangian CO reconstructions.

Figure 3 shows geopotential heights from ECMWF reanalyses at 500 hPa, on 8
215 and 9 July. This is the period where the separation between the two transport paths occurs in the FLEXPART simulations shown in Figure 2. These results confirm the analysis of Sodemann et al. (2011) showing a low-pressure system located north of Siberia, which moves across the Arctic to the south of the North Pole. The development of this system produces strong advection of air from the Pacific Ocean,
220 bringing air masses from eastern Asia across the Pole towards Greenland. It also entrains air masses from the region north of Alaska but to a lesser extent.

4 Global modelling of the Asian plume

4.1 CO variability and IASI assimilation

Figure 4 shows modelled CO from LMDz-INCA run with and without assimilation
225 of IASI total CO columns for selected dates between 4 and 13 July at two different
altitudes. Modelled CO (with and without IASI assimilation) on 4 July (Figure 4, a)
shows high concentrations over the Asian continent in the lower troposphere. This
plume was uplifted into the mid troposphere (4-8 km) and transported towards the
North Pole as a result of the developing low-pressure system (see Figure 3). The
230 plume passes the Pole by 9 July as shown in Figure 4 b) (no assimilation) and d)
(with assimilation). Modelled CO is diluted and dispersed over northern and central
Greenland and Baffin Bay by 13 July (Figure 4 c) and f). The results show that the
plume is more evident over the Arctic in the LMDz-INCA simulations including
IASI CO assimilation. Since IASI CO were not assimilated north of 75N, it is
235 likely that that this is due to assimilation of higher CO over Asian emission regions
where original model emissions are too low (Klonecki et al., 2011).

Figure 5 shows observed and modelled CO mixing ratios on 9 July during a
DC-8 flight that sampled the plume near the North Pole, and on 12 and 13 July
during DLR Falcon flights off the west coast of Greenland which sampled the more
240 aged plume. Without IASI assimilation, LMDz-INCA largely underestimates CO
concentrations along the 3 flights tracks. As noted in the Introduction this may be
due to an underestimation in Asian emissions, too much destruction by OH or errors
related to excessive dispersion of pollutant plumes. By 9 July, the plume had been
transported over North Pole where it was sampled by the DC-8. The model results
245 including assimilation agree much better with the in-situ CO observations on this
day especially during the period when the plume was sampled (16.30-17.45 UTC)
due to improved CO over the Asian source region, as mentioned above. This is
confirmed by cumulative frequency distributions of CO concentrations (Figure 5 d)
for 9 July showing that median and maximum concentrations are simulated much
250 better in runs including assimilation.

Model results including assimilation are also improved on 12 and 13 July al-

though the observed variability in the data is not reproduced even in runs including assimilation. In fact, strong variations in simulated CO, from both runs, only occurs during aircraft ascents and descents when the flight track crosses a region encompassing several model grid boxes in the vertical. This is the case for the DC-8 flight on 9 July when the aircraft made large altitude excursions between 3 and 9 km as well as large latitude excursions. Cumulative frequency distributions for 12 and 13 July are shown in Figure 5 (e) and (f). Model results without assimilation fail to reproduce observed variability. Results including assimilation on 12 July and 13 July are similar with more enhanced CO than in the run without assimilation but there is little variability in both runs. Since IASI data is not assimilated north of 75N, errors in advection and diffusion of the plume are also likely to be affecting the LMDz-INCA results. Sodemann et al. (2011) noted that FLEXPART simulations of this plume created fine filaments from the larger plume which had been advected over the North Pole which was not the case for the global model results in that study. We now examine further this transport making use of high resolution Lagrangian CO reconstructions to analyse observed and simulated variability in the aged polluted air masses sampled west of Greenland in summer 2008.

5 Estimation of the vertical diffusivity using Lagrangian reconstructions

In order to investigate the impact of small-scale processes (stirring, mixing) on CO distributions in the aged pollution plume observed over Greenland and Baffin Bay, Lagrangian CO reconstructions are performed for a segment of the flight on 13 July (grey shaded area in (Figure 5, c) showing plume filaments (higher CO) interdispersed with cleaner air (lower CO). Air encountered during this part of the flight was made in a continuum of air masses ranging from clean to moderately polluted. This part of the flight also corresponds to the resampling location of inert tracers released by the DLR Falcon on 12 July (Schlager et al., 2011, in prep.). The reconstructions were calculated using 9-day back trajectories and the reconstructions were initialized using LMDz-INCA results from 4 July including IASI CO assimilation (Figure 4, d) since the model results including assimilation are better than

those without assimilation, at least up to the 9 July. We compare reconstructed CO on 13 July with the observations and global model results from the runs with and without assimilation.

5.1 Reconstructed CO - 13 July

285 Figure 6 shows 1-minute average observed, reconstructed and modelled CO concentrations for 13 July. Cumulative frequency distributions are also shown for this part of the flight. As noted above, in-situ observations (red lines, Figure 6) show reasonably high variability with moderate CO concentrations ranging from 100 to 170 ppbv. More than 80% of the observations are in the 100-140 ppbv range. As noted
290 previously, LMDz-INCA results from runs with and without assimilation show little or no variability compared to the measurements. Whilst the general underestimation of CO can be attributed to low emissions over Asia in the run without assimilation, the results including assimilation also show that low model resolution is producing significant smearing out and dilution of this aged plume and thus low variability in
295 modelled CO.

Lagrangian CO reconstructions were calculated with different values of the vertical diffusion coefficient, D_v , ranging from 0.001 to $10 \text{ m}^2\text{s}^{-1}$. Results using low diffusion coefficients ($0.001\text{-}0.1 \text{ m}^2\text{s}^{-1}$) reproduce the general features seen in the observations with polluted air masses (150 - 200 ppbv) embedded in clean air (100
300 - 120 ppbv). However, the location of the maximum reconstructed mixing ratios do not generally match those observed. The reconstructed peaks calculated using very low D_v ($0.001\text{-}0.01 \text{ m}^2\text{s}^{-1}$) are too high even if the lower 70% of the observed CO distribution is well reproduced. Reconstructions with higher D_v (i.e. $10 \text{ m}^2\text{s}^{-1}$, grey lines Figure 6 a) leads to strong underestimation in CO mixing ratios with very
305 low variability (standard deviation below 2 ppbv). In this case, the results along the flight, as well as the cumulative frequency distributions, are similar to those from from the global model.

To examine the impact of D_v on the origin of air parcels, Figure 7 shows density maps of the reconstructed parcels using D_v 0.05 and $10 \text{ m}^2\text{s}^{-1}$ on 4 July when
310 the runs were initialized using CO from LMDz-INCA including IASI assimila-

tion. Reconstructions using $Dv=0.05 \text{ m}^2\text{s}^{-1}$ show similar results to Figure 2, with two principal origins for the reconstructed air masses: the polar mid-troposphere, near Alaska, where the global model CO is low and the east Asian lower troposphere in the plume with high modelled (assimilated) CO. Reconstructions calculated with $Dv=10 \text{ m}^2\text{s}^{-1}$ show origins which are much more spread out over the Northern Hemisphere. These unrealistic origins can be explained by the reconstruction methodology itself where mixing is parameterized by including a stochastic perturbation to the wind field in order to simulate parcel dispersion. When the amplitude of this perturbation is large, parcels are shifted to different transport pathways, particularly if they enter regions of strong wind shear. This is the case for the event studied here resulting in dispersed air masses origins when using high values of Dv . An overestimation of diffusion and mixing not only leads to damping out of variability in atmospheric composition, it also leads to modification of transport pathways and incorrect attribution of air masses origins. In fact, the reconstructed results using high Dv are analogous to the global model results, especially those without IASI assimilation. In LMDz-INCA, or more generally in global CTMs run at coarse resolutions, plumes are smeared out and mixed too quickly with clean 'background' air masses. This is evident in the case presented here where the results with no assimilation show only a very weak feature transported to Greenland. Thus, such errors in global models may lead to incorrect source attribution between source and receptor regions since smeared out weakly polluted air masses may follow different transport paths compared to more concentrated pollution plumes. In the case presented here, global models (this study and Sodemann et al. (2011)), underestimate Asian plume transport into the Arctic and must therefore overestimate transport to other regions such as North America. These findings may help to explain differences between global models and FLEXPART simulations which aimed to quantify the contribution of different emission regions to Arctic pollution (Stohl, 2006; Shindell et al., 2008). In those studies, which examined seasonal contributions rather than particular events, FLEXPART simulations suggested a lower overall contribution from Asian pollution compared to the global model results analysed by Shindell et al. (2008).

5.2 Determination of D_v based on concentration distributions

Although the location of observed small-scale features are not reconstructed exactly using the Lagrangian approach, the distribution of CO mixing ratios is quite well reproduced. The observed air masses include small filaments from the aged Asian plume, making it difficult to simulate the exact position of each filament after 9 days. Nevertheless, CO variability provides additional information that can be used to assess the degree of mixing and stirring in the reconstructions and the global model simulations. Here, we used the filtering function of the cumulative density functions, assuming a Gaussian distribution, to derive the standard deviation, σ , and median, C_0 , of the observed and modelled concentrations.

Figure 8 shows C_0 and σ for the observations, global model results and the reconstructions as a function of D_v . Fits to the observed CO distribution give values of 128.1 ppbv for C_0 , and 15.1 ppbv for σ . It can be seen that, even with assimilation, LMDz-INCA underestimates the median CO concentration (116.2 ppbv) as well as the standard deviation (4.3 ppbv). In the reconstructed results, C_0 is only weakly sensitive (130 to 134 ppbv) to variations in D_v when D_v is below $1 \text{ m}^2\text{s}^{-1}$. C_0 is lower when higher D_v 's are used, i.e. 108 ppbv at $D_v=10 \text{ m}^2\text{s}^{-1}$. σ decreases with D_v from 22.7 ppbv for $D_v=0.01 \text{ m}^2\text{s}^{-1}$ to 1.8 ppbv for $D_v=10 \text{ m}^2\text{s}^{-1}$. Also, for moderate values of D_v ($0.001\text{-}1.0 \text{ m}^2\text{s}^{-1}$), changing D_v affects mostly the variability of the reconstructed CO concentrations as given here by changes in σ . The median is only significantly affected by increasing D_v when reconstructed variability is low compared to observed variability, i.e. when D_v is higher than about $1.0 \text{ m}^2\text{s}^{-1}$. Observed C_0 and σ are best reproduced using a D_v of around $0.05 \text{ m}^2\text{s}^{-1}$ although values within a range of 0.01 to $0.2 \text{ m}^2\text{s}^{-1}$ are also close to the observations. Thus, the observed CO distribution is best reconstructed with diffusion coefficients of this order.

Previous estimates by Pissó et al. (2009) estimated D_v between 0.35 and $2.7 \text{ m}^2\text{s}^{-1}$ which is significantly higher than the values estimated for the case presented here. Pissó et al. (2009) reconstructed CO in the core of an intense Alaskan biomass burning plume transported across the North Atlantic. In that case, the meteorolog-

ical situation maintained CO mixing ratios inside the plume so that even several days the plume was still relatively intact. In that case, the best estimation of D_v was based on the integrated CO content inside the plume. However, in the case examined here, more aged pollution was transported into the Arctic where mixing is weaker. Thus, observed CO variability is a better measure with which to constrain and evaluate model simulations and estimates of D_v . Overall, the estimates of D_v provided in this work and Pisso et al. (2009) are only average values over the time period under consideration. In reality, mixing is intermittent, and may have been more prevalent towards the end of the simulation period as suggested by Sodemann et al. (2011). Lagrangian reconstructions of CO mixing ratios observed during the 13 July 2008 DLR Falcon flight show that, although the exact location and magnitude of aged plume filaments cannot be simulated precisely, the CO distribution can be reproduced using a D_v around $0.05 \text{ m}^2\text{s}^{-1}$ ($0.01 - 0.2 \text{ m}^2\text{s}^{-1}$).

The sensitivity of reconstructed CO to the date when parcels were initialized with global model CO (including assimilation) was also investigated. Figure 9 shows reconstructed and observed CO on 13 July from simulations initialized on 12 July (1 day transport), 9 July (4 days) and 4 July (9 days). A D_v of $0.05 \text{ m}^2\text{s}^{-1}$ was used in all the runs. Reconstructions performed over 1 day lead to reconstructed CO similar to the interpolated global model results on 13 July (grey line). On 12 July, the polluted plume is too diluted in the global model and 1-day simulations are not long enough to generate any variability in the reconstructed CO concentrations. Reconstructions initialized 4 days before on 9 July (green line, Figure 10) also produce an underestimation in CO concentrations. This is somewhat unexpected since there is good agreement between the global model and in-situ observations on this date (Figure 5 a and d). Simulated CO (Figure 4 b and e) shows significant differences in the plume position on 9 July between the runs with and without assimilation. The model results without assimilation show a long plume extending from the northern Pacific Ocean to the North Pole, whereas results including assimilation have a more coherent larger plume north of Greenland and Canada with higher concentrations due to enhanced columns assimilated earlier over Asia, as noted already. The parcel locations used to initialize the reconstructions on 9 July (Figure 10) show a

strong influence from northern Alaska in the region where there is strong advection and wind shear where global model CO is low. Most of the parcels were therefore
 405 initialized in regions outside the main plume core. The underestimation of CO in reconstructions initialized on 9 July (Figure 10, a, green line) can therefore be explained by initial CO concentrations which originate from regions with low CO. These results also suggest that the Lagrangian transport (and that in the ECMWF analyses) from Asia to the region of the flight on the 13 July may be too slow up
 410 to the 9 July because the initial parcel locations are found north of Alaska whereas the plume was already north of Greenland. This is also confirmed by the global model simulations run without IASI assimilation which also include nudging with ECMWF winds. This is "corrected" in the run with IASI assimilation. Overall, it can be seen that the Lagrangian reconstructions are sensitive to initialization date
 415 and that they work best for longer integrations starting from regions with large well defined plumes such as over major emission regions.

5.3 Diffusion and model resolution

Pisso et al. (2009) used the Smagorinski closure to estimate global model resolutions needed so that the numerical diffusion is equivalent to estimations of diffu-
 420 sivity from Lagrangian reconstructions. The relation between spatial and temporal resolution is given by equation 2 (Smagorinski, 1963);

$$\Delta x = \sqrt{D\Delta t \left(K + \frac{1}{2} k^2 \lambda \Delta t \right)^{-1}} \quad (2)$$

where, Δx and Δt are the spatial and temporal resolution, D the diffusion coefficient, K a user-defined constant (default value for mesoscale model MM5 is $3 \times$
 425 10^{-3}), k is the von Kalman constant, and λ is the Lyapunov exponent. Using a typical value of 1 day^{-1} for λ , and estimations for D_v and D_h of 1.0 and $10000 \text{ m}^2\text{s}^{-1}$, respectively, Piss0 et al. (2009) estimated that resolutions of at least 40 km horizontally and 500 m vertically would be needed in global models in order to capture the boreal fire plume examined in that study. We also estimated values of D_h (not
 430 shown) and find similar $D_h:D_v$ ratios similar to Piss0 et al. (2009) of around 10000 . Using $D_v=0.05 \text{ m}^2\text{s}^{-1}$ and $D_h=500 \text{ m}^2\text{s}^{-1}$, we estimate that resolutions of at least

10 km horizontally and 200 m vertically are needed to capture transport of aged pollution plume filaments in the Arctic. Our results support the findings of Rastigejev et al. (2010) who suggested that accurate simulation of plume decay requires
435 horizontal resolutions of a few kilometers. They also suggested that, since it is not currently possible to run global models at these resolutions plume in-grid treatments may be an attractive solution (e.g. Cassiani et al. 2010). It is also worth noting that mesoscale simulations at high resolution already include specific parameterizations to treat tracer dispersion. Clearly this is an important issue which warrants further
440 investigation.

6 Conclusions

This study analyzed a case of pollutant plume transport from Asia across the Arctic. Results from a global model, LMDz-INCA, run with and without assimilation of IASI CO column data, were compared to aircraft observations sampling this plume
445 in the Arctic and downwind over Greenland and to results from high resolution Lagrangian CO reconstructions including a stochastic representation of mixing in the free troposphere. The sampled air masses were influenced by filaments from an 8 to 9 day old Asian plume, embedded in cleaner air. The Lagrangian reconstructions of the aircraft CO observations west of Greenland provide a much better representation of the observed CO distribution than results from the global model, even with
450 assimilation. The assimilation process improves agreement with the aircraft observations downwind of sources over the Arctic due to assimilation of more realistic CO columns over Asian emission regions and 2-3 days downwind. However, whilst model runs including assimilation result in higher modelled CO concentrations over
455 Greenland, model variability is still much lower than in the observations. This is partly because no assimilation was carried out north of 75N.

Observed, modelled and reconstructed time series were analysed in terms of their median concentrations and standard deviations. Small-scale CO features are not individually reconstructed, but CO variability can be used to constrain the diffusion
460 coefficient. For the reconstructions, best agreement with the observations was found

using a vertical diffusion coefficient, D_v , of $0.05 \text{ m}^2\text{s}^{-1}$ (range 0.01 to $0.2 \text{ m}^2\text{s}^{-1}$). Larger values have been found in former studies. This is a limitation of Lagrangian reconstruction techniques, which are very sensitive to the ageing of plume. Taking into account intermittent mixing may overcome this difficulty. Reconstructions using very high values of D_v produce distributions similar to the global model. They were used to show that excessive mixing and dilution leads to modification of the source regions in the Lagrangian reconstructions and widely dispersed origins. The effect of numerical diffusion in global model simulations has a similar effect leading to incorrect dispersal of pollutant plumes. This has important implications for source attribution studies using current global models (such as those performed in the frame of HTAP) since we also estimate that, for the case presented here, models need to be run at very high horizontal (10 km) and vertical resolutions (200 m). It is not only that plumes are too diluted which may impact photochemistry, they may also follow incorrect transport pathways. This study has shown that the small-scale variability in pollutant plumes during long-range transport can be reconstructed using such a Lagrangian approach based on low resolution wind fields and at low computational cost. Therefore, methods based on embedded Lagrangian plumes may provide a promising perspective leading to improvement in the simulation of pollutant plume transport in global Eulerian models.

Acknowledgements. A. Auby thanks the French Ministry of Research and Secondary Education for support as part of a joint French/German CNRS/DFG project INTAS (SPELL OUT). The authors also acknowledge support from POLARCAT-France (ANR, CNES, CNRS-LEFE) and CLIMSLIP-LEFE. POLARCAT GRACE was funded by ???.

References

- 485 Alvarado, M. J., Logan, J. A., Mao, J., Apel, E., Riemer, D., Blake, D., Cohen, R. C., Min, K.-E., Perring, A. E., Browne, E. C., Wooldridge, P. J., Diskin, G. S., Sachse, G. W., Fuelberg, H., Sessions, W. R., Harrigan, D. L., Huey, G., Liao, J., Case-Hanks, A., Jimenez, J. L., Cubison, M. J., Vay, S. A., Weinheimer, A. J., Knapp, D. J., Montzka, D. D., Flocke, F. M., Pollack, I. B., Wennberg, P. O., Kurten, A., Crouse, J., Clair, J. M. S., Wisthaler, A., Mikoviny, T., Yantosca, R. M., Carouge, C. C., and Le Sager, P.: Nitrogen oxides and PAN in plumes from boreal fires during ARCTAS-B and their impact on ozone: an integrated analysis of aircraft and satellite observations, *Atm. Chem. Phys.*, 10, 9739–9760, doi:10.5194/acp-10-9739-2010, <http://www.atmos-chem-phys.net/10/9739/2010/>, 2010.
- 490 Baehr, J., Schlager, H., Ziereis, H., Stock, P., van Velthoven, P., Busen, R., Strom, J., and Schumann, U.: Aircraft observations of NO, NO_y, CO, and O₃ in the upper troposphere from 60 degrees N to 60 degrees S - Interhemispheric differences at midlatitudes, *Geophys. Res. Lett.*, 30, doi:{10.1029/2003GL016935}, 2003.
- 495 Cassiani, M., Vinuesa, J. F., Galmarini, S., and Denby, B.: Stochastic fields method for sub-grid scale emission heterogeneity in mesoscale atmospheric dispersion models, *Atm. Chem. Phys.*, 10, 267–277, doi:10.5194/acp-10-267-2010, <http://www.atmos-chem-phys.net/10/267/2010/>, 2010.
- 500 Clerbaux, C., Boynard, A., Clarisse, L., George, M., Hadji-Lazaro, J., Herbin, H., Hurtmans, D., Pommier, M., Razavi, A., Turquety, S., Wespes, C., and Coheur, P. F.: Monitoring of atmospheric composition using the thermal infrared IASI/MetOp sounder, *Atm. Chem. Phys.*, 9, 6041–6054, 2009.
- 505 Colette, A. and Ancellet, G.: Variability of the tropospheric mixing and of streamer formation and their impact on the lifetime of observed ozone layers, *Geophys. Res. Lett.*, 33, doi:{10.1029/2006GL025793}, 2006.
- 510 Fisher, J. A., Jacob, D. J., Purdy, M. T., Kopacz, M., Le Sager, P., Carouge, C., Holmes, C. D., Yantosca, R. M., Batchelor, R. L., Strong, K., Diskin, G. S., Fuelberg, H. E., Holloway, J. S., Hyer, E. J., McMillan, W. W., Warner, J., Streets, D. G., Zhang, Q., Wang, Y., and Wu, S.: Source attribution and interannual variability of Arctic pollution in spring constrained by aircraft (ARCTAS, ARCPAC) and satellite (AIRS) observations of carbon monoxide, *Atm. Chem. Phys. Discuss.*, 9, 19 035–19 080, doi:10.5194/acpd-9-19035-2009, <http://www.atmos-chem-phys-discuss.net/9/19035/2009/>, 2009.
- 515

- Folberth, G. A., Hauglustaine, D. A., Lathiere, J., and Brocheton, F.: Interactive chemistry in the Laboratoire de Meteorologie Dynamique general circulation model: model description and impact analysis of biogenic hydrocarbons on tropospheric chemistry, *Atm. Chem. Phys.*, 6, 2273–2319, 2006.
- 520 Granier, C., Bessagnet, B., Bond, T., D'Angiola, A., Denier van der Gon, H., Frost, G., Heil, A., Kaiser, J., Kinne, S., Klimont, Z., Kloster, S., Lamarque, J.-F., Liousse, C., Masui, T., Meleux, F., Mieville, A., Ohara, T., Raut, J.-C., Riahi, K., Schultz, M., Smith, S., Thompson, A., van Aardenne, J., van der Werf, G., and van Vuuren, D.: Evolution of anthropogenic and biomass burning emissions of air pollutants at global and regional
- 525 scales during the 1980–2010 period, *Climatic Change*, 109, 163–190, <http://dx.doi.org/10.1007/s10584-011-0154-1>, 2011.
- HTAP: Hemispheric Transport of Air Pollution, Tech. rep., United Nations, 2010.
- Jacob, D. J., Crawford, J. H., Maring, H., Clarke, A. D., Dibb, J. E., Emmons, L. K., Ferrare, R. A., Hostetler, C. A., Russell, P. B., Singh, H. B., Thompson, A. M., Shaw, G. E.,
- 530 McCauley, E., Pederson, J. R., and Fisher, J. A.: The Arctic Research of the Composition of the Troposphere from Aircraft and Satellites (ARCTAS) mission: design, execution, and first results, *Atm. Chem. Phys.*, 10, 5191–5212, doi:10.5194/acp-10-5191-2010, <http://www.atmos-chem-phys.net/10/5191/2010/>, 2010.
- Klonecki, A., Pommier, M., Clerbaux, C., Ancellet, G., Cammas, J.-P., Coheur, P.-F., Co-
- 535 zic, A., Diskin, G. S., Hadji-Lazarou, J., Hauglustaine, D. A., Hurtmans, D., Khattatov, B., Lamarque, J.-F., Law, K. S., Nedelec, P., Paris, J.-D., Podolske, J.-R., Prunet, P., Schlager, H., Szopa, S., and Turquety, S.: Assimilation of IASI satellite CO fields into a global chemistry transport model for validation against aircraft measurements, *Atm. Chem. Phys. Disc.*, 2011.
- 540 Koch, D., Bauer, S. E., Del Genio, A., Faluvegi, G., McConnell, J. R., Menon, S., Miller, R. L., Rind, D., Ruedy, R., Schmidt, G. A., and Shindell, D.: Coupled Aerosol-Chemistry-Climate Twentieth-Century Transient Model Investigation: Trends in Short-Lived Species and Climate Responses, *Journal of Climate*, 24, 2693–2714, doi: {10.1175/2011JCLI3582.1}, 2011.
- 545 Lamarque, J. F., Bond, T. C., Eyring, V., Granier, C., Heil, A., Klimont, Z., Lee, D., Liousse, C., Mieville, A., Owen, B., Schultz, M. G., Shindell, D., Smith, S. J., Stehfest, E., Van Aardenne, J., Cooper, O. R., Kainuma, M., Mahowald, N., McConnell, J. R., Naik, V., Riahi, K., and van Vuuren, D. P.: Historical (1850–2000) gridded anthropogenic and

- biomass burning emissions of reactive gases and aerosols: methodology and application,
550 *Atm. Chem. Phys.*, 10, 7017–7039, doi:{10.5194/acp-10-7017-2010}, 2010.
- Legras, B., Joseph, B., and Lefevre, F.: Vertical diffusivity in the lower stratosphere from
Lagrangian back-trajectory reconstructions of ozone profiles, *J. Geophys. Res.*, 108, doi:
{10.1029/2002JD003045}, 2003.
- Methven, J. and Hoskins, B.: The advection of high-resolution tracers by low-resolution
555 winds, *J. Atmos. Sci.*, 56, 3262–3285, doi:{10.1175/1520-0469(1999)056<3262:
TAOHRT>2.0.CO;2}, 1999.
- Methven, J., Arnold, S., O’Connor, F., Barjat, H., Dewey, K., Kent, J., and Brough, N.:
Estimating photochemically produced ozone throughout a domain using flight data and
a Lagrangian model, *J. Geophys. Res.*, 108, doi:{10.1029/2002JD002955}, 2003.
- 560 Newell, R., Thouret, V., Cho, J., Stoller, P., Marenco, A., and Smit, H.: Ubiquity of quasi-
horizontal layers in the troposphere, *Nature*, 398, 316–319, 1999.
- Pisso, I., Real, E., Law, K. S., Legras, B., Bousserez, N., Attie, J. L., and Schlager,
H.: Estimation of mixing in the troposphere from Lagrangian trace gas reconstruc-
tions during long-range pollution plume transport, *J. Geophys. Res.*, 114, doi:{10.1029/
565 2008JD011289}, 2009.
- Pommier, M., Law, K. S., Clerbaux, C., Turquety, S., Hurtmans, D., Hadji-Lazaro, J.,
Coheur, P-F., Schlager, H., Ancellet, G., Paris, J.-D., Nedelec, P., Diskin, G. S.,
Podolske, J. R., Holloway, J. S., and Bernath, P.: IASI carbon monoxide val-
idation over the Arctic during POLARCAT spring and summer campaigns, *Atm.*
570 *Chem. Phys. Disc.*, 10, 14 445–14 494, doi:10.5194/acpd-10-14445-2010, [http://www.
atmos-chem-phys-discuss.net/10/14445/2010/](http://www.atmos-chem-phys-discuss.net/10/14445/2010/), 2010.
- Prather, M. J., Zhua, X., Strahan, S. E., Steenrod, S. D., and Rodriguez, J. M.: Quanti-
fying errors in trace species transport modeling, *Proceedings of the National Academy
of Sciences of the United States of America*, 105, 19 617–19 621, doi:{10.1073/pnas.
575 0806541106}, 2008.
- Rastigejev, Y., Park, R., Brenner, M. P., and Jacob, D. J.: Resolving intercontinental pol-
lution plumes in global models of atmospheric transport, *J. Geophys. Res.*, 115, doi:
{10.1029/2009JD012568}, 2010.
- Real, E., Pisso, I., Law, K. S., Legras, B., Bousserez, N., Schlager, H., Roiger, A., and
580 Attie, J. L.: Toward a novel high-resolution modeling approach for the study of chemical
evolution of pollutant plumes during long-range transport, *J. Geophys. Res.*, 115, doi:

{10.1029/2009JD011707}, 2010.

- Roiger, A., Schlager, H., Schäfler, A., Huntrieser, H., Scheibe, M., Aufmhoff, H.,
Cooper, O. R., Sodemann, H., Stohl, A., Burkhart, J., Lazzara, M., Schiller, C., Law,
585 K. S., and Arnold, F.: In-situ observation of Asian pollution transported into the Arctic lowermost stratosphere, *Atm. Chem. Phys. Discuss.*, 11, 16 265–16 310, doi:10.5194/acpd-11-16265-2011, <http://www.atmos-chem-phys-discuss.net/11/16265/2011/>, 2011.
- Sachse, G. W., Hill, G. F., Wade, L. O., and Perry, M. G.: Fast-response, high-precision carbon-monoxide sensor using a tunable diode-laser absorption technique, *J. Geophys. Res.*, 92, 2071–2081, doi:{10.1029/JD092iD02p02071}, 1987.
- Shindell, D. T., Chin, M., Dentener, F., Doherty, R. M., Faluvegi, G., Fiore, A. M., Hess, P., Koch, D. M., MacKenzie, I. A., Sanderson, M. G., Schultz, M. G., Schulz, M., Stevenson, D. S., Teich, H., Textor, C., Wild, O., Bergmann, D. J., Bey, I., Bian, H., Cuvelier, C.,
595 Duncan, B. N., Folberth, G., Horowitz, L. W., Jonson, J., Kaminski, J. W., Marmer, E., Park, R., Pringle, K. J., Schroeder, S., Szopa, S., Takemura, T., Zeng, G., Keating, T. J., and Zuber, A.: A multi-model assessment of pollution transport to the Arctic, *Atm. Chem. Phys.*, 8, 5353–5372, 2008.
- Smagorinski, I.: General circulation experiments with the primitive equations. I. The basic experiment, *Mon. Weather Rev.*, 91(3), 99–163, 1963.
- 600 Sodemann, H., Pommier, M., Arnold, S. R., Monks, S. A., Stebel, K., Burkhart, J. F., Hair, J. W., Diskin, G. S., Clerbaux, C., Coheur, P.-F., Hurtmans, D., Schlager, H., Blechschmidt, A.-M., Kristjánsson, J. E., and Stohl, A.: Episodes of cross-polar transport in the Arctic troposphere during July 2008 as seen from models, satellite, and aircraft observations, *Atm. Chem. Phys.*, 11, 3631–3651, doi:10.5194/acp-11-3631-2011,
605 <http://www.atmos-chem-phys.net/11/3631/2011/>, 2011.
- Stohl, A.: Characteristics of atmospheric transport into the Arctic troposphere, *J. Geophys. Res.*, 111, doi:{10.1029/2005JD006888}, 2006.
- Stohl, A., Forster, C., Frank, A., Seibert, P., and Wotawa, G.: Technical note: The Lagrangian particle dispersion model FLEXPART version 6.2, *Atm. Chem. Phys.*, 5, 2461–
610 2474, 2005.
- Tan, D., Haynes, P., MacKenzie, A., and Pyle, J.: Effects of fluid-dynamical stirring and mixing on the deactivation of stratospheric chlorine, *J. Geophys. Res.*, 103, 1585–1605, 1998.
- Tilmes, S., Emmons, L. K., Law, K. S., Ancellet, G., Schlager, H., Paris, J.-D., Fu-

615 elberg, H. E., Streets, D. G., Wiedinmyer, C., Diskin, G. S., Kondo, Y., Holloway,
J., Schwarz, J. P., Spackman, J. R., Campos, T., Nédélec, P., and Panchenko, M. V.:
Source contributions to Northern Hemisphere CO and black carbon during spring and
summer 2008 from POLARCAT and START08/preHIPPO observations and MOZART-
4, *Atm. Chem. Phys. Disc.*, 11, 5935–5983, doi:10.5194/acpd-11-5935-2011, [http:](http://www.atmos-chem-phys-discuss.net/11/5935/2011/)
620 [//www.atmos-chem-phys-discuss.net/11/5935/2011/](http://www.atmos-chem-phys-discuss.net/11/5935/2011/), 2011.

van der Werf, G. R., Randerson, J. T., Giglio, L., Collatz, G. J., Kasibhatla, P. S., and
Arellano, Jr., A. F.: Interannual variability in global biomass burning emissions from
1997 to 2004, *Atm. Chem. Phys.*, 6, 3423–3441, 2006.

Wild, O. and Prather, M. J.: Global tropospheric ozone modeling: Quantifying errors due
625 to grid resolution, *J. Geophys. Res.*, 111, doi:{10.1029/2005JD006605}, 2006.

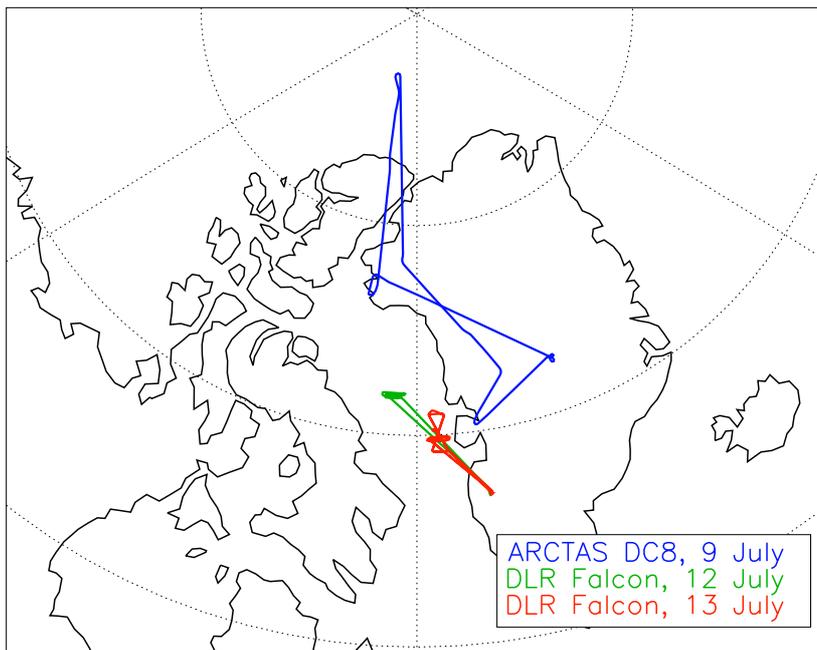


Fig. 1. Map showing location where the flights discussed in this paper took place as part of NASA ARCTAS-B and POLARCAT-GRACE with the NASA DC-8 (9 July 2008) and DLR Falcon (12, 13 July 2008), respectively, as part of POLARCAT-IPY. See text for details.

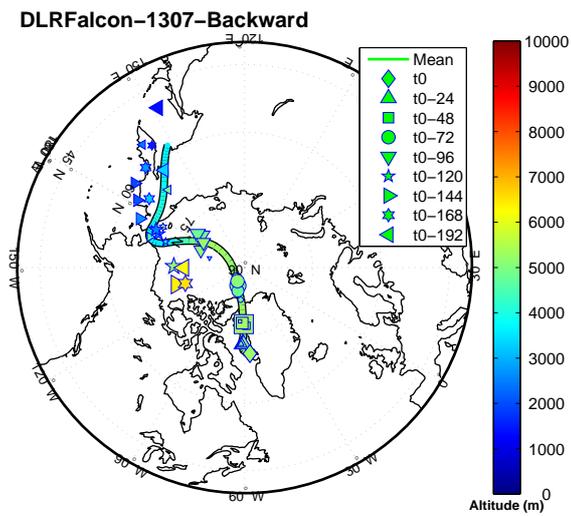


Fig. 2. Results from 9 day backward FLEXPART simulations starting along DLR Falcon flight at 14 UT (Universal Time) on 13 July 2008. The solid line shows the average trajectory, colored with altitude, and the symbols show cluster positions every 24h back from the starting points, also colored with altitude.

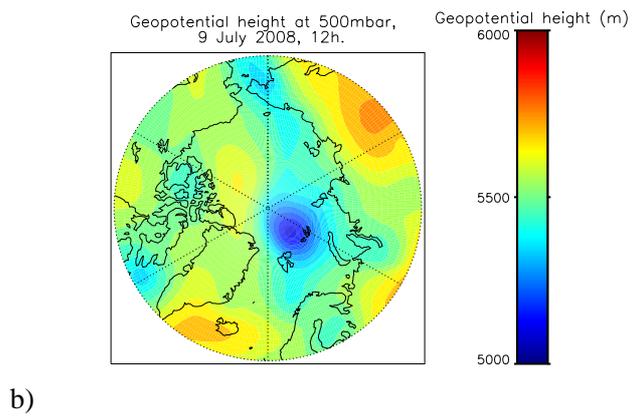
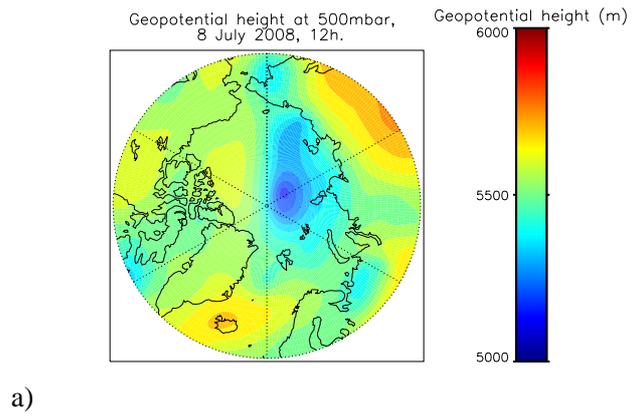


Fig. 3. Geopotential height from ECMWF reanalyses on 8 July (a) and 9 July (b) at 500 hPa.

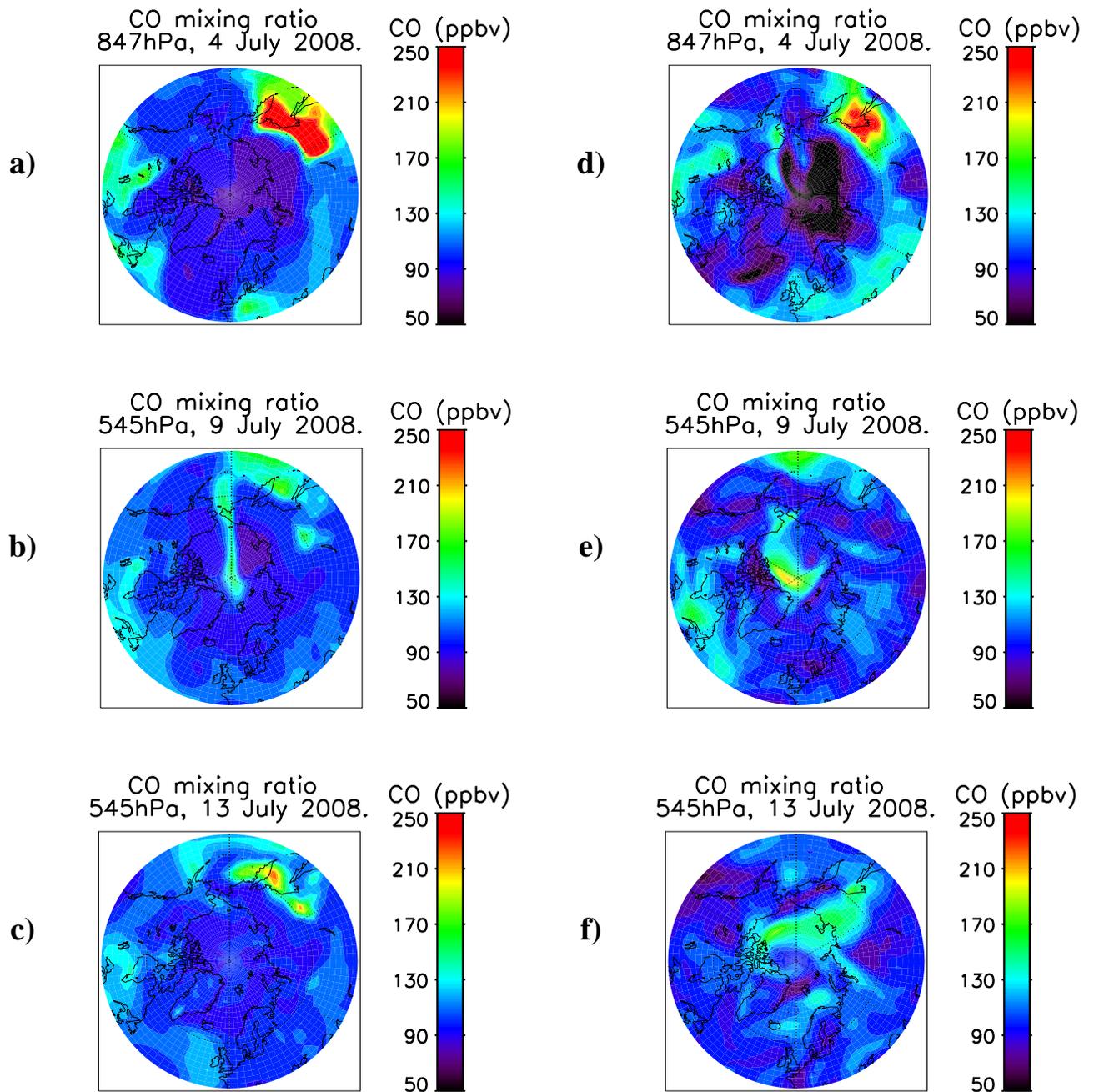


Fig. 4. CO volume mixing ratios (ppbv) from LMDz-INCA without (left) and with (right) assimilated IASI CO total columns on 4 July at 847 hPa (a,d), 9 July at 545 hPa (b,e) and 13 July at 545 hPa (c,f).

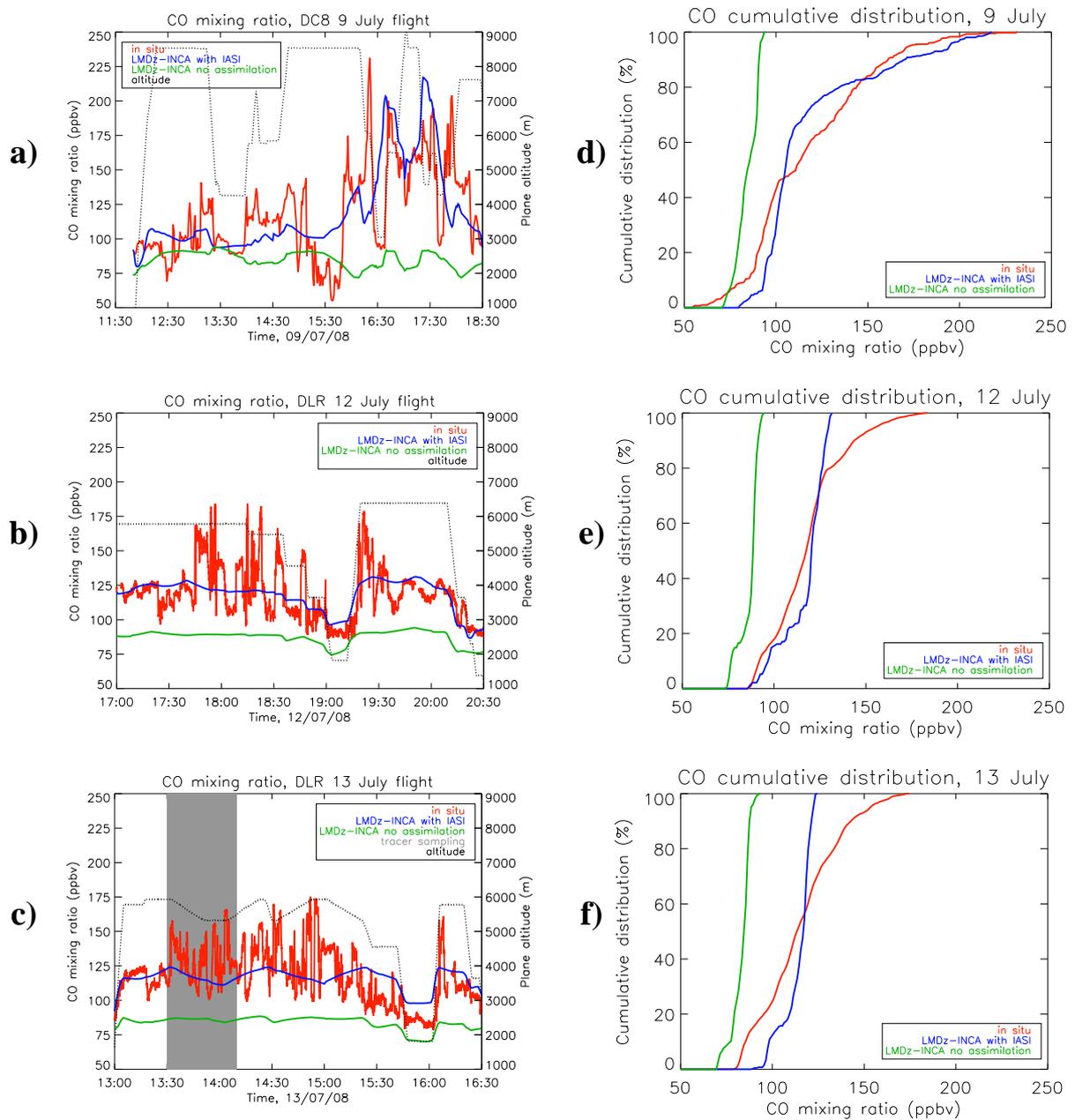


Fig. 5. a, b and c: Observed and simulated CO volume mixing ratios (ppbv) along flights of the NASA DC-8 on 9 July (a) and DLR Falcon on 12 July (b) and 13 July (c). Model results are shown with and without assimilation of IASI CO data. See text for details. **d, e and f:** Model versus observed CO cumulative frequency distributions for flights on 9 July (d), 12 July (e) and 13 July (f).

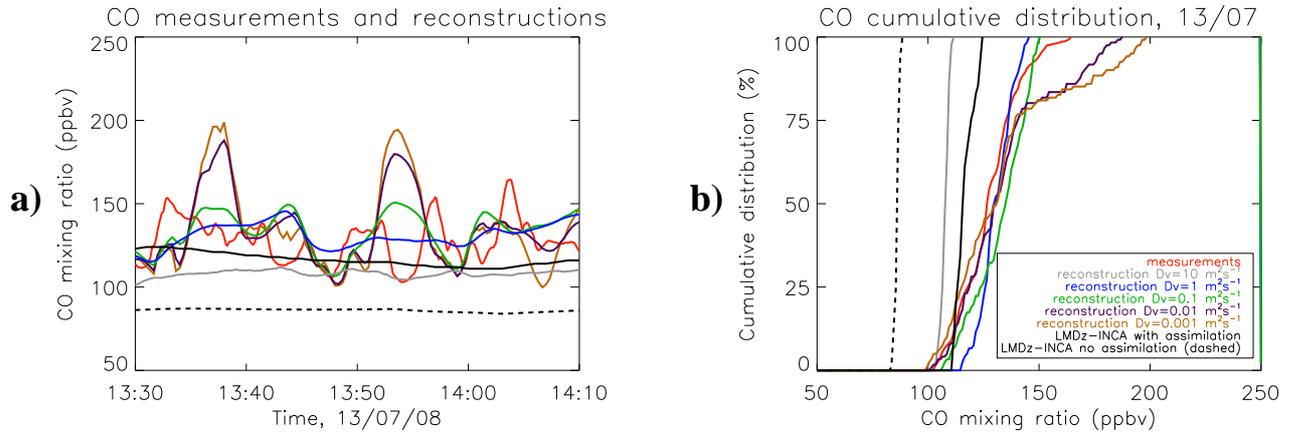


Fig. 6. **a)** Observed, reconstructed, and modelled (with/without assimilation) CO concentrations (ppbv) along DLR Falcon flight on 13 July. Reconstructed results are shown for different vertical diffusion coefficients, D_v . All time series are 1-minute averages. See text for details. **b)** Cumulative CO concentration frequency distributions for time series shown in (a).

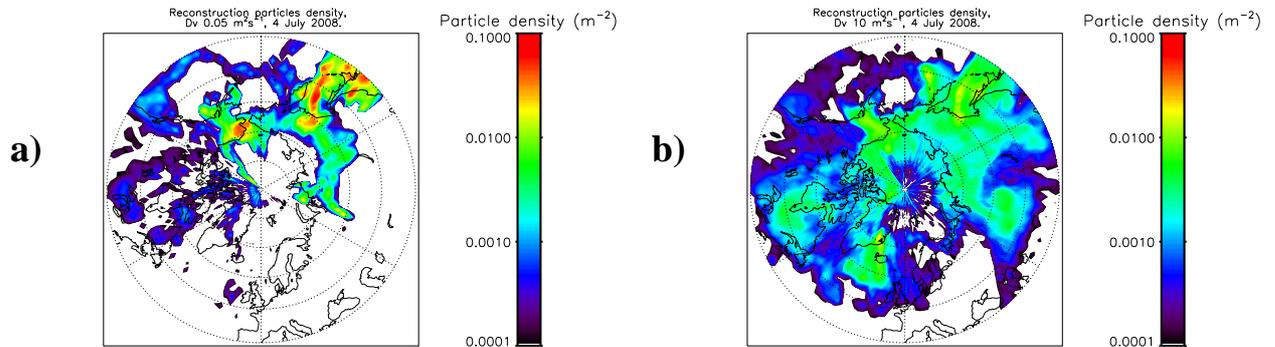


Fig. 7. Particle density maps over all altitudes (particles m^{-2}) for 4 July using $D_v=0.05 \text{ m}^2\text{s}^{-1}$ (a), and $D_v=10 \text{ m}^2\text{s}^{-1}$ (b).

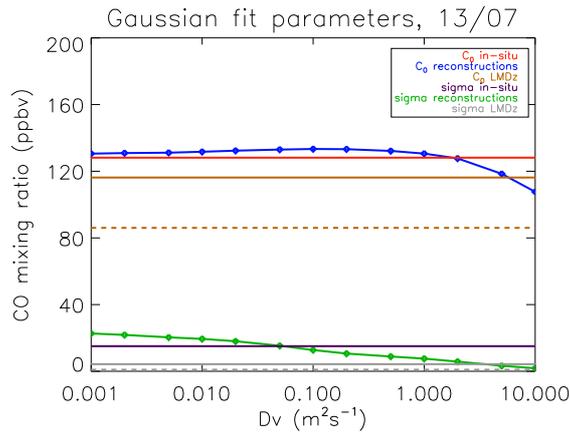


Fig. 8. Observed, reconstructed and global model median CO concentrations, C_0 , and standard deviations, σ , from the CO distributions as a function of the vertical diffusion coefficient, D_v , used for reconstructions. Results from the global model, LMDz-INCA, are shown for runs with (solid lines) and without (dashed) IASI CO assimilation. See text for details.

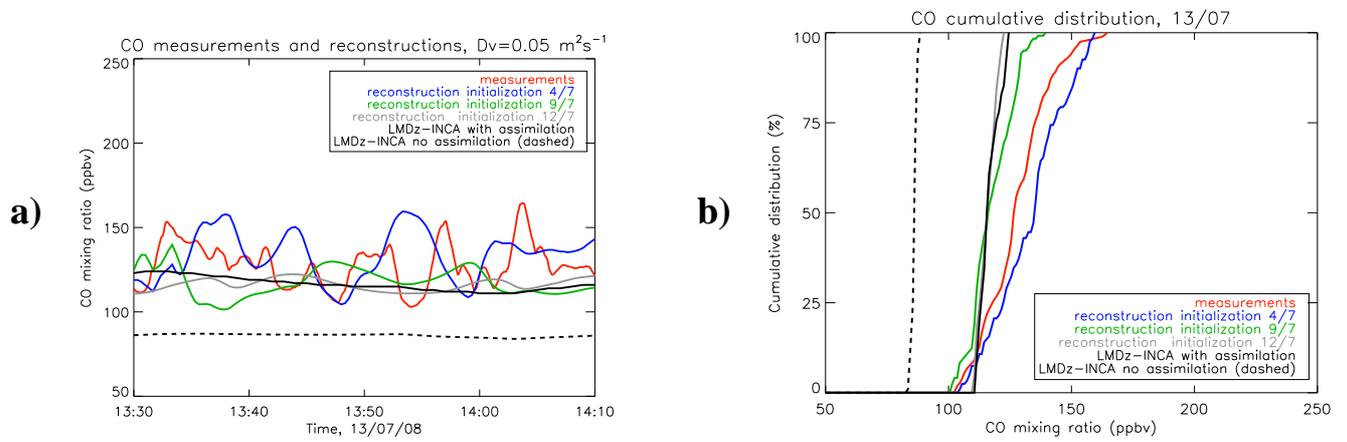


Fig. 9. a) Observed, reconstructed, and modelled (with/without assimilation) CO concentrations (ppbv) on 13 July based on parcels initialized on 4, 9 and 12 July. All time series are 1-minute averages. **b)** Cumulative CO frequency distributions for time series shown in (a).

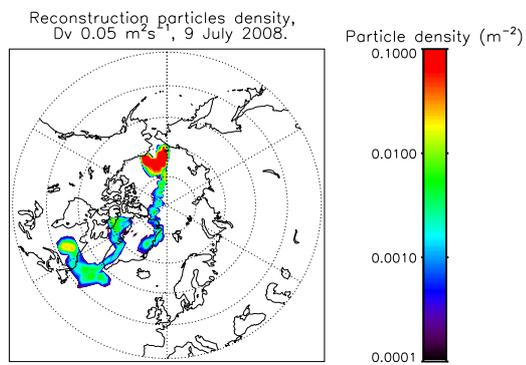


Fig. 10. Parcel densities over all altitudes (parcels m⁻²) for reconstructions on 9 July using Dv=0.05 m²s⁻¹.

Chapitre 5

Étude de la dispersion d'un panache artificiel dans la troposphère arctique

5.1 Introduction

Le chapitre précédent a permis d'estimer l'intensité du mélange dans la troposphère libre à l'aide de reconstructions d'un évènement de transport d'un panache pollué à travers l'Arctique.

Le panache étudié était âgé et nettement filamenté. Les observations de CO présentaient une forte variabilité, avec de nombreux pics de concentration entourés de masses d'air moins polluées. Les reconstructions effectuées sur ces observations ont permis de reproduire la distribution des concentrations en CO le long du vol et d'estimer un coefficient de diffusion vertical entre 0.01 et 0.2 m²s⁻¹.

Dans ce chapitre, on s'intéresse au transport d'un panache de traceur artificiel, inerte chimiquement injecté directement dans la troposphère libre, dans les mêmes masses d'air que celles sur lesquelles portaient les reconstructions présentées dans le chapitre précédent. Ce traceur était présent dans l'atmosphère en concentrations négligeables devant les quantités injectées, la structure initiale du panache de traceur et les concentrations de fond sont donc connues. Les observations de traceur lors de cette expérience auront nécessairement un lien lagrangien avec l'injection artificielle, et, en l'absence de perte chimique, les concentrations observées n'auront été influencées que par les processus dynamiques.

Cette étude permettra de compléter l'estimation des coefficients de diffusion donnée dans le chapitre précédent. En effet, le traceur a été injecté au

sein des filaments du panache asiatique et les mesures de sa concentration se font sur le même segment de vol que celui sur lequel on a pratiqué les reconstructions de CO (voir chapitre 4). Contrairement au panache asiatique, le traceur artificiel est quasi-exclusivement issu d'une source unique dont on connaît bien les caractéristiques (position, temps, débit d'injection), ce qui permet d'étudier une structure bien identifiée par rapport à son environnement. De plus, le transport du traceur se fait sur un temps relativement faible (environ 20 heures) et sur une distance d'une centaine de kilomètres, on doit utiliser des modèles à haute résolution pour en étudier la dispersion et le mélange.

L'objectif principal de l'étude est de fournir une estimation du coefficient de diffusion qu'on pourra comparer à celle obtenue en reconstruisant les filaments du panache asiatique. Il est donc nécessaire de faire appel à une méthodologie aussi proche que possible de celle discutée dans le chapitre 4. Toutefois, on ne dispose pas du champ initial de concentrations nécessaire aux reconstructions lagrangiennes. On a donc construit un schéma de croissance gaussienne afin de simuler la dispersion du panache artificiel à partir des données d'injection. Ce schéma permet également d'étudier l'évolution des structures formant le panache de traceur et leur sensibilité au coefficient de diffusion. Il complète ainsi les observations effectuées lors du vol d'échantillonnage, à basse résolution, en les situant dans une représentation à trois dimensions du panache artificiel.

Ce cas est enfin favorable pour évaluer la représentation des structures de petite échelle dans la troposphère libre par les modèles lagrangiens : en effet, le panache de traceur était d'une taille proche de celle des filaments du panache asiatique, et on dispose d'informations précises sur la structure du panache initial et sur les quantités injectées.

Dans ce chapitre, on présentera tout d'abord l'expérience d'injection de traceur étudiée, PERTRAS (PERfluorocarbon TRAcEr System), effectuée lors de la campagne POLARCAT-GRACE par le DLR. La section suivante sera consacrée à la simulation de la dispersion du traceur, avec tout d'abord une description de la méthodologie utilisée, puis une présentation des structures formant le panache simulé. On discutera ensuite de l'influence de l'intensité de la diffusion sur les concentrations simulées, dans le but de donner une estimation du coefficient de diffusion. Pour contraindre ce paramètre avec les observations, on utilisera la concentration en traceur intégrée le long du vol d'échantillonnage, en prenant en compte la sensibilité de cette grandeur à des erreurs sur la position du panache simulé. Enfin, on comparera les résultats obtenus par croissance gaussienne aux reconstructions lagrangiennes.

5.2 L'expérience PERTRAS

5.2.1 Contexte scientifique

Une expérience d'injection de traceur consiste à marquer une masse d'air à l'aide d'un traceur artificiel dans le but de pouvoir l'identifier, et donc d'étudier son transport. En général, on utilise des composés inertes chimiquement qu'on trouve en faibles quantités dans l'atmosphère (c'est-à-dire en concentrations négligeables devant les quantités injectées). Observer des concentrations en traceur se détachant nettement des niveaux de fond est alors le signe que les masses d'air étudiées sont influencées par celles où il a été injecté. De plus, l'évolution de ces concentrations est uniquement due aux processus dynamiques, en raison de l'absence d'autres émissions.

Des expériences de traceur furent pratiquées dès les années 1980, avec des projets comme CAPTEX (Cross-Appalachian Tracer EXperiment, 1983, Ferber et al. (1986)). Cette expérience a permis d'étudier la dispersion d'un traceur de type perfluorocarbure à l'échelle régionale, autour des Appalaches au Nord-Est des Etats-Unis. Sept injections du traceur furent effectuées au niveau du sol à des dates différentes, et des mesures de concentration furent pratiquées à l'aide d'un important réseau de stations au sol (86) et à l'aide d'avions de recherche. Cette expérience a mis en évidence des chemins de transport des polluants au Nord-Est des États-Unis, une région riche en sources de pollution. Elle montra également la variabilité de ces chemins ainsi que de l'intensité de la dispersion des panaches. Les données collectées furent également utilisées pour évaluer et améliorer les modèles de transport de polluants à l'échelle régionale.

On peut également citer, à la même époque, l'expérience ACURATE (Atlantic Coast Unique Regional Atmospheric Tracer Experiment, 1982, Heffter et al. 1984), focalisée sur l'étude du transport le long de la côte est des Etats-Unis. Cette expérience fut menée sur une durée de 19 mois (de mars 1982 à septembre 1983) ce qui est favorable à l'étude de la variabilité du transport dans la région. Le traceur utilisé était le Krypton 85, injecté sur le site de la Savannah River Plant en Caroline du Sud (USA) et fut échantillonné par 5 stations de mesure situées de 300 à 1050 km en aval du site d'émission. Ses concentrations de fond ne pouvaient pas être négligées devant les quantités de traceur injectées et sont de plus très variables. La borne supérieure de ces concentrations de fond fut estimée à environ 19 pCi/m^3 , en se basant sur les distributions temporelles des concentrations observées. L'impact du traceur injecté sur les observations put ainsi être mise en évidence, ce qui permit de mieux comprendre la vitesse de propagation du panache de traceur, mais aussi le temps d'exposition à ce panache au niveau du sol. Cette étude permit

d'évaluer les impacts éventuels d'un accident industriel dans cette région sur les populations y résidant.

En Europe, l'expérience ETEX (European Tracer EXperiment, Van Dop et al., 1998) fut menée en 1994 pour tester l'efficacité des systèmes d'alerte en cas d'émission et de transport à longue distance de quantités massives de polluants, comme cela avait été le cas lors de l'incident de Tchernobyl. Deux traceurs furent injectés au Nord-Est de la France au niveau du sol, puis leurs concentrations furent échantillonnées par un réseau de stations réparties sur la moitié Nord de l'Europe, ainsi qu'à l'aide d'avions de recherche. ETEX mit en évidence la capacité de nombreux modèles eulériens et lagrangiens à simuler de façon satisfaisante la dispersion d'un panache de polluants en cas d'incident industriel majeur, mais aussi le besoin de perfectionner la représentation par les modèles de la dispersion à méso-échelle dans la basse troposphère, qui s'est avérée avoir une grande importance dans la dispersion du panache (Van Dop et al., 1998).

Dans ces cas, l'injection du traceur avait été faite au niveau du sol, et la dispersion des panaches était donc principalement due aux flux turbulents dans la couche limite. Pour focaliser ce type d'expérience sur l'évolution des panaches de polluants durant le transport dans la troposphère libre, il est nécessaire de s'affranchir des processus de soulèvement des polluants hors de la couche limite.

5.2.2 Déroulement de l'expérience PERTRAS et mesures effectuées

L'expérience PERTRAS (PERfluorocarbon TRAcEr System) (Schlager et al., in prep) fut menée en juillet 2008 au-dessus du Groenland par le DLR lors de la campagne POLARCAT. Deux panaches de traceur passif furent injectés dans la troposphère libre et rééchantillonnés un à deux jours plus tard. On se focalise ici sur la première partie de PERTRAS, à savoir le vol d'injection du 12 juillet et le vol d'échantillonnage du 13 juillet, les mesures effectuées pendant la suite de l'expérience n'étant pas exploitables.

Il s'agit de la première expérience d'injection de traceur dont à la fois l'injection du traceur et son échantillonnage aient été effectués dans la troposphère libre. Son objectif premier était donc de démontrer la faisabilité d'une telle expérience, en établissant à l'aide du traceur le lien lagrangien entre les vols d'injection et d'échantillonnage. Le second objectif de l'expérience est d'utiliser les données récoltées afin d'étudier la dispersion du panache de

traceur, et plus particulièrement l'évolution de son extension spatiale, caractéristique de l'intensité du mélange pendant le transport.

Les traceurs utilisés sont des perfluorocarbures, le perfluoro-méthyl-cyclohexane, C_7F_{14} et le perfluoro-méthyl-cyclopentane, C_6F_{12} . Leurs niveaux de fond ($10^{-2} - 10^{-3}$ pptv) sont négligeables devant les quantités injectées et ils sont peu réactifs chimiquement (avec des temps de vie de plusieurs millénaires); les concentrations échantillonnées peuvent donc être considérées à l'échelle de quelques jours comme n'étant que le fruit du transport et de la dispersion des panaches de traceurs injectés lors de cette expérience.

Les mesures de concentration de ces traceurs ne pouvant pas être faites directement dans l'avion, des échantillons furent alors prélevés à l'aide de tubes à adsorption, puis transmis au Brookhaven National Laboratory (États-Unis). Les quantités de traceur dans chaque échantillon furent ensuite mesurées par chromatographie en phase gazeuse.

Choix des plans de vol

Afin de caractériser la diffusion des polluants atmosphériques pendant le transport à longue distance, le traceur fut injecté au sein d'un panache de pollution existant. Il s'agit du panache asiatique filamenté dont la dispersion est étudiée dans le chapitre précédent, et dont le transport à travers l'Arctique est décrit par Sodemann et al. (2011) et Auby et al. (2011).

Le plan de vol pour la premier d'injection, le 12 juillet, fut défini à partir de prévisions par le modèle FLEXPART des concentrations en CO issu de feux de biomasse dans le panache asiatique à l'aide de prévisions météorologiques produites par l'ECMWF. Une carte du panache simulée ainsi est présentée sur la figure 5.1, avec une coupe verticale du champ de CO à l'ouest du Groenland. Elles montrent une signature importante du CO issu d'émissions anthropiques en Asie et de feux de biomasse sibériens là où le traceur a été injecté, entre $-62^\circ W$ et $-65^\circ W$, à une altitude de 5 à 6 km.

Le plan du premier vol déchantillonnage, le 13 juillet, fut également choisi à l'aide de simulations par le modèle FLEXPART de la position du panache de traceur, effectuées par Harald Sodemann en quasi-temps réel durant la campagne. La figure 5.2 montre l'étendue du panache simulé ainsi, juste après l'injection (12 juillet 18h UTC, carte de gauche), et pendant le vol d'échantillonnage (13 juillet 15h UTC, carte de droite). Ce dernier contient quatre passages au travers du panache de traceur prévu, se coupant en son centre.

En plus des prévisions du modèle FLEXPART, un modèle de diffusion de panache à deux dimensions (Schumann et al., 1995; Schlager et al., 1997) fut

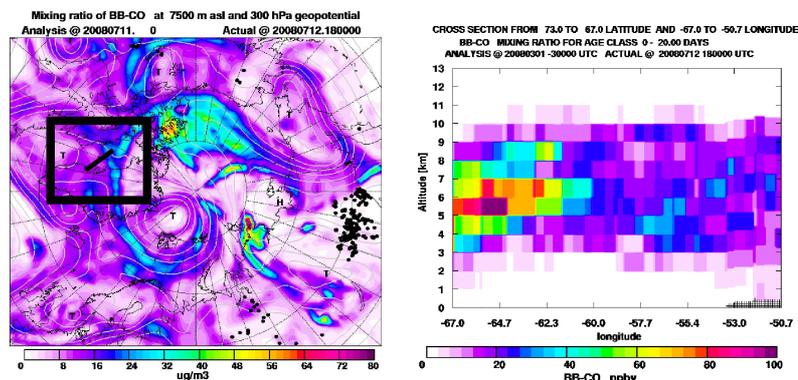


FIGURE 5.1 – Prédiction par le modèle FLEXPART de la distribution du CO issu de feux de biomasse en Arctique le 12 juillet 2008 à 18h UTC. La carte de gauche indique le rapport de mélange à 7.5 km d'altitude et la figure de droite est une coupe verticale du champ de CO à l'Ouest du Groenland. Le rectangle noir indique la zone où a eu lieu l'expérience PERTRAS, et les points noirs indiquent la localisation des feux boréaux. (Source : A. Stohl, NILU)

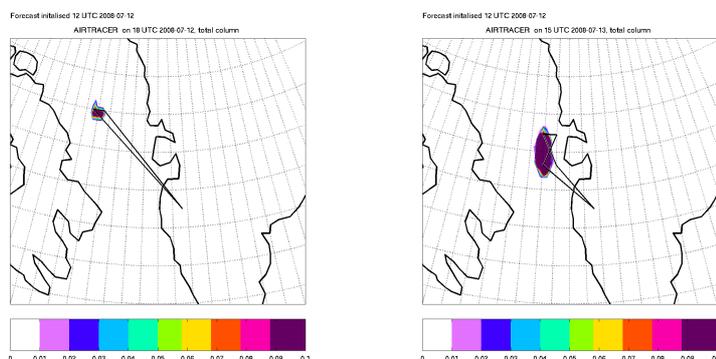


FIGURE 5.2 – Position du panache traceur prévue par le modèle FLEXPART le 12 juillet 2008 à 18h UTC (gauche) et le 13 juillet à 15h UTC (droite). Les plans des vols d'injection et d'échantillonnage sont indiqués par des traits noirs. (Source : H. Sodemann, NILU)

utilisé afin de préparer le vol d'échantillonnage. L'injection du traceur ayant été faite le long de quatre segments de vol, ce modèle fut utilisé pour calculer le moment où les nuages de traceur issus des quatre segments se joindraient afin que le panache artificiel soit continu, et ainsi pour maximiser les chances

de l'intercepter. L'échantillonnage fut ainsi effectué environ 20 heures après l'injection.

Mesures du traceur inerte

La figure 5.3 montre les plans de vol des 12 et 13 juillet du DLR Falcon, les segments d'injection et d'échantillonnage des plan de vol respectifs sont indiqués en rouge. Le traceur a été injecté dans une zone géographique réduite (environ deux degrés de longitude sur moins d'un demi degré de latitude), le long de 4 segments de vol entre 5 et 6 km d'altitude. L'injection du traceur perfluorocarbure (PFC) fut effectuée à un débit constant de 500 mL/s, pendant environ 26 minutes.

Le 13 juillet, l'échantillonnage du PFC fut effectué en plusieurs profils traversant la position prévue par FLEXPART du centre du panache de traceur. Les mesures effectuées indiquent deux masses d'air significativement enrichies en PFC, indiquées par les marques "A" et "B" sur la figure 5.3.

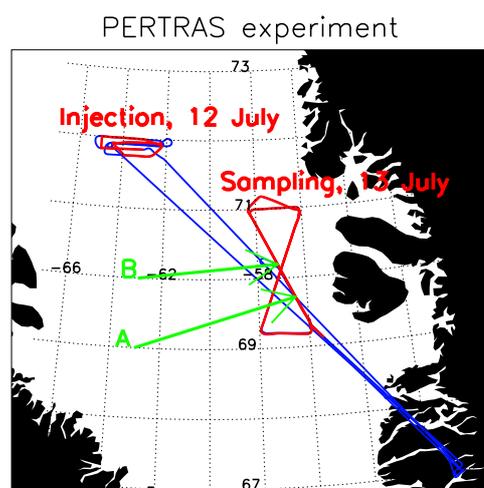


FIGURE 5.3 – Plans de vol des vols du 12 et du 13 juillet du DLR Falcon (bleu). Les sections d'injection et d'échantillonnage du traceur sont indiquées en rouge. Les marques A et B correspondent aux localisations où ont été prélevés les deux échantillons les plus riches en traceur.

La figure 5.4a situe ces segments dans les mesures de CO le long du vol du 12 juillet. Comme on a pu le voir dans le chapitre précédent, des filaments issus du panache asiatique furent transportés au-dessus du Groenland. C'est

pour cette raison que les mesures de CO le long du vol du 12 juillet montrent une variabilité importante, avec des structures fines. Bien que le traceur ait été injecté dans des masses d'air généralement riches en CO, elles ne sont pas associées à un panache bien identifié, mais à un ensemble de filaments distribués dans la troposphère libre au dessus du Groenland.

Le vol d'échantillonnage du 13 juillet était centré sur la position moyenne prévue du panache de traceur, en le croisant plusieurs fois comme on peut le voir sur la figure 5.3. Les mesures de concentration en traceur disponibles sont présentées avec les mesures de CO le long du vol sur la figure 5.4b, on y retrouve la forte variabilité dans les concentrations en CO caractéristiques d'un panache âgé.

Pour mesurer les concentrations en traceur, des échantillons d'air furent prélevés, puis expédiés après la campagne en laboratoire. Ceci limite la résolution temporelle des mesures en raison du nombre des échantillons et du temps de prélèvement de chacun, elle varie ici de 73 à 114 secondes. La vitesse de l'avion étant d'environ 185 m s^{-1} lors de l'échantillonnage, les observations sont des moyennes sur 13 à 21 km.

L'incertitude sur ces observations provient de trois facteurs : la mesure du nombre de molécules de traceur dans chaque échantillon, le flot d'air dans le système de prélèvement ainsi que le temps de prélèvement. L'incertitude totale sur les mesures est estimée à $\pm 25\%$ (H. Schlager, communication personnelle).

Les mesures de concentrations en traceur le 13 juillet sont présentées sur la figure 5.5, elles indiquent deux échantillons à plus d'1 pptv prélevés à 13h38 et 13h44, entourées de valeurs plus faibles. Ces deux échantillons, notés A et B sur les figures 5.4b et 5.3, sont proches de la position prévue par FLEXPART du centre du panache de traceur.

5.3 Simulation de la dispersion du traceur à l'aide d'un schéma de panache gaussien

L'objectif principal de la présente étude est d'étudier la dispersion du panache de traceur, afin d'estimer l'intensité du mélange dans la troposphère libre sous la forme d'un coefficient de diffusion. Afin de contraindre ce coefficient, on doit compléter les observations par une représentation à trois dimensions des structures formant le panache et de leur évolution durant le transport.

Un schéma de dispersion de panache basé sur un schéma de croissance gaussienne a ainsi été développé afin de simuler les concentrations en traceur

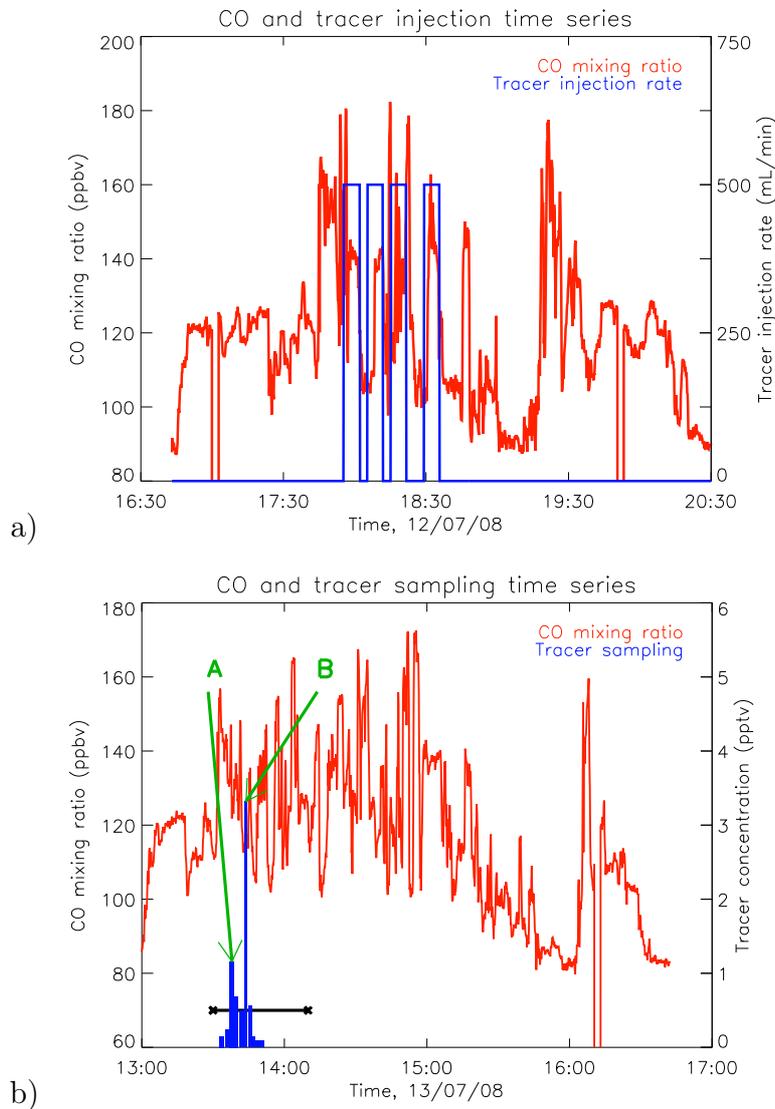


FIGURE 5.4 – **a** : Séries temporelles des mesures de CO le long du vol du 12 juillet du DLR Falcon, avec la position des segments d’injection du traceur. **b** : Idem pour le 13 juillet avec les mesures de concentrations en traceur. Les marques A et B correspondent aux deux échantillons les plus riches en traceur, et le trait noir indique la partie du vol sur laquelle ont été calculées les reconstructions présentées dans le chapitre 4.

durant le transport, calculant l’advection du point de vue lagrangien. On dispose de cette façon d’une représentation à trois dimensions des concen-

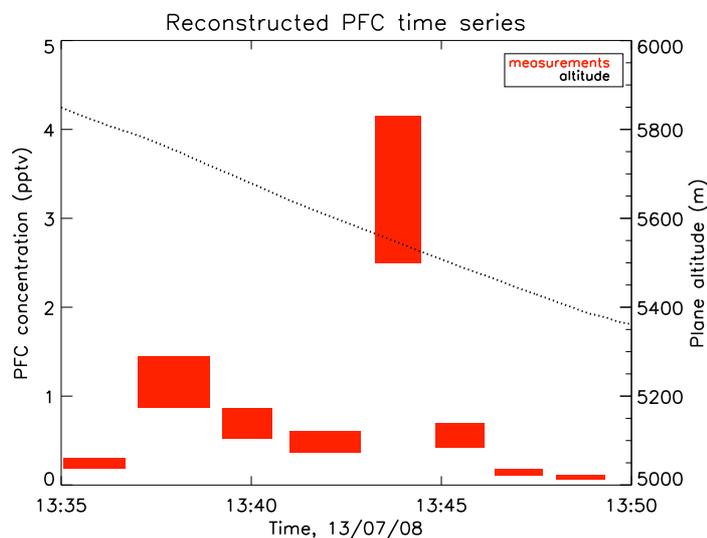


FIGURE 5.5 – Série temporelle des mesures de traceur PFC effectuées le 13 juillet par le DLR Falcon dans le cadre de l’expérience PERTRAS. Les mesures sont présentées sous forme de rectangles dont la largeur correspond à la durée de prélèvement de l’échantillon, et la hauteur aux incertitudes de mesure. L’altitude de l’avion est indiquée par les pointillés noirs.

trations en traceur, prenant bien en compte l’advection différentielle et peu affectée par la diffusion numérique.

Le champ de concentration ainsi simulé est également utilisé pour reconstruire les concentrations en traceur le long du vol en utilisant la méthode de ?, comme dans le chapitre 4, afin d’estimer l’intensité de la dilution subie par le panache de traceur.

5.3.1 Méthodologie utilisée

Le 12 juillet, le traceur fut injecté dans l’atmosphère le long de quatre segments du plan de vol, indiqués sur la figure 5.3, d’environ 70 km de long, à un débit constant de 500 mL/min. On négligera ici les variations de ce débit au moment de l’ouverture et de la fermeture des vannes, c’est-à-dire au début et à la fin de chaque segment.

Pour simuler le panache de traceur, on choisit tout d’abord de séparer le panache de traceur en fragments aussi petits que possible (étape 1, figure 5.6). Le plan de vol fut ainsi séparé en intervalles d’une seconde (correspondant aux données de positions disponibles les mieux résolues), de l’ordre de 200m

de long, chacun chargé de 8.3 mL de traceur (on obtient 1583 intervalles, pour une quantité de traceur totale injectée d'environ $4.7 \cdot 10^{-2}$ moles).

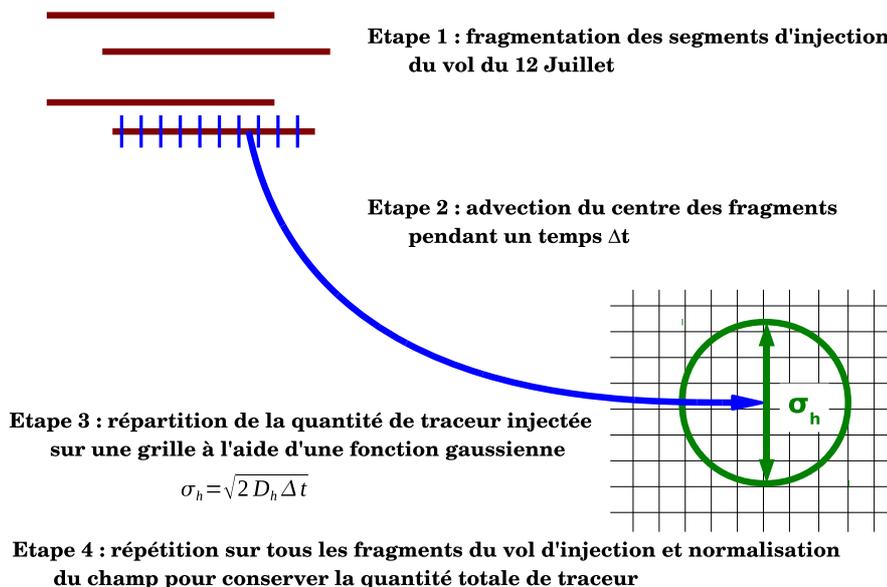


FIGURE 5.6 – Schéma de panache gaussien utilisé pour simuler les concentrations en traceur pendant le transport.

Chacun de ces fragments est supposé suffisamment petit pour être advecté de façon quasi-uniforme. On calcule la trajectoire du centre de chacun de ces fragments à l'aide du modèle FLEXPART (utilisant des données météorologiques issues de réanalyses de l'ECMWF avec une résolution spatiale de 0.5°). Ces trajectoires sont calculées depuis l'injection du traceur jusqu'aux échéances auxquelles le champ de concentrations sera calculé, c'est-à-dire au bout de 4, 10, 19.5 et 20 heures (étape 2, figure 5.6).

La distribution des molécules de traceur dans ces fragments de panache est modélisée par une fonction gaussienne dont la largeur, σ , est donnée par la loi de Fick appliquée au mouvement brownien, à un temps écoulé, Δt , depuis l'injection, en utilisant un coefficient de diffusion, D :

$$\sigma(\Delta t) = \sqrt{2D\Delta t} \quad (5.1)$$

Deux valeurs de σ sont utilisées pour représenter la diffusion horizontale (σ_h , fonction de Dh) et la diffusion verticale (σ_v , fonction de Dv).

Les paramétrisations de panaches gaussiens qui peuvent être utilisées pour traiter les émissions dans les modèles eulériens font en général la transition entre traitement lagrangien et eulérien quand la taille du panache est de l'ordre de la résolution de la grille ou quand il est suffisamment dilué pour ne plus se différencier significativement des niveaux de fond (Korsakissok and Mallet, 2010).

Dans le cadre de la présente étude, l'advection du traceur se fait de façon lagrangienne pendant tout le transport et chaque fragment de panache est advecté uniformément autour de la trajectoire de son centroïde. On ignore donc l'advection différentielle à l'intérieur du fragment et la déformation du panache qu'elle induit.

La seule information dont on dispose sur la variabilité du vent pendant le transport vient des champs de vents analysés produits par l'ECWMF. On fait ici l'hypothèse qu'on peut advecter uniformément les fragments de panache tant qu'ils sont de taille inférieure à la résolution du champ de vent, en l'occurrence 0.5° , ce qui en latitude correspond à environ 50 km. Methven and Hoskins (1999) ont montré qu'il est possible de générer des structures fines dans l'atmosphère à partir des champs de vents à basse résolution, mais cet effet sera ici négligé en raison du faible temps de transport du traceur (moins d'une journée).

Au bout de 20 heures de transport, la largeur caractéristique d'un fragment de panache, σ_h , est de 12 km pour un coefficient de diffusion horizontal (Dh) de $10^3 \text{ m}^2\text{s}^{-1}$ (on verra plus tard que cette valeur est compatible avec l'estimation du coefficient de diffusion obtenue lors de cette étude). Les fragments de panache sont donc plus petits que la résolution du champ.

Il est important de noter que la taille des fragments pourrait dépasser la résolution du champ au bout de quelques jours si on voulait simuler le transport du traceur sur une période plus longue, σ_h étant proportionnel à $\sqrt{\Delta t}$. Il faudrait alors prendre en compte la variabilité du vent à l'intérieur de ces fragments, par exemple en les scindant quand σ atteint la résolution du champ de vent.

On répartit ensuite le contenu de chaque fragment du panache dans une grille suffisamment grande pour qu'on puisse considérer que la totalité du traceur injecté y est contenue, de résolution $0.05^\circ \times 0.075^\circ \times 12.5\text{m}$ (latitude \times longitude \times altitude, 200 mailles dans chaque dimension) en utilisant la fonction 5.1, pour obtenir l'expression 5.2 donnant la quantité de traceur, C_1 (sans dimension), dans chaque maille (étape 3, figure 5.6).

$$C_1(x, y, z) = \sum_{i=1}^N e^{-\frac{(x-x_i)^2+(y-y_i)^2}{2\sigma_H} - \frac{(z-z_i)^2}{2\sigma_V}} \quad (5.2)$$

Deux valeurs distinctes sont utilisées pour la largeur des fonctions gaussiennes : σ_H est l'écart-type horizontal de la distribution des molécules de traceur, et σ_V l'écart-type vertical.

Comme vu dans le chapitre précédent, les coefficients de diffusion horizontaux et verticaux prennent des valeurs très différentes dans l'atmosphère. Mais ils sont issus du même processus physique et ne sont donc pas indépendants. Il est toutefois nécessaire de disposer de deux coefficients pour simuler la dispersion du panache. On choisit ici d'appliquer un ratio D_h/D_v constant de 10000, en accord avec les résultats obtenus lors des reconstructions des concentrations en CO le long du vol du 13 juillet. Cette valeur est compatible avec les estimations de Pisso et al. (2009).

Le champ fut calculé avec des valeurs de D_v allant de 0.01 à 10 m²s⁻¹, correspondant à des valeurs de D_h de 10² à 10⁵ m²s⁻¹.

La totalité du traceur injectée se trouvant dans le domaine couvert par la grille, on peut normaliser la concentration en PFC puis la multiplier par nombre total de moles injectées n_{PMCP} (75 mol), en connaissant de la résolution du champ $\delta x \delta y \delta z$ (0.075° x 0.05° x 12.5m) et de la densité de l'air $\rho_{air}(x, y, z)$ (étape 4, figure 5.6) :

$$C(x, y, z) = \frac{n_{PMCP} C_1(x, y, z)}{\rho_{air}(x, y, z) \delta x \delta y \delta z \sum_{x,y,z} C_1(x, y, z)} \quad (5.3)$$

Cette méthodologie d'advection/croissance gaussienne se fait ainsi en quatre étapes, comme illustré par la figure 5.6 :

1. Séparation du panache injecté en fragments les plus petits possibles.
2. Advection lagrangienne des fragments grâce au modèle FLEXPART.
3. Diffusion des fragments sur une grille selon une loi gaussienne de largeur $\sqrt{2D\Delta t}$.
4. Normalisation par la quantité totale de traceur injectée.

5.3.2 Croissance gaussienne du panache de traceur

Cette section présente la simulation de la dispersion du traceur lors de l'expérience PERTRAS, effectuée à l'aide du schéma de panache gaussien

présenté ci-dessus. Le coefficient de diffusion vertical utilisé est $0.1 \text{ m}^2\text{s}^{-1}$, une valeur cohérente avec les résultats de Pisso et al. (2009) et l'estimation obtenue avec les reconstructions du panache asiatique dans le chapitre précédent. La sensibilité de ces résultats au coefficient de diffusion sera explorée dans la section suivante.

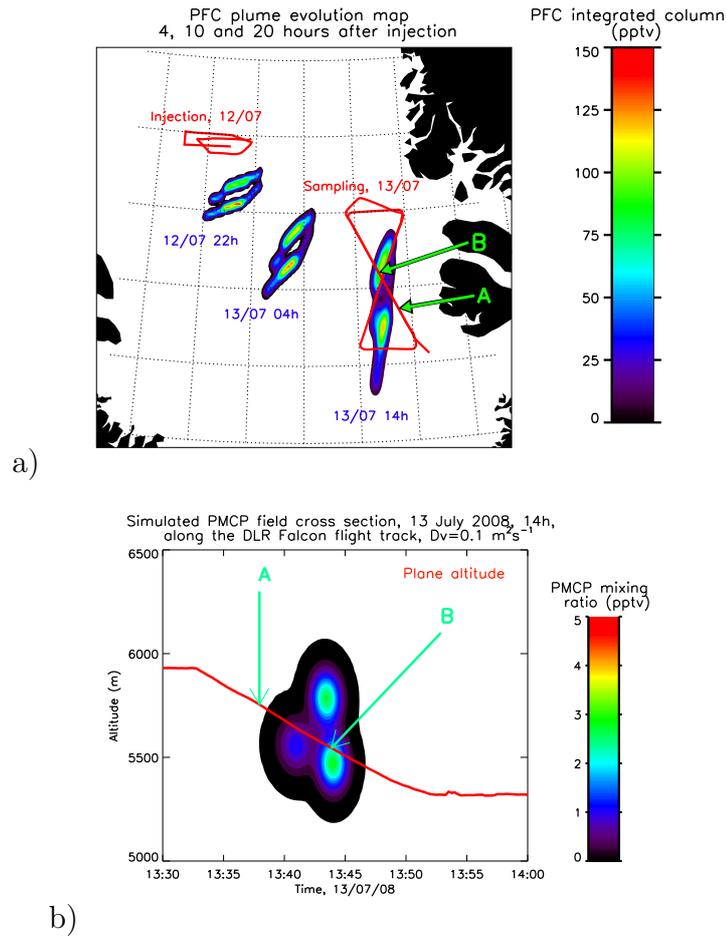


FIGURE 5.7 – **a** : Carte des colonnes de traceur simulé, le 12 juillet à 22h et le 13 juillet à 4h et 14h UTC, avec les traces des vols d'injection et d'échantillonnage (traits rouges). **b** : Coupe verticale du champ de traceur simulé pour le 13 juillet à 14h UTC le long du vol d'échantillonnage. Dans les deux cas, le champ est calculé avec un D_v de $0.1 \text{ m}^2\text{s}^{-1}$ et un D_h de $1000 \text{ m}^2\text{s}^{-1}$.

La carte d'évolution du panache de traceur simulé, figure 5.7a, montre qu'il est advecté vers le sud-est entre l'injection le 12 juillet vers 18h UTC, et

l'échantillonnage le 13 juillet vers 14h UTC. Les deux segments du panache injectés le plus au nord sont advectés séparément de ceux injectés au sud, ce qui induit plus tard deux parties dans le panache.

La figure 5.7b montre la coupe du panache de traceur le long du vol d'échantillonnage. Les structures issues des différents segments d'injection se rejoignent, mais sont toujours bien identifiées.

L'avion traverse le panache de traceur autour de 13h40-13h45 UTC, et les positions où ont été prélevés les deux échantillons riches en traceur (A et B) sont indiquées sur la figure 5.7, comme sur la figure 5.4b. L'échantillon B, contenant plus de 3 pptv de traceur, a été prélevé là où le plan de vol de l'avion traverse une partie du panache simulé concentrée.

A 13h37 UTC, plus d'1 pptv de traceur a été mesuré (échantillon A), mais le panache simulé ne présente des concentrations le long du vol du même ordre que vers 13h41 UTC, comme on peut le voir sur la coupe du champ de concentrations simulé, figure 5.7b. Cette différence peut s'expliquer par des erreurs dans l'advection du panache simulé, 4 minutes de vol correspondant à une distance de quelques dizaines de kilomètres seulement. Cette hypothèse sera étudiée dans la section 5.3.4. De plus, les résultats présentés figure 5.7 ont été obtenus avec une seule valeur de D_v et D_h ; modifier les valeurs de ces paramètres influe fortement sur la structure du panache simulé, comme montré ci-dessous.

5.3.3 Sensibilité au coefficient de diffusion de la série temporelle du PFC le long du vol d'échantillonnage

Le champ de traceur a été calculé avec diverses valeurs du coefficient de diffusion, allant de 0.01 à $10 \text{ m}^2\text{s}^{-1}$ pour D_v (ce qui correspond à des D_h de 100 à $10000 \text{ m}^2\text{s}^{-1}$). Les cartes de colonnes de traceur intégrées et les profils de rapport de mélange autour du vol du 13 juillet permettent de visualiser l'impact de l'intensité de la diffusion sur le champ simulé (figure 5.8).

La carte de colonnes intégrées de PMCP simulée avec une faible diffusion (figure 5.8e, $D_v=0.01 \text{ m}^2\text{s}^{-1}$, $D_h=100 \text{ m}^2\text{s}^{-1}$) montre des structures fines et bien individualisées, issues des différents segments d'injection. Quand on augmente l'intensité de la diffusion, (figure 5.8c, $D_v=0.1 \text{ m}^2\text{s}^{-1}$ et $D_h=1000 \text{ m}^2\text{s}^{-1}$, puis figure 5.8a, $D_v=1 \text{ m}^2\text{s}^{-1}$ $D_h=10000 \text{ m}^2\text{s}^{-1}$) les structures formant le panache s'épaississent et il devient continu, chaque fragment étant diffusé avec une largeur de $\sqrt{2D\Delta t}$.

L'intensité de la diffusion affecte le temps pendant lequel l'avion vole dans des masses d'air riches en traceur, comme le montrent les profils de

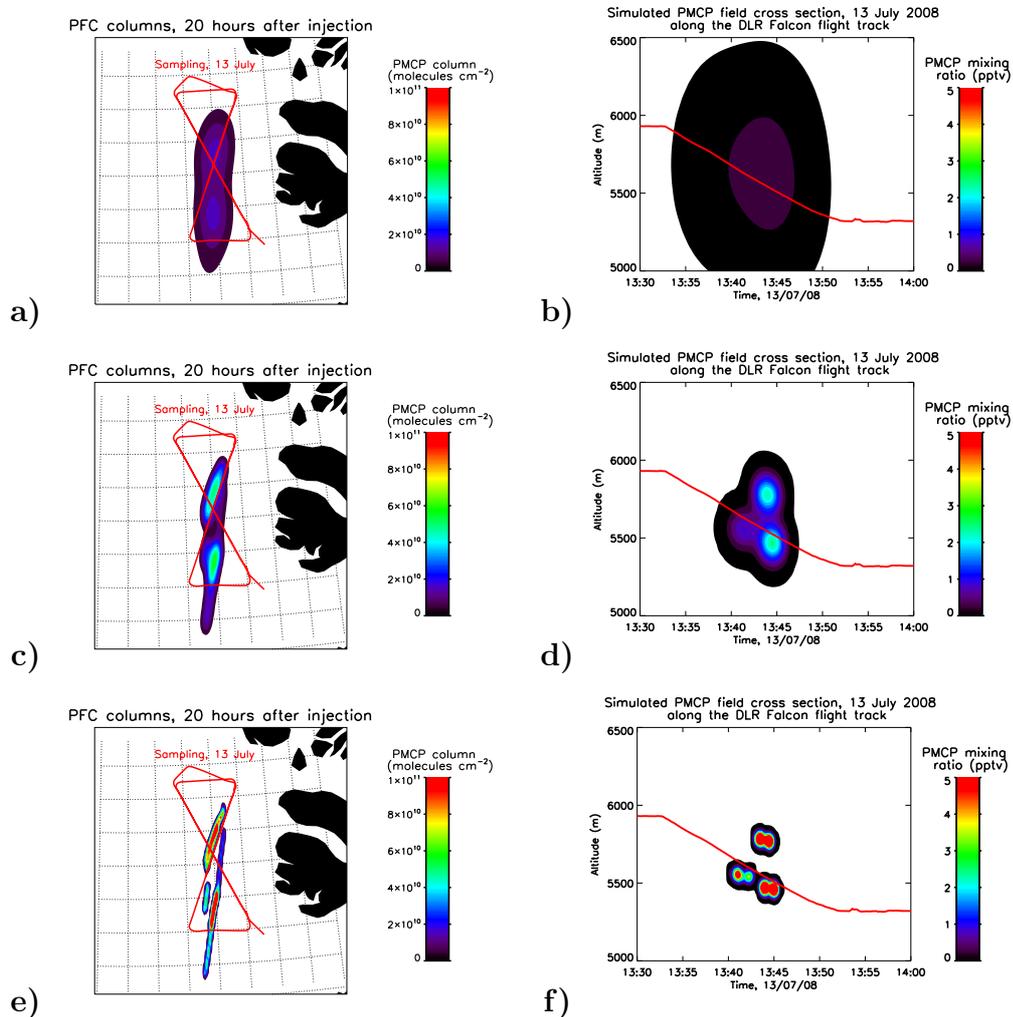


FIGURE 5.8 – Cartes (gauche) et coupes verticales (droite) des champs de traceur simulés pour le 13 juillet à 14h UTC, avec les traces du vol d'échantillonnage (traits rouges). Les simulations ont été effectuées avec des valeurs de D_h et D_v de $10000 / 1 \text{ m}^2\text{s}^{-1}$ (a et b), $1000 / 0.1 \text{ m}^2\text{s}^{-1}$ (c et d) et $1000 / 0.1 \text{ m}^2\text{s}^{-1}$ (e et f).

concentration en traceur simulés autour du vol du 13 juillet, figure 5.8 b, d et f.

Elle affecte également les concentrations en traceur le long du vol, comme on peut le voir sur la figure 5.9. Les structures représentées sont fines pour les coefficients de diffusion faible ($D_v=0.01 \text{ m}^2\text{s}^{-1}$, trait violet, figure 5.9), puis s'épaississent quand on intensifie la diffusion ($D_v=0.1 \text{ m}^2\text{s}^{-1}$, trait vert,

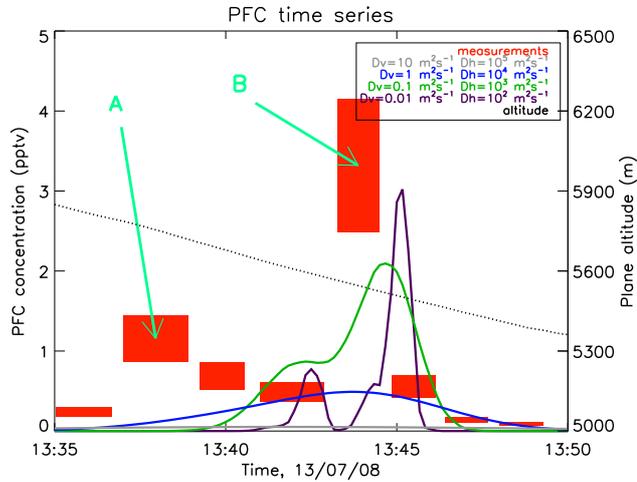


FIGURE 5.9 – Concentrations en PMCP le long du segment d’échantillonnage du vol du 13 juillet du DLR Falcon, observées (rouge, la largeur des rectangles correspond au temps de prélèvement de chaque échantillon, et leur hauteur aux incertitudes de mesure) et simulées avec plusieurs valeurs du coefficient de diffusion (gris, bleu, vert, violet). L’altitude de l’avion est indiquée par le trait pointillé.

figure 5.9) et disparaissent aux fortes diffusions ($D_v=1$ et $10 \text{ m}^2\text{s}^{-1}$, traits bleu et gris, figure 5.9).

Le panache de traceur simulé avec une diffusion élevée, $D_v=1 \text{ m}^2\text{s}^{-1}$ et $D_h=10000 \text{ m}^2\text{s}^{-1}$, est large et peu intense (moins d’1 pptv au coeur du panache, figure 5.8b), et l’avion se trouve dedans pendant tout le segment d’échantillonnage, entre 13h35 et 13h50. Les mesures de concentration en traceur (figure 5.9, rectangles rouge) indiquent la présence de structures plus fines et plus concentrées dans le panache, la diffusion utilisée ici est donc trop intense. Dans ce cas, l’incertitude sur la position du panache importe peu, la figure 5.8b indiquant qu’une variation de 200m sur l’altitude de l’avion ne changerait pas significativement les concentrations en traceur rencontrées.

A l’inverse, avec une diffusion faible ($D_v=0.01 \text{ m}^2\text{s}^{-1}$, $D_h=100 \text{ m}^2\text{s}^{-1}$, figure 5.8f), les concentrations au coeur du panache dépassent 5 pptv, et l’avion ne le traverse que pendant 5 minutes environ. La série temporelle des concentrations en traceur simulée (figure 5.9 courbe violette) reproduit bien les concentrations mesurées dans l’échantillon B, mais pas celles de l’échantillon A.

Le résultat est similaire avec une diffusion plus élevée ($D_v=0.1 \text{ m}^2\text{s}^{-1}$, $D_h=1000 \text{ m}^2\text{s}^{-1}$, courbe verte figure 5.9), avec des structures plus étendues spatialement. La différence principale entre les simulations à $D_v=0.1$ et $0.01 \text{ m}^2\text{s}^{-1}$ est qu'aux très faibles diffusions, les parties du panache issues des différents segments d'injection ne se rejoignent pas et l'avion ne vole plus au travers d'un panache unique, mais au milieu de quatre filaments très fins.

La résolution limitée des observations (73-114 secondes, 13-21 km horizontalement) rend difficile l'estimation du coefficient de diffusion à partir des seules séries temporelles des concentrations en traceur. En effet, les concentrations simulées le long du vol sont sensibles à la fois aux variations du coefficient de diffusion et à d'éventuelles erreurs sur la position du panache simulé, particulièrement aux faibles coefficients de diffusion. Le jeu d'observations obtenu lors de l'expérience PERTRAS ne nous permet pas de discriminer ces deux sources d'erreurs dans les concentrations simulées.

Pour estimer les coefficients de diffusion, on fait alors appel à une méthode différente permettant de prendre en compte non seulement la sensibilité des concentrations en traceur simulées à l'intensité de la diffusion, mais aussi l'incertitude sur la position du panache par rapport à l'avion. On ne se base alors pas sur les séries temporelles des concentrations, mais sur la quantité totale de traceur recontrée par l'avion pendant l'échantillonnage, ainsi qu'autour du plan de vol.

5.3.4 Simulation de la quantité de traceur totale le long du vol

La résolution horizontale des champs météorologiques utilisés pour simuler l'advection est de $0.5 \times 0.5^\circ$. Cette résolution est très satisfaisante pour rendre compte du transport à longue distance, et il est difficile d'obtenir des données plus résolues avec un modèle global. Toutefois la taille du panache injecté est proche de la résolution de ces champs et la zone dans laquelle l'expérience a eu lieu est réduite (10° de longitude sur 3° de latitude environ). Des erreurs dans l'advection simulée liées à la résolution du champ de vent pourraient donc fortement affecter la représentation de la dispersion du panache.

Pour tester cette hypothèse, on choisit de s'intéresser à la quantité de traceur recontrée par l'avion le long du segment d'échantillonnage du vol du 13 juillet, intégrée. Cette quantité sera par la suite nommée I_{PFC} (I_{PFC}^{obs} pour les observations, et I_{PFC}^{mod} selon le modèle), en utilisant comme unité le pptv min. Étant donné les faibles variations d'altitude de l'avion (environ 500m),

et donc de la densité de l'air, on choisit d'intégrer les rapports de mélange et non les concentrations volumiques en traceur.

Sensibilité au coefficient de diffusion

La figure 5.10 montre l'évolution de I_{PFC}^{mod} dans le modèle en fonction du coefficient de diffusion utilisé (courbe bleue). Elle présente un maximum pour un D_v de $0.05 \text{ m}^2\text{s}^{-1}$ autour de 7 pptv min et décroît quand on s'éloigne de cette valeur (environ 3 pptv min pour $D_v=0.01 \text{ m}^2\text{s}^{-1}$ et environ 1 ppbv pour $D_v=10 \text{ m}^2\text{s}^{-1}$).

La valeur observée, I_{PFC}^{obs} , (rectangle jaune figure 5.10), vaut entre 4.1 et 6.9 pptv selon les incertitudes de mesure. Cette intervalle est trop large pour permettre d'estimer le coefficient de diffusion à partir du seul I_{PFC} le long du vol.

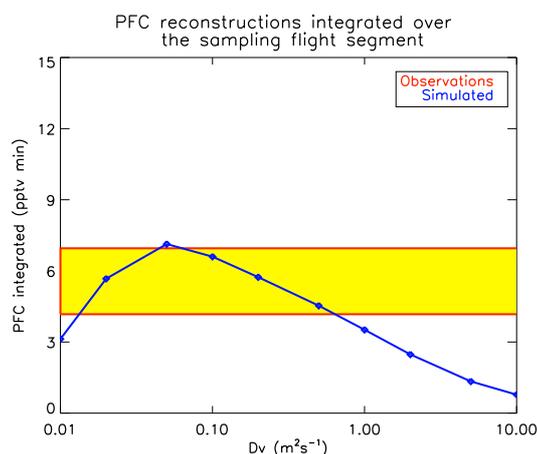


FIGURE 5.10 – Concentrations de PMCP intégrées le long du segment d'échantillonnage du vol du 13 juillet du DLR Falcon, observées (rouge), et simulé en fonction du coefficient de diffusion vertical utilisé pour simuler le panache de traceur (bleu).

La dépendance de I_{PFC}^{mod} selon D_v soulève des interrogations : on peut expliquer facilement sa décroissance quand on augmente D_v , la largeur du panache (en $\sqrt{2D\delta t}$) augmente et le traceur est localement moins concentré. Par contre, avec des valeurs faibles de D_v (comme $0.01 \text{ m}^2\text{s}^{-1}$), le traceur simulé reste concentré, comme on peut le voir sur la figure 5.8e et f, et on pourrait s'attendre à ce que la quantité de traceur reconstruite soit importante, or I_{PFC}^{mod} est de l'ordre de 3 pptv min seulement.

Le faible I_{PFC}^{mod} obtenu avec un Dv de $0.01 \text{ m}^2\text{s}^{-1}$ s'explique par le fait que l'avion n'a pas échantillonné le coeur du panache simulé, ce que laisse penser la coupe du champ de traceur simulé autour du vol (figure 5.8f). I_{PFC} est alors très sensible à la position de l'avion par rapport au panache, et donc aux erreurs sur sa position simulée.

Sensibilité de I_{PFC} aux erreurs d'advection

Cette sensibilité peut être étudiée en modifiant artificiellement la position de l'avion par rapport au panache. Pour ce faire, une erreur systématique Δx est appliquée sur la position horizontale de l'avion le long du segment d'échantillonnage du traceur (cette partie du vol étant un profil, il n'est pas nécessaire de modifier sa position verticalement et horizontalement).

On obtient alors un ensemble de plans de vols virtuels, chacun d'eux étant issu d'une translation du plan de vol d'origine d'une distance Δx dans une direction donnée. Sur chacun de ces plans de vols, on calcule I_{PFC}^{mod} . La valeur moyenne et l'écart-type de I_{PFC}^{mod} sont ensuite calculés pour plusieurs valeurs de Δx (1, 2, 5 et 10 km) et selon le coefficient de diffusion, puis reportés sur la figure 5.11.

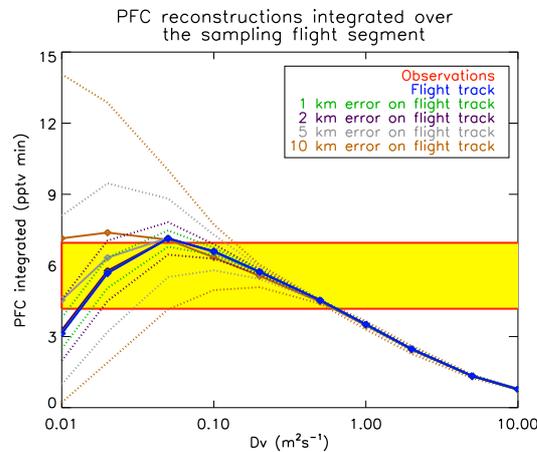


FIGURE 5.11 – Concentrations de PMCP intégrées le long du segment d'échantillonnage du vol du 13 juillet du DLR Falcon, observées (rouge), et simulé en fonction du coefficient de diffusion vertical utilisé pour simuler le panache de traceur (bleu). Les autres courbes indiquent la valeur moyenne (trait plein) et avec écart-type (pointillés) de cette quantité quand on applique une erreur systématique sur la position de l'avion, de 1km (vert), 2km (violet), 5km (gris) ou 10km (orange).

On note que I_{PFC}^{mod} est très peu sensible à des erreurs positionnelles quand Dv est grand (au-dessus de $0.2 \text{ m}^2\text{s}^{-1}$). En effet, le panache est alors étendu et la zone couverte par ces erreurs ne permet pas de sortir du panache, comme vu sur la figure 5.8f. On a vu précédemment que les mesures de traceur ont une résolution spatiale de 13 à 21 km, or le profil de traceur observé de la figure 5.4 montre que la variabilité des concentrations dans le panache se fait au moins à l'échelle de ces observations, voire moins (sinon, on ne pourrait avoir des échantillons de traceur riches aussi proches d'échantillons en contenant très peu). Dans ce cas, on s'attend à ce qu'un déplacement du plan de vol d'une distance de 10 km, proche des échelles typiques de variation des concentrations en traceur observées, affecte I_{PFC} . Les panaches simulés avec des valeurs de Dv supérieures à $0.2 \text{ m}^2\text{s}^{-1}$ ne reproduisent pas cette sensibilité.

Pour des faibles valeurs de Dv , la valeur moyenne de I_{PFC}^{mod} est peu sensible à des erreurs de 1 ou 2 km, mais augmente quand on applique une erreur de 5 ou 10 km. L'avion peut alors voler dans des masses d'air plus riches en traceur, ce qui confirme le fait qu'il n'a pas volé, à l'origine, dans les masses d'air les plus riches en traceur.

Aux faibles valeurs de Dv , les erreurs sur la position de l'avion par rapport au panache posent problème : pour $Dv=0.01 \text{ m}^2\text{s}^{-1}$, une erreur de 1 ou 2 km entraîne un écart-type sur I_{PFC}^{mod} respectivement d'environ 20% et 40%. Ces erreurs sont faibles devant la distance parcourue par le traceur (300 à 400 km) et il est peu probable qu'on puisse simuler le transport du panache avec une telle précision. De plus, on ne peut se baser sur des observations avec une résolution de 13 à 21 km si les concentrations sont sensibles à des déplacements bien plus faibles.

Selon les estimations de Dv présentées dans le chapitre précédent, la valeur $Dv=0.01 \text{ m}^2\text{s}^{-1}$ est sans doute sous-estimée. On supposera donc ici que la très forte sensibilité de I_{PFC}^{mod} aux erreurs de positionnement est liée au fait que la diffusion est trop peu intense et que le panache simulé est alors très fin. On ne peut toutefois pas écarter totalement la possibilité que le mélange soit réellement très faible dans ce cas de transport, mais le cas étudié ici n'est pas adapté pour étudier les très faibles diffusions.

Il est plus vraisemblable que le mélange est d'une intensité comparable à celui du panache asiatique du chapitre précédent, car il s'agit des mêmes masses d'air. Dans cette optique, une valeur de Dv supérieure à $0.02 \text{ m}^2\text{s}^{-1}$ et inférieure à $0.2 \text{ m}^2\text{s}^{-1}$ permettrait à I_{PFC}^{mod} de reproduire sa valeur observée avec une erreur d'environ 5 km, ce qui est plausible pour une simulation de 20 heures de transport.

5.4 Reconstructions lagrangiennes à haute résolution

Comme pour les reconstructions de CO présentées dans le chapitre 4, on dispose maintenant d'un champ initial de concentrations en PFC qui peut être utilisé pour calculer des reconstructions lagrangiennes des mesures de traceur avec la méthode de Legras et al. (2003).

5.4.1 Méthodologie des reconstructions lagrangiennes

Les reconstructions sont calculées le long du vol du 13 juillet du DLR Falcon, entre 13h30 et 15h15, toutes les 10 secondes. Pour chaque point à reconstruire, 2000 retro-trajectoires sont calculées sur 10 heures environ, jusqu'à 4h UTC avec le modèle FLEXPART, utilisant les mêmes données météorologiques que pour l'advection des fragments de panache ci-dessus.

Le 13 juillet à 4h UTC, les concentrations en traceur à l'extrémité des trajectoires sont initialisées à l'aide du champ calculé selon la méthode ci-dessus, puis moyennées pour obtenir la concentration reconstruite le long du vol.

Comme vu précédemment les retro-trajectoires des reconstructions sont calculées en incluant une perturbation stochastique dans le champ de vent, avec une intensité fonction du coefficient de diffusion. Faire varier ce coefficient afin de reconstruire le mieux possible les observations permet d'estimer l'intensité du mélange durant le transport. Comme dans le chapitre 4, on se focalise sur le coefficient de diffusion vertical, avec des valeurs de 0.01 à 10 m^2s^{-1} . Le champ de concentration servant à initialiser les concentrations en traceur est calculé avec le même D_v que celui utilisé pour les trajectoires.

Real et al. (2010) a montré que l'utilisation d'un nombre limité de trajectoires peut générer des erreurs d'origine numérique dans les reconstructions. En effet, le traitement stochastique de la diffusion demande de bien explorer la gamme de perturbations diffusives générées, pour éviter de sur- ou sous-représenter certaines origines des masses d'air. C'est pour cette raison qu'on calcule un grand nombre (2000) de trajectoires pour reconstruire chaque observation.

Les reconstructions sont ainsi calculées en deux phases, pour chaque valeur de D_v :

- Simulation du champ de concentration en traceur le 12 juillet à 4h UTC par croissance gaussienne

- Calcul de 2000 rétrotrajectoires diffusives depuis un point toutes les 10 secondes sur le vol d'échantillonnage du 13 juillet
- Initialisation des trajectoires avec le champ de concentration et moyennage sur les trajectoires pour chaque point reconstruit

5.4.2 Comparaison avec le schéma de panache gaussien

Le chapitre précédent de cette thèse présente une estimation du coefficient de diffusion basée sur des reconstructions des mesures de CO le long du vol du 13 juillet du DLR Falcon. L'avion avait alors volé au travers de filaments issus d'un panache asiatique âgé de 9 jours. Bien que ces filaments ne puissent pas être reconstruits individuellement, on peut reproduire la variabilité du CO le long du vol avec une diffusion verticale entre 0.01 et $0.2 \text{ m}^2\text{s}^{-1}$.

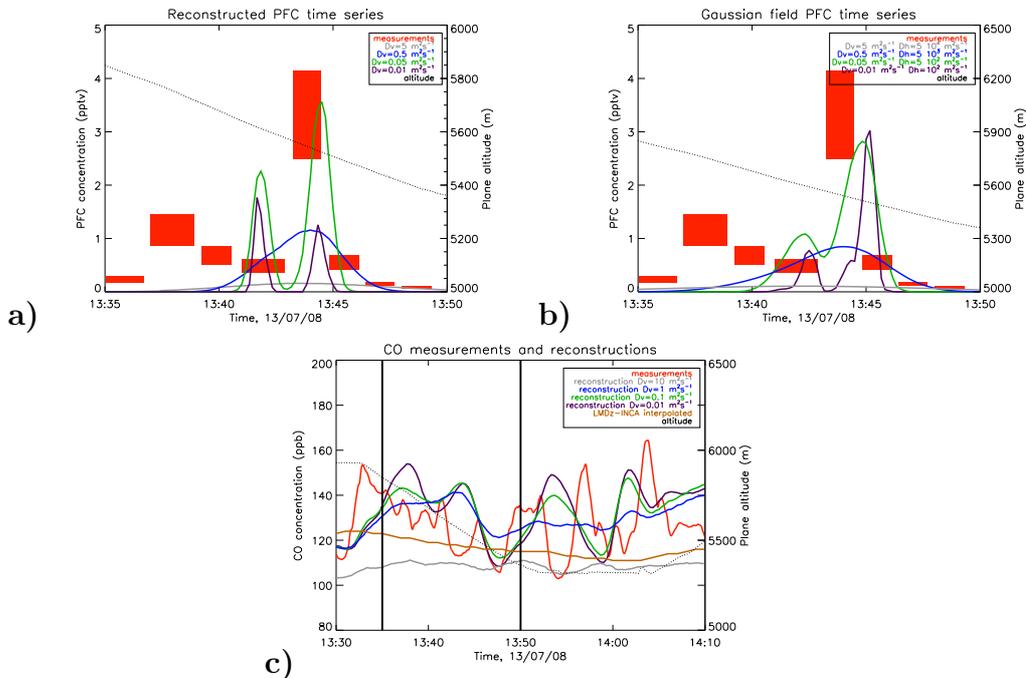


FIGURE 5.12 – Concentrations en PMCP le long du segment d'échantillonnage du vol du 13 juillet du DLR Falcon, observées (rouge) et simulées (a) ou reconstruites (b) avec plusieurs valeurs du coefficient de diffusion. L'altitude de l'avion est indiquée par le trait pointillé. c : Observations et reconstructions de CO le long du même vol (cf chapitre précédent).

Les résultats obtenus dans la section précédente avec un schéma de croissance gaussienne sont compatibles avec cette estimation. Toutefois, les deux

approches sont différentes et il est préférable d'utiliser la même méthodologie pour comparer les deux estimations. Dans ce but, des reconstructions de concentration en traceur sont calculées le long du segment d'échantillonnage du 13 juillet.

La figure 5.12a montre les concentrations en traceur reconstruites avec plusieurs valeurs du coefficient de diffusion vertical le long du vol. Les résultats sont comparables à ceux obtenus directement par croissance gaussienne (figure 5.12b), avec quelques différences notables :

Tout d'abord, à D_v égal, les reconstructions tendent à reproduire des structures plus fines et plus concentrées en traceur que la croissance gaussienne. En effet, cette dernière simule des concentrations dont la variabilité est principalement due au grossissement des fragments de panache, selon une loi gaussienne en $\sqrt{2D\Delta t}$, et simule donc des gradients de concentration de plus en plus faibles au fil du temps. Les reconstructions, quant à elles, ont été mises au point dans le but de reproduire le mieux possible la variabilité des concentrations observées et sont donc aptes à reproduire des structures fines dans les panaches, quel que soit le temps écoulé entre l'injection du traceur et les observations.

Ensuite, les concentrations reconstruites avec $D_v=0.01 \text{ m}^2\text{s}^{-1}$ (figure 5.12a, ligne violette) sont faibles devant celles simulées par croissance gaussienne (figure 5.12b, ligne violette). On a vu précédemment qu'à cette intensité de la diffusion, les concentrations en traceur le long du vol sont très sensibles à des erreurs d'advection simulée. On ne peut explorer l'influence de ces erreurs sur les reconstructions de la même façon que pour le champ gaussien en raison d'un temps de calcul prohibitif. On doit donc faire l'hypothèse que les résultats obtenus seraient similaires à ceux obtenus ci-dessus, c'est-à-dire que des erreurs de l'ordre de 2 km sur la position de l'avion par rapport au panache induisent des modifications importantes (40%) de la quantité de traceur rencontrée par l'avion.

Les reconstructions de traceur ont une sensibilité au coefficient de diffusion très différente de celle des reconstructions de CO (figure 5.12c), où la diminution du coefficient de diffusion mène à une augmentation de la variabilité et des maxima des concentrations reconstruites. Les reconstructions se font alors à l'aide de rétrotrajectoires calculées sur 9 jours avant la mesure, ce qui fait que les concentrations en CO sont initialisées à un moment où le panache asiatique est étendu et proche des sources. Sa signature se trouve donc toujours dans les reconstructions, bien qu'elle ne soit pas visible avec une diffusion très intense ($D_v=10 \text{ m}^2\text{s}^{-1}$), auquel cas elle est diluée dans l'influence de multiples régions sources très étendues.

Le faible nombre d'observations de l'expérience PERTRAS ne permet pas de calculer les distributions des concentrations en PFC observées et donc

d'utiliser ce critère pour estimer le coefficient de diffusion. Toutefois, les séries temporelles de la figure 5.12 laissent à penser que la valeur de Dv estimée avec les reconstructions de CO, $0.05 \text{ m}^2\text{s}^{-1}$, permet aux reconstructions de traceur de reproduire de façon satisfaisante les observations. Les estimations du coefficient de diffusion à l'aide du CO et du traceur artificiel sont donc compatibles.

De plus, les reconstructions avec $Dv=0.01 \text{ m}^2\text{s}^{-1}$ ne reproduisent pas de pic de concentration en traceur comparable à l'échantillon B (entre 3 et 4 pptv), et les reconstructions avec $Dv=0.5 \text{ m}^2\text{s}^{-1}$ sous-estiment significativement les concentrations en traceur le long du vol et leur variabilité. Les reconstructions confirment donc l'estimation de Dv obtenue par croissance gaussienne : entre 0.02 et $0.2 \text{ m}^2\text{s}^{-1}$.

5.5 Conclusions

Lors de l'expérience PERTRAS, un panache artificiel de traceur fut injecté dans la troposphère libre au-dessus du Groenland en juillet 2008. Le traceur étant inerte chimiquement, la dispersion du panache est uniquement due à des processus dynamiques, ce qui en fait un cas très favorable à l'étude du mélange lors du transport à longue distance dans la troposphère libre.

Les mesures de traceur pratiquées en aval permettent de mettre en évidence le lien lagrangien entre le vol d'injection et celui d'échantillonnage. Toutefois, la faible résolution de ces mesures ne permet pas d'étudier le mélange subi par le panache de traceur, c'est pourquoi un schéma de panache gaussien a été mis au point afin de simuler la dispersion de ce panache.

Le panache est divisé en fragments les plus petits possibles au moment de l'injection, ces fragments sont advectés à l'aide d'un modèle de transport lagrangien, puis étendus selon une fonction gaussienne dont la largeur est fonction du temps de transport et de l'intensité de la diffusion turbulente. On dispose ainsi d'une représentation à trois dimensions du panache de traceur pendant le transport.

Le panache simulé permet de reproduire de façon satisfaisante le lien lagrangien entre les deux vols, ainsi que l'ordre de grandeur des concentrations observées. La taille des structures formant le panache simulé et les concentrations dans celui-ci dépendent fortement du coefficient de diffusion choisi.

La faible résolution des mesures de traceur ne permet pas d'utiliser les séries temporelles des concentrations le long du vol pour estimer le coefficient de diffusion. On se base donc sur la quantité de traceur totale rencontrée par l'avion pendant l'échantillonnage, ainsi que sur la sensibilité de cette grandeur à des erreurs sur la position relative du panache de traceur par

rapport à l'avion. En effet, les observations indiquent que les concentrations en traceur varient spatialement sur des échelles de l'ordre de la dizaine de kilomètres. Il faut donc que les concentrations simulées le long du vol soient sensibles à des erreurs de position de cet ordre.

Les concentrations en traceur le long du vol sont reproduites au mieux avec une diffusion verticale entre 0.02 et $0.2 \text{ m}^2\text{s}^{-1}$ et avec une diffusion horizontale entre 200 et $2000 \text{ m}^2\text{s}^{-1}$. Cette estimation est confirmée par des reconstructions lagrangiennes des concentrations en traceur et concorde avec l'estimation présentée dans le chapitre précédent à partir de reconstructions de filaments de CO d'un panache asiatique observés lors du même vol.

Une source d'incertitude importante dans ce travail provient des données météorologiques utilisées pour simuler le transport. En effet, il s'agit de réanalyses de l'ECMWF, avec une résolution horizontale de 0.5° par 0.5° et une résolution temporelle de 6 heures, or les filaments de panache injectés sont très fins et longs de 70 km environ. Il serait donc utile d'approfondir l'étude à l'aide de données météorologiques plus résolues, par exemple issues d'un modèle régional.

On pourrait de plus traiter les résultats d'autres expériences d'injection de traceur à l'aide du schéma de panache gaussien, afin de comparer la dispersion des panaches de traceur dans différents cas et comparer les résultats obtenus avec ceux d'autres modèles de transport, comme FLEXPART. Il faudrait pour cela inclure dans le schéma de panache gaussien un moyen de prendre en compte la variabilité du vent dans les fragments de panache, par exemple en les scindant à intervalles réguliers.

Les résultats de PERTRAS ont mis en avant le manque de résolution de l'échantillonnage du traceur le 13 juillet. Pour de futures expériences, il serait utile de se focaliser sur l'échantillonnage, avec des mesures ayant une résolution temporelle de moins de 15 secondes pour bien observer la variabilité des concentrations. Idéalement, il serait très utile d'effectuer deux vols d'échantillonnage en même temps, afin d'augmenter les chances de rencontrer le panache de traceur ; il faudrait également échantillonner le traceur à plusieurs échéances pour suivre l'évolution temporelle du panache pendant plusieurs jours.

Enfin, il était difficile de distinguer les parties du panache issus des quatre segments d'injection et donc d'estimer l'impact du mélange entre ces structures sur la dilution du panache. Pour de futures expériences, il serait sans doute préférable d'injecter le traceur le long d'un seul segment, ou alors de marquer les différentes parties du panache injecté avec un autre traceur, dont le taux d'injection serait différent pour chaque segment afin de les différencier.

Chapitre 6

Influence du scénario de mélange sur l’ozone lors du transport d’un panache de polluants en Arctique

6.1 Introduction

Dans les chapitres précédents, on a étudié la dispersion de panaches de polluants à l’aide de traceurs supposés passifs aux échelles de temps du transport, avec comme objectif principal l’estimation de l’intensité du mélange dans la troposphère libre.

Toutefois, les traceurs utilisés dans les chapitres précédents ont en soi peu d’impact sur le climat, en plus d’être peu réactifs : le CO est un précurseur de l’ozone, mais a un temps de vie d’environ deux mois, long devant les temps de transport du cas étudié dans le chapitre 4 (9 jours), il n’est de plus pas un gaz à effet de serre. Le traceur dont la dispersion est étudiée dans le chapitre 5, de type PFC, est présent en trop faibles concentrations dans l’atmosphère pour affecter le bilan énergétique. Les résultats obtenus à l’aide de ces traceurs sont utiles car ils peuvent être utilisés pour étudier le transport en se focalisant sur les processus dynamiques et donc pour quantifier la dispersion d’autres espèces composant les panaches, ayant un impact plus important sur le climat et la qualité de l’air. C’est notamment le cas de l’ozone, mais aussi des oxydes d’azote, dont il est nécessaire de comprendre l’évolution des concentrations due au mélange et à la photochimie atmosphérique.

Contexte scientifique

Comme on l’a vu dans les chapitres 3 et 4, la simulation du transport des panaches de polluants à l’aide de modèles globaux eulériens est sujette

à la diffusion numérique, qui résulte de la discrétisation de l'espace par des grilles ayant souvent une résolution de plus d'1° horizontalement. Cet effet induit des erreurs dans les bilans de polluants ainsi que dans les temps de réaction photochimiques. Pour éviter ces erreurs, on peut étudier la chimie dans les panaches durant le transport à l'aide de modèles lagrangiens, comme le modèle de photochimie de trajectoire CiTTyCAT présenté dans le chapitre 3 (Wild et al., 1996; Pugh et al., 2011).

Dans le cadre du projet ICARTT (International Consortium for Atmospheric Research on Transport and Transportation), Methven et al. (2006) avait mis en évidence plusieurs cas de connexion lagrangienne entre observations par des avions de recherche de panaches lors de leur transport à travers l'Atlantique nord. Methven et al. (2006) définit cette connexion en se basant sur des calculs du modèle de trajectoire UGAMP et du modèle de dispersion de panache FLEXPART, ainsi que sur la signature chimique des masses d'air à l'aide des rapports des concentrations de 7 COV à celle de l'éthane.

Real et al. (2007) et Real et al. (2008) présentent l'étude de deux de ces cas portant respectivement sur le transport d'un panache issu de feux de biomasse et d'un panache anthropique au travers de l'Atlantique nord.

Le panache anthropique, issu du nord-est des Etats-Unis et transporté à basse altitude, présente une perte moyenne d'ozone de l'ordre de 5 ppbv/jour. Pour expliquer cette perte, il est nécessaire de prendre en compte le mélange, mais aussi la déposition sèche et humide, 80% de la réduction de la production d'ozone étant due au lessivage du HNO_3 et à la formation de radicaux OH via la réaction de l' $\text{O}(^1\text{D})$ (issu de la photolyse de l'ozone) avec la vapeur d'eau. La capacité oxydante du panache est suffisamment importante pour être un puits de CO deux fois plus fort que le mélange.

Le panache issu d'un feu de biomasse en Alaska fut, quant à lui, transporté dans la moyenne troposphère. Il présente une augmentation des concentrations en ozone de 17 ppbv sur 5 jours, associée à une décroissance significative des concentrations en CO. La production d'ozone est ici induite par la décomposition thermique des importantes quantités de PAN présentes initialement dans le panache. Il est, une fois de plus, nécessaire de prendre en compte le mélange pour expliquer l'évolution chimique du panache. Enfin, les aérosols présents dans le panache pourraient réduire de plus de 20% les taux de photolyse du NO_2 et de l'ozone.

L'article de Real et al. (2010) prolonge cette étude à l'aide d'un modèle de reconstruction lagrangienne basé sur de multiples trajectoires stochastiques calculées par Pisso et al. (2009) à partir d'observations in-situ d'un panache de feu nord-américain. Le modèle CiTTyCAT fut utilisé pour simuler la chimie dans des masses d'air suivant ces trajectoires et qui furent mélangées en leur extrémité. Cette méthode est décrite plus en détails dans

le chapitre 3. Les reconstructions de ce type reproduisent la variabilité des concentrations dans les panaches bien mieux que les modèles globaux eulériens de chimie-transport. Dans le cas de Real et al. (2010), cela permet également d'étudier avec une bonne précision la production d'ozone dans et au bord des panaches. Cette production dirige l'évolution des corrélations entre concentrations d'ozone et de CO du fait des gradients de production et de destruction d'ozone dans les panaches. Les simulations de Real et al. (2010) reproduisent bien mieux ces corrélations que les modèles globaux, particulièrement au niveau des lignes de mélange.

On étudiera dans ce chapitre l'évolution chimique dans un panache nord-américain intercepté par quatre vols en juillet 2008, dans le cadre de la campagne POLARCAT. On présentera tout d'abord la méthode utilisée pour définir la connexion lagrangienne, et les différentes observations du panache reliées de cette manière. On présentera également les résultats du modèle régional eulérien WRF-chem sur ce cas. Ensuite, on étudiera l'évolution des concentrations dans le panache à l'aide du modèle CiTTyCAT, d'abord dans une masse d'air isolée, puis en prenant en compte le mélange avec deux estimations des concentrations de fond obtenues par WRF-chem, correspondant à deux scénarios de mélange. Enfin, on présentera les conclusions et perspectives de l'étude.

6.2 Cas de connexion lagrangienne étudié

6.2.1 Méthodologie

Détermination de la connexion lagrangienne avec FLEXTRA

Durant l'été 2008, dans le cadre du projet POLARCAT, une série de vols d'avions de recherche furent effectués en Arctique et dans les régions environnantes. Afin de mettre en évidence des cas de connexion lagrangienne entre ces vols, une recherche systématique fut effectuée à l'aide de trajectoires calculées par le modèle de trajectoire FLEXTRA, forcé par des champs de vents analysés de l'ECMWF (J. Burkhardt, communication personnelle).

Les trajectoires furent calculées systématiquement depuis tous les vols de la campagne d'été, puis comparées à la position des vols en aval. La connexion fut établie si la trajectoire se trouvait à une distance inférieure à 200 km du vol, avec une différence d'altitude de moins d'1 km et une différence de temps de moins de 30 minutes. Les trajectoires individuelles pouvant être affectées par des erreurs de position de l'ordre de 20% Stohl et al. (2004, 2005), le

critère de position utilisé est peu restrictif afin de ne pas exclure des cas de connexion lagrangienne intéressants à cause d'erreurs sur les trajectoires.

En plus de cette contrainte dynamique, une condition sur les concentrations en CO observés fut appliquée, afin de sélectionner les masses d'air polluées : le rapport de mélange du CO en amont doit être supérieur à 100 ppbv. Il doit de plus être supérieur aux observations en aval, les concentrations en CO dans un panache étant en général décroissantes durant le transport.

Une fois ces critères appliqués, on dispose d'une liste de segments de vols connectés les uns aux autres par lien lagrangien. Les plus intéressants, sélectionnés manuellement, furent étudiés plus en détail à l'aide du modèle eulérien régional WRF-chem, afin de disposer de données météorologiques et d'une représentation en 3D de la composition atmosphérique avec une bonne résolution.

Modèle régional WRF-chem

Ce cas de connexion lagrangienne fut étudié plus en détail à l'aide du modèle de chimie-transport régional WRF-chem, afin de confirmer le lien lagrangien, et d'obtenir une représentation à trois dimensions de l'évolution du panache.

Le modèle fut utilisé pour simuler la composition atmosphérique dans une région recouvrant le nord-est de l'Amérique du Nord et le Groenland, sur une période s'étendant du 28 juin au 8 juillet 2008. Il compte 27 niveaux verticaux et sa résolution horizontale est de 35 km. Utiliser une grille à haute résolution comme celle-ci permet de réduire les erreurs dues à la diffusion numérique, comme vu dans le chapitre 4.

Les données d'émission utilisées sont celles du projet d'intercomparaison POLMIP (POLARCAT model intercomparison project) et trois simulations furent effectuées : l'une avec l'ensemble des émissions, la seconde sans les émissions de feux de biomasse et la dernière sans les sources anthropiques (dans le domaine du modèle).

Les conditions initiales et aux limites sont issues des données météorologiques GFS et des sorties du modèle global MOZART4. Il faut noter que, dans les simulations sans feux et sans sources anthropiques, les émissions n'ont été coupées que dans le domaine de WRF-chem, les conditions initiales (le 28 juin) et les conditions aux limites ne sont pas affectées. Un nudging des champs météorologiques est effectué toutes les 6 heures pour que le modèle régional ne diverge pas des champs globaux.

Une publication basée sur ces simulations est actuellement en préparation (Thomas et al., 2011).

6.2.2 Présentation du cas

La méthode de détermination de connexion lagrangienne ci-dessus permet de mettre en évidence un bon lien entre le vol du NASA-DC8 du 4 juillet au-dessus du Canada et les vols de l'ATR-42 et du DLR Falcon le 7 juillet au sud du Groenland.

NASA-DC8, 4 juillet

La carte de la figure 6.1 indique la trace de ces trois vols ainsi que de plusieurs trajectoires calculées par WRF-chem à partir du segment du vol du NASA-DC8 sur lequel le lien lagrangien est établi, au sud de la Baie d'Hudson. Ces trajectoires sont marquées par une ascension rapide les 5 et 6 juillet, qui élève les masses d'air de 2.5 km initialement jusqu'à environ 8 km d'altitude (figure 6.1, figure du bas). La carte des colonnes de CO observées le 4 juillet, figure 6.2, indique la présence d'un panache de pollution dans cette région (Pommier et al., 2010). Lors des jours précédents, des feux de biomasse ont été observés au centre du Canada et en Alaska, ils influencent les observations du DC8 (Fuelberg et al., 2010).

La section du vol du 4 juillet sur laquelle se fait le lien lagrangien (20h36 - 20h45 UTC) est indiquée sur les séries temporelles des observations de CO et ozone, figure 6.3. A 20h36 UTC, l'avion sortait d'une masse d'air riche en ozone (plus de 60 ppbv), puis a intercepté une masse d'air contenant de fortes concentrations de CO (jusqu'à 500 ppbv), vers 20h38 UTC à une altitude d'environ 2.5 km. Ce panache est également riche en PAN et en COV (plusieurs ppbv), ce qui est fréquent dans les panaches issus de feux de biomasse. Les observations qui y sont faites serviront de concentrations initiales (cf table 6.1) pour les simulations présentées dans ce chapitre.

CO (ppbv)	O ₃ (ppbv)	NO _x (pptv)	PAN (pptv)	HNO ₃ (pptv)
512.9	51.4	76.3	2241	33.3

TABLE 6.1 – Rapports de mélange de CO, ozone et NO_y initiaux utilisés lors des simulations de chimie lagrangienne, issus des mesures du NASA-DC8 le 4 juillet.

Le NASA-DC8 a rencontré des masses d'air riches en CO plus tard, autour de 22h, qui font partie du même panache qui présente une extension spatiale de plusieurs centaines de kilomètres, comme montré par les observations de l'instrument IASI, figure 6.2. Les résultats de WRF indiquent qu'il pourrait y avoir un lien lagrangien entre ces masses d'air et les observations du 7 juillet

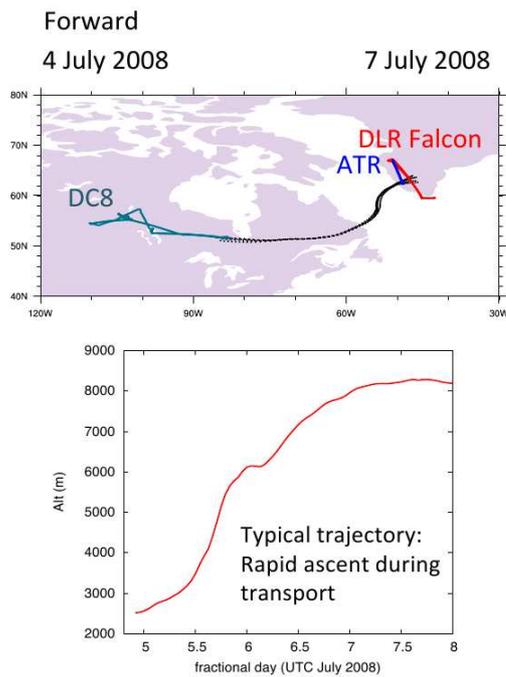


FIGURE 6.1 – Carte et des trajectoires calculés par WRF-chem pour ce cas de connexion lagrangienne, avec les traces des vols, et évolution typique de l'altitude de ces trajectoires avec le temps.. Les limites de la carte correspondent au domaine sur lequel la simulation WRF a été effectuée. Source : Thomas et al. (2011)

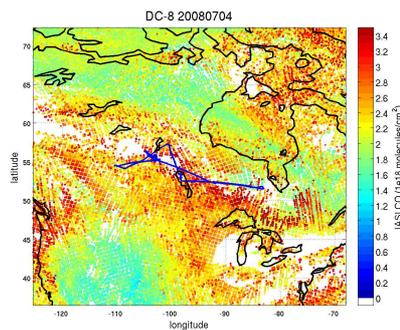


FIGURE 6.2 – Cartes de colonnes total de CO observées par l'instrument IASI les 4 juillet 2008 autour du vol du NASA-DC8 (tracé en bleu). (Pommier et al., 2010)

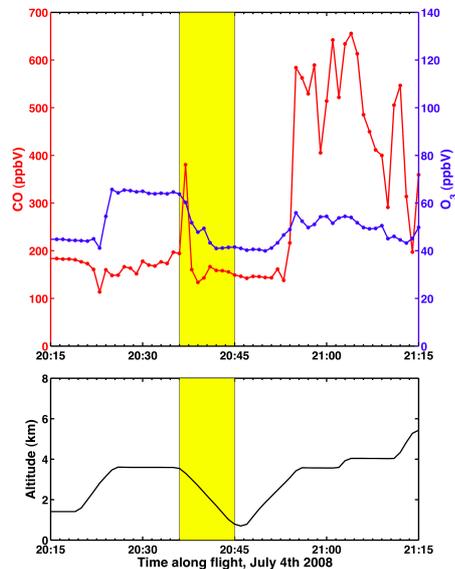


FIGURE 6.3 – Série temporelle des observations de CO (rouge) et d’ozone (bleu) le long du vol du 4 juillet 2008 du NASA DC8, avec l’altitude de l’avion (noir). La zone de connexion lagrangienne définie par les trajectoires calculées par FLEXTRA est indiquée par le rectangle jaune.

dans le panache. Toutefois ce lien n’est pas confirmé par les trajectoires calculées par FLEXTRA, on utilisera la partie du panache rencontrée par le NASA-DC8 vers 20h36 pour définir les concentrations initiales dans les simulations de chimie lagrangienne présentées ci-dessous.

ATR-42 et DLR Falcon, 7 juillet

Les observations de CO et ozone le 7 juillet par l’ATR-42 et le DLR Falcon sont présentées sur la figure 6.4. Le lien lagrangien avec le vol du 4 juillet se fait à peu près au même moment pour les deux vols, autour de 13h50, entre 7 et 8 km d’altitude. L’altitude de la trajectoire calculée par WRF, qu’on peut voir sur la figure 6.1, indique que l’ascension du panache s’est fait rapidement, s’élevant d’environ 5.5 km en deux jours.

Les séries temporelles de CO dans les zones de connexion lagrangienne des deux vols (rectangles verts, figure 6.4) présentent une structure double avec des rapports de mélange d’environ 140 ppbv pour l’ATR-42, et 170 ppbv pour le DLR Falcon, entourée de masses d’air moins riches en CO (environ 100 et 140 ppbv respectivement). Ces structures sont marquées par des rapports de mélange en CO significativement plus élevés que leur environnement. Etant

donné le lien lagrangien établi avec les observations du 4 juillet par le NASA-DC8, on déduit qu'elles font partie du panache de feu nord-américain observé ce jour là, qui a été transporté vers le sud du Groenland. On utilisera donc les observations effectuées dans ces structures pour expliquer l'évolution de sa composition.

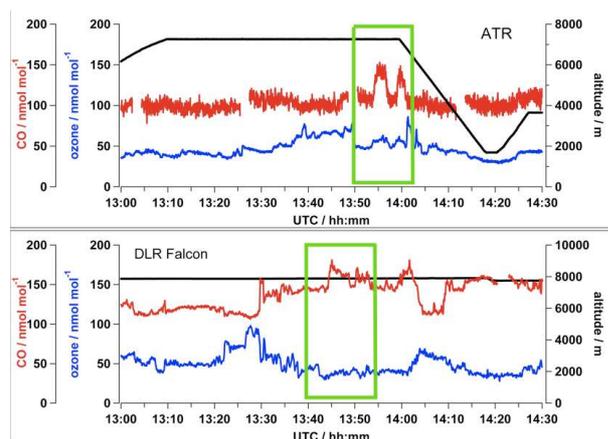


FIGURE 6.4 – Série temporelle des observations de CO (rouge) et d’ozone (bleu) le long des vol du 7 juillet 2008 de l’ATR 42 (haut) et du DLR Falcon (bas), avec l’altitude de l’avion (noir). La zone de connexion lagrangienne est indiquée par les rectangles verts.

Les rapports de mélange mesurés dans le panache (moyenne et écart-type) dans les vols de l’ATR-42 et du DLR Falcon sont indiqués dans la table 6.2.

	CO (ppbv)	O ₃ (ppbv)	PAN (pptv)	NO (pptv)	NO _y (pptv)
DLR Falcon 7 juillet	167 ± 5	38 ± 2.3	322 ± 23	5 ± 5	477 ± 21
ATR-42 7 juillet	139 ± 6	58 ± 2	-	-	-
ATR-42 8 juillet	161 ± 5	65 ± 2	-	-	-

TABLE 6.2 – Rapports de mélange observés dans les panaches par les trois vols en aval du lien lagrangien.

Dans les observations l’ATR-42, la signature du CO dans le panache coïncide avec des structures identiques, bien que d’amplitude moindre, dans le rapport de mélange en ozone (environ 60 ppbv), tandis que l’ozone dans la partie du panache traversée par le DLR Falcon est environ 20 ppbv plus faible. On expliquera plus loin dans le présent chapitre cette différence dans

les niveaux d’ozone mesurés par les deux avions le 7 juillet à l’aide de simulations du modèle CiTTYCAT, à l’aide de deux scénarios de mélange distincts.

Sur observations d’ozone par lidar au-dessus de l’ATR-42 le 7 juillet, présentées figure 6.5, on peut voir entre 13h30 et 14h UTC la trace d’une intrusion stratosphérique, caractérisée par de fortes concentrations en ozone, sous la tropopause. La partie du panache dans laquelle a volé l’ATR-42 (peu avant 14h UTC) pourrait ainsi avoir été mélangée avec de l’air issu de la haute troposphère, ce qui expliquerait son enrichissement en ozone.

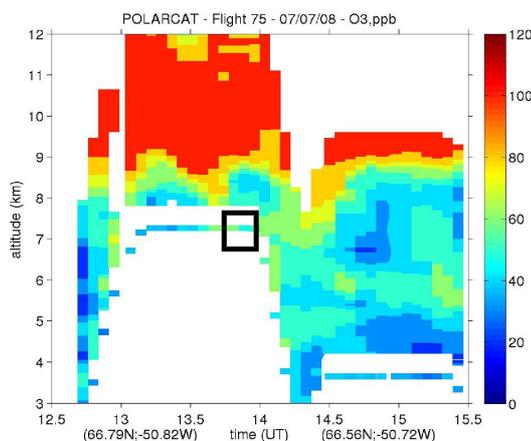


FIGURE 6.5 – Rapport de mélange d’ozone au zénith de l’ATR-42 le 7 juillet mesuré par le lidar Alto. Le carré noir indique la zone de connexion lagrangienne avec le vol du 4 juillet du NASA-DC8. Source : Ravetta et al., 2011, in prep.

ATR-42, 8 juillet

Les trajectoires calculées avec le modèle FLEXTRA permettent de mettre en évidence un lien lagrangien entre la partie du panache observée le 7 juillet par l’ATR-42 (figure 6.4, rectangle vert dans la partie supérieure) et le vol du même avion le lendemain, autour de 13h40.

La figure 6.6 montre les séries temporelles des concentrations en CO et ozone le long du vol de l’ATR-42 le 8 juillet. On peut y voir que l’avion a traversé successivement une masse d’air présentant environ 150 ppbv de CO et plus de 60 ppbv d’ozone, qu’on peut associer au panache nord-américain, puis une masse d’air riche en ozone (près de 100 ppbv) et relativement pauvre en CO (110 ppbv), ce qui correspond à ce qu’on peut observer dans la haute troposphère.

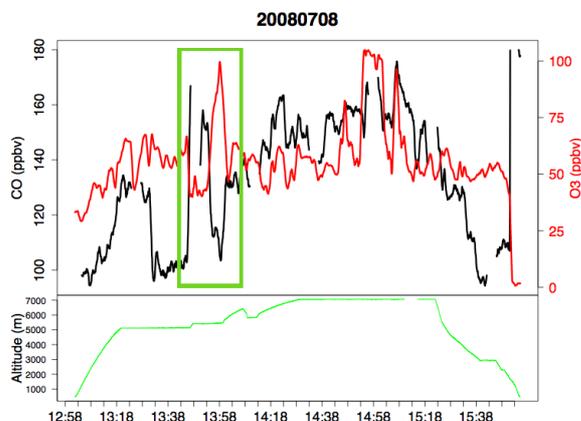


FIGURE 6.6 – Série temporelle des observations de CO (noir) et d’ozone (rouge) le long du vol du 8 juillet 2008 de l’ATR-42, avec l’altitude de l’avion (courbe du bas). La zone de connexion lagrangienne est indiquée par le rectangle vert.

L’observation du panache nord-américain au contact d’une masse d’air riche en ozone va dans le sens de l’hypothèse formulée ci-dessus, selon laquelle la partie du panache observée par l’ATR-42 le 7 juillet aurait été influencée par de l’air issu de la haute troposphère. En effet, les deux interceptions du panaches sont reliées par un lien lagrangien, présentent des concentrations en ozone élevées (plus de 50 ppbv dans les deux cas) et sont à proximité de masses d’air issues de la haute troposphère.

Etant donné que la partie du panache observée par le DLR Falcon le 7 juillet ne présente pas le même enrichissement en ozone, on peut supposer qu’elle n’a pas subi cette influence de masses d’air issues de la haute troposphère. On peut séparer ce cas de connexion lagrangienne en deux branches, sujettes à des scénarii de mélange différents :

- **Pas d’influence HT** : NASA DC8, 4 juillet → DLR Falcon, 7 juillet
- **Influence HT** : NASA DC8, 4 juillet → ATR-42, 7 juillet → ATR-42, 8 juillet

6.2.3 Simulation du transport du panache par le modèle eulérien régional WRF-chem

Les observations in-situ sont limitées spatialement et dans le temps et ne permettent pas d’obtenir une représentation à trois dimensions du panache

et des concentrations en son sein. On fait donc appel au modèle régional WRF-chem pour étudier son transport.

La carte de rapport en mélange de CO simulé pour le 4 juillet est présentée figure 6.2.3a à l'altitude de la zone de connexion lagrangienne sur le vol du NASA-DC8. Le panache est nettement identifiable près du vol, au sud-ouest de la baie d'Hudson, avec des rapports de mélange en CO atteignant 200 ppbv. Si on compare cette carte avec les colonnes de CO observées par l'instrument IASI, figure 6.2, on remarque que WRF simule le panache légèrement plus au nord que les observations.

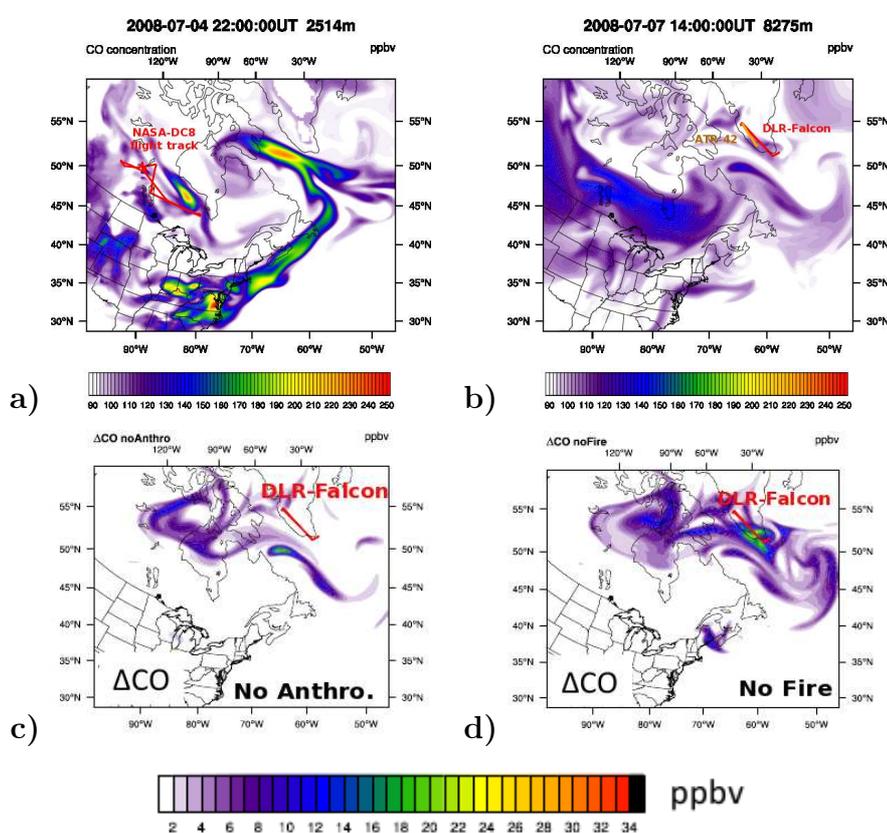


FIGURE 6.7 – Cartes de rapport de mélange de CO simulées par WRF-chem le 4 juillet à 2.5 km (a) et le 7 juillet à 8.3 km (b). Les cartes c et d représentant la différence de rapport de mélange en CO entre la simulation avec toutes les émissions et celle sans les sources anthropiques c et sans feux de biomasse d, le 7 juillet à 8 km. Source : Thomas et al. (2011)

Entre le 4 et le 7 juillet, le panache a été transporté au-dessus du Québec vers le sud du Groenland (cartes intermédiaires non montrées ici) sous l'in-

fluence d'un système dépressionnaire et subit une ascension rapide sous l'effet d'un front, comme le montre la trajectoire indiquée figure 6.1. Le panache apparaît nettement sur la carte des rapports de mélange en CO, figure 6.2.3b, le 7 juillet à l'altitude de la connexion lagrangienne sur le vol du DLR-Falcon (8 km). Les concentrations dans le panache ont nettement diminué du fait de sa dispersion, ne dépassant pas 130 ppbv dans les simulations.

Les mesures in-situ indiquent des concentrations plus élevées que les valeurs simulées dans le panache le 4 et le 7 juillet. Toutefois, sa localisation est compatible avec les observations. De plus, la forte décroissance des concentrations en CO entre le vol du NASA-DC8 le 4 juillet et les vols en aval est reproduite par le modèle. On peut donc supposer que cette sous-estimation du CO dans le panache vient d'émissions de CO trop faibles, ou décalées dans le temps ou dans l'espace.

La modification des rapports de mélange en CO induite par la suppression des sources de pollution anthropique et des feux de biomasse est représentée le 7 juillet à 8 km, respectivement sur les figures 6.2.3c et d. La signature du CO anthropique entre le 28 juin et le 7 juillet (ou les émissions sont coupées) est très faible au sud du Groenland, à l'inverse de celle des feux de biomasse qui influencent de plus de 20 ppbv le CO le long du vol du DLR Falcon.

Par la suite, pour étudier la chimie de l'ozone dans le panache, on fera appel aux simulations de WRF-chem sans feux pour définir les concentrations de fond utilisées dans la paramétrisation du mélange. Le panache étudié étant principalement issu de feux de biomasse, on utilisera les résultats de la simulation sans ces feux pour représenter l'environnement dans lequel il est transporté.

6.3 Simulation de l'évolution des concentrations le long du lien lagrangien

6.3.1 Méthodologie

Pour étudier l'évolution des concentrations dans le panache, on fait appel au modèle de photochimie de trajectoire CiTTyCAT (présenté dans le chapitre 3).

Ce modèle calcule et intègre les taux de réaction dans une boîte supposée homogène. Dans le cas présenté ici, la boîte suit une trajectoire calculée par WRF-chem, partant du vol du NASA-DC8 le 4 juillet, au niveau de la zone de connexion lagrangienne. Les concentrations initiales dans la boîte sont définies par les observations in-situ de l'avion. Les concentrations ini-

tiales des espèces principales sont indiquées dans la table 6.1. Les simulations sans mélange furent également lancées avec ces concentrations plus ou moins l'écart-type des observations du NASA-DC8 dans le panache.

En aval, les concentrations simulées sont comparées avec les observations des vols du 7 juillet de l'ATR-42 et du DLR-Falcon, ainsi que du vol du 8 juillet de l'ATR-42, dans le panache comme vu ci-dessus. Les observations utilisées sont indiquées dans la table 6.2.

Pour simuler le mélange, on détermine des concentrations de fond, représentant la moyenne de la composition de l'air environnant la trajectoire, avec lesquelles la masse d'air étudiée échange des constituants. L'expression de l'évolution des concentrations due au mélange est donnée par l'équation 3.4, présentée dans le chapitre 3. Elle fait intervenir un temps de mélange, T_{mix} , fixé par l'utilisateur.

On le fixe de façon à ce que les concentrations en CO, qui est peu réactif à l'échelle de quelques jours, en aval de la trajectoire correspondent aux observations. Dans notre cas, on utilise les observations du DLR-Falcon dans le panache le 7 juillet, ce qui revient à utiliser un T_{mix} de 36.5h. Si on prend en compte l'écart-type des rapports de mélange en CO dans le panache observé par le DLR Falcon, environ 5 ppbv, T_{mix} varie de plus ou moins une heure. On gardera par la suite une seule valeur du temps de mélange, afin de focaliser l'étude sur les différences entre les concentrations de fond dans les différents scénarios plutôt que sur de petites variations du taux de mélange.

6.3.2 Chimie seule

L'évolution des concentrations dans le panache est d'abord simulée sans faire appel au mélange, avec les concentrations initiales plus ou moins leur écart-type observées par le NASA-DC8 dans le panache.

La figure 6.3.2a, b et c montre les séries temporelles des rapports de mélange en ozone, CO et PAN pendant la simulation. Ces concentrations évoluent peu durant la simulation. Cela s'explique facilement pour le CO, qui est peu réactif à l'échelle de quelques jours, et pour le PAN dont le puits chimique principal, la décomposition thermique, voit son intensité réduite par le refroidissement du panache dû à son ascension rapide.

L'évolution de l'ozone est liée aux concentrations en NOx dans le panache. En effet, dans les premières 24 heures de la simulation, une grande partie des NOx sont consommés pour former du PAN (figure 6.3.2c) et du HNO₃ (figure non présentée ici). Ces deux espèces ayant un temps de vie long dans la haute troposphère, elles ne contribuent pas à régénérer les NOx, comme on peut le voir sur la série temporelle des rapports de mélange en NO (figure 6.3.2d, on

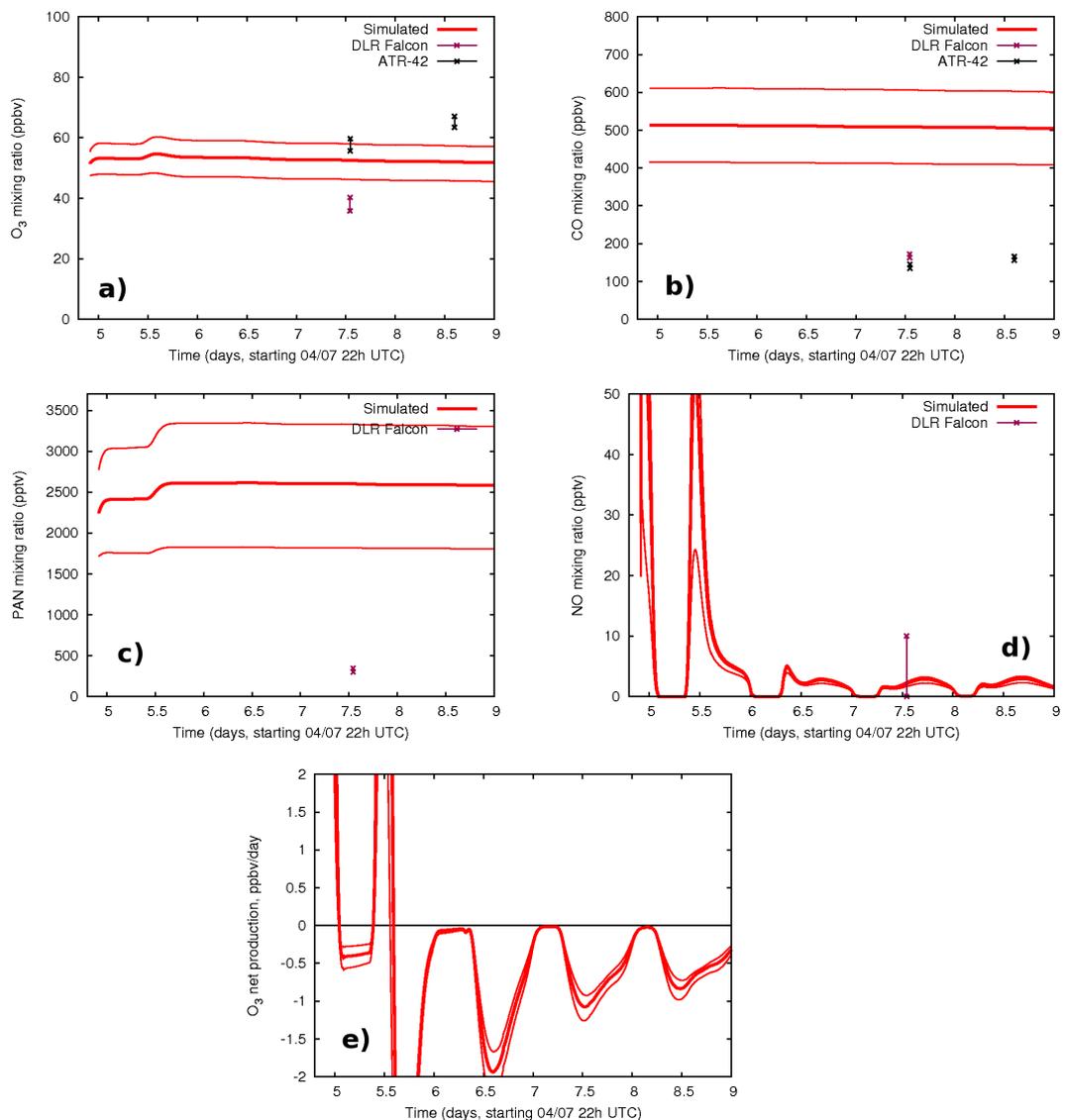


FIGURE 6.8 – Séries temporelles des rapports de mélange en ozone (a, ppbv), CO (b, ppbv), NO (c, pptv) et PAN (d, pptv) ainsi que de la production nette d’ozone (e, ppbv/jour) simulées par CiTTyCAT sans mélange. Les traits rouges fins indiquent les résultats des simulations avec des concentrations initiales plus ou moins l’écart type des observations dans le panache. Les mesures en aval du lien lagrangien sont indiquées par des barres verticales.

présente spécifiquement le rapport de mélange en NO plutôt que la somme des NO_x car il est mesuré par le DLR Falcon).

Le DLR Falcon a également mesuré la concentration totale en NO_y. Le modèle conserve cette concentration et la surestime significativement (courbe non montrée ici). Ceci s'explique par l'absence de mélange, et par l'absence de paramétrisation du lessivage du HNO₃ dans la version utilisée ici.

Du fait de la conversion des NO_x en espèces réservoir dans le panache, la production chimique brute d'ozone y est faible, et le bilan chimique net d'ozone tend vers une perte nette de l'ordre d'1 ppbv/jour, comme montré figure 6.3.2e.

La comparaison de la composition du panache avec les observations en aval du lien lagrangien montre une forte surestimation du CO et du PAN. On n'avait jusque-là pas pris en compte le mélange dans la simulation et il est nécessaire de le prendre en compte pour mieux reproduire des concentrations conformes aux observations en aval.

6.3.3 Influence du mélange

Le schéma de mélange dans CiTTyCAT requiert des concentrations de fond, fixées. Dans le cas présent, elles sont estimées à partir de la simulation WRF-chem sans feux de biomasse, le long de la trajectoire. En effet, dans cette simulation les émissions de feux sont coupées dans le domaine du modèle (l'Amérique du Nord et le Groenland) à partir du 28 juin, et le panache étudié ici n'y est pas représenté. Elle conserve toutefois la signature des autres sources de pollution, ainsi que les feux hors du domaine du modèle et ayant eu lieu avant le 28 juin. On peut donc utiliser cette simulation de WRF-chem pour estimer la composition typique des masses d'air entourant le panache.

Lors de la première interception du panache (4 juillet, 22h UTC), les niveaux de fond correspondent à des masses d'air peu polluées (85.4 ppbv de CO, table 6.3 et figure 6.9). La trajectoire est ensuite entourée de masses d'air plus riches en CO (96.3 ppbv) et relativement pauvres en ozone (31.1 ppbv). A la fin de la simulation, les concentrations de fond sont influencées par la haute troposphère, avec des concentrations élevées en ozone (70.2 ppbv) et appauvries en CO (83.9 ppbv).

La transition entre ces concentrations est effectuée par interpolation linéaire, conformément à l'allure des séries temporelles simulées par WRF-chem sans feux le long de la trajectoire, comme montré par la figure 6.9.

Pour expliquer l'enrichissement en ozone de la partie du panache traversée par l'ATR-42 le 7 et le 8 juillet, on a fait l'hypothèse selon laquelle ces observations seraient influencées plus tôt par de l'air issu de la haute troposphère. On a donc mis au point un autre scénario de mélange, basé sur les mêmes concentrations, mais en effectuant 46 heures plus tôt la transition entre les

Temps	CO (ppbv)	O ₃ (ppbv)	PAN (pptv)	NO _x (pptv)
4 juillet, 22h UTC	85.4	46	171.9	12
7 juillet, 11h UTC	96.3	31.1	182.7	10
9 juillet, 0h UTC	83.9	70.2	243.2	18.7

TABLE 6.3 – Concentrations de fond utilisées dans le schéma de mélange de CiTTyCAT.

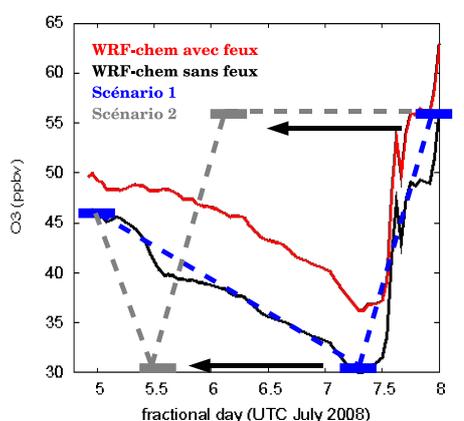


FIGURE 6.9 – Rapports de mélange en CO simulés par WRF-chem et utilisés comme concentrations de fond dans CiTTyCAT. La ligne rouge indique la simulation WRF-chem avec toutes les émissions, la ligne noire celle sans les émissions de feux. Les concentrations de fond des deux scénarios de mélange sont indiquées par les tirets bleus (issu directement de WRF-chem) et gris (avec une influence plus précoce de la haute troposphère).

niveaux de fond, quand la trajectoire calculée par WRF-chem atteint la partie supérieure de la troposphère libre, afin de mélanger le panache avec des masses d'air issues de la haute-troposphère avant les vols de l'ATR-42 (tirets gris, figure 6.9).

Les séries temporelles des concentrations simulées peuvent être vues sur la figure 6.10. Le rapport de mélange en CO simulé décroît rapidement du fait du mélange (figure 6.10b) en raison de la différence importante entre sa concentration initiale dans le panache et les niveaux de fond. Cette espèce a été utilisée comme traceur pour contraindre le taux de mélange avec les

observations du DLR-Falcon ; sa concentration simulée ne peut donc pas être directement comparée aux observations de l'ATR-42 pour des raisons méthodologiques. On supposera par la suite que la différence de temps de mélange induite par les différences dans le CO mesuré par les deux avions est suffisamment faible pour être négligée.

Le mélange avec les concentrations de fond issues de WRF-chem provoque une diminution de l'ozone simulé (figure 6.10a, ligne rouge) jusqu'à ce que la trajectoire rencontre, le 7 juillet, des masses d'air issues de la haute troposphère, plus riches en ozone. Ce scénario de mélange est conforme aux mesures d'ozone du DLR Falcon et conduit à la mise en place d'une production photochimique d'ozone nette de l'ordre de 0.5 ppbv/jour pendant la journée (figure 6.10e, ligne rouge).

La différence de production nette induite par le mélange s'explique d'une part par les plus faibles niveaux d'ozone dans la simulation avec mélange (figure 6.10a, lignes rouge et grise), et donc à la plus faible perte brute d'ozone, mais aussi par des concentrations en NOx plus élevées. En effet, les NOx présents initialement sont transformés en HNO₃ et en PAN (cf section précédente), ce qui est conforme aux observations de NO par le DLR Falcon, inférieures à 10 pptv dans le panache. Les concentrations de fond étant supérieures à cette valeur, le mélange est ici une source de NOx comme on peut le voir sur la figure 6.10d (lignes rouge et grise). L'enrichissement en NOx du panache par le mélange induit une augmentation de la production d'ozone dans le modèle par rapport à la simulation sans mélange (figure 6.10e, lignes rouge et grise).

Les lignes bleues, figure 6.10, représentent les séries temporelles simulées avec le second scénario de mélange, où l'influence des masses d'air issues de la haute troposphère se fait avant l'observation du panache le 7 juillet. Les rapports de mélange en ozone simulés (figure 6.10a, ligne bleue) sont conformes aux mesures de l'ATR-42 le 7 et le 8 juillet, ce qui va dans le sens de l'hypothèse faite ci-dessus, selon laquelle ces observations sont influencées par de l'air issu de la haute troposphère.

Du fait de cette modification du scénario de mélange, la production nette d'ozone est réduite (figure 6.10e, ligne bleue) et tend vers un régime de faible production d'ozone le matin (environ 0.25 ppbv/jour) suivie d'une légère destruction d'ozone pendant le reste de la journée (environ 0.1 ppbv/jour). Les concentrations en NOx étant similaires à celles obtenues avec le premier scénario de mélange (6.10d, lignes rouge et bleue), cette différence de production est due à la plus grande concentration d'ozone dans la simulation influencée par l'air issu de la haute troposphère et donc à des pertes photochimiques d'ozone plus importantes qu'avec le scénario de mélange sans influence HT.

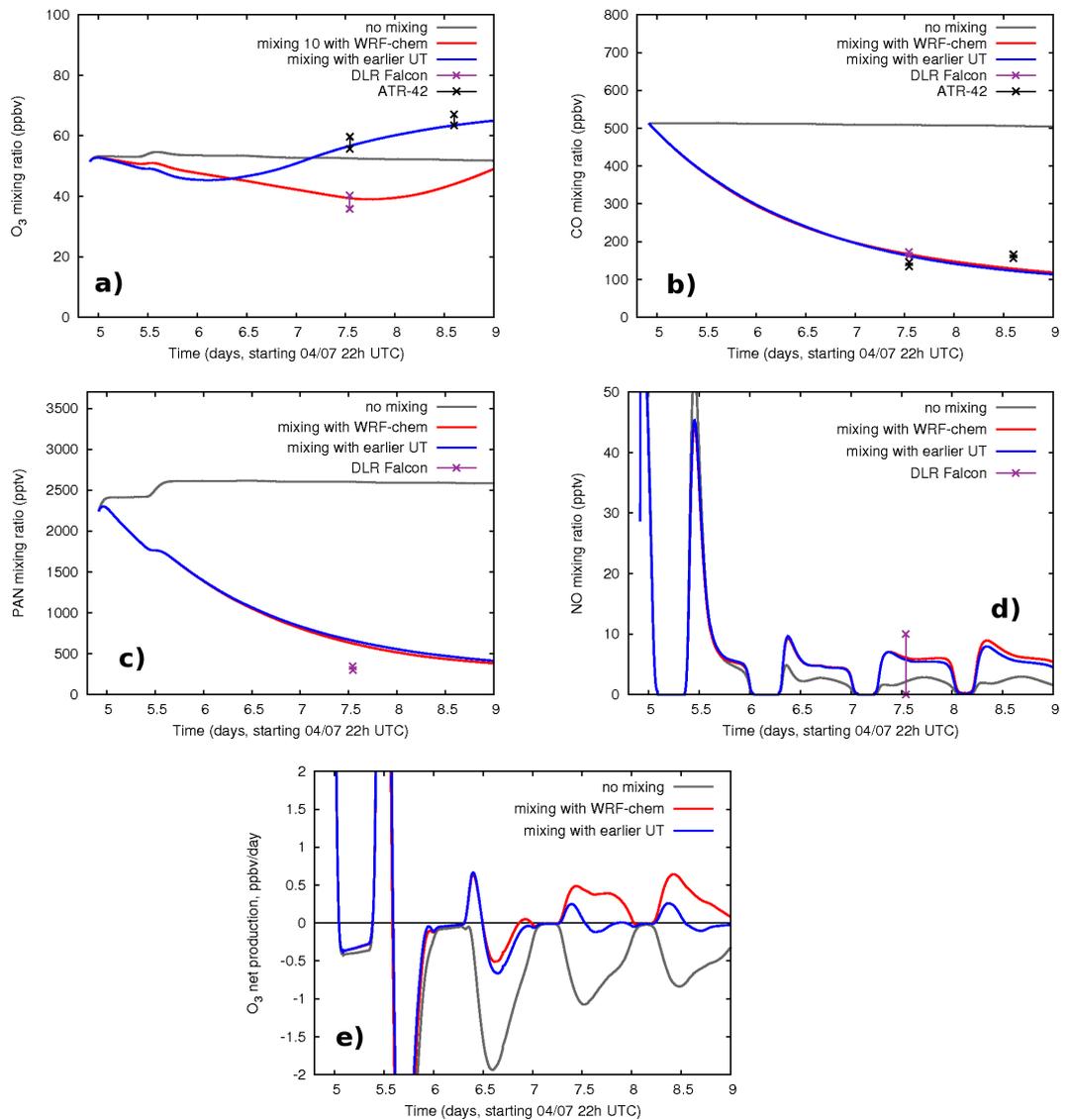


FIGURE 6.10 – Séries temporelles des rapports de mélange en ozone (a), CO (b), NO (c) et PAN (d) ainsi que de la production nette d’ozone (e) simulées par CiTTyCAT sans mélange (gris), avec mélange en utilisant les concentrations de fond issues de la simulation WRF-chem sans feux (rouge), et en mélangeant plus tôt avec de l’air issu de la haute troposphère (bleu). Les observations en aval du lien lagrangien sont indiquées par des barres verticales.

Ces résultats sont compatibles avec ceux de Liang et al. (2009), qui a montré que l'export d'air de la basse stratosphère vers la troposphère arctique induit un enrichissement en ozone de celle-ci, mais aussi une formation de PAN du fait du mélange d'air stratosphérique riche en HNO_3 et en NO_x avec de l'air troposphérique plus riche en COV. Il faut toutefois noter que l'étude de Liang et al. (2009) est faite sur une période longue, et est donc difficilement comparable avec une étude de cas ponctuelle comme celle présentée ici.

La comparaison des concentrations en NO_y simulées avec les observations du DLR-Falcon (courbe non montrées ici) indiquent que le modèle tend à surestimer ces concentrations d'environ 300 ppbv en utilisant les deux scénarios de mélange.

Avec les deux scénarii de mélange, les concentrations en PAN sont surestimées d'environ 300 pptv par rapport aux mesures du DLR-Falcon (figure 6.10c), ce qui explique la surestimation des NO_y . Ceci peut être dû à des concentrations de fond trop élevées, ou par un temps de vie du PAN surestimé. Toutefois, on ne dispose en aval que des observations du DLR Falcon, ce qui ne permet pas de déterminer le facteur déterminant de cette surestimation.

6.3.4 Corrélations CO/O_3

Pour étudier l'évolution de la distribution des concentrations dans le panache, on utilise les corrélations entre rapport de mélange en ozone et en CO. Une série de simulations furent lancées avec CiTTyCAT à partir de concentrations initiales variables, obtenues en moyennant les observations du NASA-DC8 le long de la zone de connexion lagrangienne (figure 6.3, rectangle jaune) par segments de 5 secondes. Ces calculs furent effectués avec les deux scénarii de mélange décrits ci-dessus, ainsi que sans mélange.

Les résultats des corrélations pour le 7 juillet, à l'heure de la connexion lagrangienne avec l'ATR-42 et le DLR Falcon sont reportés sur la figure 6.3.4. On peut y voir que les observations de CO et d'ozone du NASA-DC8 le 4 juillet (points rouges) dans la zone de connexion lagrangienne sont peu corrélées, la régression linéaire donnant une pente $\Delta\text{O}_3/\Delta\text{CO}$ de 1.4%. Le panache étudié par Real et al. (2007) présentait des corrélations CO/O_3 négatives alors qu'il était âgé de 4 jours, mais les panaches de feu jeunes peuvent être le siège d'une production rapide d'ozone et présenter des corrélations CO/O_3 positives après seulement quelques heures (Goode et al., 2000; Alvarado et al., 2010).

Le 7 juillet, les observations du DLR Falcon et de l'ATR-42 présentent des corrélations CO/ozone plus marquées que celles du 4 juillet, avec des

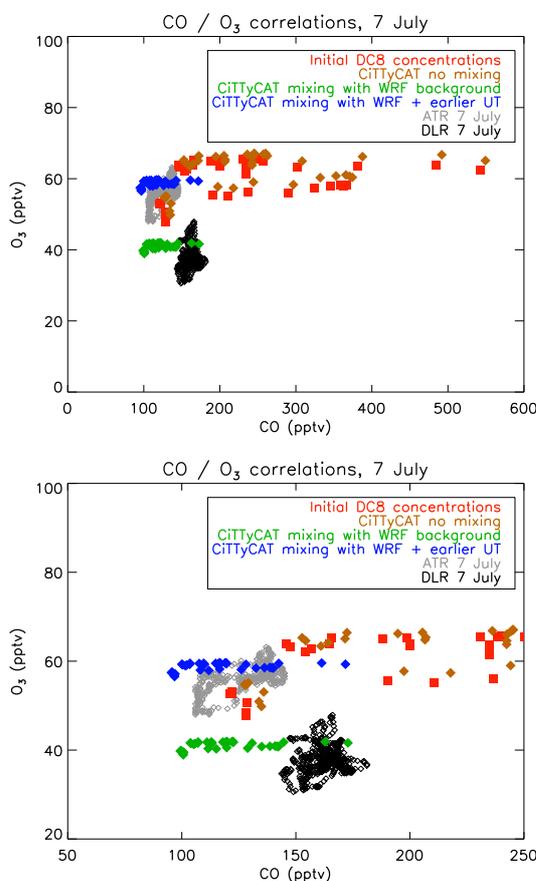


FIGURE 6.11 – Corrélations entre CO et ozone le 7 juillet simulés sans mélange (marron), avec mélange en utilisant les concentrations de fond issues de WRF-chem (vert), et avec une influence plus tôt de l’air issu de la haute troposphère (bleu). Les observations de l’ATR-42 et du DLR Falcon dans le panaches sont respectivement indiquées en gris et en noir, avec les concentrations initiales des simulations (mesurées par le NASA-DC8 le 4 juillet) en rouge. Les deux graphes diffèrent seulement par les limites des axes, pour des raisons de lisibilité.

pentés de régression respectives de 7% et 15.5%.

Les rapports de mélange en CO et ozone simulées le 7 juillet présentent une pente de régression $\Delta O_3 / \Delta CO$ supérieure à celle des concentrations initiales, environ 1.7% sans ou avec mélange (points marrons, verts et bleus, figure 6.3.4), mais significativement plus faible que les pour les observations.

L’augmentation du $\Delta O_3 / \Delta CO$ simulé est liée à la production d’ozone

dans le panache. Comme vu précédemment, en raison du stockage des NOx en HNO₃ et PAN, elle est faible dans les simulations. Toutefois, les observations du DLR Falcon et de l'ATR-42 présentent des corrélations CO/ozone plus marquées que les simulations dans le panache. Pour expliquer la sous-estimation de ces corrélations par le modèle, on propose l'explication suivante :

La production photochimique d'ozone simulée pourrait être sous-estimée. En effet, la concentration en PAN simulée le 7 juillet est supérieure aux observations du DLR Falcon, même en prenant en compte le mélange, son temps de vie pourrait donc être surestimé. Toutefois, les concentrations en NO observées lors du même vol sont faibles (moins de 10 pptv). Une partie du PAN pourrait alors avoir été décomposée avant l'ascension du panache, augmentant les concentrations en NOx et contribuant donc à la production d'ozone. Par la suite, les NOx auraient alors été stockés sous forme de HNO₃ avant les mesures du DLR Falcon.

Des tests de sensibilité (non montrés ici) ont été effectués avec des concentrations en NOx doublées dans le panache et les scénarios de mélange, ils montrent une légère augmentation de la pente de corrélation $\Delta O_3/\Delta CO$ par rapport aux simulations de référence, mais ne permettent pas d'expliquer la corrélation des concentrations observées. Toutefois, la chimie dans les panaches de feux est de nos jours mal connue, et le schéma chimique utilisé dans CiTTyCAT pourrait ne pas être adapté à leur étude.

Une autre explication possible vient du fait que peu des mesures du NASA-DC8 utilisées ici comme concentrations initiales étaient effectuées dans le panache, et pourraient ne pas bien représenter la distribution des concentrations dans celui-ci. De plus, les observations plus tard sur le même vol montrent des rapports de mélange en CO bien plus élevés que dans la zone de connexion lagrangienne. Il faudrait donc étudier les corrélations CO/ozone avec une plus grande variété de conditions initiales, issues du coeur et des bords du panache en amont et en aval pour représenter la diversité des concentrations dans le panache.

6.4 Conclusions

Ce chapitre a présenté l'étude du transport d'un panache issu de feux de biomasse en Amérique du Nord vers le sud du Groenland. Des trajectoires calculées à l'aide de champs météorologiques globaux permettent de définir un cas de connexion lagrangienne entre 4 vols d'avions de recherche interceptant le panache.

L'utilisation d'un modèle de chimie lagrangien, CiTTyCAT, permet de

mettre en évidence une faible, mais positive, production nette d’ozone dans le panache, due au stockage des NO_x sous forme de HNO₃ et de PAN. Toutefois, il est nécessaire de prendre en compte le mélange pour reproduire les observations dans le panache en aval du lien lagrangien.

Pour ce faire, on définit deux ensembles de concentrations de fond à partir des résultats d’un modèle régional de chimie-transport, WRF-chem, dans lequel on a coupé les émissions de feux en Amérique du Nord 6 jours avant la première interception du panache. Le premier scénario de mélange utilise des concentrations de fond directement issues de ce modèle, tandis que le second y incorpore l’influence d’air issu de la haute troposphère au bout d’environ un jour de transport.

L’utilisation du schéma de mélange dans le modèle lagrangien permet de simuler des concentrations en ozone et en CO en accord avec des observations in-situ dans le panache de feux au bout de 3 et 4 jours. De plus, on est en mesure de distinguer deux scénarii de mélange différents pour les parties du panache échantillonnées par les vols en aval du lien lagrangien. La production nette d’ozone est d’environ 0.5 ppbv/jour en journée en utilisant des concentrations de fond directement issues des résultats de WRF-chem et est en moyenne quasi-nulle si on inclut plus tôt dans la simulation l’influence d’air issu de la haute troposphère.

Les corrélations ozone/CO augmentent légèrement lors du transport dans les simulations du modèle lagrangien, mais restent sous-estimées par rapport aux observations. Toutefois, Alvarado et al. (2010) a montré que seuls 9 des 34 panaches de feux observés durant ARCTAS-B présente des concentrations en ozone et CO corrélées ; de plus, sur les 22 d’entre eux observés par TES, seuls 4 sont sujets à une augmentation des concentrations en ozone. Il faut toutefois noter que la production d’ozone dans les panaches de feux se fait souvent dans les premières heures après émission Goode et al. (2000), et la faible production d’ozone dans les simulations présentées ici peut être vue comme une conservation de cet ozone lors du transport. A ce titre, la sous-estimations de la production d’ozone nette dans les panaches de feux par les modèles globaux eulériens, montrée par Real et al. (2010), peut induire une non-conservation de l’ozone dans les panaches, et donc une sous-estimation de l’impact des feux de biomasse sur les niveaux d’ozone en aval lors du transport à longue distance.

Pour poursuivre cette étude, il semble important d’étudier l’évolution chimique du panache en prenant en compte la distribution des concentrations dans l’ensemble du panache, sans nécessairement se limiter aux trajets des avions de recherche. On pourrait, par exemple, utiliser les concentrations dans le panache simulé par WRF-chem en amont et en aval, et comparer son

évolution selon les modèles eulérien et lagrangien.

Il est de plus nécessaire d'améliorer les schémas réactionnels dans les deux modèles, pour mieux prendre en compte la chimie dans les panaches, et plus particulièrement celle des NO_y. Enfin, des incertitudes importantes subsistent sur les émissions de feux utilisées, particulièrement en lumière de l'étude d'Alvarado et al. (2010) qui a montré que les facteurs d'émission des NO_x utilisés habituellement ne sont pas adaptés aux panaches de feux observés durant ARCTAS-B.

Enfin, ce cas pourrait être étudié à l'aide de reconstructions lagrangiennes, comme le modèle ZooM-CiTTy développé par Real et al. (2010), qui permettrait de prendre en compte de la diversité des masses d'air et des scénarios de mélange dans le panache.

Chapitre 7

Conclusion et perspectives

Cette thèse a pour but de contribuer à la compréhension des processus de mélange lors du transport de polluants à longue distance dans la troposphère libre et de leur impact sur les concentrations d'espèces minoritaires ainsi que sur la production photochimique d'ozone dans les panaches. Elle porte plus particulièrement sur la représentation du mélange dans les modèles numériques, en se plaçant d'un point de vue lagrangien, ainsi que sur l'influence de son intensité sur la distribution des concentrations dans les panaches. S'inscrivant dans le cadre de la campagne POLARCAT (Polar Study using Aircraft, Remote Sensing, Surface Measurements and Models, of Climate, Chemistry, Aerosols, and Transport) conduite en 2008 en Arctique dans le cadre de l'année polaire internationale, ce travail se focalise sur trois études :

- La filamentation d'un panache de pollution asiatique âgé a été étudiée lors de son transport à travers l'Arctique sur une durée de 9 jours. A l'aide de reconstructions lagrangiennes d'observations dans des filaments issus du panache, on a pu estimer l'intensité du mélange subi par le panache et évaluer les performances d'un modèle global eulérien en matière de transport à longue distance (Chapitre 4).
- La seconde étude porte sur la dispersion d'un panache de traceur artificiel, injecté au sein du panache âgé étudié dans le chapitre 4, et échantillonné 20 heures plus tard. Pour cette étude, on a mis en oeuvre un schéma de panache gaussien permettant de simuler l'évolution des concentrations dans le panache artificiel, ce qui a permis d'estimer l'intensité de la diffusion pendant son transport (Chapitre 5).
- Enfin, l'influence du mélange sur la chimie de l'ozone dans un panache de feux de biomasse nord-américain lors de son transport vers l'Arctique sur un intervalle de 4 jours a été étudiée. A l'aide d'un modèle de

chimie lagrangien et d'un modèle régional eulérien, deux scénarii de mélange ont été définis pour expliquer l'évolution des concentrations dans le panache et les inhomogénéités de sa composition induites par le mélange pendant le transport (Chapitre 6).

Ces études ont apporté des réponses aux questions scientifiques présentées dans l'introduction de cette thèse, mais ont également mis en évidence des limites dans les méthodes utilisées, ainsi que des perspectives pour approfondir le travail effectué :

1 - Quelle est l'intensité du mélange lors du transport dans la troposphère Arctique ?

Résultats obtenus

Dans le chapitre 4, on a montré qu'il fallait appliquer un coefficient de diffusion verticale compris entre 0.02 et 0.1 m^2s^{-1} pour reconstruire au mieux la variabilité des concentrations en CO au-dessus du Groenland dans des filaments issus d'un panache d'origine asiatique âgé de 9 jours environ. D'un autre côté, l'étude de la dispersion d'un panache de traceur artificiel pendant 20 heures dans les mêmes masses d'air a permis d'estimer ce même coefficient de diffusion entre 0.02 et 0.2 m^2s^{-1} .

Les deux panaches ont été transportés sur des durées très différentes. De plus, le panache asiatique a été soulevé puis étiré sous l'influence d'une zone frontale lors d'une grande partie de son transport, avant que le traceur artificiel soit injecté au sein des filaments qui en sont issus. Les estimations du coefficient de diffusion obtenues lors des deux études sont pourtant proches malgré les différences sur les échelles de temps et les conditions météorologiques subies par les panaches. Il faut toutefois noter qu'il s'agit de valeurs moyennes sur tout le transport et que les intervalles estimés sont larges. Il est donc difficile de déduire de la similarité de ces estimations une information sur l'intermittence du mélange en Arctique.

Des études précédentes de la diffusion dans la troposphère libre ont abouti à des estimations de son intensité significativement plus élevées que celles présentées dans cette thèse (Gifford, 1982; Sillman et al., 1990; Schumann et al., 1995; Mauzerall et al., 1998; Pisso et al., 2009). Bien qu'il soit difficile de comparer des estimations obtenues dans des cas et avec des méthodes différentes, il semble que l'intensité de la diffusion est significativement plus faible en Arctique que dans le reste de la troposphère. Les gradients de concentrations y seront donc conservés plus facilement, ce qui est favorable au maintien de structures de petite échelle dans les panaches.

Dans le cas du lien lagrangien présenté dans le chapitre 6, on a montré qu'il fallait appliquer un temps de mélange de 36.5 heures pour rendre compte de la décroissance des concentrations en CO pendant les trois jours de transport. Si on se base sur les estimations du coefficient de diffusion présentées ci-dessus, on peut déduire l'épaisseur caractéristique des couches d'air sur lesquelles se fait le mélange, $\sqrt{2Dt_{mix}}$. On obtient une valeur située entre 70 et 230 m verticalement et entre 7 et 23 km horizontalement.

Perspectives

Les estimations du coefficient de diffusion obtenues dans les chapitres 4 et 5 sont des valeurs moyennes sur le transport. Toutefois la diffusion turbulent est un phénomène intermittent (Monin and Yaglom, 1975; Cho et al., 2003; Wilson et al., 2011). Il semble important d'affiner ces estimations en prenant en compte les variations de l'intensité de la diffusion selon les conditions météorologiques. On pourrait par exemple calculer les reconstructions avec un schéma en arborescence : au cours du calcul des rétrotrajectoires, les parcelles pourraient être scindées quand elles rencontrent une zone d'important cisaillement afin de rendre compte de la dispersion qu'il induit. Le réseau de trajectoires obtenu aurait alors une structure similaire à un arbre, où les concentrations seraient initialisées au bout des branches (trajectoires), puis mélangées progressivement aux jonctions de celles-ci, jusqu'à l'origine des trajectoires, où a été faite l'observation reconstruite.

Concernant l'expérience PERTRAS, l'étude présentée dans le chapitre 5 a montré que le faible nombre d'observations rend difficile l'étude de la dispersion du panache artificiel, malgré le fait qu'on dispose d'une bonne connaissance de sa structure initiale. Si d'autres expériences du même type sont pratiquées dans la troposphère libre, il serait utile de les planifier de façon à optimiser l'échantillonnage du traceur, et d'obtenir un jeu d'observations aussi complet que possible.

Dans ce but, l'expérience ne devrait comporter qu'un seul vol d'injection produisant un panache formé d'une seule structure, de façon à ce que l'évolution de sa concentrations ne soit due qu'au mélange avec l'environnement plutôt qu'avec d'autres parties du panache dont la position peut être difficile à déterminer avec précision durant le transport. Il serait également utile d'utiliser deux traceurs, l'un injecté à un taux constant, l'autre à un taux variable : le rapport des concentrations entre les deux traceurs dans une masse d'air dépendrait alors de la partie du vol d'injection influençant ces concentrations, ce qui permettrait d'étudier le transport du panache avec une meilleure précision.

Le fait de n'effectuer qu'un seul vol d'injection, contrairement à deux

dans le cas de PERTRAS, permettrait de focaliser les moyens mis à disposition pour l'expérience sur les vols d'échantillonnage. Le panache artificiel pourrait alors être observé plusieurs fois durant son transport, afin d'observer l'évolution des concentrations en son sein. Étant donné la variabilité des concentrations en traceur simulées le long du vol dans le chapitre 5, il serait utile de disposer de mesures de traceur à une résolution de 30 secondes, voire 15 secondes si possible, de façon à observer les gradients de concentrations dans le panache. Pour cela, il serait utile d'utiliser un système d'échantillonnage mesurant directement les concentrations en traceur, au lieu de prélever des échantillons, dont le nombre est limité, à analyser en laboratoire comme dans le cas de PERTRAS. Enfin, les vols d'échantillonnage doivent être planifiés en prenant en compte l'incertitude sur la position du panache prévue ; pour cela, pratiquer une série de profils parallèles permettrait de "quadriller" l'espace tout en étant insensible aux erreurs sur l'altitude du panache. Il faudrait de plus idéalement faire deux vols d'échantillonnage en même temps (bien que cela demande de disposer de deux appareils de prélèvement) afin d'obtenir la plus grande densité d'observations possible.

2 - Quelles sont les complémentarités des modèles lagrangiens et eulériens en matière de transport des panaches de pollution ?

Résultats obtenus

A l'aide d'un schéma de panache gaussien, j'ai pu simuler la dispersion d'un panache de traceur composé initialement de quatre segments d'environ 70 km de long et dont la largeur caractéristique était de l'ordre de 10 km au bout de 20 heures de transport. Les concentrations en traceur simulées sont conformes aux observations, mais restent sujettes à des erreurs d'advection de l'ordre de 5 km (sur 300 à 400 km de transport).

Les observations de filaments de panache âgé par le DLR Falcon le 13 juillet 2008 présentaient une variabilité importante, avec des filaments de moins de 100 km de long. Cette variabilité ne pouvait pas être reproduite par le modèle global eulérien, même avec l'assimilation d'observations par satellite. Les reconstructions lagrangiennes initialisées par les résultats du modèle global ne permettaient pas non-plus de simuler ces filaments individuellement, mais ont reproduit de façon satisfaisante la médiane et l'écart-type des distributions du CO observé.

Les reconstructions pratiquées avec un coefficient de diffusion surestimé ($Dv = 10 \text{ m}^2\text{s}^{-1}$) représentent le mélange de façon similaire au modèle global, en raison de la diffusion numérique induite par sa résolution. Ces simulations

indiquent que cette surestimation du mélange, en plus d'affecter les concentrations dans le panache, peuvent également perturber les chemins de transport et donc induire des erreurs dans les bilans globaux d'import/export de polluants.

A l'aide de la fermeture de Smagorinski (équation 3.3, page 50), on peut estimer la résolution spatiale nécessaire pour que la diffusion dans un modèle eulérien soit d'une intensité proche de celle estimée avec les reconstructions lagrangiennes. Ainsi, les résultats des chapitres 4 et 5 indiquent qu'il faudrait idéalement simuler le transport à longue distance avec des résolutions verticale et horizontale respectives d'environ 100 à 400 m et 5 à 20 km. Ces valeurs sont proches des distances de mélange caractéristiques estimées ci-dessus, et sont significativement plus faibles que les valeurs préconisées par Pisso et al. (2009) (500m x 40km) dans l'Atlantique Nord avec une méthodologie similaire. En effet, la troposphère arctique est en général plus stable qu'aux moyennes latitudes, comme montré par les estimations de coefficient de diffusion présentées ci-dessus, ce qui est favorable à la conservation des gradients de concentration et des structures fines dans les panaches âgés. Il est donc nécessaire d'appliquer des résolutions plus fines pour simuler le transport des panaches en Arctique que dans les moyennes latitudes.

De plus, l'étude de Rastigejev et al. (2010) a montré que l'interaction entre la diffusion numérique et le cisaillement amplifiait la décroissance des concentrations dans les panaches et qu'il faudrait utiliser des grilles très résolues pour bien simuler les taux de décroissance des concentrations. Il y a donc un consensus sur la nécessité de réduire significativement la résolution des modèles globaux, qui est habituellement supérieure à 1° horizontalement.

Il faut toutefois noter que les estimations du coefficient de diffusion présentées ici sont des valeurs moyennes sur un seul évènement de transport et peuvent varier selon les cas étudié (par exemple, les valeurs de Pisso et al. (2009) sont significativement plus élevées que celles obtenues dans les chapitres 4 et 5 du présent document). On ne peut donc pas généraliser les valeurs obtenues à toute la troposphère arctique. De la même façon, les résolutions des modèles globaux suggérées sont des valeurs pour lesquelles les erreurs dues à la diffusion numérique seraient faibles dans des cas similaires à celui étudié dans le chapitre 4, mais d'autres évènements de transport pourraient nécessiter des résolutions plus fines, ou au contraire être simulés de façon satisfaisante avec des grilles plus larges.

Perspectives

Concernant le schéma de panache gaussien développé pour l'expérience PERTRAS, les résultats ont montré que l'incertitude sur la position du pa-

nache rend plus difficile l'étude de sa dispersion. Pour réduire cette incertitude, on pourrait utiliser des champs de vent à haute résolution, par exemple issus d'un modèle régional. De plus, il serait utile de tester ce schéma dans d'autres conditions météorologiques, ou dans la couche limite, afin d'évaluer sa robustesse. Il faudrait pour cela l'améliorer afin de prendre en compte les variations du vent à l'intérieur des fragments de panache simulés (cf. discussion dans le chapitre 5). Les résultats d'autres expériences d'injection de traceur effectuées sur des périodes plus longues que PERTRAS, comme l'expérience CAPTEX, pourraient être utilisées dans ce but.

Dans les modèles globaux, il faudrait appliquer une résolution plus fine pour limiter les effets de la diffusion numérique, mais cela induit des temps de calcul prohibitifs avec les moyens actuels. Une solution alternative consiste à faire simuler le transport des panaches de façon lagrangienne à l'intérieur de la grille du modèle. Ces panaches sous-maille permettraient de garder les avantages des modèles lagrangiens (pas de diffusion numérique, structures fines représentées) et eulériens (possibilité de calculer des bilans globaux) sans trop augmenter le temps de calcul.

3 - Comment le scénario de mélange affecte-t-il l'évolution des concentrations en ozone dans les panaches ?

Résultats obtenus

L'étude présentée dans le chapitre 6 présente le cas de transport d'un panache issu de feux de biomasse, avec un rapport de mélange en ozone initial d'environ 51 ppbv. Les observations in-situ dans le panache trois jours plus tard montrent des concentrations d'ozone très différentes, avec des valeurs d'environ 38 ou 58 ppbv selon la partie du panache où l'on se situe.

Les résultats d'un modèle de chimie lagrangien indiquent que cette évolution ne peut pas être expliquée par la chimie seule. Ce modèle a été couplé avec les résultats du modèle régional WRF-chem sans émission de feux afin de calculer des concentrations de fond pour simuler le mélange. Ainsi, j'ai pu montrer que l'évolution des concentrations dans le panache est fortement liée au mélange et que les inhomogénéités observées dans les concentrations d'ozone en aval sont dues à l'influence d'une masse d'air issue de la haute troposphère sur une partie du panache.

Sans mélange, les simulations du modèle CiTTyCAT indiquent que le panache évolue vers un régime chimique où la perte nette d'ozone est de l'ordre d'1 ppbv/jour, avec des concentrations en NO_x faibles en raison de leur stockage sous forme de HNO₃ et de PAN. Avec mélange, on simule une production nette d'un peu moins de 0.5 ppbv/jour avec le scénario n'incluant

pas l'influence de la haute troposphère ; cette différence est sans doute due au fait que le mélange augmente les concentrations en NO_x dans le panache (plus de production photochimique) et réduit les concentrations en ozone (moins de perte photochimique). Si on inclut l'influence de la haute troposphère dans le scénario de mélange, la production nette d'ozone devient quasi-nulle, principalement en raison des concentrations en ozone plus élevées dans le panache.

Ces taux de production photochimiques sont en désaccord avec les résultats de WRF-chem, qui montrent que les feux de biomasse provoquent une augmentation des rapports de mélange en ozone de 15 ppbv au niveau où le panache est échantillonné, ce qui suppose une production d'ozone bien plus élevée dans les panaches que les résultats présentés dans le chapitre 6 de cette thèse (Thomas et al., 2011). L'explication de ce désaccord pourrait être donnée par l'étude de Alvarado et al. (2010), qui montre que la production d'ozone dans les panache de feux observés durant ARCTAS-B se fait principalement dans les premières heures après injection, et non plus tard durant le transport. Toutefois, la chimie dans les panaches de feux n'est pas très bien connue et il y a donc des incertitudes sur les schémas chimiques utilisés dans les modèles pour représenter l'évolution des panaches de feux.

Toutefois, ces résultats ne permettent pas de reproduire les corrélations entre concentrations d'ozone et de CO observées en aval dans le panache. Les inhomogénéités des concentrations et des régimes de production d'ozone dans le panache suggèrent que les parties du panache échantillonnées en amont et en aval pourraient ne pas représenter suffisamment la distribution des concentrations et des régimes chimiques dans le panache.

Perspectives

Pour étudier cette hypothèse, on pourrait simuler l'évolution des concentrations dans le panache en se basant sur l'ensemble de la distribution des concentrations simulée par le modèle régional eulérien WRF-chem, et pas seulement le long des vols. Il faudrait également améliorer les schémas réactionnels des deux modèles, pour simuler de façon plus réaliste la chimie dans le panache. Enfin, il y a également des incertitudes non négligeables dans les émissions utilisées, particulièrement en lumière de l'étude de Alvarado et al. (2010) qui a montré que les rapports d'émission en NO_x utilisés habituellement pour les feux de biomasse sont trop élevés pour représenter les panaches observés durant ARCTAS-B.

Un autre moyen d'approfondir l'étude de ce panache de feux serait d'effectuer des reconstructions lagrangiennes des observations en ozone le 7 et le 8 juillet, en utilisant la méthode développée par Real et al. (2010) avec

le modèle ZooM-CiTTy. L'évolution chimique des masses d'air y est simulée le long des rétrotrajectoires calculées pour les reconstructions. Dans le cas de Real et al. (2010), le mélange des masses d'air se fait seulement à la fin des trajectoires et des calculs prenant en compte le mélange plus tôt durant le transport ont montré que cela pouvait induire des erreurs sur les taux de réaction en raison de la nature non-linéaire de la chimie atmosphérique. Pour représenter l'intermittance du mélange, je suggère d'appliquer à ces reconstructions un schéma de rétrotrajectoires en arborescence, comme proposé ci-dessus, permettant d'effectuer le mélange entre masses d'air à intervalles réguliers durant le transport.

Les travaux présentés dans cette thèse portent sur le mélange lors du transport à longue distance et sa représentation dans les modèles numériques. Il s'agit d'un phénomène complexe, qui peut être modélisé de façon très différente selon le type d'étude. J'ai montré que l'approche lagrangienne permet de mieux représenter le mélange et la distribution des concentrations dans les panaches âgés. Toutefois, on a besoin des modèles globaux eulériens pour représenter les variations de la composition atmosphérique à grande échelle et pour calculer les bilans d'import/export de polluants nécessaires à l'étude du climat. Pour pouvoir calculer ces bilans tout en représentant avec précision les phénomènes de petite échelle comme le mélange, il paraît nécessaire de combiner les approches eulérienne et lagrangienne lors du transport des polluants à longue distance.

Bibliographie

- R. Adam de Villiers, G. Ancellet, J. Pelon, B. Quennehen, A. Schwarzenboeck, J. F. Gayet, and K. S. Law. Airborne measurements of aerosol optical properties related to early spring transport of mid-latitude sources into the arctic. *Atmospheric Chemistry and Physics*, 10(11) :5011–5030, 2010. doi : 10.5194/acp-10-5011-2010. URL <http://www.atmos-chem-phys.net/10/5011/2010/>.
- M. J. Alvarado, J. A. Logan, J. Mao, E. Apel, D. Riemer, D. Blake, R. C. Cohen, K.-E. Min, A. E. Perring, E. C. Browne, P. J. Wooldridge, G. S. Diskin, G. W. Sachse, H. Fuelberg, W. R. Sessions, D. L. Harrigan, G. Huey, J. Liao, A. Case-Hanks, J. L. Jimenez, M. J. Cubison, S. A. Vay, A. J. Weinheimer, D. J. Knapp, D. D. Montzka, F. M. Flocke, I. B. Pollack, P. O. Wennberg, A. Kurten, J. Crouse, J. M. St. Clair, A. Wisthaler, T. Mikoviny, R. M. Yantosca, C. C. Carouge, and P. Le Sager. Nitrogen oxides and pan in plumes from boreal fires during arctas-b and their impact on ozone : an integrated analysis of aircraft and satellite observations. *Atm. Chem. Phys.*, 10(20) :9739–9760, 2010. doi : 10.5194/acp-10-9739-2010. URL <http://www.atmos-chem-phys.net/10/9739/2010/>.
- O.A. Anisimov, T.V. D.G. Vaughan, C. Callaghan, H. Furgal, T.D. Marchant, H. Prowse, Vilhjálmsson, and J.E. Walsh. *Climate Change 2007 : Impacts, Adaptation and Vulnerability. Contribution of Working Group II to the Fourth Assessment Report of the Intergovernmental Panel on Climate Change*, chapter Polar regions (Arctic and Antarctic), pages 653–685. 2007.
- A. Auby, K. S. Law, F. Ravetta, M. Pommier, H. Schlager, C. Clerbaux, and G. S. Diskin. Modelling transport and mixing of aged pollution plumes in the arctic. *in prep.*, 2011.
- L. A. Barrie. Arctic air pollution - an overview of current knowledge. *Atm. Env.*, 20(4) :643–663, 1986. ISSN 1352-2310. doi : {10.1016/0004-6981(86)90180-0}.

- J.-F. Castell. Effets de l'ozone sur la végétation. <http://www.airparif.asso.fr/effets/vegetation.php>.
- J. Y. N. Cho, R. E. Newell, B. E. Anderson, J. D. W. Barrick, and K. L. Thornhill. Characterizations of tropospheric turbulence and stability layers from aircraft observations. *J. Geophys. Res.*, 108(D20) :8784, doi :10.1029/2002JD002820, 2003.
- A. Colette and G. Ancellet. Variability of the tropospheric mixing and of streamer formation and their impact on the lifetime of observed ozone layers. *Geophys. Res. Lett.*, 33(9), MAY 6 2006. ISSN 0094-8276. doi : {10.1029/2006GL025793}.
- O.R. Cooper, J.L. Moody, D.D. Parrish, M. Trainer, T.B. Ryerson, J.S. Holloway, G. H $\frac{1}{4}$ bler, F.C. Fehsenfeld, S.J. Oltmans, and M. Evans. Trace gas signatures of the airstreams within North Atlantic cyclones : Case studies from the North Atlantic Regional Experiment (NARE'97) aircraft intensive,. *J. Geophys. Res.*, 106(D6) :5437–5456, 2001.
- R. Damoah, N. Spichtinger, R. Servranckx, M. Fromm, E. W. Eloranta, I. A. Razenkov, P. James, M. Shulski, C. Forster, and A. Stohl. A case study of pyro-convection using transport model and remote sensing data. *Atm. Chem. Phys.*, 6 :173–185, 2006.
- R. Delmas, G. Mégie, and V.-H. Peuch. *Physique et Chimie de l'atmosphère*. Editions Belin, 2005.
- C. A. Doswell. *Severe convective storms*, volume 28 of *Meteorological monographs*. American Meteorological Society, 2001.
- M. J. Evans, D. E. Shallcross, K. S. Law, J. O. F. Wild, P. G. Simmonds, T. G. Spain, P. Berrisford, J. Methven, A. C. Lewis, J. B. McQuaid, M. J. Pillinge, B. J. Bandyf, S. A. Penkett, and J. A. Pyle. Evaluation of a Lagrangian box model using field measurements from EASE (Eastern Atlantic Summer Experiment) 1996. *Atm. Env.*, 34 :3843–3863, 2000.
- G.J. Ferber, J.L. Heffter, R.R. Draxler, R.J. Lagomarsino, F.L. Thomas, R.N. Dietz, and C.M. Benkovitz. Cross-appalachian tracer experiment (captex '83) final report. Technical report, NOAA, 1986.
- J. A. Fisher, D. J. Jacob, M. T. Purdy, M. Kopacz, P. Le Sager, C. Carouge, C. D. Holmes, R. M. Yantosca, R. L. Batchelor, K. Strong, G. S. Diskin, H. E. Fuelberg, J. S. Holloway, E. J. Hyer, W. W. McMillan, J. Warner, D. G. Streets, Q. Zhang, Y. Wang, and S. Wu. Source attribution

- and interannual variability of arctic pollution in spring constrained by aircraft (arctas, arcpac) and satellite (airs) observations of carbon monoxide. *Atm. Chem. Phys. Disc.*, 9(5) :19035–19080, 2009. doi : 10.5194/acpd-9-19035-2009. URL <http://www.atmos-chem-phys-discuss.net/9/19035/2009/>.
- M. Fromm, J. Alfred, K. Hoppel, J. Hornstein, R. Bevilacqua, E. Shettle, R. Servranckx, Z. Li, and B. Stocks. Observations of boreal forest fire smoke in the stratosphere by poam iii, sage ii, and lidar in 1998. *Geophys. Res. Lett.*, 27 :1407–1410, 2000.
- H. E. Fuelberg, D. L. Harrigan, and W. Sessions. A meteorological overview of the arctas 2008 mission. *Atm. Chem. Phys.*, 10(2) :817–842, 2010. ISSN 1680-7316.
- F. A. Gifford. Horizontal diffusion in the atmosphere - a lagrangien-dynamical theory. *Atm. Env.*, 16(3) :505–512, 1982. ISSN 1352-2310. doi : {10.1016/0004-6981(82)90159-7}.
- J. B. Gilman, J. F. Burkhart, B. M. Lerner, E. J. Williams, W. C. Kuster, P. D. Goldan, P. C. Murphy, C. Warneke, C. Fowler, S. A. Montzka, B. R. Miller, L. Miller, S. J. Oltmans, T. B. Ryerson, O. R. Cooper, A. Stohl, and J. A. de Gouw. Ozone variability and halogen oxidation within the arctic and sub-arctic springtime boundary layer. *Atm. Chem. Phys.*, 10 (21) :10223–10236, 2010. doi : 10.5194/acp-10-10223-2010. URL <http://www.atmos-chem-phys.net/10/10223/2010/>.
- J. Goode, R. J. Yokelson, D. E. Ward, R. E. Babbit, M. A. Davies, and Wei Min Hao. Measurements of excess O₃, CO₂, CH₄, C₂H₂, HCN, NO, NH₃, HCOOH, CH₃COOH, HCHO and CH₃OH in 1997 Alaskan biomass burning plumes by airborne Fourier transform spectroscopy (AFTIR). *J. Geophys. Res.*, 105 :22,147–22,166, 2000.
- C. Granier, U. Niemeier, J. H. Jungclaus, L. Emmons, P. Hess, J.-F. Lamarque, S. Walters, and G. P. Brasseur. Ozone pollution from future ship traffic in the arctic northern passages. *Geophys. Res. Lett.*, 33, 2006.
- K. R. Greenaway. Experiences with arctic flying weather. *Royal Meteorological Society Canadian Branch*, 1950.
- J.L. Heffter, J.F. Schubert, and G.A. Mead. Atlantic coast unique regional atmospheric tracer experiment (acurate). Technical report, NOAA, 1984.

- M Huber, JC McWilliams, and M Ghil. A climatology of turbulent dispersion in the troposphere. *J. Atmos. Sci.*, 58(16) :2377–2394, 2001. ISSN 0022-4928. doi : {10.1175/1520-0469(2001)058<2377:ACOTDI>2.0.CO;2}.
- D. J. Jacob, J. H. Crawford, H. Maring, A. D. Clarke, J. E. Dibb, L. K. Emmons, R. A. Ferrare, C. A. Hostetler, P. B. Russell, H. B. Singh, A. M. Thompson, G. E. Shaw, E. McCauley, J. R. Pederson, and J. A. Fisher. The arctic research of the composition of the troposphere from aircraft and satellites (arctas) mission : design, execution, and first results. *Atm. Chem. Phys.*, 10(11) :5191–5212, 2010. doi : 10.5194/acp-10-5191-2010. URL <http://www.atmos-chem-phys.net/10/5191/2010/>.
- C. M. Kiley and H. E. Fuelberg. An examination of summertime cyclone transport processes during intercontinental chemical transport experiment (intex-a). *J. Geophys. Res.*, 111(D24), DEC 16 2006. ISSN 0148-0227. doi : {10.1029/2006JD007115}.
- I. Korsakissok and V. Mallet. Development and application of a reactive plume-in-grid model : evaluation over Greater Paris. *Atm. Chem. Phys.*, 10 (18) :8917–8931, 2010. ISSN 1680-7316. doi : {10.5194/acp-10-8917-2010}.
- K. S. Law and A. Stohl. Arctic air pollution : Origins and impacts. *Science*, 315(5818) :1537–1540, 2007. doi : 10.1126/science.1137695. URL <http://www.sciencemag.org/content/315/5818/1537.abstract>.
- B. Legras, B. Joseph, and F. Lefevre. Vertical diffusivity in the lower stratosphere from lagrangian back-trajectory reconstructions of ozone profiles. *J. Geophys. Res.*, 108(D18), Sep 16 2003. ISSN 0148-0227. doi : {10.1029/2002JD003045}.
- B. Legras, I. Pisso, G. Berthet, and F. Lefevre. Variability of the Lagrangian turbulent diffusion in the lower stratosphere. *Atm. Chem. Phys.*, 5 :1605–1622, Jun 22 2005. ISSN 1680-7324.
- J. Lelieveld. Atmospheric chemistry : A missing sink for radicals. *Nature*, 466 :925–926, 2010.
- Q. Liang, A. R. Douglass, B. N. Duncan, R. S. Stolarski, and J. C. Witte. The governing processes and timescales of stratosphere-to-troposphere transport and its contribution to ozone in the arctic troposphere. *Atm. Chem. Phys.*, 9(9) :3011–3025, 2009. doi : 10.5194/acp-9-3011-2009. URL <http://www.atmos-chem-phys.net/9/3011/2009/>.

- DL Mauzerall, JA Logan, DJ Jacob, BE Anderson, DR Blake, JD Bradshaw, B Heikes, GW Sachse, H Singh, and B Talbot. Photochemistry in biomass burning plumes and implications for tropospheric ozone over the tropical south atlantic. *J. Geophys. Res.*, 103(D15) :19281–19282, AUG 20 1998. ISSN 0747-7309.
- J Methven and B Hoskins. The advection of high-resolution tracers by low-resolution winds. *J. Atmos. Sci.*, 56(18) :3262–3285, SEP 15 1999. ISSN 0022-4928. doi : {10.1175/1520-0469(1999)056<3262:TAOHRT>2.0.CO; 2}.
- J. Methven, S. R. Arnold, F. M. O’Connor, H. Barjat, K. Dewey, J. Kent, and N. Brough. Estimating photochemically produced ozone throughout a domain using flight data and a lagrangian model. *J. Geophys. Res.*, 108 (D9), May 7 2003. ISSN 0148-0227. doi : {10.1029/2002JD002955}.
- J. Methven, S. R. Arnold, A. Stohl, M. J. Evans, M. Avery, K. Law, A. C. Lewis, P. S. Monks, D. D. Parrish, C. E. Reeves, H. Schlager, E. Atlas, D. R. Blake, H. Coe, J. Crosier, F. M. Flocke, J. S. Holloway, J. R. Hopkins, J. McQuaid, R. Purvis, B. Rappengluck, H. B. Singh, N. M. Watson, L. K. Whalley, and P. I. Williams. Establishing lagrangian connections between observations within air masses crossing the atlantic during the international consortium for atmospheric research on transport and transformation experiment. *J. Geophys. Res.*, 111(D23), DEC 2 2006. ISSN 0148-0227. doi : {10.1029/2006JD007540}.
- N. J. Middleton and A. S. Goudie. Saharan dust : sources and trajectories. *Transactions of the Institute of British Geographers*, 26(2) :165–181, 2001. ISSN 1475-5661. doi : 10.1111/1475-5661.00013. URL <http://dx.doi.org/10.1111/1475-5661.00013>.
- A. S. Monin and A. M. Yaglom. *Statistical Fluid Mechanics*. MIT Press, 1975.
- J. A. Neuman, J. B. Nowak, L. G. Huey, J. B. Burkholder, J. E. Dibb, J. S. Holloway, J. Liao, J. Peischl, J. M. Roberts, T. B. Ryerson, E. Scheuer, H. Stark, R. E. Stickel, D. J. Tanner, and A. Weinheimer. Bromine measurements in ozone depleted air over the arctic ocean. *Atm. Chem. Phys.*, 10(14) :6503–6514, 2010. doi : 10.5194/acp-10-6503-2010. URL <http://www.atmos-chem-phys.net/10/6503/2010/>.
- R. E. Newell, V. Thouret, J. Y. N. Cho, P. Stoller, A. Marenco, and H. G. Smit. Ubiquity of quasi-horizontal layers in the troposphere. *Nature*, 398 (6725) :316–319, Mar 25 1999. ISSN 0028-0836.

- NRC, editor. *Global sources of local pollution*. The National Academies Press, 2010. Committee on the Significance of International Transport of Air Pollutants, National Research Council.
- OMS. Pollution de l'air - Aide-Mémoire de l'Organisation Mondiale de la Santé No 187, 2000. <https://apps.who.int/inf-fs/fr/am187.html>.
- J. M. Ottino. *The kinematic of mixing : stretching, chaos and transport*. Cambridge Univ. Press., 1989.
- J.-D. Paris, P. Ciais, P. Nédélec, M. Ramonet, B. D. Belan, M. Y. Arshinov, G. S. Golitsyn, I. Granberg, A. Stohl, G. Cayez, G. Athier, F. Boumard, and J.-M. Cousin. The yak-aerosol transcontinental aircraft campaigns : new insights on the transport of CO₂, CO and O₃ across Siberia. *Tellus B*, 60 :551–568, 2008.
- J.-D. Paris, A. Stohl, P. Nédélec, M. Yu. Arshinov, M. V. Panchenko, V. P. Shmargunov, K. S. Law, B. D. Belan, and P. Ciais. Wildfire smoke in the Siberian Arctic in summer : source characterization and plume evolution from airborne measurements. *Atmospheric Chemistry and Physics*, 9(23) :9315–9327, 2009. doi : 10.5194/acp-9-9315-2009. URL <http://www.atmos-chem-phys.net/9/9315/2009/>.
- I. Pissot, E. Real, K. S. Law, B. Legras, N. Bousseres, J. L. Attie, and H. Schlager. Estimation of mixing in the troposphere from Lagrangian trace gas reconstructions during long-range pollution plume transport. *J. Geophys. Res.*, 114, Oct 3 2009. ISSN 0148-0227. doi : {10.1029/2008JD011289}.
- M. Pommier, K. S. Law, C. Clerbaux, S. Turquety, D. Hurtmans, J. Hadji-Lazarou, P.-F. Coheur, H. Schlager, G. Ancellet, J.-D. Paris, P. Nédélec, G. S. Diskin, J. R. Podolske, J. S. Holloway, and P. Bernath. Iasi carbon monoxide validation over the Arctic during polar-cat spring and summer campaigns. *Atm. Chem. Phys. Disc.*, 10(6) : 14445–14494, 2010. doi : 10.5194/acpd-10-14445-2010. URL <http://www.atmos-chem-phys-discuss.net/10/14445/2010/>.
- Michael J. Prather, Xin Zhua, Susan E. Strahan, Stephen D. Steenrod, and Jose M. Rodriguez. Quantifying errors in trace species transport modeling. *Proceedings of the National Academy of Sciences of the United States of America*, 105(50) :19617–19621, DEC 16 2008. ISSN 0027-8424. doi : {10.1073/pnas.0806541106}.

- J. A. Pudykiewicz. Application of adjoint tracer transport equations for evaluating source parameters. *Atm. Env.*, 32(17) :3039–3050, Sep 1998. ISSN 1352-2310.
- T. A. M. Pugh, M. Cain, J. Methven, O. Wild, S. R. Arnold, E. Real, K. S. Law, K. M. Emmerson, S. M. Owen, J. A. Pyle, C. N. Hewitt, and A. R. MacKenzie. A lagrangian model of air-mass photochemistry and mixing using a trajectory ensemble : the cambridge tropospheric trajectory model of chemistry and transport (cittycat) version 4.2. *Geoscientific Model Development Discussions*, 4(3) :2469–2544, 2011. doi : 10.5194/gmdd-4-2469-2011. URL <http://www.geosci-model-dev-discuss.net/4/2469/2011/>.
- A Pumir, BI Shraiman, and M Chertkov. Geometry of Lagrangian dispersion in turbulence. *Phys. Rev. Lett.*, 85(25) :5324–5327, DEC 18 2000. ISSN 0031-9007. doi : {10.1103/PhysRevLett.85.5324}.
- J. A. Pyle and A. M. Zavody. The modeling problems associated with spatial averaging. *R. Meteorol. Soc.*, 116(493) :753–766, Apr 1990. ISSN 0035-9009.
- B. Quennehen, A. Schwarzenboeck, J. Schmale, J. Schneider, H. Sodemann, A. Stohl, G. Ancellet, S. Crumeyrolle, and K. S. Law. Physical and chemical properties of pollution aerosol particles transported from north america to greenland as measured during the polarcat summer campaign. *Atm. Chem. Phys. Disc.*, 11(4) :11771–11808, 2011. doi : 10.5194/acpd-11-11771-2011. URL <http://www.atmos-chem-phys-discuss.net/11/11771/2011/>.
- P. K. Quinn, T. L. Miller, T. S. Bates, J. A. Ogren, E. Andrews, and G. E. Shaw. A 3-year record of simultaneously measured aerosol chemical and optical properties at Barrow, Alaska. *J. Geophys. Res.*, 107(D11), JUN 2002. ISSN 0747-7309. doi : {10.1029/2001JD001248}.
- P. K. Quinn, G. Shaw, E. Andrews, E. G. Dutton, T. Ruoho-Airola, and S. L. Gong. Arctic haze : current trends and knowledge gaps. *Tellus series B*, 59(1) :99–114, FEB 2007. ISSN 0280-6509. doi : {10.1111/j.1600-0889.2006.00238.x}.
- J. T. Randerson, G. R. Van der Werf, L. Giglio, G. J. Collatz, and P. S. Kasibhatla. Global fire emissions database, version 2 (gfedv2.1). data set. available on-line (<http://daac.ornl.gov/>), 2007. from Oak Ridge National Laboratory Distributed Active Archive Center, Oak Ridge, Tennessee, U.S.A.

- Y. Rastigejev, R. Park, M. P. Brenner, and D. J. Jacob. Resolving intercontinental pollution plumes in global models of atmospheric transport. *J. Geophys. Res.*, 115, Jan 22 2010. ISSN 0148-0227. doi : {10.1029/2009JD012568}.
- F. Ravetta, G. Ancellet, A. Colette, and H. Schlager. Long-range transport and tropospheric ozone variability in the western mediteranean region during the Intercontinental Transport of Ozone and Precursors (ITOP-2004) campaign. *J. Geophys. Res.*, doi :10.1029/2006JD007724 : doi :10.1029/2006JD007576, 2007.
- E. Real, K. S. Law, B. Weinzierl, 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. *J. Geophys. Res.*, 112(D10), May 8 2007. ISSN 0148-0227. doi : {10.1029/2006JD007576}.
- E. Real, K. S. Law, H. Schlager, A. Roiger, H. Huntrieser, J. Methven, M. Cain, J. Holloway, J. A. Neuman, T. Ryerson, F. Flocke, J. de Gouw, E. Atlas, S. Donnelly, and D. Parrish. Lagrangian analysis of low altitude anthropogenic plume processing across the north atlantic. *Atm. Chem. Phys.*, 8(24) :7737–7754, 2008. ISSN 1680-7316.
- E. Real, I. Pisso, K. S. Law, B. Legras, N. Boussez, H. Schlager, A. Roiger, and J. L. Attie. Toward a novel high-resolution modeling approach for the study of chemical evolution of pollutant plumes during long-range transport. *J. Geophys. Res.*, 115, Jun 18 2010. ISSN 0148-0227. doi : {10.1029/2009JD011707}.
- Elsa Real. *Caractérisation de la pollution intercontinentale au dessus de l’Atlantique Nord*. PhD thesis, Université Pierre et Marie Curie, 2008.
- A. Roiger, H. Schlager, A. Schäfler, H. Huntrieser, M. Scheibe, H. Aufm-hoff, O. R. Cooper, H. Sodemann, A. Stohl, J. Burkhart, M. Lazzara, C. Schiller, K. S. Law, and F. Arnold. In-situ observation of asian pollution transported into the arctic lowermost stratosphere. *Atm. Chem. Phys. Disc.*, 11(5) :16265–16310, 2011. doi : 10.5194/acpd-11-16265-2011. URL <http://www.atmos-chem-phys-discuss.net/11/16265/2011/>.
- H. Schlager, P. Konopka, P. Schulte, U. Schumann, H. Ziereis, F. Arnold, M. Klemm, D. E. Hagen, P. D. Whitefield, and J. Ovarlez. In situ observations of air traffic emission signatures in the North Atlantic flight

- corridor. *J. Geophys. Res.*, 102(D9) :10739–10750, MAY 20 1997. doi : {10.1029/96JD03748}.
- J. Schmale, J. Schneider, G. Ancellet, B. Quennehen, A. Stohl, H. Sodemann, J. Burkhardt, T. Hamburger, S. R. Arnold, A. Schwarzenboeck, S. Borrmann, and K. S. Law. Source identification and airborne chemical characterisation of aerosol pollution from long-range transport over greenland during polarcat summer campaign 2008. *Atm. Chem. Phys. Disc.*, 11(3) :7593–7658, 2011. doi : 10.5194/acpd-11-7593-2011. URL <http://www.atmos-chem-phys-discuss.net/11/7593/2011/>.
- J. Schmale, J. Schneider, T. Jurkat, C. Voigt, H. Kalesse, M. Rautenhaus, M. Lichtenstern, H. Schlager, G. Ancellet, F. Arnold, M. Gerding, I. Mattis, M. Wendisch, and S. Borrmann. Aerosol layers from the 2008 eruptions of mount okmok and mount kasatochi : In situ upper troposphere and lower stratosphere measurements of sulfate and organics over europe. *J. Geophys. Res.*, 115, SEP 17 2010. ISSN 0148-0227. doi : {10.1029/2009JD013628}.
- Johannes Schneider, Silke S. Hings, B. Nele Hock, Silke Weimer, Stephan Borrmann, Markus Fiebig, Andreas Petzold, Reinhold Busen, and Bernd Kaercher. Aircraft-based operation of an aerosol mass spectrometer : Measurements of tropospheric aerosol composition. *J. Aerosol. Sci.*, 37(7) :839–857, JUL 2006. ISSN 0021-8502. doi : {10.1016/j.jaerosci.2005.07.002}.
- U. Schumann, P. Konopka, R. Baumann, R. Busen, T. Gerz, H. Schlager, P. Schulte, and H. Volkert. Estimate of diffusion parameters of aircraft exhaust plumes near the tropopause from nitric-oxide and turbulence measurements. *J. Geophys. Res.*, 100(D7) :14147–14162, JUL 20 1995. ISSN 0148-0227. doi : {10.1029/95JD01277}.
- W. R. Sessions, H. E. Fuelberg, R. A. Kahn, and D. M. Winker. An investigation of methods for injecting emissions from boreal wildfires using wrf-chem during arctas. *Atm. Chem. Phys.*, 11(12) :5719–5744, 2011. doi : 10.5194/acp-11-5719-2011. URL <http://www.atmos-chem-phys.net/11/5719/2011/>.
- B. I. Shraiman and E. D. Siggia. Scalar turbulence. *Nature*, 405(6787) : 639–646, JUN 8 2000. ISSN 0028-0836. doi : {10.1038/35015000}.
- S. Sillman, J. A. Logan, and S. C. Wofsy. A regional scale-model for ozone in the unidet-states with subgrid representation of urban and power-plant plumes. *J. Geophys. Res.*, 95(D5) :5731–5748, APR 20 1990. ISSN 0148-0227. doi : {10.1029/JD095iD05p05731}.

- I. Smagorinski. General circulation experiments with the primitive equations. i. the basic experiment. *Mon. Weather Rev.*, 91(3) :99–163, 1963.
- H. Sodemann, M. Pommier, S. R. Arnold, S. A. Monks, K. Stebel, J. F. Burkhart, J. W. Hair, G. S. Diskin, C. Clerbaux, P.-F. Coheur, D. Hurtmans, H. Schlager, A.-M. Blechschmidt, J. E. Kristjánsson, and A. Stohl. Episodes of cross-polar transport in the arctic troposphere during july 2008 as seen from models, satellite, and aircraft observations. *Atm. Chem. Phys.*, 11(8) :3631–3651, 2011. doi : 10.5194/acp-11-3631-2011. URL <http://www.atmos-chem-phys.net/11/3631/2011/>.
- 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. Muller, 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. *J. Geophys. Res.*, 111 (D8), APR 26 2006. doi : {10.1029/2005JD006338}.
- A. Stohl. Characteristics of atmospheric transport into the Arctic troposphere. *J. Geophys. Res.*, 111(D11), JUN 9 2006. ISSN 0148-0227. doi : {10.1029/2005JD006888}.
- A Stohl, M Hittenberger, and G Wotawa. Validation of the lagrangian particle dispersion model flexpart against large-scale tracer experiment data. *Atm. Env.*, 32(24) :4245–4264, DEC 1998. ISSN 1352-2310. doi : {10.1016/S1352-2310(98)00184-8}.
- A. Stohl, O. R. Cooper, and P. James. A cautionary note on the use of meteorological analysis fields for quantifying atmospheric mixing. *J. Atmos. Sci.*, 61(12) :1446–1453, Jun 2004. ISSN 0022-4928.
- A. Stohl, C. Forster, A. Frank, P. Seibert, and G. Wotawa. Technical note : The lagrangian particle dispersion model flexpart version 6.2. *Atm. Chem. Phys.*, 5 :2461–2474, Sep 21 2005. ISSN 1680-7324.
- A. Stohl, T. Berg, J. F. Burkhart, A. M. Fjaeraa, C. Forster, A. Herber, O. Hov, C. Lunder, W. W. McMillan, S. Oltmans, M. Shiobara, D. Simpson, S. Solberg, K. Stebel, J. Strom, K. Torseth, R. Treffeisen, K. Virkkunen, and K. E. Yttri. Arctic smoke - record high air pollution levels in the

- european arctic due to agricultural fires in eastern europe in spring 2006. *Atm. Chem. Phys.*, 7 :511–534, Jan 26 2007. ISSN 1680-7316.
- D. G. H. Tan, P. H. Haynes, A. R. MacKenzie, and J. A. Pyle. Effects of fluid-dynamical stirring and mixing on the deactivation of stratospheric chlorine. *J. Geophys. Res.*, 103(D1) :1585–1605, Jan 20 1998. ISSN 0747-7309.
- J. L. Thomas, J.-C. Raut, K.S. Law, G. Ancellet, P. Rasch, J. Fast, G. Pfister, and L. Emmons. Contribution of anthropogenic and fire pollution from north america to elevated ozone in plumes transported to the arctic during summer 2008. *in prep.*, 2011.
- H. Van Dop, R. Addis, G. Fraser, F. Girardi, G. Graziani, Y. Inoue, N. Kelly, W. Klug, A. Kulmala, K. Nodop, and J. Pretel. ETEX : A European tracer experiment ; Observations, dispersion modelling and emergency response. *Atm. Env.*, 32(24) :4089–4094, Dec 1998. ISSN 1352-2310.
- C. Warneke, R. Bahreini, J. Brioude, C. A. Brock, J. A. de Gouw, D. W. Fahey, K. D. Froyd, J. S. Holloway, A. Middlebrook, L. Miller, S. Montzka, D. M. Murphy, J. Peischl, T. B. Ryerson, J. P. Schwarz, J. R. Spackman, and P. Veres. Biomass burning in siberia and kazakhstan as an important source for haze over the alaskan arctic in april 2008. *Geophys. Res. Lett.*, 36, 2009.
- O. Wild and H. Akimoto. Intercontinental transport of ozone and its precursors in a three-dimensional global CTM. *J. Geophys. Res.*, 106(D21) : 27729–27744, Nov 16 2001. ISSN 0747-7309.
- O. Wild and M. J. Prather. Global tropospheric ozone modeling : Quantifying errors due to grid resolution. *J. Geophys. Res.*, 111(D11), Jun 9 2006. ISSN 0148-0227. doi : {10.1029/2005JD006605}.
- O. Wild, K. S. Law, D. McKenna, B. Bandy, S. Penkett, and J. Pyle. Photochemical trajectory modeling studies of the north atlantic region during august 1993. *J. Geophys. Res.*, 101(D22) :29269–29288, 1996.
- R. Wilson, F. Dalaudier, and H. Luce. Can one detect small-scale turbulence from standard meteorological radiosondes? *Atmos. Meas. Tech.*, 4 :795–804, doi :10.5194/amt-4-795-2011, 2011.