



HAL
open science

Etude des sources d’ozone avec une approche lagrangienne

Gaëlle Clain

► **To cite this version:**

Gaëlle Clain. Etude des sources d’ozone avec une approche lagrangienne. Océan, Atmosphère. Université de la Réunion, 2009. Français. NNT : . tel-01057143

HAL Id: tel-01057143

<https://theses.hal.science/tel-01057143>

Submitted on 21 Aug 2014

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 de la Réunion

Spécialité Physique de l'Atmosphère

présentée par

Gaëlle Marie CLAIN

pour obtenir le grade de DOCTEUR de l'Université de la Réunion

Sujet de la thèse

**Etude des sources d'ozone avec une approche
lagrangienne**

Soutenue publiquement le 7 septembre 2009 devant le jury composé de :

Pr. Robert DELMAS	Directeur de thèse
Dr. Jean - Luc BARAY	Codirecteur de thèse
Pr. Gérard ANCELLET	Rapporteur
Dr. Thierry LEBLANC	Rapporteur
Pr. Jean – Pierre CAMMAS	Examineur
Dr. Philippe KECKHUT	Examineur

à ma famille.

Remerciements

Ce travail a été proposé par Serge Baldy, Professeur à l'Université de la Réunion et Directeur du LPA jusqu'en 2006 et par Jean Luc Baray, Physicien adjoint au LACy. Je tiens à les remercier chaleureusement pour m'avoir offert cette opportunité d'aborder le métier de chercheur.

Cette thèse a été financée par une bourse Doctorale de la Région Réunion.

Robert Delmas, Directeur de recherche au CNRS et Directeur du LACy, a accepté de reprendre la direction de ma thèse à la suite du départ à la retraite de Serge Baldy en 2006. Qu'il soit vivement remercié ici pour son encadrement et ses conseils. C'est un privilège pour moi de l'avoir eu comme Directeur de thèse et d'avoir bénéficié de son expérience et de son jugement.

Je remercie tout particulièrement Jean – Luc Baray, mon encadrant principal. Je tiens à saluer son professionnalisme que j'admire et je le remercie pour le temps et l'énergie qu'il a consacré à me diriger et m'accompagner dans ce travail. Sa disponibilité et son soutien ont été déterminants pour l'aboutissement de cette thèse.

Jean Pierre Cammas, Physicien au Laboratoire d'Aérodynamique, a contribué à l'élaboration de mon sujet de thèse. A de nombreuses reprises, ses éclaircissements avisés m'ont permis de progresser dans ce travail. Je suis particulièrement heureuse de le remercier pour ces raisons et aussi pour avoir accepté de participer à mon jury.

Je remercie Gérard Ancellet, Directeur de recherche au CNRS et Thierry Leblanc du JPL d'avoir accepté d'être rapporteurs à mon jury de thèse. Je suis très honorée de bénéficier de leur expérience et de leurs points de vue avisés sur ce travail.

Philippe Keckhut, Physicien adjoint à l'IPSL, m'a fait la faveur d'accepter de participer à mon jury. Je le remercie aussi chaleureusement pour l'intérêt qu'il a manifesté pour ce travail.

Une partie de ce travail a été réalisée au Laboratoire d'Aérodynamique en collaboration avec Jean-Luc Attié, Professeur à l'Université Paul Sabatier. Je tiens à le remercier vivement pour sa gentillesse et sa disponibilité.

Je remercie Cathy Lioussé, chargée de recherche au CNRS au Laboratoire d'Aérodynamique et Bruno Guillaume, pour le temps consacré à cette collaboration, leur disponibilité et leur amabilité.

Mes premiers pas dans l'enseignement supérieur ont été parrainés par Françoise Posny, Maître de Conférences au LACy et par Antoine Badr, professeur agrégé à l'Université de la Réunion. Je suis très chanceuse d'avoir bénéficié de leur expérience. Qu'ils reçoivent ici l'assurance de ma gratitude pour leur soutien et l'aide qu'ils m'ont apportée à de nombreuses occasions.

Je remercie mes collègues chercheurs, enseignants chercheurs, doctorants, ingénieurs d'étude, techniciens et personnels administratifs pour ces années passées au sein du LACy. Nombre d'entre eux m'ont prouvé maintes fois leur soutien et leur bienveillance.

Les encouragements et le soutien de mes amis ont beaucoup compté dans la réalisation de ma thèse. Merci Florence, Laurence, Jean Philippe et mes chers autres d'avoir supporté les hauts et les bas et de m'avoir apporté l'oxygène et le recul nécessaires.

Enfin, je remercie ma famille pour leur foi en moi.

Table des Matières

<u>TABLE DES MATIERES</u>	<u>1</u>
<u>INTRODUCTION</u>	<u>5</u>
<u>1 DYNAMIQUE DU COURANT JET SUBTROPICAL ET CONTEXTE GEOPHYSIQUE REGIONAL</u>	<u>13</u>
1.1 INTRODUCTION	14
1.2 DYNAMIQUE DU COURANT JET SUBTROPICAL	14
1.2.1 INTRODUCTION	14
1.2.2 EQUILIBRE DU VENT THERMIQUE	15
1.2.1 CIRCULATIONS AGEOSTROPHIQUES	17
1.2.3 EFFETS DE COURBURE	18
1.2.4 FOLIATION DE TROPOPAUSE EN BORDURE DU COURANT JET	19
1.2.5 GOUTTES FROIDES	20
1.2.6 INTERACTION DES CYCLONES TROPICAUX AVEC LE JET SUBTROPICAL	21
1.3 CONTEXTE GEOPHYSIQUE REGIONAL	22
1.3.1 SITUATION GEOPHYSIQUE DE LA REUNION	22
1.3.2 LES SOURCES D'OZONE A LA REUNION	23
1.3.3 SITUATION GEOPHYSIQUE D'IRENE	25
1.3.4 LES SOURCES D'OZONE A IRENE	26
1.4 CONCLUSION DU PREMIER CHAPITRE	27
<u>2 BASE DE DONNEES ET OUTILS</u>	<u>29</u>
2.1 INTRODUCTION	30
2.2 DONNEES D'OBSERVATION DE L'OPAR	30
2.2.1 RADIOSONDES	31
2.2.2 LIDAR DIAL OZONE TROPOSPHERE	32
2.2.3 DONNEES DASIBI	33
2.3 AUTRES DONNEES D'OBSERVATION	34
2.3.1 MOZAIC	34
2.3.2 RADIOSONDAGES AFS	35
2.3.3 DONNEES SATELLITAIRES	36
i MOPITT	36
ii Surfaces brûlées L3JRC	36
2.4 OUTILS DE MODELISATION	37
2.4.1 ECMWF	37
2.4.2 ORISAM-TM4	37
2.4.3 FLEXPART	38
2.4.4 GIRAFE	38
2.4.5 MIMOSA	38
2.4.6 LACYTRAJ	39
2.4.6.1 La méthode RDF	39
2.4.6.2 Description technique de LACYTRAJ	40
2.4.6.3 Comparaison de trajectoires LACYTRAJ/FLEXPART	40
2.4.6.4 Comparaison des distributions RDF-LACYTRAJ avec les données d'observation	44
A Vorticité Potentielle	44
i Comparaison Lacytraj - MIMOSA	44
ii Comparaison Lacytraj - profils lidar dial	45

B Vapeur d'eau	48
2.5 CONCLUSION DU SECOND CHAPITRE	53
<u>3 CLIMATOLOGIE REGIONALE DE L'OZONE TROPOSPHERIQUE ET ETUDE DES TRACEURS DE FEUX DE BIOMASSE</u>	<u>55</u>
3.1 INTRODUCTION	56
3.2 CLIMATOLOGIE DE L'OZONE	57
3.2.1 MESURES EN BASSES COUCHES : COMPARAISON DASIBI – RADIOSONDES	57
Observations	57
Discussions	58
3.2.2 HAUTEUR DE LA TROPOPAUSE	60
3.2.3 PROFILS SAISONNIERS LIDAR RADIOSONDES	62
Observations	62
Discussions	63
3.2.1 DISCUSSION SUR L'UTILISATION CLIMATOLOGIQUE DES DONNEES.	64
3.2.4 ETUDE COMPARATIVE DE LA CLIMATOLOGIE REGIONALE DE L'OZONE	65
Observations	65
Discussions	67
3.2.5 TENDANCES DE L'OZONE TROPOSPHERIQUE	68
Observations	70
Discussions	75
3.3 ETUDE DES TRACEURS DE FEUX DE BIOMASSE	77
3.3.1 VARIABILITE SAISONNIERE DU CO DE MOPITT	77
Observations	78
Discussions	79
3.3.2 EVALUATION DES SOURCES LOCALES DE MONOXYDE DE CARBONE	80
Observations	80
Discussions	82
3.3.3 CHAMPS DE CARBONE SUIE DE ORISAM-TM4	82
Observations	84
Discussions	84
3.3.4 COMPARAISONS DES CHAMPS D'OZONE DE ORISAM-TM4 AUX DONNEES D'OBSERVATION DE LA REUNION ET D'IRENE.	85
Observations	85
Discussions	86
3.4 CONCLUSIONS ET PERSPECTIVES DU TROISIEME CHAPITRE	90
<u>4 ANALYSE LAGRANGIENNE DES ANOMALIES POSITIVES D'OZONE</u>	<u>93</u>
4.1 INTRODUCTION	94
4.2 LA VORTICITE POTENTIELLE COMME TRACEUR STRATOSPHERIQUE	95
4.3 ETUDE NUMERIQUE DE LA CLIMATOLOGIE DU JET SUBTROPICAL	96
4.4 METHODE DE CLASSIFICATION DES ANOMALIES POSITIVES D'OZONE	98
4.5 DISCUSSION SUR LA CONSISTANCE DU JEU DE DONNEES	101
4.6 DISTRIBUTIONS INTER ANNUELLE ET MENSUELLE DES STE DETECTEES	103
Observations	103
Discussions	104
4.7 DISTRIBUTIONS MENSUELLES	105
Observations	105
Discussions	107
4.8 DISTRIBUTION VERTICALE DES ANOMALIES POSITIVES D'OZONE	109
Observations	109

Discussions	111
4.9 DISTRIBUTION DES RAPPORTS DE MELANGE EN OZONE	111
Observations	112
Discussions	114
4.10 CONCLUSIONS ET PERSPECTIVES DU QUATRIEME CHAPITRE	115
CONCLUSION GENERALE	119
<hr/>	
ABSTRACT	125
<hr/>	
ANNEXE A	127
<hr/>	
ANNEXE B	141
<hr/>	
ANNEXE C	145
<hr/>	
BIBLIOGRAPHIE	153
<hr/>	
TABLE DES FIGURES	165
<hr/>	
INDEX DES ABBREVIATIONS	168
<hr/>	

Introduction

L'ozone O₃ est un gaz trace atmosphérique composé de trois atomes d'oxygène localisé à 90% dans la stratosphère. Il y est formé suite à la dissociation d'une molécule de dioxygène O₂ sous l'effet du rayonnement ultra violet suffisamment énergétique ($\lambda < 242$ nm) pour rompre la liaison entre les atomes d'oxygène. Les atomes d'oxygène excités O(1D) ainsi libérés se lient alors aux molécules de dioxygène et forment l'ozone. Dans la troposphère, l'ozone est un polluant secondaire issu d'une série complexe de réactions photochimiques (Delmas, Mégie et Peuch, 2005) mettant en jeu des polluants primaires tels que le dioxyde d'azote et certains composés carbonés (CO, COV). Ces polluants primaires peuvent être issus de la pollution anthropique mais aussi issus de l'activité biologique dans les sols (31% des NO_x), de l'activité électrique dans l'atmosphère (NO_x), des émissions naturelles de végétation (COV) et des émissions de feux de biomasse, ces derniers n'ayant pas toujours une cause anthropique. La source stratosphérique participe aussi au bilan de l'ozone troposphérique par le biais d'échanges stratosphère – troposphère induits par différents mécanismes dynamiques à méso échelle tels que les foliations de tropopause liées à l'activité du courant jet au niveau des barrières dynamiques, la formation et la dissipation des gouttes froides et l'interaction entre le courant jet et la convection tropicale profonde.

Les effets de l'ozone sont différents en fonction de sa localisation dans l'atmosphère. Dans la stratosphère, il joue un rôle protecteur de filtrage des rayonnements UV nocifs pour le vivant. Dans la troposphère, les effets de l'ozone sont multiples : en basse troposphère, l'ozone issu des pollutions urbaines et industrielles est un irritant des muqueuses respiratoires et oculaires. Dans la troposphère, l'ozone joue un rôle important en participant à la formation de radicaux hydroxyle (OH) qui oxydent les polluants présents dans l'atmosphère (CH₄, NO, NMHC, NO₂, CO ...). Enfin, il a été montré que l'ozone troposphérique se comporte comme un gaz à effet de serre : en effet, les travaux de Forster and Shine (1997) ont montré qu'un enrichissement de 10 % de l'ozone troposphérique par tranche de 1 km conduit à un accroissement de la température de surface (figure 0.1). Cet effet est à son maximum pour une augmentation de l'ozone au niveau de la tropopause. La figure 0.2 (rapport IPCC 2001) présente les forçages radiatifs globaux moyens dus à l'accroissement de la concentration atmosphérique des polluants anthropiques depuis l'ère préindustrielle (1750) à nos jours. Le forçage induit par l'évolution de l'ozone troposphérique a fait progresser de +0.35 W.m⁻² le forçage radiatif dû aux gaz à effets de serre anthropiques.

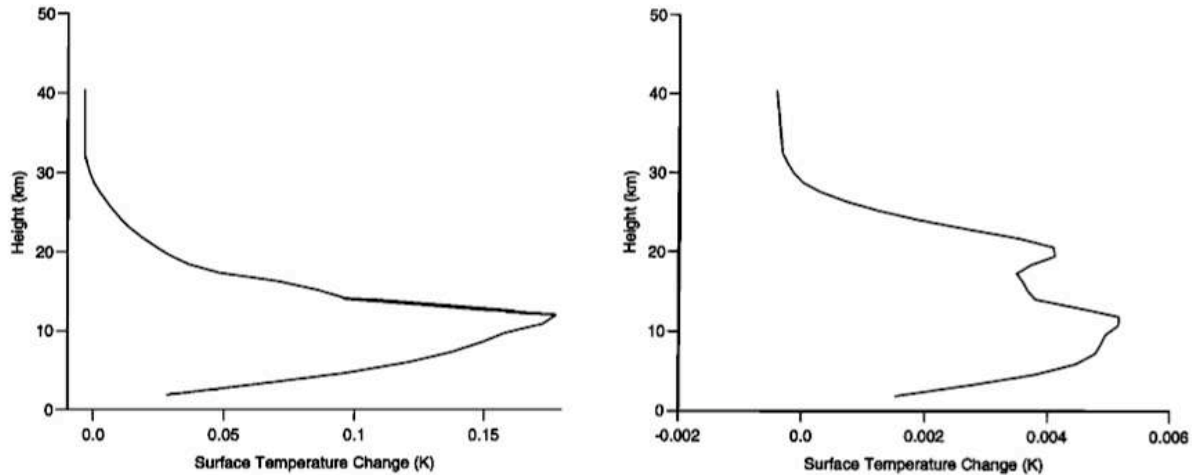


Figure 0.1 Augmentation de la température de surface en fonction d'une augmentation constante de l'ozone troposphérique et stratosphérique. La figure de gauche correspond à une augmentation de 10 DU d'ozone par tranche de 1km. La figure de droite correspond à une augmentation de 10 % du contenu en ozone pour chaque tranche atmosphérique de 1km. Ces profils sont issus d'un modèle radiatif convectif et représentent un profil atmosphérique moyen global. D'après Forster et Shine, 1997.

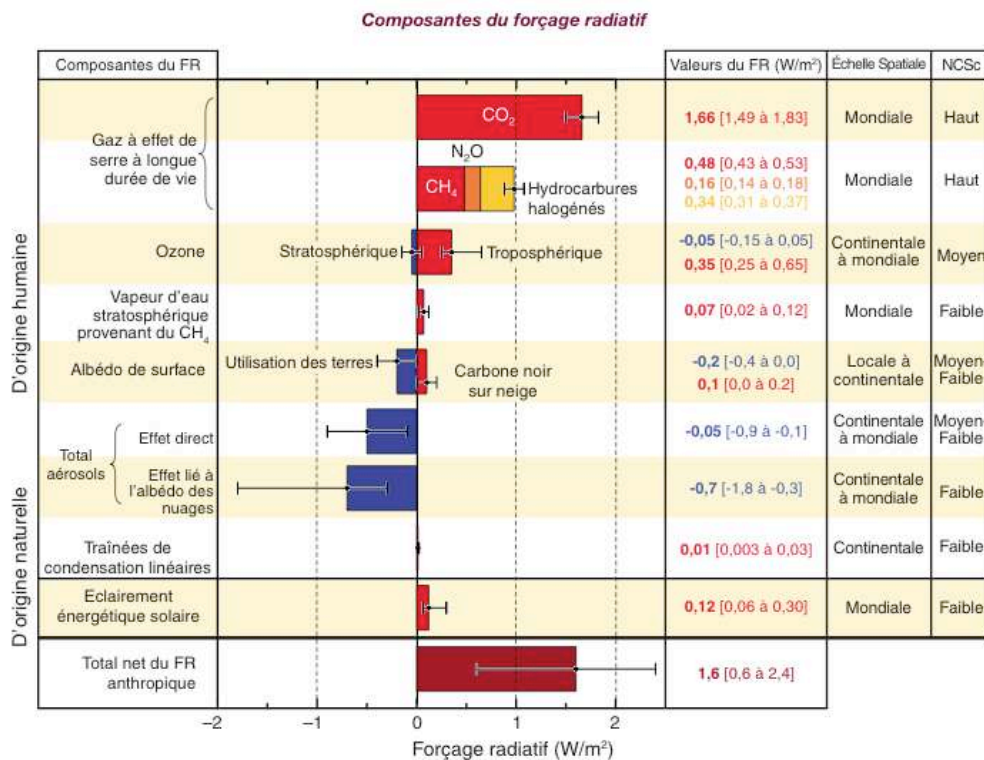


Figure 0.2 Les composantes du forçage radiatif moyen global de l'ère préindustrielle (1750) à nos jours ainsi que l'échelle spatiale type et le niveau de compréhension scientifique. D'après le rapport IPCC 2007.

L'ozone troposphérique a un impact à la fois sur la capacité oxydante de l'atmosphère et sur le bilan radiatif de terrestre. Ces différents enjeux expliquent que le bilan de l'ozone troposphérique soit devenu un sujet de recherche important au cours des dernières décennies, s'inscrivant dans la problématique de la connaissance des équilibres chimique et radiatif de l'atmosphère.

L'influence de l'ozone troposphérique sur le climat est une question complexe qui met en jeu plusieurs éléments : la distribution spatiale des sources de précurseurs (figures 0.3 à 0.5), la durée de vie de ces derniers, la variabilité et les caractéristiques dynamiques des mécanismes d'échanges stratosphère – troposphère (STE) ainsi que la réversibilité de ces échanges. En considérant l'inhomogénéité de la distribution globale des sources de précurseurs d'ozone et la variabilité spatiale et temporelle des mécanismes responsables de STE, on comprend que l'impact de l'ozone troposphérique sur les équilibres chimique et radiatif de l'atmosphère peut s'appréhender comme une problématique régionale. De plus, il est essentiel de documenter l'ozone sur l'ensemble du profil troposphérique car son impact radiatif est variable en fonction de l'altitude (figure 0.1).

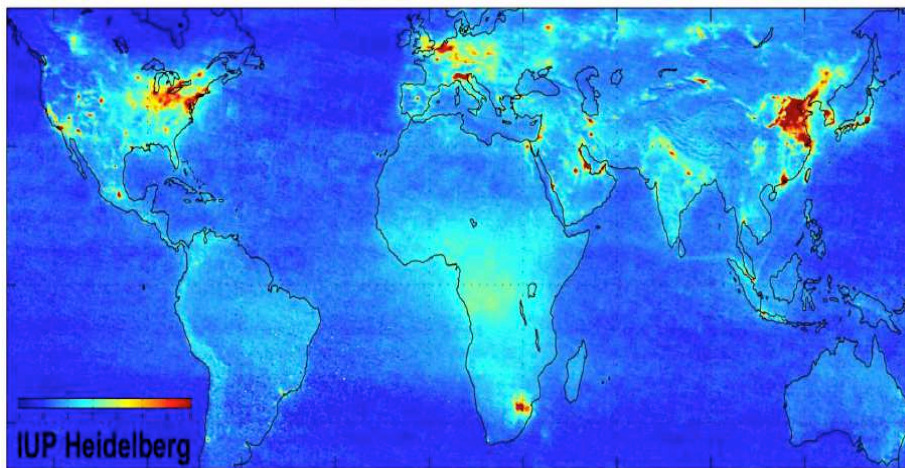


Figure 0.3 Une illustration de l'inhomogénéité des émissions de polluants : carte globale du NO₂ troposphérique mesuré par l'instrument SCHIAMACHY à bord du satellite ENVISAT de l'ESA.

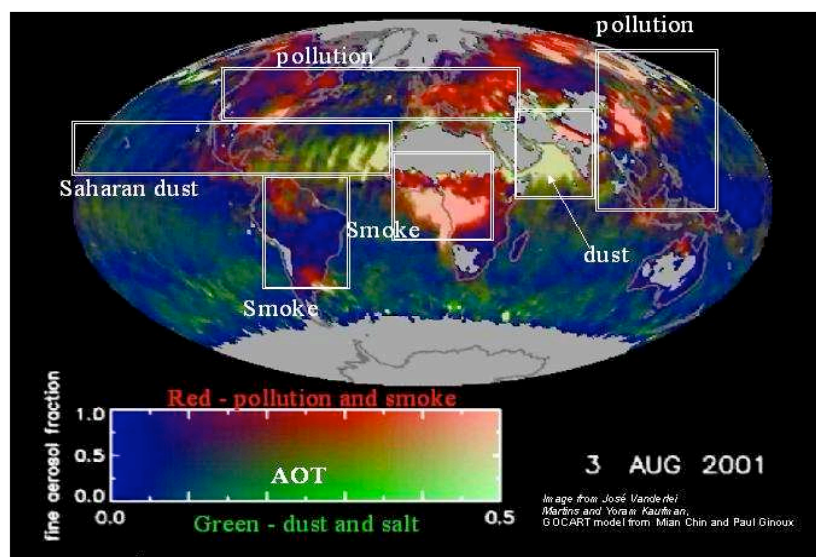


Figure 0.4 Une autre illustration de la répartition régionale des émissions de polluants. Cette figure, issue du modèle GOCART permet de visualiser la répartition spatiale de panaches de polluants d'origine anthropique et d'aérosols le 3 août 2001. image de J. Vanderlei.

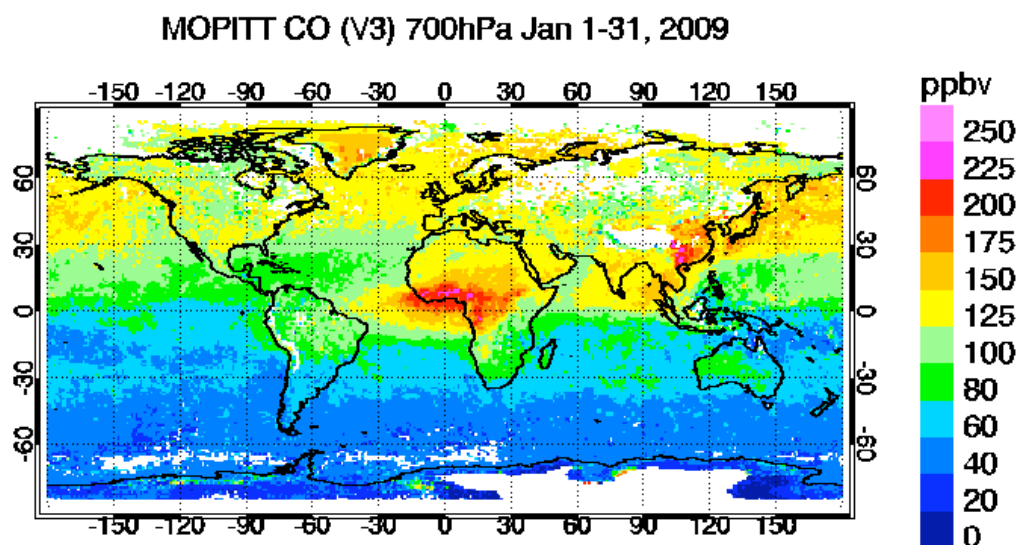


Figure 0.5 Carte globale du rapport de mélange atmosphérique en monoxyde de carbone au niveau 700 hPa moyennée pour le mois de Janvier 2009.

Il a été démontré que La Réunion subit à la fois l'influence des feux de biomasse d'Afrique du Sud et de Madagascar, mais aussi l'influence d'intrusions stratosphériques. Situé à 21° Sud, le site est fortement influencé par le courant jet subtropical en hiver austral (Juin-Juillet-Août) mais aussi au printemps austral (Septembre – Octobre – Novembre).

Différents mécanismes dynamiques conduisant à des intrusions stratosphériques dans la région ont été documentés sous forme de cas d'étude : intrusions de masses d'air troposphérique via une foliation de tropopause (Baray et al., 1998), un cas de goutte froide à moyenne latitude (Baray et al., 2003). L'influence de la convection tropicale profonde en relation avec l'activité du courant jet a aussi été documentée en tant que situation dynamique susceptible de conduire à un échange stratosphère – troposphère (Leclair de Bellevue et al., 2006).

Les sources photochimiques ont également été identifiées dans la région: l'influence des précurseurs d'ozone émis pendant la saison des feux de biomasse en Afrique du Sud et à Madagascar transportés a été reliée à une augmentation de l'ozone troposphérique mesuré à La Réunion (Baldy et al., 1996, Taupin et al. 2002). La portée verticale de l'influence des feux de biomasse a été évaluée entre 5 km et 12 km d'altitude pour le site de La Réunion (Randriambelo et al., 2000).

L'ozone est un sujet de recherche historique du Laboratoire de Physique de l'Atmosphère (LPA) renommé en 2006 Laboratoire de l'Atmosphère et des Cyclones (LACy). Le début des mesures d'ozone troposphérique date de 1992 sur une base bi-mensuelle avec les premiers radiosondages mis en place dans le but d'étudier l'impact des feux de biomasse d'Afrique du Sud et de Madagascar sur l'ozone à La Réunion. L'installation du lidar dial ozone en 1998 visait à contribuer à un suivi de la variabilité de l'ozone sur des échelles de temps plus courtes que ne le permettaient les radiosondages. En 1998, la fréquence des radiosondages a été doublée lorsque La Réunion a intégré le réseau SHADOZ (Thompson et al., 2003).

Au sein du laboratoire, les données d'observation en ozone avaient jusque là été exploitées sous forme de cas d'étude pour identifier d'une part l'influence des feux de biomasse sud africains et malgaches et d'autre part comme marqueur des intrusions stratosphériques détectées dans la région. En 2005, lorsque j'ai commencé ma thèse, le laboratoire disposait d'une base de données assez importante pour pouvoir aborder la thématique de l'ozone d'un point de vue statistique, calculer des tendances troposphériques et notamment tenter de distinguer l'importance relative des sources photochimique et stratosphérique.

Les résultats présentés ici visent à apporter des éléments de caractérisation climatologique de l'ozone troposphérique et de ses sources dans la région allant du Sud Ouest de L'Océan Indien à l'Afrique du Sud. Dans cette perspective, j'ai exploité les données d'observations de La Réunion ainsi que celles des sites d'Irene et de Johannesburg en Afrique du Sud. J'ai

commencé par examiner la base de données ozone de La Réunion. Ce travail m'a mené à comparer les différents types de données locales (i.e. radiosondages et lidar). Par la suite, je me suis appuyée sur les données ozone de La Réunion ainsi que sur celles d'Afrique du Sud (données de radiosondages, Irene, données MOZAIC, Johannesburg) pour mener une analyse comparative de la climatologie de l'ozone troposphérique pour les sites régionaux.

Les tendances de l'ozone troposphérique ont été calculées sur l'ensemble de la base de données de La Réunion et d'Irene à la fois sur la colonne troposphérique totale et aussi en subdivisant la troposphère en couches atmosphériques représentatives de la basse, moyenne et haute troposphère. Les tendances saisonnières ont également été calculées. Cette étude a permis de mettre en évidence des différences entre les deux sites.

Ce travail d'examen des données, de bilan climatologique et de calcul de tendances a permis de mettre en évidence les caractéristiques spécifiques des données, les caractéristiques climatologiques de l'ozone troposphérique dans la région et de poser une hypothèse sur l'importance des sources d'ozone dans la région.

Par la suite, l'implémentation du code Lacytraj sur le serveur du laboratoire a permis l'analyse lagrangienne de l'ensemble de la base de données ozone de La Réunion. Cette analyse a permis d'étudier la saisonnalité des intrusions stratosphériques ainsi que leurs caractéristiques saisonnières à savoir la profondeur des intrusions, le rapport de mélange en ozone associé aux masses d'air d'origine stratosphérique, les distributions verticales saisonnières des intrusions stratosphériques...

Le code lagrangien Lacytraj est l'outil trajectographique qui a été utilisé pour analyser la base de données ozone de La Réunion. Ce code a été développé au LACy et fonctionne à partir des champs de réanalyse ECMWF archivés à l'OPAR. Cette approche Lagrangienne permet de réaliser des calculs de rétrotrajectoires avec une résolution spatiale du même ordre de grandeur que la résolution des données d'observation (i.e. 100 m). Avec une approche Eulérienne, la résolution des données de modélisation qui est actuellement de l'ordre du degré est un facteur limitant pour l'observation de structures atmosphériques à petite échelle. La technique de reconstitution RDF (Reverse Domain Filling) consiste à advecter un traceur (par exemple la vorticité potentielle comme traceur stratosphérique) sur une période choisie en fonction de sa durée de vie et de reconstruire le champ advecté de ce traceur en fonction des valeurs trouvées aux positions initiales calculées à l'aide des rétrotrajectoires. Cette méthode permet de reconstituer des champs dont la résolution permet d'une part d'améliorer la visualisation des structures observables sur les champs ECMWF et d'autre part d'observer

des structures qui n'étaient pas visibles sur le champ ECMWF initial et qui sont reconstituées grâce à l'information apportée par les champs dynamiques utilisés lors de l'advection.

Ce manuscrit se structure en quatre chapitres. Le premier chapitre comprend un rappel théorique sur les mécanismes dynamiques en relation avec le courant jet subtropical ainsi qu'une présentation du contexte géophysique des sites de La Réunion et d'Irene. Dans le second chapitre, sont présentés les bases de données ainsi que les outils de modélisation qui ont été utilisés dans cette étude. Un accent particulier est porté à la description des performances de l'outil lagrangien de rétrotrajectoires Lacytraj. Le troisième chapitre présente les résultats de la comparaison entre les données ozone du lidar dial et des radiosondages, la climatologie de l'ozone troposphérique à La Réunion, et l'étude comparative de cette climatologie à celle des sites de l'Afrique su Sud. Enfin, le quatrième chapitre expose les résultats de la climatologie des échanges stratosphère - troposphère issue de l'analyse de la base de donnée ozone de La Réunion avec une approche lagrangienne.

1 Dynamique du courant jet subtropical et contexte géophysique régional

1.1 Introduction

L'analyse de la base de données ozone de La Réunion que j'ai effectuée dans le cadre de mon travail de thèse m'a mené à diagnostiquer les signatures d'intrusions stratosphériques sur les profils d'ozone. Les mécanismes dynamiques donnant lieu à une intrusion de masses d'air stratosphérique dans la troposphère sont étroitement liés à la dynamique du courant jet. Par conséquent, ce premier chapitre commence par un rappel théorique sur la dynamique du jet subtropical.

Les différents jeux de données ozone utilisés au cours de cette étude proviennent de La Réunion mais aussi de l'Afrique du Sud. Johannesburg (26.1°S, 28.0°E) et Irene (25.9° S, 28.22° E) sont localisés à environ 3000 km de La Réunion. Les deux sites présentent des différences tant au niveau des influences météorologiques qu'au niveau des sources de précurseurs d'ozone. Le deuxième objectif de ce chapitre est donc de décrire le contexte géophysique propre à chaque site de mesure, ainsi que les sources de précurseurs d'ozone pouvant influencer la zone.

1.2 Dynamique du courant jet subtropical

1.2.1 Introduction

Le courant jet est une zone de vent zonal maximum localisée en dessous de la tropopause et au dessus d'une zone étroite présentant un important gradient de température appelée zone frontale d'altitude. Le courant jet subtropical marque la zone séparant les masses d'air froid polaires et les masses d'air chaud tropicales.

Shapiro et al. (1987) définissent trois jet primaires en haute troposphère dans l'hémisphère Nord correspondant à une zone de discontinuité de vorticité potentielle (figure 1.1) : du pôle vers l'équateur, leur schématisation distingue le jet arctique (~70°N), le jet polaire (~50°N), et le jet subtropical (~30°N). Les latitudes données précédemment sont des positions climatologiques. La position, la structure et l'intensité des jets connaissent des variations importantes au cours de l'année. Shapiro et al. (1987) tempèrent leur représentation en précisant que l'observation courante de deux jets sur coupe verticale correspond à

l'association de deux jets (i.e. polaire et arctique ou subtropical et polaire) en un système jet-front unique.

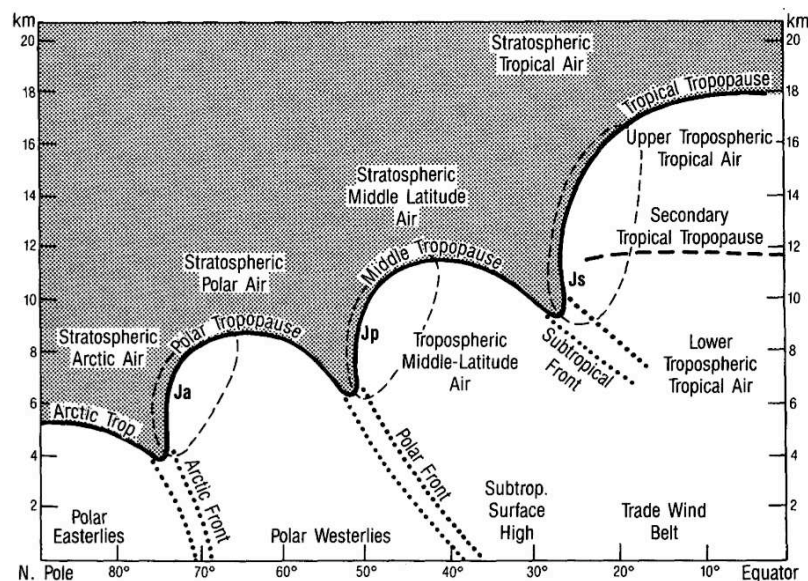


Figure 1.1 Structure schématique de la variation méridienne de la tropopause. Le contour plein noir matérialise la tropopause dynamique définie comme une discontinuité de la vorticité potentielle. Les zones frontales primaires sont représentées par les pointillés. Les lignes tiretées correspondent aux contours isotaches 40m.s-1 et entourent les trois jets stream principaux: Arctique (Ja), Polaire (Jp), et subtropical (Js). La tropopause thermique est matérialisée par les tirets gras. Figure extraite de Shapiro et al. (1987).

Dans l'hémisphère Nord comme dans l'hémisphère Sud, le jet se propage vers l'est et sa localisation est variable en fonction de la saison. En hiver boréal les jets se déplacent vers le Sud, inversement en été boréal. La topographie de l'hémisphère Nord est plus marquée que celle de l'hémisphère Sud, principalement Océanique. Par conséquent, L'ondulation des jets est moins marquée dans l'hémisphère Sud.

1.2.2 Equilibre du vent thermique

L'origine du courant jet d'altitude s'explique par l'existence de la distribution verticale de gradients de pression et d'un gradient méridien de température entre les zones polaire et tropicale. Cette relation est traduite par l'expression de l'équilibre du vent thermique :

$$\frac{\partial \bar{v}_g}{\partial \ln p} = -\frac{R}{f} \bar{k} \wedge \overline{\text{grad}_p(T)} \quad \text{E 1.1}$$

avec

\vec{k} le vecteur unitaire vertical

\vec{v}_g le vecteur vent géostrophique

R la constante des gaz parfaits ($R=8,314 \text{ m}^2\text{kg}^{-1}\text{K}^{-1}\text{mol}^{-1}$)

f le paramètre de Coriolis $f=2\Omega\sin\phi$

p la pression (Pa)

T la température (K)

L'équilibre du vent thermique est une combinaison de l'équilibre géostrophique et de l'équilibre hydrostatique. Le vent thermique relie la circulation des masses d'air à la stratification verticale. En atmosphère barocline, la densité dépend à la fois de la température et de la pression. Dans ces conditions, l'existence d'un gradient horizontal de température impose que les surfaces isobares soient resserrées en zone froide et espacées en zone chaude. La pente des isobares augmente donc avec l'altitude (figure 1.2) ce qui se traduit par une intensification du vent géostrophique en direction de l'est avec l'altitude. Le vent géostrophique atteint son maximum sous la tropopause et forme le jet subtropical.

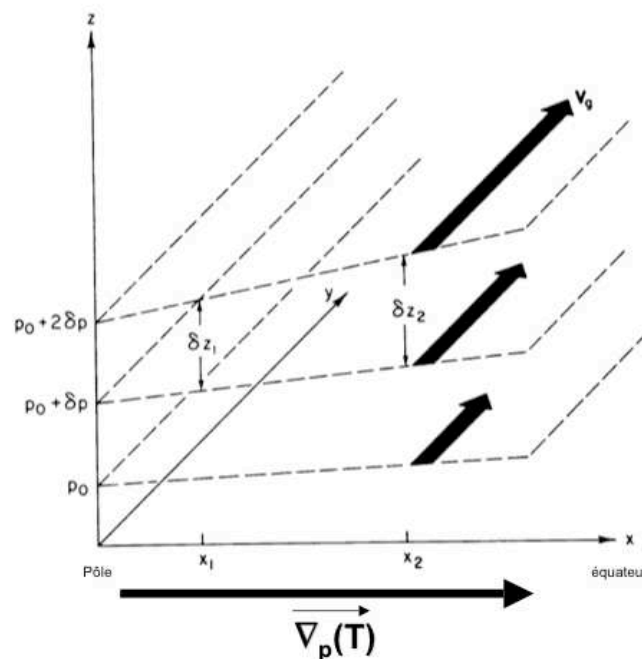


Figure 1.2 Illustration de la relation entre le cisaillement vertical du vent géostrophique et un gradient méridien de température. Les surfaces isobares sont tiretées. L'espacement entre les isobares traduit le gradient méridien de température orienté vers l'équateur. Figure adaptée de Holton (2004).

1.2.1 Circulations agéostrophiques

La structure du courant jet, sa vitesse et sa position ne sont pas uniformes au cours du temps. Le long de l'axe du courant jet, la distribution des vitesses présente des zones de maxima locaux appelés « jet streaks » (Palmen et Newton, 1969) ou noyaux de courant jet.

Ces accélérations locales du vent rompent l'équilibre géostrophique. La prise en compte de l'équation du mouvement dans le repère tournant terrestre conduit à l'expression du vent agéostrophique \vec{v}_a qui représente l'écart entre le vent réel \vec{v} et le vent géostrophique \vec{v}_g :

$$\vec{v}_a = \vec{v} - \vec{v}_g = \frac{1}{f} \vec{k} \wedge \frac{d\vec{v}}{dt} \quad \text{E 1.2}$$

La vitesse d'une particule se déplaçant dans un noyau de courant jet est supérieure à la vitesse du jet. Ainsi, les particules qui se présentent en zone amont (ou zone d'entrée) du noyau de courant jet sont accélérées, puis décélérées en zone aval (ou zone de sortie) du noyau de courant jet. Des circulations agéostrophiques transverses à l'axe du courant jet sont ainsi créées ainsi que des zones de convergence et de divergence horizontales.

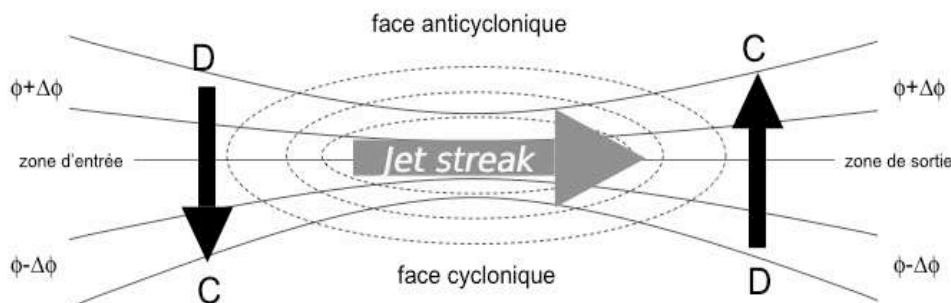


Figure 1.3 Représentation schématique sur un plan isobare pour l'hémisphère Sud et dans le cas d'un jet rectiligne, des circulations agéostrophiques (flèches noires) générées en entrée et en sortie d'un noyau de courant jet (jet streak) et des zones de convergence (C) et de divergence (D) qui y sont associées. Les contours pointillés correspondent aux isotaques, les lignes continues représentent l'altitude géopotentielle de la surface isobare. Figure adaptée de Shapiro et Kennedy (1981).

La figure 1.3 illustre les circulations agéostrophiques et les zones de convergence et de divergence associées. Considérons une particule en zone d'entrée du noyau de courant jet. Son accélération est positive, elle gagne donc en énergie cinétique et perd de l'énergie potentielle. La particule va donc être déviée vers les zones de bas géopotential du côté

cyclonique du jet où se forme une zone de convergence, alors que le côté anticyclonique de la zone d'entrée présente une zone de divergence. En zone de sortie, la particule est décélérée : son énergie cinétique diminue, alors que son énergie potentielle augmente. La particule est alors déviée vers la zone de plus fort géopotential du côté anticyclonique du jet. En sortie du noyau de courant jet, la zone de convergence se situe du côté anticyclonique du jet et la zone de divergence est située du côté cyclonique.

Ces zones de convergence et de divergence induisent des vitesses verticales subsidentes au dessus des zones de divergence et ascendantes au dessus des zones de convergence (figure 1.4). Ces mouvements verticaux exercent un forçage dynamique sur la tropopause à l'origine de déformations telles que des foliations et descentes de la tropopause.

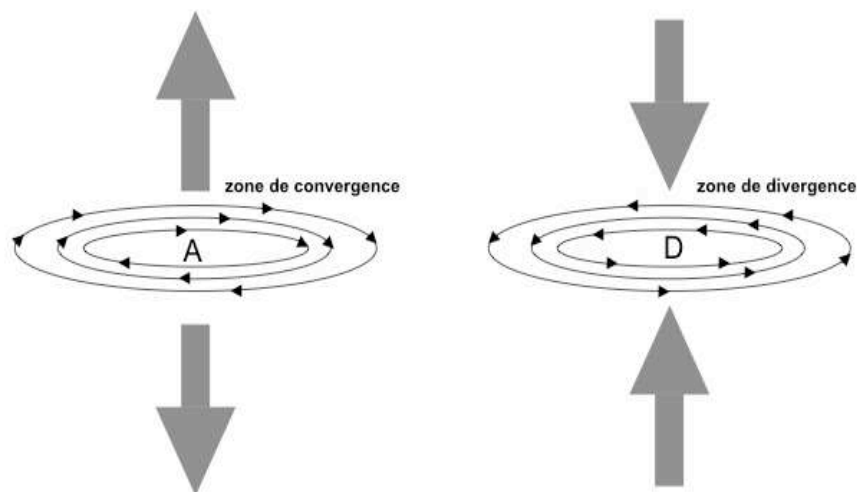


Figure 1.4 Représentation schématique des circulations verticales induites au dessus des zones de convergence et de divergence dans l'hémisphère Sud.

1.2.3 Effets de courbure

Dans le cas d'un jet uniforme enchâssé autour d'une onde planétaire stationnaire, les circulations agéostrophiques comprennent deux composantes : une composante transverse et une composante longitudinale due à la courbure du jet. Shapiro et Kennedy (1981) ont estimé les contributions transverse V_{an} et longitudinale V_{as} des circulations agéostrophiques en décomposant l'équation du mouvement horizontal dans le système de coordonnées naturelles (\vec{s}, \vec{n}) où \vec{s} est colinéaire au flux et \vec{n} est normal au flux et par convention dirigé vers la gauche.

$$V_{an} = -\frac{1}{f} \frac{dV}{dt} = \frac{1}{f} \frac{\partial \phi}{\partial s} \quad \text{E 1.3}$$

$$V_{as} = -\frac{1}{f} \frac{V^2}{R_t} \quad \text{E 1.4}$$

où R_t est le rayon de courbure de la trajectoire.

La composante normale au flux V_{an} traduit un écart à l'équilibre géostrophique créé par l'accélération le long du flux. La composante V_{as} colinéaire au flux représente un écart à l'équilibre géostrophique induit l'accélération centripète pour les trajectoires courbes. Dans le cas d'une courbure cyclonique, le rayon de courbure est négatif car orienté dans le sens opposé à \vec{n} . De plus dans l'hémisphère Sud le facteur de Coriolis f est négatif. Par conséquent, la composante longitudinale V_{as} est orientée dans le sens opposé au sens de la circulation du jet, ce qui donne lieu à des pôles de convergence et de divergence respectivement en amont et en aval de la courbure cyclonique.

La figure 1.5 est une représentation schématique décrivant les mouvements agéostrophiques et les pôles de divergence et de convergence induits par la courbure du jet dans l'hémisphère Sud.

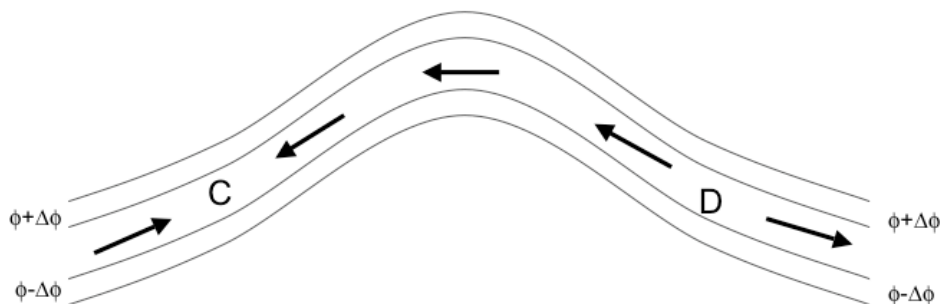


Figure 1.5 Représentation schématique des circulations agéostrophiques longitudinales (colinéaires au jet) induites par une courbure cyclonique du jet dans l'hémisphère Sud. Les lignes pleines représentent les isohypses et la bande centrale matérialise les zones de maxima de vent. Figure adaptée de Shapiro et Kennedy (1981).

1.2.4 Foliation de tropopause en bordure du courant jet

Une foliation de tropopause est une zone de discontinuité et de repliement de la tropopause. Il s'agit d'un processus dynamique où une fine bande d'air stratosphérique va s'introduire dans la troposphère le long des isentropes fortement inclinées associées à une zone frontale d'altitude (Holton, 1995).

Pour le cas d'un jet stream rectiligne dans l'hémisphère Sud, la zone de divergence située du côté cyclonique de l'axe du jet donne lieu à des mouvements de subsidence. Au niveau de cette zone de divergence, les conditions dynamiques sont particulièrement privilégiées pour exercer un forçage dynamique sur la tropopause conduisant à sa déformation sous l'axe du jet et sa pénétration dans la troposphère.

Dans le cas d'une courbure cyclonique du jet, la zone de divergence en aval de la dorsale du jet crée un mouvement de subsidence dans cette région. Les foliations de tropopause seront donc particulièrement favorisées dans cette région.

Un exemple de foliation de tropopause remarquable par son étendue zonale est donné en figure 1.6.

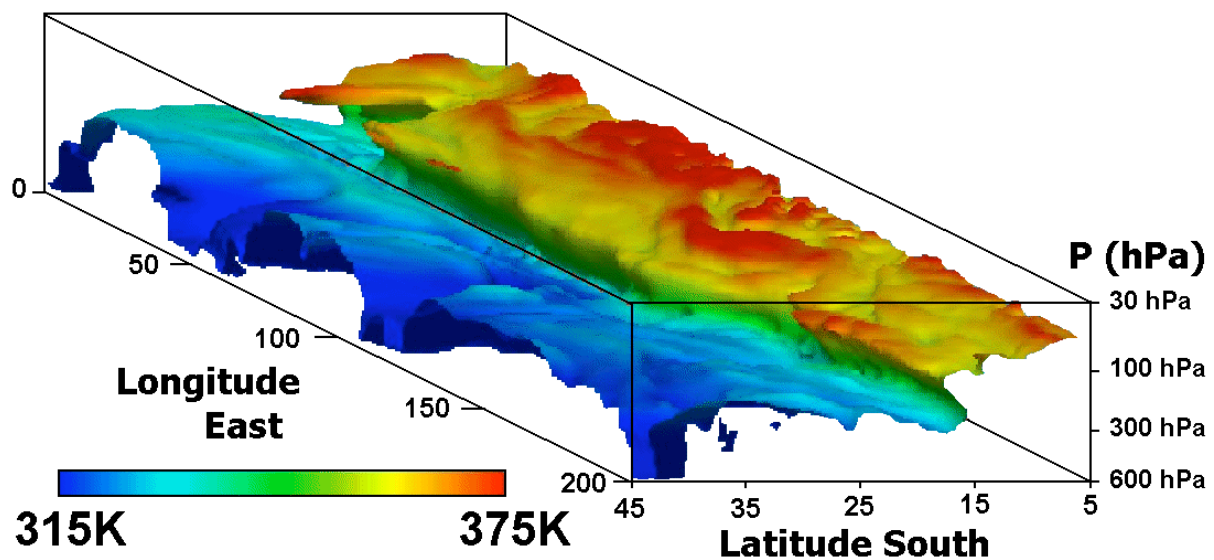


Figure 1.6 Carte tridimensionnelle de la tropopause, matérialisée par la surface 1.2 PVU le 25 Juillet 1998 0 :00 UT. Communication personnelle J.-L. Baray.

1.2.5 Gouttes froides

Une goutte froide correspond à une dépression d'altitude qui s'est détachée du vortex polaire, dont la température est plus froide que son environnement et qui se propage généralement vers l'équateur. Ces systèmes ont une vitesse de déplacement suffisamment lente pour pouvoir affecter considérablement les conditions météorologiques de surface en effet, une masse d'air froid en altitude favorise les mécanismes de convection profonde, ce qui peut donner lieu à d'importantes précipitations. De plus, le mélange de l'ozone stratosphérique liée

à la dissipation de ces structures est un facteur pouvant influencer le bilan de l'ozone troposphérique.

Les gouttes froides sont un phénomène concernant généralement les régions polaires et tempérées. On distingue trois catégories de gouttes froides. Les gouttes froides de type vortex polaire les gouttes froides polaires et les gouttes froides subtropicales. Les publications relatives à l'hémisphère Sud ont longtemps relaté des cas de gouttes froides ne remontant pas au delà de 25°S à 30°S. De plus, d'après une étude statistique de Price et Vaughan (1992) les gouttes froides subtropicales engendrent moins d'échanges stratosphère - troposphère que les gouttes froides polaires car les premières sont de nature plus éphémère et plus réduites en dimension. En 2003, Baray et al. ont mis en évidence un cas de goutte froide ayant atteint de basses latitudes (10°S) avec une durée de vie de deux semaines.

1.2.6 Interaction des cyclones tropicaux avec le jet subtropical

Les travaux de Leclair de Bellevue et al. (2007) ont mis en évidence que la proximité de cyclones tropicaux se traduit d'un point de vue climatologique par une augmentation d'ozone en haute troposphère. Des cas d'étude ont également été publiés, mettant en évidence une interaction entre des cyclones tropicaux et le courant jet conduisant à une intrusion d'air stratosphérique dans la troposphère dont la signature est visible sur des profils d'ozone mesurés à La Réunion. Les mécanismes dynamiques conduisant à ce type d'intrusion stratosphérique ont été décrits pour le cas du cyclone Marlène à l'aide du modèle Més0-Nh. En effet, la résolution des données ECMWF disponibles à ce moment ne permettait pas de mettre en évidence le filament stratosphérique dans la zone de cisaillement en haute troposphère.

La zone de divergence de haute altitude associé au cyclone Marlène induit une ascendance des masses d'air du sol vers les basses pressions. La modélisation à méso échelle a montré que la bordure de cette zone divergente est le siège de forts cisaillements de vent horizontaux et verticaux. Cette perturbation du vent donne lieu à des circulations agéostrophiques transverses à la courbure du système et dont la direction s'oppose au centre du système. Par analogie avec les mécanismes créant les zones de subsidence et d'ascendance de part et d'autre du jet dues à l'existence de vent agéostrophiques, Leclair de Bellevue et al. expliquent que l'interaction entre une zone de subsidence en bordure du jet et d'une zone de subsidence en bordure du système cyclonique crée des conditions favorables à une descente voire une foliation de tropopause.

1.3 Contexte géophysique régional

1.3.1 Situation géophysique de La Réunion

L'île de La Réunion (21°S,55.5°E) est située dans la région de subsidence de la cellule de Hadley de l'hémisphère Sud. L'anticyclone permanent du sud de l'Océan Indien ainsi que les perturbations portées par les flux d'Est influencent l'île de La Réunion (Randriambelo, 2003). En basse troposphère l'île est sous l'influence des Alizés dont l'intensité augmente en hiver austral. La hauteur de l'inversion des Alizés est actuellement estimée à environ 4 km d'altitude. Au delà de ce niveau, les flux d'ouest prédominent. L'installation à l'OPAR d'un radar UHF profileur de vent permettra de déterminer avec précision la hauteur d'inversion des Alizés.

L'influence du jet subtropical est à son maximum pendant l'hiver austral et est aussi importante durant le printemps austral (figure 4.2). La position du jet subtropical ainsi que son intensité varient en fonction de la saison. Le jet remonte vers les basses latitudes en hiver austral et redescend vers les hautes latitudes en été austral. La figure 1.7 présente les profils moyens de vent zonal calculés à partir d'un an de données de radiosondages GPS mesurés entre août 2007 et Mars 2008 à La Réunion. Le maximum observable pendant l'hiver austral est en accord avec la proximité du jet à cette période de l'année.

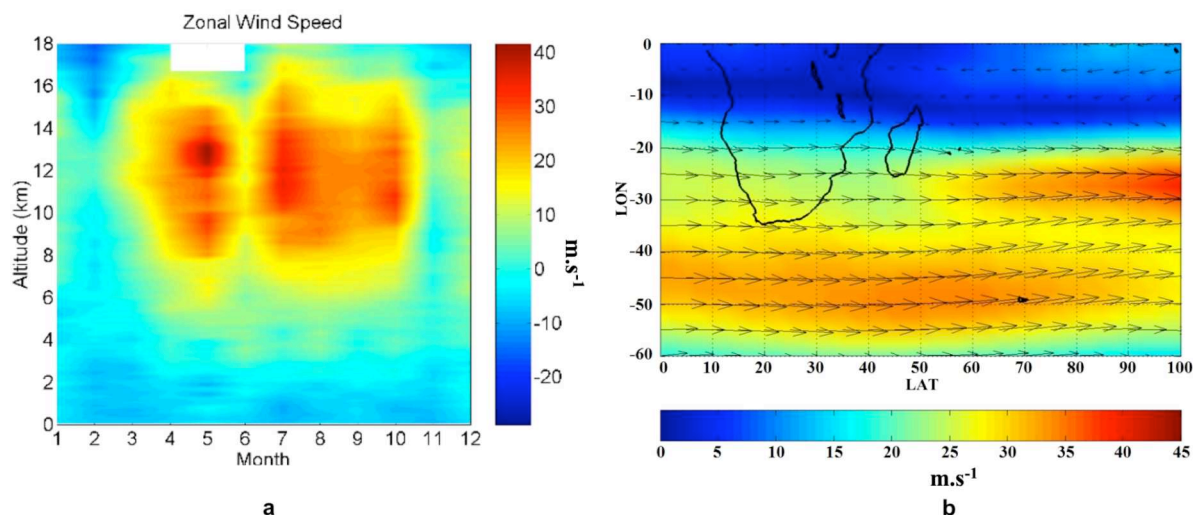


Figure 1.7 (a) module du vent zonal entre août 2007 et septembre 2008 mesuré à La Réunion par sonde GPS ; (b) Champ de vent moyen sur l’hiver austral, au niveau 300 hPa et calculé à partir de dix ans de données NCEP (1984-2007). Figures extraites de Clain et al. (2009)

1.3.2 Les sources d’ozone à La Réunion

Des intrusions de masses d’air stratosphérique ont été détectées à la verticale de l’Afrique du Sud et de l’Océan Indien. Ces intrusions ont été documentées le plus souvent sous forme de cas d’études. Les mécanismes dynamiques donnant lieu à des intrusions stratosphériques dans la région et ont été documentés sous forme de nombreux cas d’étude. Ces mécanismes sont étroitement liés à la dynamique du courant jet. Les cas documentés sont une foliation de tropopause (Baray et al. 1999), un cas de goutte froide (Baray et al. 2003), l’interaction du courant jet avec le cyclone tropical Marlène (Baray et al., 1999, Leclair de Bellevue et al., 2006).

D’après les travaux de modélisation globale de James et al. (2003), les intrusions stratosphériques dans la région des subtropiques sud seraient à leur maximum d’occurrence au cours de l’hiver austral.

La thématique des échanges stratosphère – troposphère à La Réunion s’est d’abord concrétisée avec la thèse de Jean Luc Baray, soutenue en 1999, portant sur l’étude des STE en bordure sud de la zone tropicale et leur impact sur le bilan de l’ozone. Par la suite, la thèse de Jimmy Leclair de Bellevue a permis de documenter les échanges verticaux induits par les systèmes convectifs aux latitudes tropicales et leur influence sur le bilan de l’ozone par le

biais de la modélisation à méso-échelle avec le modèle Méso-NH. Enfin, ma propre thèse s'inscrit dans la continuité de cette thématique.

Parmi les deux sources d'ozone troposphérique, la source photochimique à La Réunion est principalement due à l'injection en altitude de polluants émis lors des feux de biomasse en Afrique du Sud et à Madagascar par l'action de systèmes convectifs puis à leur transport à grande échelle et en altitude (figure 1.8). La contamination troposphérique en ozone produit photochimiquement ainsi que la contamination par des polluants issus des zones de feux s'observe en troposphère libre entre 5 et 12 km (Randriambelo et al., 2000).

L'Afrique du Sud est une des principales régions d'activité de feux de biomasse dans l'Hémisphère Sud. La saison des feux débute en juin et s'achève en octobre (Marengo et al., 1990). Des campagnes de mesures telles que TROPOZ (TROPOspheric Ozone) (Marengo et al., 1990), SAFARI (Southern African Fire-Atmosphere Research Initiative, Andreae et al., 1996), TRACE-A (Transport and Atmospheric Chemistry near the Equator-Atlantic) ont été menées dans l'objectif de décrire la photochimie et les schémas de circulations responsables de la redistribution de polluants en Afrique du Sud et au niveau des Océans adjacents. Récemment Aghedo et al. (2007) ont estimé que 70% de l'ozone produit grâce aux émissions africaines est redistribué en dehors de l'Afrique du Sud. Bien que les schémas de référence en matière de circulation Sud Africaine prévoient l'injection d'un grand panache africain vers l'Océan Atlantique (Chatfield et al., 1996), des analyses météorologiques basées sur des statistiques de trajectoires ont montré qu'une part importante des émissions africaines pourrait être advectée vers l'Océan Indien (Garstang et al., 1996, Piketh et al., 2002).

Les mécanismes responsables de la dispersion des émissions dues aux feux de biomasses ont donné lieu à des publications (Baldy et al., 1996, Taupin et al., 1999, 2002). Une climatologie basée sur des données de radiosondages et des données satellitaires (Randriambelo et al., 2000) étudie l'importance relative des différents mécanismes.

Cette thématique a également donné lieu à deux thèses au sein du laboratoire. Celle de Fabienne Taupin, soutenue en 1997, visait à quantifier la production photochimique d'ozone à l'aide d'une modélisation lagrangienne des mécanismes photochimiques mis en jeu lors du transport de polluants provenant des zones de feux. La thèse de Tantely Randriambelo, soutenue en 1998, avait pour but d'utiliser des données satellitaires de feux de végétation et de zones de convection pour la caractérisation climatologique de l'ozone troposphérique.

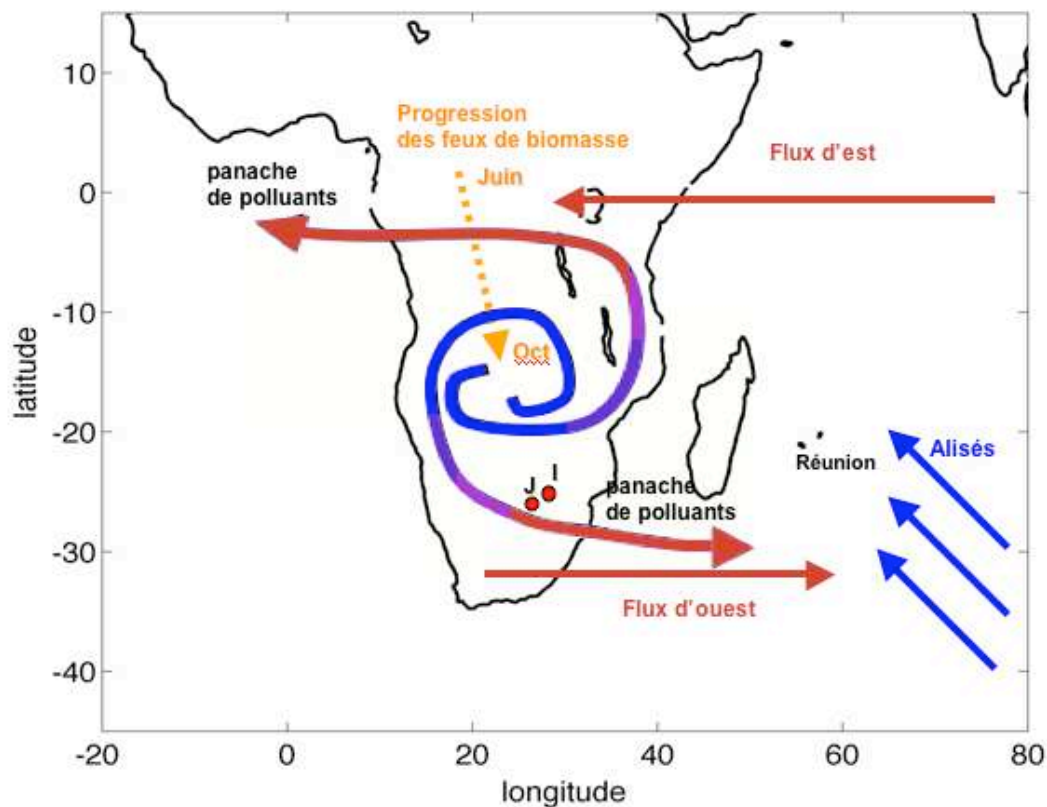


Figure 1.8 Représentation schématique des circulations atmosphériques en Afrique du Sud et les régions adjacentes. La couleur bleue correspond aux flux de basses couches et les flux d'altitude sont représentés en rouge. La flèche jaune indique progression des zones affectées par les feux de biomasses Les positions d'Irene, de Johannesburg et de La Réunion sont indiquées. Figure inspirée de Diab et al. (2004), Chatfield et al. (1996) et Piketh et al. (2002).

1.3.3 Situation géophysique d'Irene

La circulation de l'Afrique du Sud est dominée par la présence de l'anticyclone permanent subtropical. Cette influence est prédominante en hiver austral où cette configuration météorologique a une probabilité d'occurrence de 79% en juin - juillet comparée à 20% en été austral (Garstang et al., 1996). Au sein de l'anticyclone subtropical des phénomènes de subsidence et la circulation anticyclonique causent l'accumulation de polluants sur de larges échelles temporelle et spatiale (Garstang et al. 1996, Piketh et al., 2002) et favorisent la formation d'ozone. Ces conditions contribuent à la formation d'une couche brumeuse de 5 km d'épaisseur participant à l'accumulation de polluants au dessus de l'Afrique du Sud.

La fréquence de la circulation anticyclonique en Afrique du Sud est plus importante pendant l'hiver austral que pendant l'été austral; les perturbations portées par les flux d'Ouest et l'influence des ondes planétaires sont prédominantes au printemps et en été austral avec une probabilité d'occurrence atteignant 55 % en Janvier (Garstang et al., 1996). Les circulations anticycloniques sont interrompues lorsque qu'une onde d'est de moyenne latitude traverse le sud de l'Afrique du Sud. Le cycle annuel des probabilités d'occurrence des deux régimes d'influence anticyclone / perturbations est en opposition de phase avec un maximum en hiver austral pour le premier et en été austral pour le second.

L'évacuation des gaz traces incluant des précurseurs d'ozone et des aérosols circulant dans la couche stable imposée par le régime anticyclonique présente deux voies majeures en direction des Océans Atlantique et Indien (figure 1.8): les voies de sortie de ces panaches de polluants sont centrées respectivement sur la côte Est à 10°S et sur la côte Ouest à 30°S (Piketh et al., 2002) .

1.3.4 Les sources d'ozone à Irene

Le site d'Irene étant localisé à une latitude plus basse que celle de La Réunion, la zone est fortement soumise à l'influence du jet subtropical en particulier en hiver austral lorsque le jet remonte des hautes latitudes en direction de l'équateur.

En plus de la source stratosphérique, l'ozone dans la région entourant Irene est produit de façon photochimique par la présence de précurseurs émis par les feux de biomasse mais aussi par les activités biogénique, anthropogénique et électrique (Aghedo et al., 2007). Les émissions de COV influencent significativement la chimie atmosphérique en raison de leur grande réactivité. Les COV, dont la présence influence la formation (ou destruction) de l'ozone en présence (ou absence) de NOx (Aghedo et al. 2007), sont aussi naturellement émis par la végétation (Kesselmeier and Staud, 1999).

Irene est localisée au sud de la zone principale d'Afrique du Sud sujette aux feux de biomasse (figure 1.8). La zone concernée par les feux de biomasse s'étend entre 10°S et 20°S et vers l'Est jusqu'à 25°E, durant la saison sèche de juillet à octobre. Bien que l'enrichissement en ozone le plus important soit attendu au Nord d'Irene, l'impact des feux de biomasse peut être détecté à Irene et s'explique par le transport à longue distance au sein du vortex anticyclonique. Les résultats de la campagne SAFARI 2000 montrent l'importance de la prise en compte des feux de biomasse dans le bilan de l'ozone troposphérique en Afrique du Sud (Swap et al., 2003).

Pendant l'été les flux d'Est tropicaux en provenance de l'Océan Indien apportent de l'air humide vers le site d'Irene. Une forte activité convective est un phénomène quotidien pouvant causer l'ascension rapide des polluants de surface, occasionnant un enrichissement en ozone en haute troposphère (Ziemke et al., 2009). L'activité électrique liée à ces systèmes convectifs peut aussi être une cause de l'enrichissement en ozone troposphérique en raison de la formation de NO_x (Schumann and Huntrieser, 2007). D'après Collier et al. (2006), l'activité électrique en Afrique du Sud et à Madagascar est à son maximum au printemps et en été austraux.

L'émission anthropogénique de précurseurs d'ozone est une source importante à prendre en compte dans le bilan de l'ozone troposphérique. Irene est localisée à proximité de deux zones urbano-industrielles importantes : Pretoria et Johannesburg. La station est également située à 100 km sous le vent de la principale zone de production d'énergie électrique d'Afrique du Sud, regroupant 11 centrales fonctionnant au charbon (Diab et al., 2004). L'usage domestique de sources d'énergie fossile contribue également à la production de précurseurs d'ozone. D'après le cadastre d'émission du GEIA (Benkovitz et al., 1996), les émissions de NO_x sud Africaines sont évaluées à 1.8% des émissions d'origine anthropogénique globale ; selon Wells et al. (1996) et Held and Mphopya (2000), 91% des émissions de NO_x Sud Africaines est d'origine industrielle.

1.4 Conclusion du premier chapitre

Dans ce premier chapitre, nous avons fait un rappel sur la dynamique liée au courant jet subtropical et aux circulations agéostrophiques qui y sont associées. Cette description permet de comprendre les contextes dynamiques favorisant les foliations de tropopause et les gouttes froides donnant lieu à des échanges stratosphère - troposphère.

La description du contexte géophysique des deux sites de mesures est importante dans le but d'analyser et de comparer les caractéristiques climatologiques de l'ozone troposphérique à Irene et à La Réunion. C'est l'objet du chapitre 3.

Auparavant, nous allons dans le prochain chapitre apporter une description des caractéristiques des différents jeux de données utilisées dans cette étude ainsi que les outils de modélisation qui ont été utilisés.

2 Base de données et outils

2.1 Introduction

Ce chapitre présente les caractéristiques de la base de données utilisée dans le cadre de cette étude. L'instrumentation, la distribution temporelle, la précision des mesures seront exposés. Cette base de données comprend des mesures in situ (radiosondages, données MOZAIC), de télédétection (mesures LIDAR, MOPITT) et des données issues de modèles. Enfin, j'aborderai la présentation des outils de modélisation intervenant dans ma démarche.

Site de mesures	Type de données / application	Etendue temporelle des données/ années	nombre total de profils	domaine vertical
La Réunion	Radiosondages - Tendances	1992-2008 / 17 ans	399	24 m - 30 km
	Radiosondages - Climatologie	1998-2006 / 8 ans	269	
	LIDAR - Climatologie	1998-2006 / 8 ans	265	3 km -16 km
Irene	Radiosondages - Tendances	1990-2008 / 15 ans	384	1524 m – 30 km
	Radiosondages – Climatologie et Tendances	1998-2006 / 8 ans	208	
Johannesburg	MOZAIC - Climatologie	1995-2003 / 9 ans	577	1 km – 12 km

Table 2.1 Caractéristiques de la base de données ozone.

2.2 Données d'observation de l'OPAR

Les mesures de composés atmosphériques ont commencé au début des années 1990 à La Réunion avec les radiosondages, en 1992 (pression, température, humidité et ozone), le spectromètre SAOZ en 1993 mesurant les colonnes totales d'ozone et NO₂, enfin les mesures lidar ont commencé à La Réunion en 1994 avec la température et les aérosols stratosphériques. Ainsi, alors que des mesures continues de composants atmosphériques avaient déjà commencé sur le site de La Réunion, la création officielle de l'Observatoire de Physique de l'Atmosphère de La Réunion (OPAR) date de 2003 (Baray et al., 2006). L'OPAR contribue actuellement à quatre réseaux d'observation internationaux réseaux : NDACC (Network for the Detection of Atmospheric Composition Change), SHADOZ (Southern Hemisphere Additional OZonesondes, Thompson et al., 2003), AERONET (AErosol RObotic NETwork) et GAW (Global Atmosphere Watch). L'OPAR contribue également à des projets tels que GEOMON et EQUAL. La construction de l'observatoire du

Maïdo, prévue en 2011, permettra de centraliser les appareils de mesures sur un même site d'altitude (2200m). Les mesures de composés atmosphériques dans la troposphère libre et la stratosphère bénéficieront de cette configuration en altitude par rapport au site actuel urbain de basse altitude. Par ailleurs, ce site permet aussi d'optimiser les mesures avec une réduction de la luminosité urbaine et de la vapeur d'eau dans les basses couches.

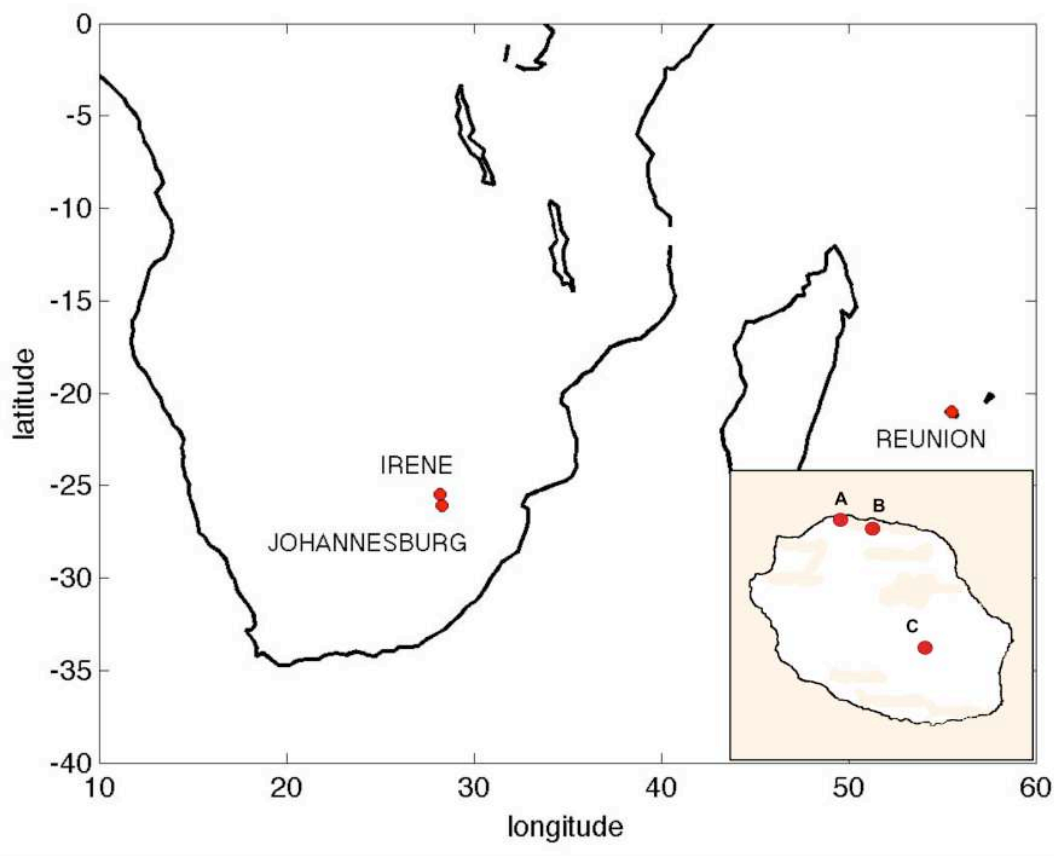


Figure 2.1 Carte de la Région et des sites de mesures de La Réunion et d’Afrique du Sud. Les sites A, B, C sur l’île de La Réunion désignent respectivement St Denis, L’aéroport Rolland Garros et le site du Piton Textor.

2.2.1 Radiosondes

Un programme de radiosondage a commencé en 1992 au sein du LPA (Laboratoire de Physique de l’Atmosphère UMR CNRS - Université de La Réunion 8105). La base de données comprend désormais plus de 16 années de mesures d’ozone, température, humidité et pression atmosphériques. En 1998 La Réunion s’est jointe au programme SHADOZ [Thompson et al., 2003] et depuis cette date, les lâchers se font sur une base hebdomadaire,

doublant la fréquence des mesures. Françoise Posny est la responsable scientifique des mesures de radiosondages du site de La Réunion.

Le programme SHADOZ a été initié par Anne Thompson de la NASA GSFC. Ce réseau permet de fournir une base conséquente de données ozone troposphérique et stratosphérique pour l'Hémisphère Sud longtemps dépourvu par rapport à l'Hémisphère Nord. Le réseau SHADOZ comprend actuellement 13 stations dont la distribution assure une couverture zonale des tropiques et sub-tropiques de l'Hémisphère Sud. Le réseau contribue également au programme de validation des instruments OMI (Ozone Monitoring Instrument) et TES (Tropospheric Emission Spectrometer) du satellite AURA lancé par la NASA en juillet 2004. Le site de lâchers de ballons sonde de La Réunion se situe à l'aéroport Rolland Garros de Ste Marie (figure 2.1). Des sondes PTU VAISALA RS80 étaient utilisées depuis 1992 pour les mesures de température, humidité et pression. Le système utilisé depuis août 2007 est le système de sondes PTZ-vent MODEM. Ces sondes sont couplées à des sondes ECC (Electro-Chemical Cell) de type Z-ENSCI pour les mesures d'ozone. A La Réunion, ces sondes sont utilisées avec une solution KI tamponnée à 0.5%. Le choix de cette solution de cathode pour les sondes Z-ENSCI a été validé par les expériences JOSIE 2000 (Smith et al. 2007) et BESOS (Deshler et al. 2008). Le principe de fonctionnement de la sonde ozone est développé dans la section Annexe B.

La portée verticale des radiosondages s'étend entre le sol (24 m à La Réunion) et l'altitude d'éclatement du ballon sonde qui se situe entre 30 km et 35 km d'altitude. La résolution des profils dépend de la fréquence d'échantillonnage de la sonde ainsi que de la vitesse d'ascension. Les radiosondages permettent d'obtenir des mesures avec une résolution verticale inférieure à 100 m.

En 1996, 1998 et 2000, dans le cadre des expériences JOSIE (Juelich Ozone Sonde Intercomparison Experiment) [Smit et al., 2007], une intercomparaison internationale de radiosondages ozone a été organisée dans le but de déterminer les performances des sondes ECC dans les mêmes conditions de mesure. Les résultats issus de ces comparaisons évaluent la précision (reproductibilité des mesure) des sondes ECC à $\pm(3-5)\%$ et leur exactitude (dispersion des mesures) à $\pm(5-10)\%$ en dessous de 30 km d'altitude.

2.2.2 LIDAR DIAL ozone troposphère

Les premières mesures LIDAR (Light Detection And Ranging) à La Réunion datent de 1994 pour des mesures d'aérosols et de température dans la stratosphère dans le cadre du

NDSC(Network for the Detection of Stratospheric Change), renommé NDACC (Network for the Detection of Atmospheric Composition Change) en 2005 (Wiacek et al., 2006). Les mesures d’ozone troposphérique par LIDAR DIAL ont commencé en 1998 (Baray et al. 1999). Le responsable scientifique des mesures ozone lidar de La Réunion est Jean Luc Baray.

La résolution verticale des profils LIDAR est de 75 m. La portée des profils s’étend entre 3 km et 16 km environ, sachant que les conditions météorologiques et atmosphérique peuvent influencer l’étendue verticale du chaque profil lidar. Pour la période 1998-2006 considérée dans cette étude, le jeu de données ozone LIDAR compte 284 profils distribués de façon régulière à l’échelle interannuelle, mis à part l’année 2001 qui comporte peu de profils.

Le principe DIAL pour la mesure de l’ozone troposphérique repose sur l’exploitation des caractéristiques du spectre d’absorption de l’ozone et est présenté de façon détaillée en Annexe C.

2.2.3 Données DASIBI

Entre octobre 1998 et octobre 1999 des mesures d’ozone au sol ont été effectuées sur le site du piton Textor, situé au sud est de l’île, à 2150m d’altitude, à l’aide d’un analyseur par absorption UV Dasibi 1008 RS permettant de faire des mesures en continu avec une précision d’environ 5%.

le principe de fonctionnement du photomètre ozone consiste à mesurer l’atténuation d’un faisceau lumineux à 253,7 nm par l’ozone présent dans un échantillon d’air ambiant ainsi que dans un échantillon d’air dépourvu d’ozone. Selon la loi de Beer Lambert, le ratio des intensités lumineuses de radiation UV recueillies à la sortie des cuves de longueur L contenant les échantillons de gaz est une fonction du coefficient d’absorption de l’ozone A (308.3 cm⁻¹atm⁻¹ à 253,7 nm) et de la pression partielle d’ozone C :

$$\frac{I}{I_0} = e^{-ALC} \quad \text{E 2.1}$$

Ces mesures ont été exploitées dans le cadre de la thèse de C. Bughwant et ont donné lieu à une publication (Bughwant et al. 2001). Le photomètre est à nouveau en service à Bourg Murat dans le sud de l’île depuis octobre 2008.

2.3 Autres données d'observation

2.3.1 MOZAIC

Le programme MOZAIC (Measurement of OZone and water vapour by Airbus In-service airCraft) a été initié en 1994 par un groupe de scientifiques Européens. Des instruments de mesures ont été installés sur des Airbus A340 long courrier au départ de l'Europe. Les mesures portent sur l'ozone, la vapeur d'eau, le monoxyde de carbone et les oxydes d'azote totaux. Ces mesures contribuent à la validation de modèles globaux de chimie et transport (GCTM) [Marenco et al., 1998; Thouret et al., 1998]. La précision des mesures ozone de MOZAIC a été évaluée à $\pm [2\text{ppbv} \pm 2\%]$ [Marenco et al., 1998] et la limite de détection est de 2 ppbv. Jean Pierre Cammas est le responsable scientifique du programme MOZAIC.

Dans le cadre des travaux présentés ici, 577 profils d'ozone issus de mesures en vol au départ et vers Johannesburg (20,8°S - 55,5°E) ont été utilisés pour calculer la climatologie de l'ozone troposphérique en Afrique du Sud. Ces profils ont été mesurés entre Juillet 1995 et Janvier 2003. Malgré le nombre important de profils durant cette période, la distribution temporelle des mesures est irrégulière.

Les mesures de monoxyde de carbone de la base de données MOZAIC du site de Johannesburg ne sont pas exploitables d'un point de vue climatologique ni statistique car il n'existe que cinq profils disponibles de CO aux dates suivantes : le 03 et le 15 Novembre 2002, le 23 Mars, le 25 Octobre et le 11 Novembre 2003 (figure 2.2). En effet, peu d'avions étaient équipés de mesureurs de CO. Depuis 2004, le programme MOZAIC évolue vers IAGOS (Integration of routine Aircraft measurements Into a Global Observing System). Des mesures de CO₂, d'aérosols et de NO₂ viendront compléter les mesures MOZAIC.

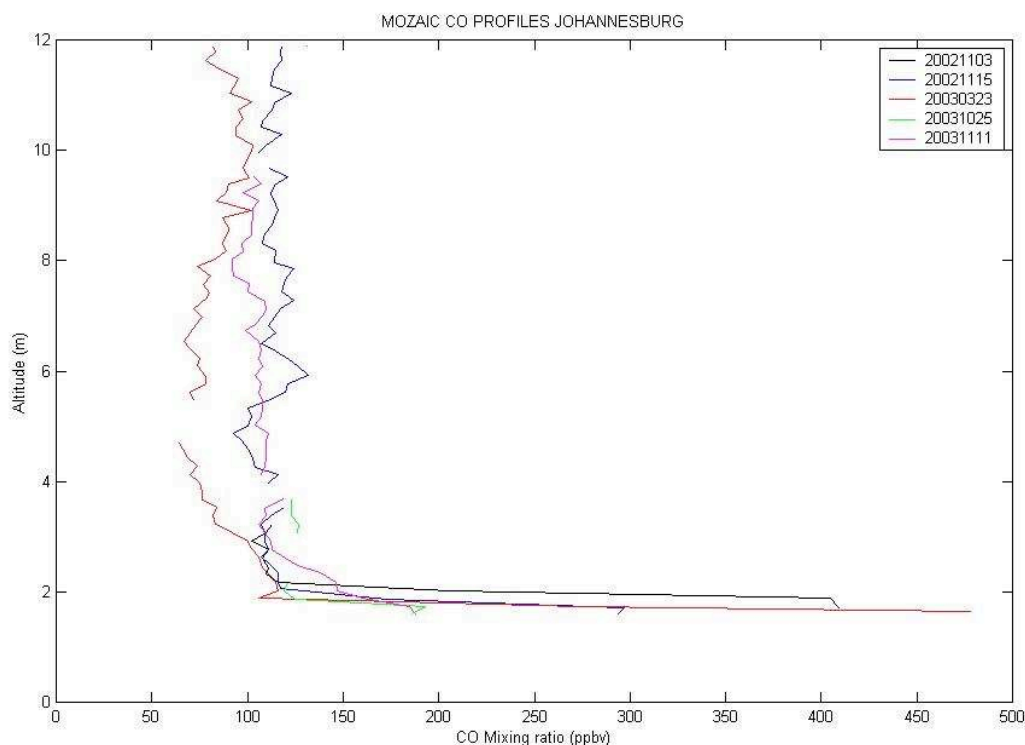


Figure 2.2 Profils de monoxyde de carbone issus de mesures MOZAIC au départ et vers Johannesburg

2.3.2 Radiosondages AFS

A Irene, en Afrique du Sud, des sondes ozone ont été lâchées régulièrement entre juillet 1990 et octobre 1993 [Diab et al., 2004]. Le site de lâcher de ballons sondes se trouve à 1524 m d'altitude par rapport au niveau de la mer. Les sondages ont repris régulièrement lorsque le site a rejoint le réseau SHADOZ en 1998. Gerrie J.R. Coetzee est le responsable scientifique des données de radiosondages du site d'Irene.

De même qu'à La Réunion, des sondes ECC sont utilisés pour les mesures ozone. A Irene, les sondes ECC fonctionnent avec une solution KI tamponnée à 1%. La résolution des données, la précision des mesures et la portée maximale des profils sont identiques à celles de La Réunion. Les données ozone d'Irene ont été utilisées dans le cadre de la climatologie régionale de l'ozone troposphérique et pour le calcul de tendances de l'ozone troposphérique (Chapitre 3).

2.3.3 Données satellitaires

i MOPITT

Le senseur MOPITT (Measurement Of Pollution In The Troposphere) sur le satellite TERRA mesure le CO à l'échelle globale depuis Mars 2000 avec une résolution de 22 km et sur sept niveaux de pression (sol, 850,700,500,350,250 et 150 hPa). Les niveaux verticaux sont interdépendants et sont caractérisés par leur averaging kernel qui donnent la résolution verticale des mesures. La trace de la matrice d'averaging kernel qui définit le degré de liberté du signal, indique le nombre d'informations indépendantes contenues dans la mesure. Celle-ci dépend de la température de surface et donc aussi de la latitude et du moment de la mesure (jour ou nuit).

Les données de MOPITT ont été validées par comparaison avec des mesures de CO aéroportées (MOZAIC, campagnes COBRA 2004 et INTEX-A) (Drummond et al. 2006). La corrélation entre ces différents jeux de données est meilleure pour les bas niveaux (700-500 hPa) et sur la colonne totale. Cependant, un écart ou biais maximum entre les mesures est aussi retrouvé pour ces niveaux et pour la colonne totale. Les biais de mesures par rapport aux mesures aéroportées sont de l'ordre de $2\pm 9\%$ à 250 hPa au minimum et $14\pm 13\%$ au maximum à 700 hPa (Drummond et al. 2006). Les données de CO de MOPITT utilisées dans cette étude sont des données moyennées sur une surface de 300 km de rayon autour de La Réunion et d'Irene.

ii Surfaces brûlées L3JRC

Le produit L3JRC (Tansey et al., 2008) est issu d'une collaboration entre le JRC (Joint Research Center) et différents centres de recherches Européens. Ce produit est une carte globale à hautes résolutions spatiale (1 km²) et temporelle (intervalle quotidien) des surfaces brûlées sur sept ans entre Avril 2000 et Avril 2007. En complément des données satellitaires de pixels de feux (MODIS, AATSR Advanced Along-Track Scanning Radiometer), les cartes L3JRC prennent aussi en compte le type de végétation notamment à partir des données du senseur SPOT VGT.

2.4 Outils de Modélisation

2.4.1 ECMWF

Le centre Européen ECMWF (European Center for Medium range Weather Forecast) est une organisation internationale développant des modèles de prévision météorologique de moyenne échelle. Dans le cadre de cette thèse, les champs ECMWF ont été utilisés pour différents usages et notamment pour le forçage du code lagrangien trajectographique lacytraj (voir suite du chapitre). Les données archivées par l'OPAR sont les données de réanalyse ERA40 pour la période 1980-2002 puis les données opérationnelles d'ECMWF à partir de septembre 2002.

Les données ERA40 couvrent la période 1957-2002. Les données d'observation assimilées dans le modèle atmosphérique IFS CY23r4 (développé conjointement avec Météo France) utilisé pour ERA40 proviennent à la fois de données provenant des archives opérationnelles de ECMWF ainsi que de diverses données d'observations internationales allant de données de radiosondages aux données d'observations satellite. La résolution temporelle des données est de 6 heures et la résolution horizontale des données est de 1.125° . Les champs ECMWF sont proposés soit sur 60 niveaux isentropiques soit sur 21 à 23 (jusqu'à août 2002) niveaux de pression standard. Les données archivées à l'OPAR sont définies sur les niveaux de pression standard.

Bien qu'il soit actuellement possible de trouver des données de champs dynamiques avec des résolutions de l'ordre de la dizaine de km, nous avons choisi de procéder aux calculs dynamiques avec les données ECMWF archivées à l'OPAR. En effet, il faut prendre en compte que l'archivage de ce type de données requiert un temps certain. Par ailleurs, les calculs portant sur toute l'étendue de la base de données ozone de l'OPAR, il aurait fallu archiver 15 ans de champs globaux à haute résolution. Par conséquent, le meilleur compromis en coût temporel et technique s'est révélé être l'utilisation des archives existantes de données ECMWF de l'OPAR.

2.4.2 ORISAM-TM4

le modèle ORISAM-TM4 (Guillaume et al., 2007) est un couplage du modèle de chimie-transport global TM4 (Van Velthoven et al., 1996) avec le modèle ORISAM (ORganic and

Inorganic Sectional Aerosol Model, Bessagnet et al. 2002). Le développement de ce modèle permet d'appréhender la distribution des aérosols carbonés selon leur taille (de 0.04 μm à 10 μm) et inclut la chimie gazeuse des composés organiques et inorganiques.

Les champs d'ozone produits par ce modèle ont été comparés aux mesures in situ de radiosondages aux sites de La Réunion et d'Irene. Cette étude a été menée dans l'optique d'une évaluation du modèle dans la perspective de l'utilisation des champs de carbone suie comme traceur de feux de biomasse.

2.4.3 FLEXPART

FLEXPART (Stohl et al., 2005) est un modèle Lagrangien de dispersion de particules permettant de décrire le transport à grande échelle de polluants dans l'atmosphère. La version 6.2 utilise les champs dynamiques ECMWF sur 60 niveaux verticaux, 1° de résolution horizontale et une résolution temporelle de 3 heures. Dans la suite de ce chapitre, une comparaison de rétrotrajectoires calculées par Flexpart et par l'outil lagrangien Lacytraj est présentée.

2.4.4 GIRAFE

Le modèle GIRAFE (reGlonal ReAl time Fire plumEs, Mari et al. 2008) a été développé par ETHER (Center for Atmospheric Chemistry Products and Services) en s'appuyant sur le code de trajectoires lagrangien à l'origine de FLEXPART i.e. FLEXTRA (Stohl et al., 1998b). Ce modèle a été développé dans le but de modéliser la dispersion des panaches de polluants issus des feux de biomasse pendant la campagne AMMA (Réf.). GIRAFE utilise les données satellitaires provenant de MODIS ou TRMM afin de déterminer la position des pixels de feux. Les données satellitaires et les champs dynamiques de ECMWF sont couplés au modèle de dispersion lagrangien FLEXPART sur la région géographique choisie par l'utilisateur afin d'obtenir l'évolution temporelle du panache de feux.

2.4.5 MIMOSA

MIMOSA (Modélisation Isentropique du transport à Méso-échelle de l'Ozone Stratosphérique par Advection, Hauchecorne et al. 2002) est un modèle isentropique semi-lagrangien à haute

résolution. Les fichiers d'initialisation du modèle sont les champs de réanalyse du centre Européen ECMWF avec quatre échéances quotidiennes (0, 6, 12 et 18 UT). La résolution verticale et horizontale de ces fichiers sont des paramètres du modèle. Le modèle MIMOSA procède à l'advection des champs de PV sur les niveaux isentropiques (320 K à 950 K) avec une résolution temporelle d'une heure. Toutes les six heures, un schéma d'interpolation ajuste les valeurs de diffusion du modèle par rapport à la diffusion atmosphérique réelle estimée par Waugh et al. (1997). les mécanismes diabatiques sont également pris en compte : une relaxation du champ de PV est appliquée toutes les six heures sur les échelles spatiales de plus de 300 km avec une constante de temps de 10 jours.

Les données de PV advectée issues de MIMOSA sont disponibles sur le site d'ETHER sur six niveaux isentropiques stratosphériques entre (380 K, 435 K, 475 K, 550 K, 675 K et 950 K). Ainsi, le modèle MIMOSA est bien adapté pour l'étude de phénomènes stratosphériques mais présente des restrictions dans le cadre d'une application à la troposphère.

2.4.6 LACYTRAJ

2.4.6.1 La méthode RDF

L'outil trajectographique Lacytraj a été utilisé dans l'optique de l'application de la méthode dite RDF (Reverse Domain Filling Dritschel, 1988; Sutton et al., 1994) à des champs de traceurs atmosphériques. Les outils numériques FLEXPART et LAGRANTO (Wernli et Davis, 1997) sont également adaptés à ce type d'étude. L'utilisation de ces codes est particulièrement adaptée pour l'étude approfondie de cas individuels et requiert notamment un format particulier de données ECMWF. Au vu du nombre de cas à traiter pour l'analyse de la base de données ozone de La Réunion, et de la compatibilité du code aux données ECMWF archivées par l'OPAR, l'outil trajectographique Lacytraj s'est avéré le mieux adapté.

La méthode RDF consiste tout d'abord à calculer des rétrotrajectoires initialisées sur une grille spatiale définie par l'utilisateur et sur une durée donnée. La valeur du traceur est récupérée aux positions initiales de la trajectoire afin de reconstruire le champ final. La durée de la rétrotrajectoire doit être ajustée à la durée de vie du traceur choisi. En effet, l'advection du traceur se fait sous l'hypothèse que le traceur est passif pendant la durée de la rétrotrajectoire. Cette méthode permet d'atteindre des échelles de résolution fines lors de la reconstruction de champs advectés.

2.4.6.2 Description technique de LACYTRAJ

Le code trajectographique Lacytraj a été développé par Jean Luc Baray. Initialement codé pour un fonctionnement sur Matlab, ce code a été converti en langage C++ et installé sur le serveur du LACy par Franck Gabarrot. Le code utilise actuellement les champs dynamiques de réanalyse ECMWF ER40. La résolution des données est de 1.125° sur 21 à 23 niveaux verticaux de pression en fonction de l'année et la résolution temporelle est de 6 heures.

L'espace d'étude en trois dimensions et sa résolution étant définis par l'utilisateur, chaque point de grille assimilable à une parcelle d'air, est advectée selon une interpolation bilinéaire pour les champs horizontaux et le temps, et selon une interpolation log-linéaire pour le vent vertical. Cette interpolation est effectuée avec un pas de temps choisi par l'utilisateur, généralement entre 5 et 30 minutes pour quelques jours de calcul. Actuellement, lacytraj ne fonctionne qu'en mode backward, mais un fonctionnement en mode forward est prévu dans l'avenir. Le nombre de fichiers intermédiaires sauvegardés entre les dates de fin et de départ est aussi un choix de l'utilisateur.

2.4.6.3 Comparaison de trajectoires LACYTRAJ/FLEXPART

Des signatures de transport stratosphère – troposphère ont été identifiées en périphérie du système dépressionnaire Guillaume de février 2002 (Leclair de Bellevue et al., 2006). Des rétrotrajectoires ont été calculées sur 5 jours entre le 10 février et le 15 février dans une tranche d'altitude de 1 km d'épaisseur autour de 9 km d'altitude et sur environ 6 jours entre le 13 février et le 19 février dans une tranche d'altitude de 1 km d'épaisseur autour de 7 km d'altitude. Ces rétrotrajectoires ont été calculées avec Lacytraj et aussi avec le code lagrangien Flexpart (figure 2.3, 2.4). L'échelle de couleurs est représentative de l'altitude des masses d'air. La comparaison des deux codes conduit aux observations suivantes :

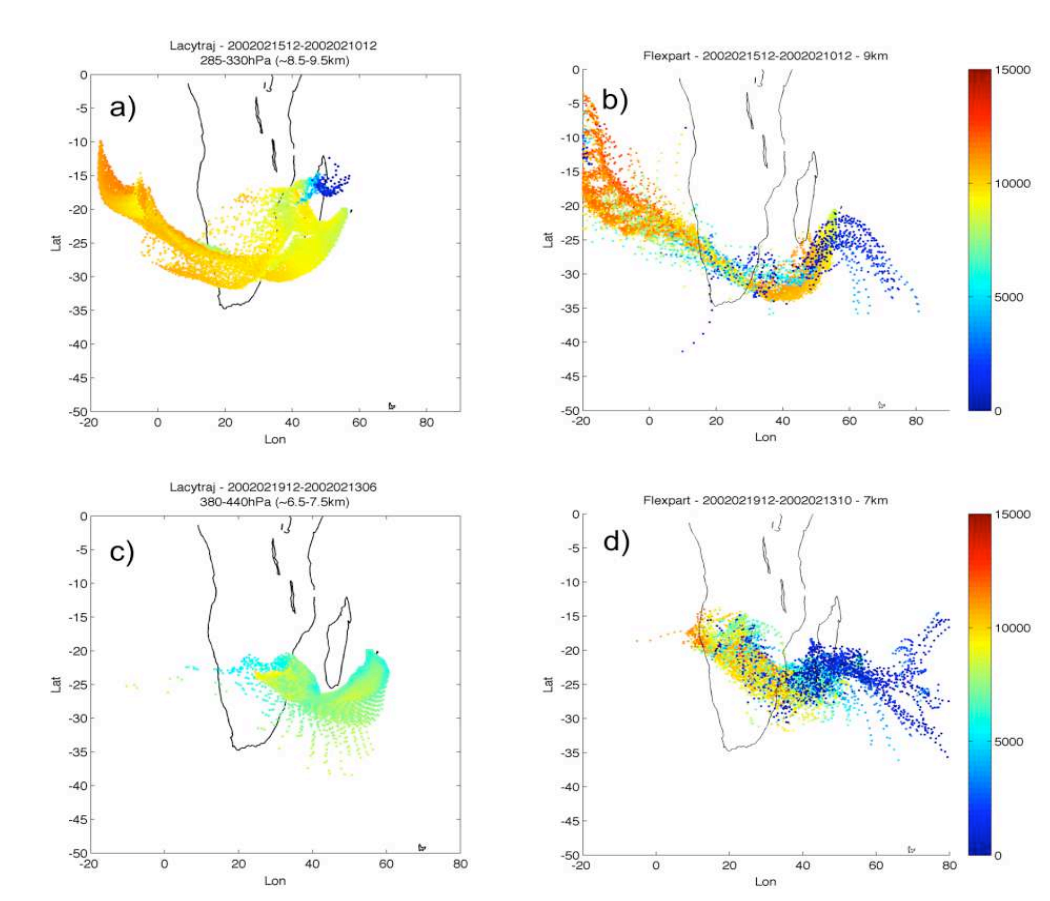


Figure 2.3 Comparaison des rétrotrajectoires calculées par Lacytraj (colonne de gauche) aux trajectoires calculées par Flexpart (colonne de droite) pour les cas du 15 février et du 13 février 2002.

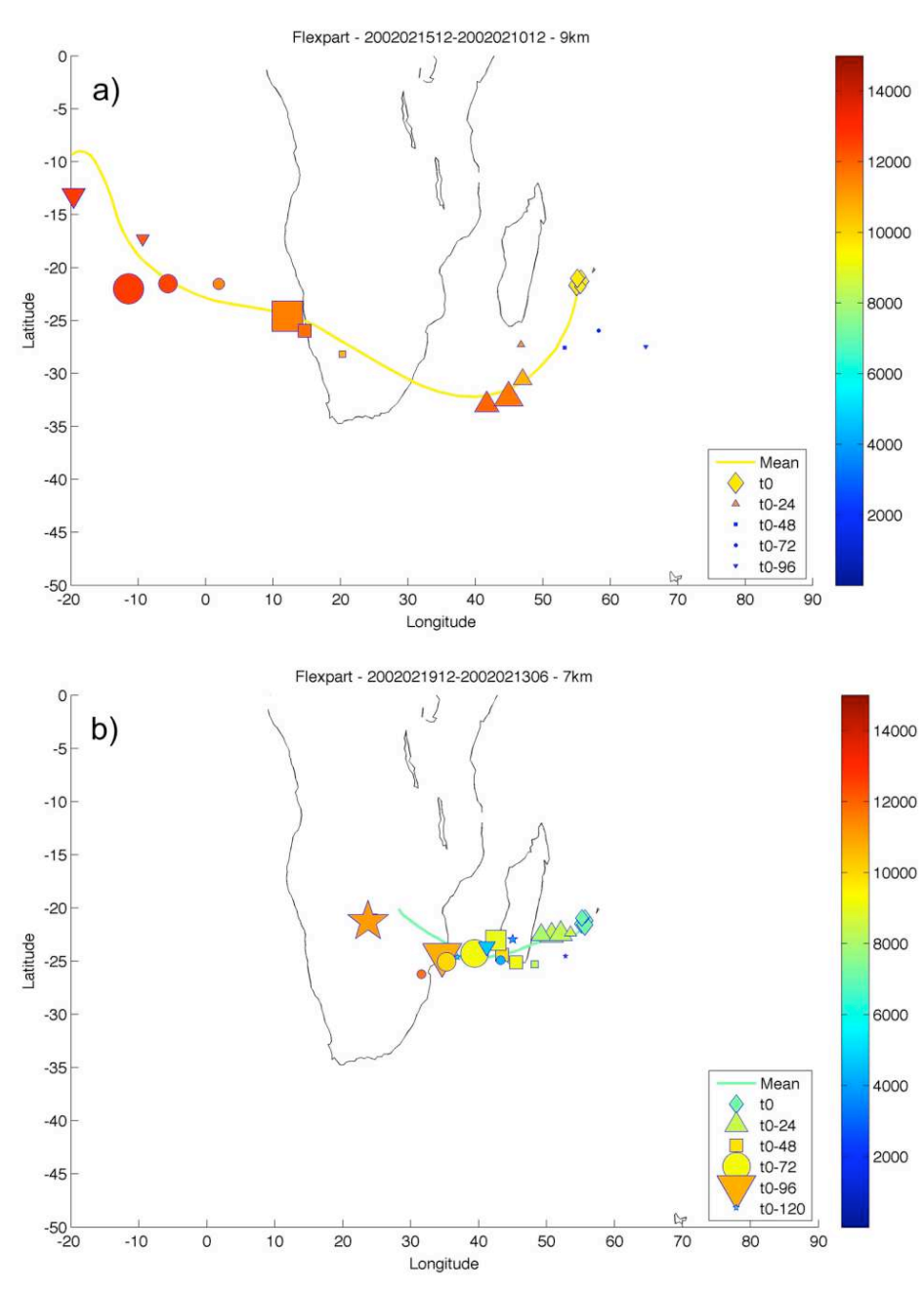


Figure 2.4 Trajectoire moyenne calculée par Flexpart pour les cas a) du 15 février (faisceau centré autour de 9 km d'altitude) et b) du 13 février 2002 (faisceau centré autour de 7 km d'altitude).

L'observation du cas du 15 février montre que les deux groupes de trajectoires présentent des caractéristiques similaires : l'origine des masses d'air pour les deux cas se situe dans le sud de l'Océan Atlantique entre 10°S et 20° S et entre 10° E et 20°E le 10 février. Par ailleurs, les deux codes reproduisent une subsidence le long de la trajectoire : les deux modèles situent les masses d'air autour de 14 km d'altitude le 10 février.

Les deux modèles montrent une subsidence à l'ouest de l'Afrique du Sud, entre 20°S et 30° S et entre 10° E et 20°E, de même à l'Est de Madagascar entre 25°S et 30°S et entre 45°E et 55°E ces deux parties subsidentes étant séparées par une partie d'ascension convective à l'Est de l'Afrique du Sud, entre 30°S et 35°S et entre 25°E et 35°E.

Les deux modèles reproduisent un faisceau de trajectoires trouvant leur origine en basse troposphère. Cependant, Lacytraj trouve l'origine de ces masses d'air se situe au Nord de Madagascar, proche de la dépression tropical Guillaume, entre 15°S et 20 °S et entre 45°E et 55°E. Pour Flexpart, l'origine de ces masses d'air est confondue dans le faisceau de trajectoires. Cependant, la trajectoire moyenne (figure 2.4a) montre que la proportion de ces masses d'air est faible et influence peu la trajectoire moyenne du faisceau.

Concernant le cas du 19 février, les deux calculs de rétrotrajectoires présentent également des caractéristiques similaires : l'origine des masses d'air se situe dans les deux cas au dessus de l'Afrique du Sud, entre 15°S et 30°S et entre 10°E et 35°E. La trajectoire calculée par Flexpart présente un caractère globalement subsident avec une altitude moyenne de 11 km le 13 février. Le caractère subsident est moins visible sur les trajectoires Lacytraj. Les deux codes montrent une dispersion importante des masses d'air le 13 février. Enfin, bien qu'une partie des trajectoires calculées par Flexpart trouve son origine dans les basses couches à l'Est de La Réunion, ce faisceau influence peu la trajectoire moyenne par rapport au faisceau originaire de l'Afrique du Sud (figure 2.4).

La résolution verticale des données utilisées par Flexpart, avec 60 niveaux verticaux, est meilleure que celle des données utilisées par Lacytraj qui comprennent 23 niveaux verticaux. De plus, la convection n'est pas explicitement paramétrée dans Lacytraj. En dépit de ces différences, la comparaison des trajectoires calculées par les deux modèles présente de nombreuses caractéristiques communes. Par conséquent, l'utilisation de Lacytraj pourra être généralisée dans l'optique d'une utilisation en routine sur l'ensemble de la base de données ozone de l'OPAR.

2.4.6.4 Comparaison des distributions RDF-LACYTRAJ avec les données d'observation

A Vorticité Potentielle

Cette partie traite des champs de vorticité potentielle reconstruits par la méthode RDF à partir des calculs de rétrotrajectoires du code Lacytraj. Ces champs sont comparés dans un premier temps au modèle MIMOSA puis à des mesures in situ d'ozone par lidar dial.

i Comparaison Lacytraj - MIMOSA

La figure 2.5 montre un champ horizontal de PV à 250 hPa en date du 14 février 2004 reconstruit par la méthode RDF avec 48 heures de rétrotrajectoires Lacytraj. Ce champ est comparé à un champ de PV issu du modèle MIMOSA (Hauchecorne et al., 2002) qui correspond à des mesures menées lors de la campagne HIBISCUS (Marécal et al., 2007). Le champ issu du modèle MIMOSA a été reconstruit à partir de rétrotrajectoires d'une durée de 10 jours sur des niveaux isentropiques compris entre 200 hPa et 250 hPa. Bien que l'échelle de couleurs diffère entre les deux images, les deux modèles reproduisent la présence de filaments stratosphériques en haute troposphère à 25°S, 105°O ; 30°S, 65°O ; 20°S, 40°O ; 25°S, 15°O. En outre, les trois zones de haute valeur absolue de PV distribuée zonalement au sud de 40°S sont bien reproduites pour les deux modèles à 105°O, 60°O et 10°O.

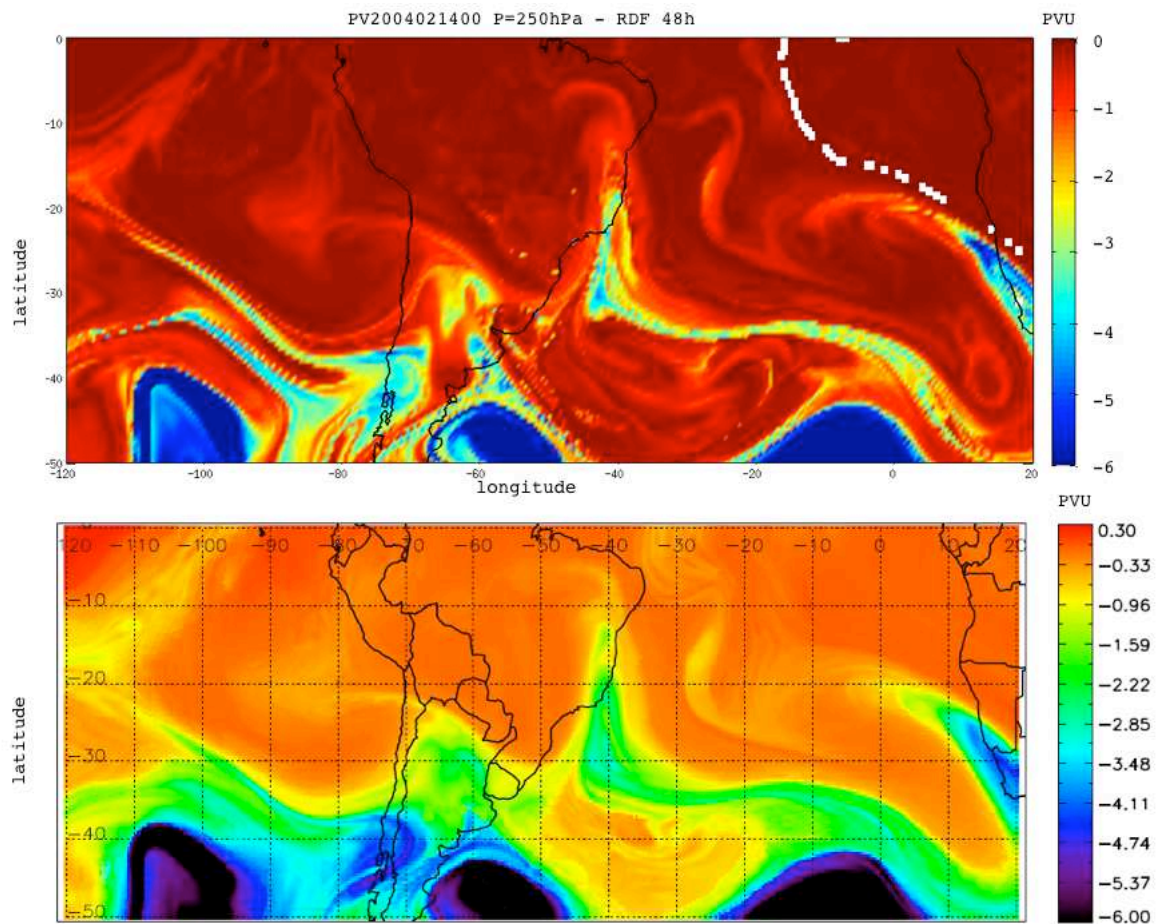


Figure 2.5 (a) Champ horizontal de PV reconstruite par la méthode RDF à l'aide du code Lacytraj comparé au (b) champ horizontal de PV calculé par le modèle MIMOSA.

ii Comparaison Lacytraj - profils lidar dial

Les deux profils ozone présentés en figure 2.6 ont été mesurés les 3 et 4 décembre 1999 à 18UT à La Réunion dans le cadre d'une campagne de mesures visant à étudier la variabilité quotidienne de l'ozone troposphérique durant la saison des feux de biomasse en Afrique du Sud (Randriambelo et al., 2000).

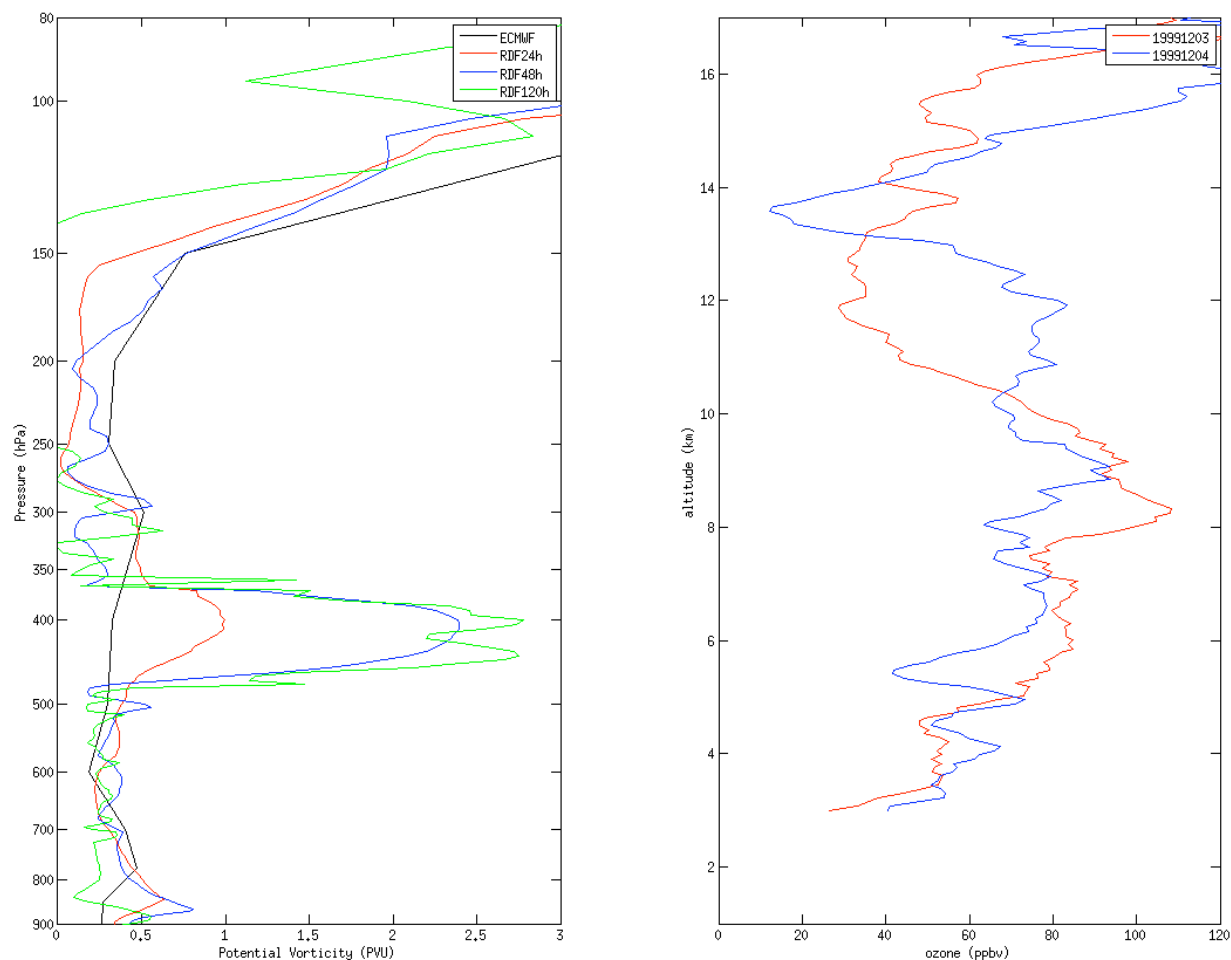


Figure 2.6 (gauche) profils de PV reconstruits par la méthode RDF à 24h (rouge) , 48 h (bleu) et 120 h (vert) d'échéance comparés au profil ECMWF du 03 Décembre 2004 (noir). (droite) profils d'ozone mesure par lidar DIAL les 03 et 04 Décembre 2004.

Ces deux profils lidar sont comparés à trois profils de PV reconstruits en date du 4 décembre 1999 par la méthode RDF à partir de rétrotrajectoires calculées par Lacytraj sur des périodes de 24 heures, 48 heures et 120 heures.

Les profils d'ozone montrent des couches troposphériques enrichies en ozone, entre 5 km et 11 km le 3 décembre, et entre 6 km et 12 km le 4 décembre. La valeur maximum mesurée est de 108 ppbv à 8.3 km le 3 décembre et de 94 ppbv à 8.8 km le 4 décembre.

La reconstruction des profils de PV montre un pic de PV plus important avec 48 heures de rétrotrajectoires (2.5 PVU) qu'avec 24 heures (1 PVU). L'altitude de ces pics de PV se situe entre 500 hPa et 350 hPa, ce qui correspond à la partie basse de la couche troposphérique enrichie en ozone, environ 2 km en dessous du pic d'ozone.

Ces pics de PV appuient l'hypothèse du caractère stratosphérique de l'enrichissement en ozone mesuré par le lidar . Ces pics de PV n'apparaissent pas dans les données ECMWF ERA40 du jour de la mesure lidar.

Ces résultats montrent que la source stratosphérique a contribué à l'enrichissement en ozone troposphérique observé au cours de cette campagne.

Bien que plus bruité que le profil de 48 heures, le profil de PV reconstruit à partir de 120 heures de rétrotrajectoires présente aussi un pic de PV (>2PVU) localisé entre 500 hPa et 350 hPa. Cet exemple illustre le fait que des durées plus longues de rétrotrajectoires peuvent être utilisées dans le but de caractériser un maximum d'intrusions stratosphériques.

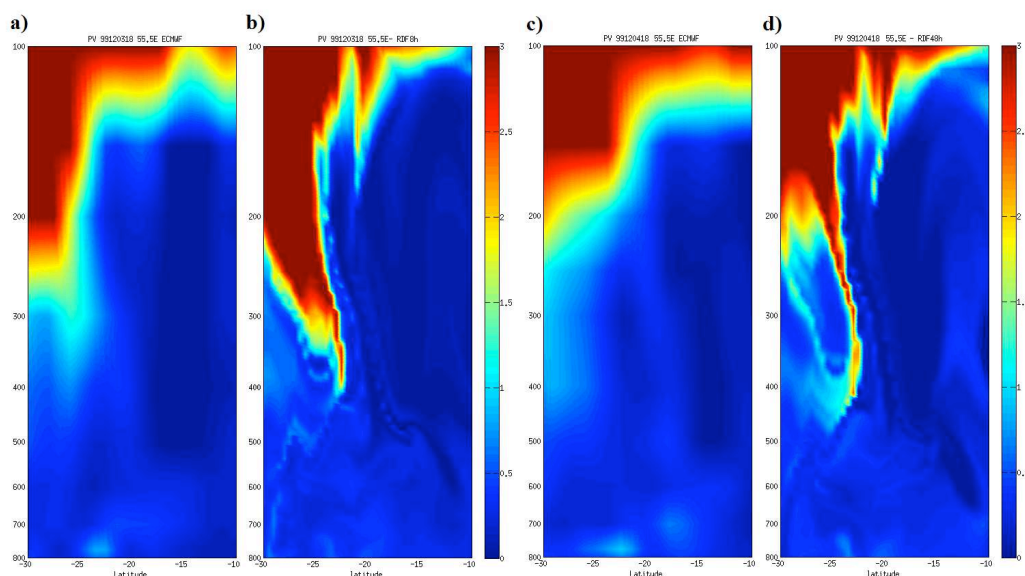


Figure 2.7 Coupes verticales des champs de PV ECMWF [(a), (c)] comparées aux champs de PV reconstruits par la méthode RDF avec le code Lacytraj avec 48 heures de rétrotrajectoires, [(b), (d)] pris à la longitude de La Réunion (i.e. 55.5°E) et pour les dates du 03 [(a), (b)] et 04 [(c), (d)] Décembre 1999.

La figure 2.7 présente des coupes verticales de PV reconstruites à partir de 48 heures de rétrotrajectoires Lacytraj pour les 3 et 4 décembre 1999 (figure 2.7, b,d) Chacune de ces coupes verticales est comparée au champ de PV ECMWF ERA40 pour la même date (figure 2.7, a,c). Les deux reconstructions RDF montrent un filament stratosphérique, plus large le 3 décembre 1999. Cette foliation de tropopause était localisée dans la zone d'entrée du jet subtropical. Cet exemple montre que la reconstruction RDF permet de non seulement de reproduire des distributions réalistes avec une résolution améliorée par rapport aux données brutes mais aussi d'observer des zones de fortes PV n'apparaissant pas sur les données de

réanalyse ERA 40 du fait du lissage spatio temporel des données globales. Ainsi, une information additionnelle est récupérée par rapport aux champs d'initialisation ERA40.

Au vu des résultats de la comparaison des reconstructions RDF de champs de PV avec le modèle MIMOSA, de la confrontation de cette méthode aux mesures d'ozone par lidar dial et des données ECMWF, le code Lacytraj apparaît comme un outil adéquat pour procéder à la reconstruction de champs de PV sur l'ensemble des dates de la base de données de l'OPAR et pour l'étude de la climatologie des échanges stratosphère – troposphère.

B Vapeur d'eau

Il est également possible d'utiliser le code RDF-Lacytraj sur d'autres traceurs que la PV et notamment la vapeur d'eau. Le rapport de mélange en vapeur d'eau est calculé à partir de la température et de l'humidité relative suivant la formule de Hyland et Wexler (1983). Il est important à ce point de rappeler la nature non conservative de la vapeur d'eau à l'échelle de quelques jours. Par conséquent, ce traceur sera advecté à l'échelle de quelques heures (6 heures ou 12 heures).

La figure 2.8 permet de comparer les profils de rapport de mélange en vapeur d'eau reconstruits à partir de 6 et 12 heures de rétrotrajectoires à un profil de vapeur d'eau mesuré à l'aide d'un lidar Raman le 5 Avril 2002. Ce profil est aussi comparé au profil issu des données ECMWF ERA40 du même jour. Le profil de vapeur d'eau Lidar a été calibré avec les données ECMWF entre 400 et 700 hPa. Le profil ECMWF présente deux points secs à 700 hPa et 600 hPa. Les profils reconstruits de vapeur d'eau confirment la présence d'une couche sèche entre 700 hPa et 600 hPa. La corrélation entre le profil ECMWF, le profil lidar et les profils reconstruits est bonne jusqu'à 180 hPa. La vapeur d'eau ECMWF est sous estimée au dessus de 180 hPa et l'advection par la méthode RDF ne permet pas d'améliorer les résultats. Considérant que la durée de vie de la vapeur d'eau troposphérique est très courte, une reconstruction à partir de 6 heures de rétrotrajectoires semble une meilleure option que 12 heures d'advection.

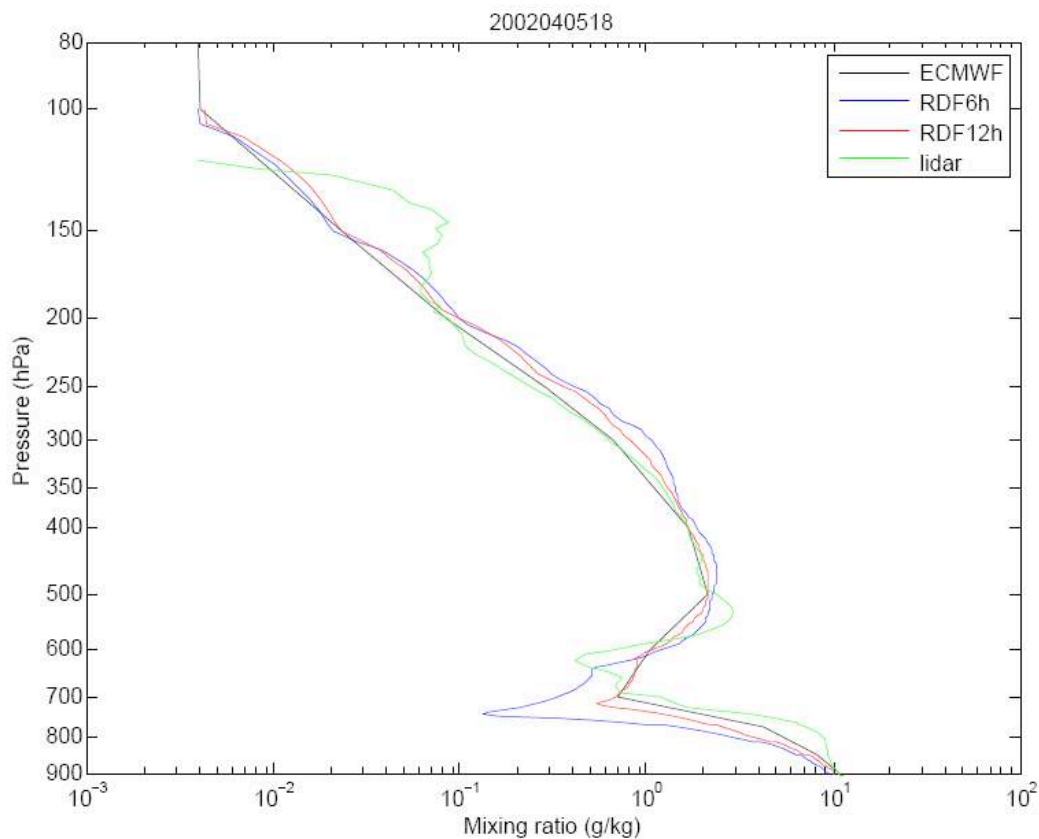


Figure 2.8 Profil lidar (vert) de rapport de mélange en vapeur d'eau mesuré par lidar Raman le 5 Avril 2002, comparé au profil ECMWF (noir) et aux profils reconstitués par la méthode RDF avec Lacytraj pour 6 heures (bleu) et 12 heures de rétrotrajectoires (rouge).

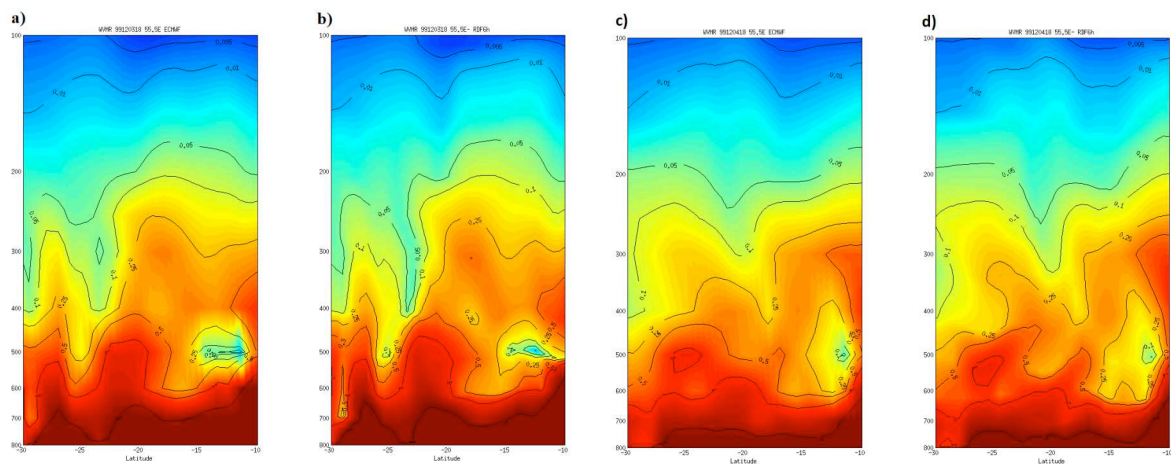


Figure 2.9 Coupes verticales des champs de rapport de mélange en vapeur d'eau [(a), (c)] comparées aux champs de rapport de mélange en vapeur d'eau reconstruits par la méthode RDF avec le code Lacytraj avec 6 heures de rétrotrajectoires, [(b), (d)] pris à la longitude de La Réunion (i.e. 55.5°E) et pour les dates du 03 [(a), (b)] et 04 [(c), (d)] Décembre 1999. L'échelle de couleurs est logarithmique et s'étend entre 0.001 (bleu) et 3 g.kg⁻¹ (rouge)

Cette paramétrisation a été appliquée pour la reconstruction de coupes verticales de vapeur d'eau en date des 3 et 4 décembre 1999 (figure 2.9). Alors que la figure 2.7 permettait de localiser un filament stratosphérique, le champ ECMWF montre que l'air contenu dans ce filament est de nature sèche. La reconstruction RDF sur 6 heures confirme cette information avec une accentuation du gradient autour des structures sèches, en particulier pour le cas du 3 décembre.

La figure 2.10 montre une comparaison entre une image du canal vapeur d'eau de METEOSAT, le champ ECMWF ERA40 et une reconstruction RDF à partir de 6 heures de rétrotrajectoires en date du 1er décembre 2007. Cet exemple montre que la méthode RDF permet de reconstruire des structures horizontales de petite échelle en accord avec le canal vapeur d'eau de METEOSAT et qui ne sont pas visible sur les données de réanalyse ECMWF. Par ailleurs, la méthode RDF appliquée à la vapeur d'eau présente un intérêt dans le cadre d'études sur les intrusions stratosphériques dans la troposphère, sur les ondes de Rossby, en interaction avec des cyclone tropicaux ou pas.

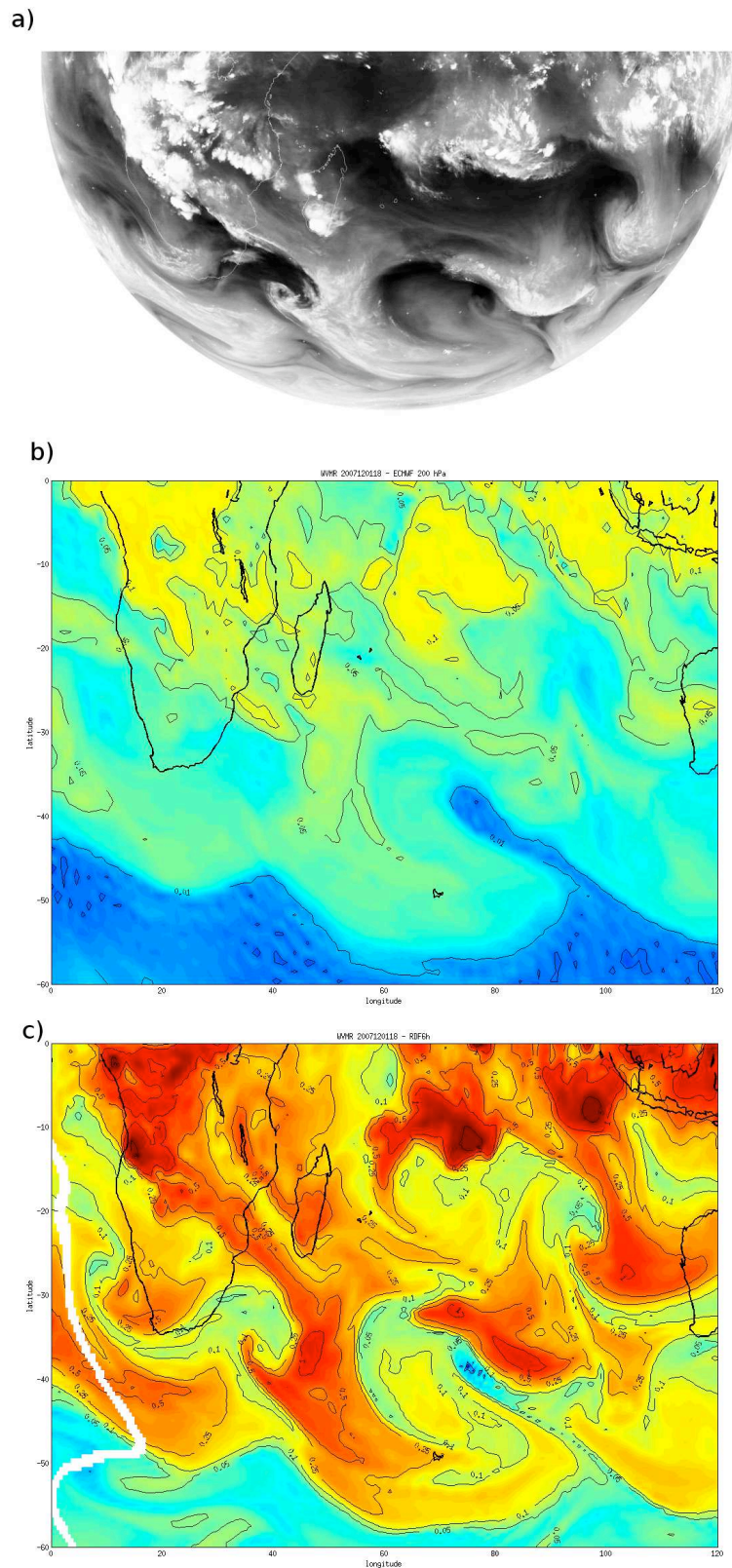


Figure 2.10 (a) Image du canal vapeur d'eau de METOSAT du 1er Décembre 2007. (b) Champ ECMWF du rapport de mélange en vapeur d'eau. (c) Reconstruction RDF du champ horizontal de rapport de mélange en vapeur d'eau par la méthode RDF avec 6 heures de rétrotrajectoires. L'échelle de couleurs et logarithmique et s'entend entre 0.001 (bleu) et 3 g.kg-1 (rouge)

Pour conclure sur la méthode RDF appliquée à la vapeur d'eau : les exemples développés dans cette section montrent que la méthode permet de reconstruire des structures de petite échelle n'apparaissant pas sur les données brutes ECMWF, mais en concordance avec des observations. Cependant deux problèmes subsistent :

- La durée de vie de la vapeur d'eau dans la troposphère est courte. Il est difficile d'augmenter la durée d'advection de la vapeur d'eau au delà de 6 heures sans précautions particulières. Ainsi, un moyen d'augmenter la durée des rétrotrajectoires serait de prendre en compte la détection d'une convection importante le long de la trajectoire. Dans un tel cas, la vapeur d'eau n'est alors plus conservative. Il faut prendre en compte le refroidissement, la condensation et les précipitations. Un schéma microphysique de base développé pour l'étude de la vapeur d'eau en présence de cirrus (Montoux et al., 2007) peut par exemple être couplé au code actuel.
- Les données de réanalyse de vapeur d'eau ECMWF ERA40 sont fiables en basse et moyenne troposphère, mais surestiment la vapeur d'eau au niveau de l'UTLS (Oikonomou et al., 2006). Une façon d'améliorer ce problème est d'initialiser le code avec d'autres données dans l'UTLS. En particulier, le nouveau produit d'ECMWF ERA-INTERIM peut présenter des avantages avec la modification du schéma d'analyse de la vapeur d'eau. Par ailleurs, l'utilisation de données satellite de vapeur d'eau telles que AIRS/AMSU, SAGE-II, HALOE, MIPAS pourrait aussi être envisagée pour l'initialisation des calculs d'advection de la vapeur d'eau.

En plus des critères de détermination sur les valeurs de vorticité potentielle et du rapport de mélange en ozone, la caractérisation des intrusions stratosphériques dans la troposphère peut aussi s'appuyer sur un faible rapport de mélange en vapeur d'eau. Cependant, en l'état actuel, il apparaît que l'outil RDF-Lacytraj doit être amélioré pour l'advection de la vapeur d'eau sur des échelles de temps plus longues que quelques heures. Par conséquent, dans la suite de cette étude, la détection des intrusions stratosphériques (chapitre 4) sera basée uniquement sur les valeurs de PV et de rapport de mélange en ozone troposphérique.

2.5 Conclusion du second chapitre

Ce chapitre a présenté les différents jeux de données utilisés dans le cadre de cette étude. Ces données comprennent des mesures in situ de composés atmosphériques provenant de La Réunion et de l'Afrique du Sud, mais aussi des données issues de modèles. Enfin, les performances de l'outil trajectographique Lacytraj ont été comparées à celles de modèles existants. Les résultats de cette étude montrent que Lacytraj est un code adapté à l'analyse en routine de l'ensemble de la base de données ozone de La Réunion, en s'appuyant sur les champs ECMWF archivés localement par l'OPAR.

Suite à la présentation technique de la base de données, il est intéressant de les exploiter d'un point de vue climatologique. Le chapitre suivant présente la climatologie de l'ozone troposphérique dans la région ainsi que la climatologie du CO, le CO étant considéré comme un marqueur de combustion de biomasses permettant d'évaluer les sources photochimiques de l'ozone troposphérique.

3 Climatologie régionale de l’ozone troposphérique et étude des traceurs de feux de biomasse

3.1 Introduction

Depuis le début de l’acquisition des radiosondages à La Réunion en 1992, et à Irene en 1990, ces bases de données ozone ont été exploitées d’un point de vue climatologique (Randriambelo et al., 1999, Diab et al., 2004) mais une étude comparative de ces sites régionaux n’a pas encore été menée. De plus, la durée temporelle que recouvrent les données est maintenant suffisante pour effectuer les premières estimations de tendances troposphériques. Comme il a été décrit au Chapitre 1, la troposphère à La Réunion comme à Irene est soumise à différentes influences géophysiques en fonction de l’altitude. Cette structure verticale justifie une étude de l’ozone troposphérique séparant les couches troposphériques (basse troposphère, troposphère libre, haute troposphère). Certaines des études présentées dans le cadre de ce chapitre aborderont la climatologie de l’ozone troposphérique sous cet aspect.

Au sein du jeu de données ozone de La Réunion, la comparaison de deux types de données, radiosondages et données lidar permettra de discuter la valeur climatologique de ces données en fonction de leur caractéristiques propres. Ces travaux ont été publiés en 2009 chez ACP (Annexe A).

La seconde partie de ce chapitre vise à apporter des éléments de départ pour l’étude des traceurs de feux de biomasse dans la région. Ces études ont été réalisées dans le cadre d’une collaboration avec Jean Luc Attié pour le volet MOPITT et avec Cathy Liousse pour le volet ORISAM TM4. Le monoxyde de carbone est un polluant primaire émis lors de la combustion incomplète de combustibles organiques fossiles ou de la biomasse. La quantité de CO produite par les feux de biomasse est évaluée à $1000 \pm 600 \text{ Tg(CO).an}^{-1}$ sur une production totale évaluée à $3300 \pm 1700 \text{ Tg(CO).an}^{-1}$ (Delmas, Mégie, Peuch, 2005). Ce gaz, d’une durée de vie d’environ deux mois peut donc être utilisé comme un traceur de feux de biomasse. La pollution anthropique et les feux de biomasse sont également des sources d’aérosols tels que le carbone suie (encore appelé black carbon). Les champs de carbone suie du modèle ORISAM-TM4 seront examinés. Dans le cadre de ce chapitre, nous apporteront des éléments pour la description de la climatologie régionale des traceurs de feux et nous discuterons des perspectives que soulèvent cette thématique dans le cadre d’une étude dans la région.

3.2 Climatologie de l’ozone

3.2.1 Mesures en basses couches : comparaison Dasibi – radiosondes

Avant de discuter les résultats portant sur la climatologie régionale de l’ozone sur l’ensemble de la troposphère, nous examinons un jeu de mesures d’ozone en basses couches réalisées à La Réunion.

Une année de mesures au sol d’ozone a été effectuée au Piton Textor à 2100 m d’altitude, (figure 3.1) entre octobre 1998 et octobre 1999 dans le cadre de la thèse de Chatrapatty Bhugwant. Les moyennes mensuelles de ces mesures ont été calculées en séparant les données de nuit et les données de jour et sont comparées au rapport de mélange en ozone à la même altitude, mesuré par radiosondages effectués au nord de l’île en matinée. La figure 3.1 présente les moyennes mensuelles de l’ozone mesuré à 2100 m par radiosondages calculées à partir de deux jeux de données : une moyenne calculée sur la période de mesures au sol 1998-1999, et une moyenne calculée sur la période 1992-2006. Ne disposant pas des écarts types liés au moyennes des mesures Dasibi, seuls les écarts types des moyennes de radiosondages sont représentés en figure 3.1.

Observations

Les moyennes mensuelles d’ozone mesuré par radiosondages pendant la période 1998-1999 sont comparables aux mesures au sol faites par le photomètre dasibi. En effet, on observe chaque courbe reproduit bien le même cycle annuel, le maximum d’ozone concordant avec la période des feux de biomasse sud africains et malgaches.

Le rapport de mélange en ozone mesuré par radiosonde pendant la période 1998-1999 présente des valeurs globalement inférieures aux mesures du piton Textor. Il faut préciser cependant que seulement 40 lâchers de ballons sonde ont été effectués durant cette période : les moyennes mensuelles sont donc calculées sur un maximum de 4 jours de données.

Les mesures au sol de nuit sont en moyenne supérieures au mesures au sol de jour.

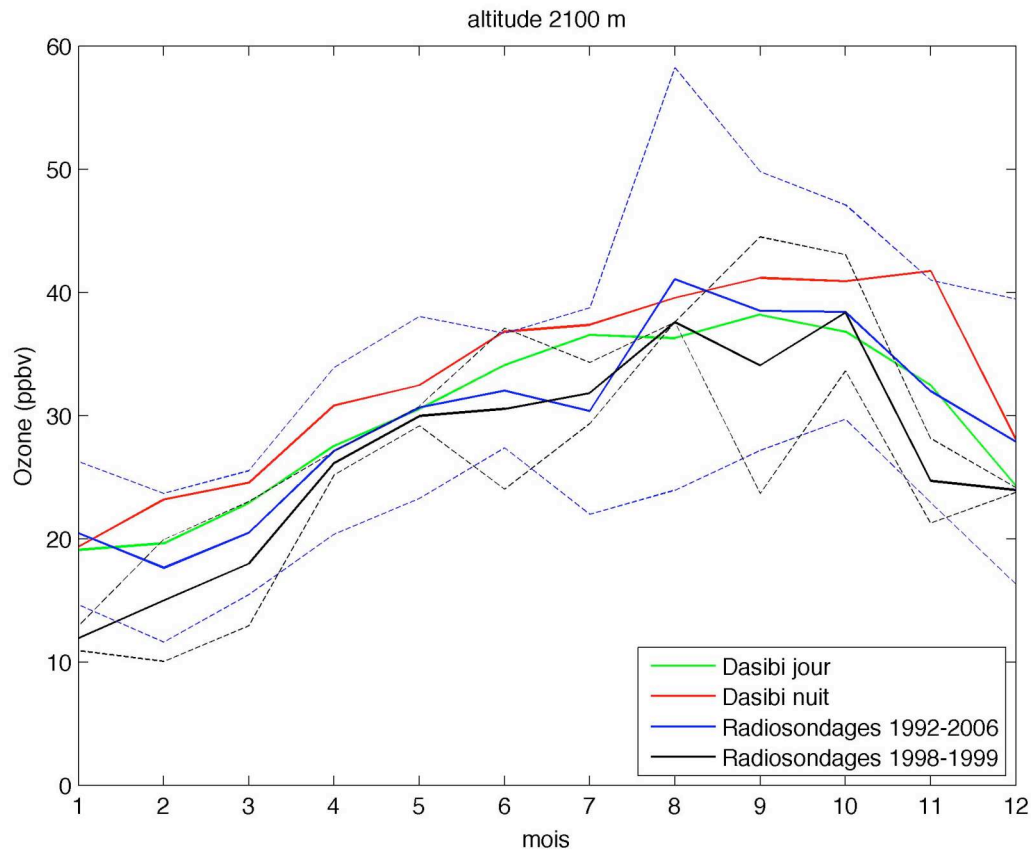


Figure 3.1 Variation saisonnière du rapport de mélange en ozone mesuré de jour (vert) et de nuit (rouge) au Piton Textor à 2100 m d'altitude au sud est de La Réunion entre octobre 1998 et octobre 1999 par le photomètre DASIBI, comparé au rapport de mélange en ozone mesuré par radiosondes à St Denis à la même altitude. La courbe noire correspond aux données de radiosondages durant période des mesures DASIBI, la courbe bleue est calculée à partir de l'ensembles des données de radiosondages entre 1992 et 2006.

Discussions

Les circulations le long des reliefs sont gouvernées par une combinaison de brises de mer - brises de terre apparaissant en réponse à un gradient de température entre la mer et le relief et/ou entre la base et le sommet du relief. La prédominance de ces circulations dépend de l'ensoleillement mais aussi de l'influence des Alizés. Durant la journée, le contraste thermique le long du relief (et/ou entre terre et Océan) crée une force locale de gradient de pression dirigée vers les hauteurs du relief. Une combinaison de brise de mer et de brise de pente ascendante contribue à convoier des masses d'air pauvres en ozone de la couche limite vers les hauteurs. Des mécanismes turbulents contribuent au mélange de ces masses d'air avec

des masses d'air plus riches en ozone en troposphère libre. Les masses d'air résultantes présentent des concentrations en ozone similaires au contenu en troposphère libre. Durant la nuit, une combinaison de brise de terre et de brise de pente descendante crée une circulation subsidente des masses d'air. Ce type de circulations a été observé par exemple sur les pentes du volcan Mauna Loa (Garrett, 1980) et a récemment été documenté pour La Réunion par des études numériques à l'aide de Méso-NH (Lessouef et al., 2008).

Les mesures au sol de nuit semblent être représentatives du contenu en ozone en troposphère libre à approximativement 3000 m. Ce mécanisme conduit à un cycle inversé de l'ozone, avec des valeurs de rapport de mélange en ozone de nuit supérieures aux valeurs mesurées de jour. Ce cycle particulier de l'ozone avec un maximum nocturne a été observé sur plusieurs sites montagneux continentaux (Zaveri et al., 1995), et a été observé à La Réunion jusqu'en couche limite marine et a été attribué à des mécanismes dynamiques (Bremaud et al. 1998a). Dans une autre publication, Bremaud et Taupin (1998b) discutent de l'influence de la chimie hétérogène au sein de nuages orographiques dans la couche limite marine dans le but d'expliquer la diminution diurne de l'ozone. Cependant, il est possible que ce mécanisme soit de second ordre comparé au mélange vertical de masses d'air présentant un important gradient vertical d'ozone.

Un cycle saisonnier comparable à celui observé en troposphère libre est observé avec un maximum de Juin à novembre (hiver à printemps) et un minimum de décembre à Mai (été à automne). Ce cycle saisonnier est observable à la fois sur les mesures au sol à 2100 m d'altitude et sur les données de radiosondages à la même altitude, les valeurs d'ozone au sol étant en moyenne légèrement supérieures aux valeurs mesurées par radiosondages.

Les mesures d'ozone au sol de jour semblent être représentatives de la troposphère libre à la même altitude alors que les mesures de nuit semblent être représentatives du contenu en ozone à plus haute altitude (~ 3000 m) en raison de mécanismes de subsidence.

Des mesures au sol à une station d'altitude permettent de documenter le cycle saisonnier régional de l'ozone troposphérique.

Un travail de modélisation à méso échelle a été lancé dans le cadre de la thèse de Dorothée Lessoueff, pour mieux comprendre les mécanismes dynamiques locaux pouvant affecter les mesures atmosphériques dans une station d'altitude. Cette étude s'inscrit dans le projet de construction de l'observatoire de l'OPAR au Maïdo.

3.2.2 Hauteur de la tropopause

Cette section a pour but de justifier le choix de la limite haute du domaine d’étude de la climatologie régionale de l’ozone troposphérique présentée dans les sections suivantes.

La tropopause est la région de l’atmosphère séparant la troposphère et la stratosphère. D’après l’Organisation Mondiale de la Météorologie (WMO), la tropopause correspond à l’altitude à partir de laquelle le gradient de température ne dépasse pas 2K.km^{-1} . Par conséquent la tropopause se caractérise par une stabilité statique croissante en direction de la stratosphère. Une autre définition thermique de la tropopause correspond à l’altitude du point froid.

D’un point de vue chimique, la tropopause peut être abordée comme une zone de fort gradient en rapport de mélange en ozone séparant la troposphère du réservoir stratosphérique où le rapport de mélange en ozone est de l’ordre du ppmv. On parle alors d’ozonopause.

D’après Holton (1995), une approximation de la hauteur de la tropopause tropicale est le niveau isentropique 380K. La tropopause extratropicale est souvent approximée par l’isosurface de vorticité potentielle égale à 2 PVU. Cette dernière définition détermine la tropopause dynamique.

La résolution verticale des données de réanalyse ECMWF dans l’UTLS est de l’ordre de 50 hPa. Cette résolution ne permet pas de déterminer avec précision la hauteur de la tropopause dynamique à partir d’une interpolation des champs de vorticité potentielle. De même les champs de PV advectée du modèle MIMOSA sont des champs purement stratosphériques. Le niveau le plus bas est 380K, ce qui ne permet pas d’évaluer la hauteur de tropopause à une latitude subtropicale telle que celle de La Réunion.

Treize années de radiosondages (1992-2005) ont été utilisées par Sivakumar et al. (2006) pour déterminer la hauteur moyenne de la tropopause à La Réunion. Ces travaux situent la hauteur du point froid à 17.2 ± 0.6 km, la tropopause thermique à $16 \text{ km} \pm 0.73$ km et l’ozonopause à $15.5 \text{ km} \pm 1.5$ km.

Dans le but d’étudier la variation saisonnière de la hauteur de la tropopause, les données de radiosondages ont été utilisées pour le calcul des moyennes mensuelles de la hauteur du point froid et de l’ozonopause (figures 3.2 et 3.3), l’ozonopause étant définie comme la hauteur minimale à partir de laquelle le gradient du rapport de mélange en ozone est strictement supérieur à 55 ppbv.km^{-1} et le rapport de mélange en ozone supérieur ou égal à 75 ppbv. La figure 3.2 montre que la hauteur du point froid varie entre 17.5 km en avril et 16.7 km au mois d’août à La Réunion. La hauteur de l’ozonopause à La Réunion oscille entre 16.7 km et

17.6 km d’altitude. A Irene, la hauteur du point froid est comprise entre 17 km et 17.6 km, et la hauteur de l’ozonopause varie entre 16.3 km et 17.4 km (figure 3.3).

On observe que si la hauteur du point froid a une variabilité peu marquée qu’au cours de l’année, l’ozonopause à Irene est plus basse qu’à La Réunion en particulier à partir de l’hiver austral. Irene étant localisée à une latitude plus basse que La Réunion, il est donc cohérent d’y retrouver une tropopause plus basse. De plus, l’ozonopause d’hiver à Irene peut être influencée par la proximité du courant jet subtropical.

Au vu de ces résultats ainsi que de l’étude de Sivakumar (2006), on peut considérer que l’altitude 16 km constitue la limite basse de la tropopause et cette valeur peut être choisie comme limite supérieure d’une tranche d’atmosphère représentative de la troposphère. La climatologie de l’ozone troposphérique se fera donc dans un domaine allant de 3 km à 15 - 16 km. La limite basse de 3 km étant imposée par la nature des données lidar (voir annexe C).

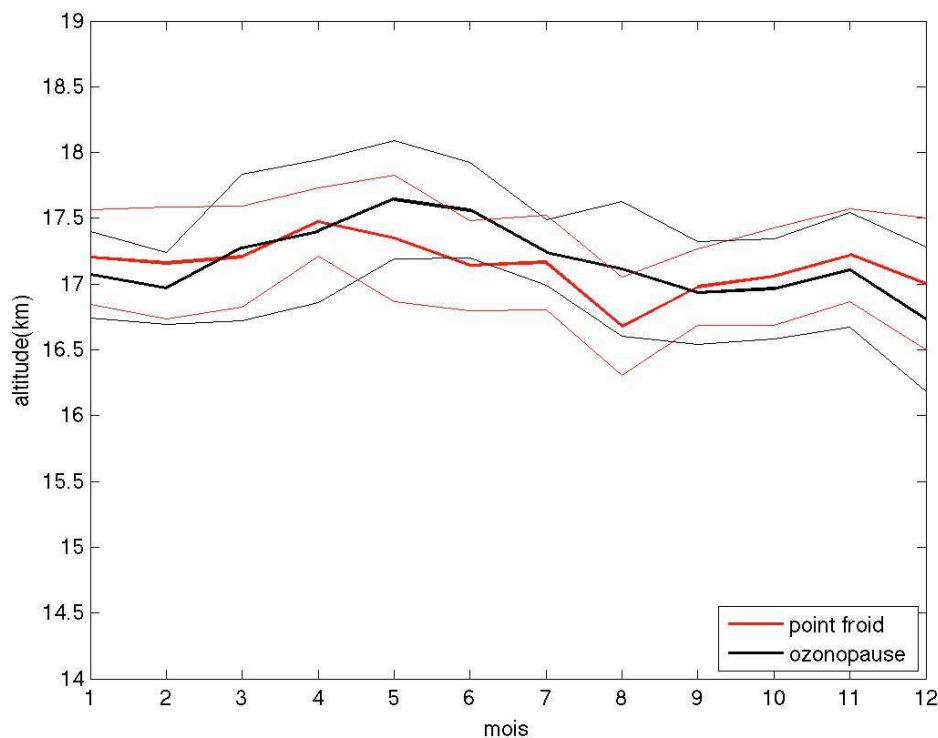


Figure 3.2 Distributions mensuelles moyennes de la hauteur du point froid et de l’ozonopause calculée à partir des données de radiosondage de La Réunion.

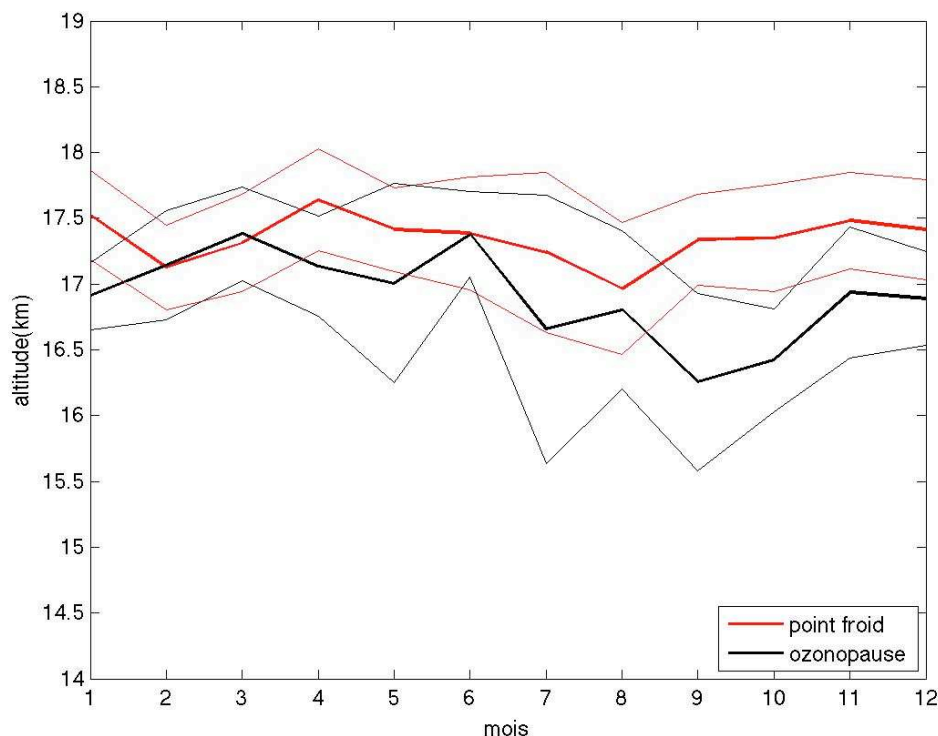


Figure 3.3 Distributions mensuelles moyennes de la hauteur du point froid et de l'ozonopause calculée à partir des données de radiosondage d'Irene.

3.2.3 Profils saisonniers lidar radiosondes

Les profils moyens saisonniers du rapport de mélange en ozone entre 3 km et 15 km d'altitude sont présentés en figure 3.4. Les profils saisonniers ont été calculés à partir des mesures faites par lidar dial (courbes rouges) et par radiosondages (courbes bleues). Les moyennes présentées sont accompagnées d'une marge représentant l'écart type à la valeur moyenne. Les profils verts à droite de chaque vignette représentent le nombre de valeurs lidar qui ont été utilisées pour calculer le profil moyen à chaque niveau d'altitude.

Observations

Les profils saisonniers montrent des valeurs moyennes concordantes entre 3 km et 11 km pour l'hiver et le printemps, et en automne le meilleur accord se situe entre 3 km et 13 km.

Les profils lidar présentent un rapport de mélange inférieur à celui des profils de radiosondages au delà de 11 km en hiver et au printemps, et au delà de 13 km en automne et

en été. Cette différence visible sur les profils climatologiques n’est pas observable sur des mesures simultanées (Baray et al. 1999).

Le profil d’été montre une bonne concordance en basse troposphère jusqu’à 5 km d’altitude. Entre 5 km et 13 km, le profil lidar présente un rapport de mélange en ozone supérieur à celui du profil de radiosondages. L’écart maximum entre les deux profils est de 13 ppbv à 9.5 km d’altitude.

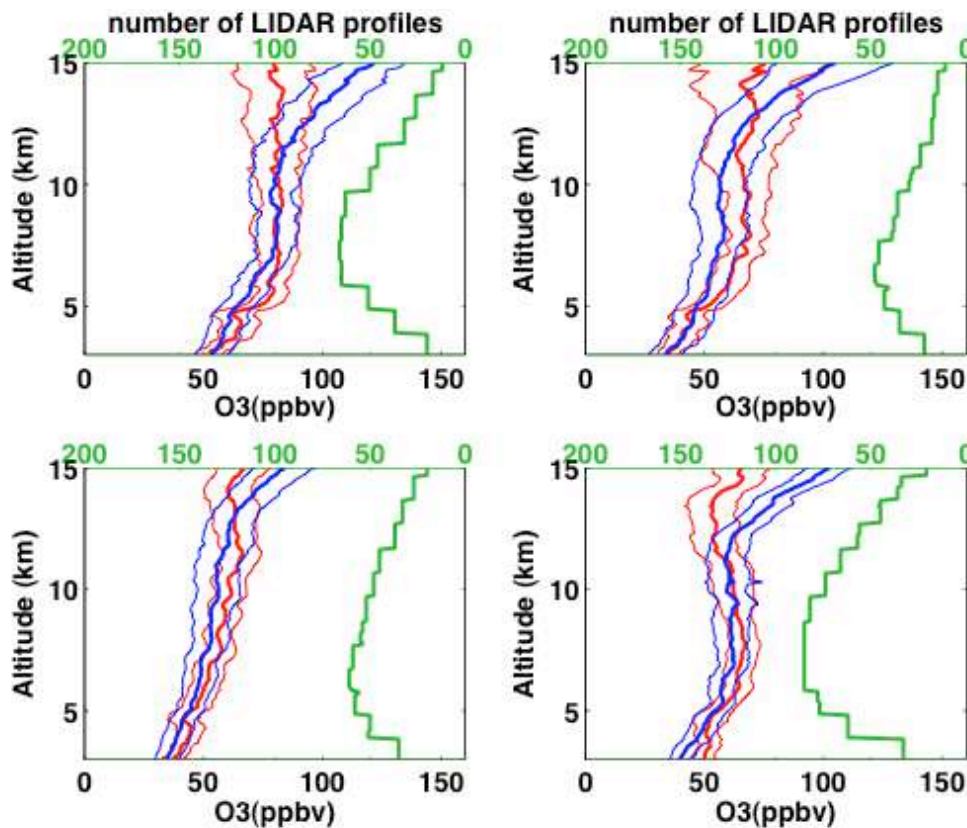


Figure 3.4 Comparaison des profils saisonniers d’ozone troposphérique entre 3 km et 15 km calculés à partir des données lidar (rouge) et de radiosondages (bleu) pour (a) le printemps austral (SON) , (b) l’été austral (DJF), (c) l’automne austral et (d) l’hiver austral. Les courbes en gras correspondent au profils saisonniers, les courbes fines représentent l’écart type. En vert la distribution verticale du nombre de profils lidar utilisés pour calculer le profil climatologique en fonction de l’altitude. Figure extraite de Clain et al., 2009.

Discussions

La concordance des profils saisonniers entre 3 km et 11 km à 13 km selon la saison porte à attribuer une valeur climatologique équivalente au deux types de données dans cette marge d’altitude pour l’hiver, le printemps et l’automne.

Tous les profils saisonniers lidar présentent en haute troposphère un rapport de mélange en ozone inférieur à celui du profil de radiosondages. Nous suggérons que cette caractéristique est due à la nature du signal lidar. En effet, le faisceau lidar est absorbé par les molécules d’ozone présentes dans la troposphère. La limite supérieure des profils dépend de plusieurs facteurs comme la qualité de l’alignement optique du système lidar, de la puissance émise, mais également des quantités d’ozone présentes dans la troposphère et qui vont absorber le signal. Par conséquent, d’un point de vue statistique, la limite supérieure des profils très enrichis en ozone sera inférieure à celle des profils présentant peu d’ozone troposphérique. Contrairement aux mesures lidar, les mesures d’ozone par radiosondages ne sont pas dépendantes de la concentration atmosphérique en ozone, ce qui explique la différence entre les profils saisonniers en haute troposphère. Pour les raisons évoquées précédemment, la climatologie lidar dial n’est pas représentative de la climatologie réelle de l’ozone troposphérique, pour la partie haute de la troposphère.

Enfin, le profil d’été lidar présente un rapport de mélange en ozone supérieur à celui du profil de radiosondages entre 5 km et 13 km d’altitude. Cette différence observée est comparable à la différence observée entre deux profils climatologiques en présence et en absence de convection (fig. 4 Leclair de Bellevue et al., 2006).

Alors que les mesures par radiosondages sont représentatives d’un large éventail de conditions météorologiques, les mesures par lidar dial se font uniquement de nuit et par ciel clair. De plus, l’été austral correspond à la saison des pluies à La Réunion. La convection exerce un rôle complexe sur la formation de l’ozone et sa distribution verticale : l’ascension de masses d’air pauvres en ozone au sein de systèmes convectifs conduit à de faibles valeurs en ozone en moyenne et haute troposphère. Néanmoins, la convection profonde au voisinage d’intrusions stratosphériques en bordure du courant jet subtropical peuvent être associés à une augmentation de l’ozone en moyenne troposphère (Leclair de Bellevue et al., 2006).

3.2.1 Discussion sur l’utilisation climatologique des données.

Dans le dernier chapitre de ce manuscrit, les profils d’ozone individuels seront analysés de façon systématique afin de localiser l’apparition d’un excès d’ozone par rapport aux valeurs climatologiques. La discussion précédente ayant mis en lumière des différences climatologiques entre les jeux de données ozone de radiosondages et du lidar, il est opportun de discuter de l’utilisation des climatologies ozone dans le cadre de cette étude.

La comparaison des profils saisonniers calculés à partir des données lidar et de radiosondages fait apparaître des différences liées à la nature respective des mesures :

Le nombre de profils lidar utilisés pour calculer un profil climatologique n’est pas constant en fonction de l’altitude (figure 3.4). Les parties extrêmes (haute et basses) d’un profil climatologique lidar sont calculées à partir d’un nombre réduit de profils par rapport à la moyenne troposphère.

Bien qu’en bon accord pour une partie de la troposphère, les profils moyens et les écarts types lidar et radiosondages peuvent présenter des différences importantes. En particulier, en haute troposphère, les profils saisonniers lidar présentent systématiquement un rapport de mélange en ozone inférieur au profil de radiosondages.

Il existe un biais apparent entre les données lidar et les données radiosondages en période de forte activité convective, l’été austral.

Au vu de ces différences, l’approche choisie pour l’analyse des profils individuels lidar et radiosondages sera de distinguer les climatologies lidar et radiosondes. Cette approche permet de prendre en compte la nature des données en référence à leur propre climatologie.

Ce choix reste quelque peu arbitraire car l’option de considérer une seule climatologie, celle des radiosondages, est recevable sous l’argument que les radiosondages sont représentatifs d’un plus large échantillon de conditions météorologiques que les données du lidar. Cette option n’a pas été appliquée dans le cadre de mes travaux mais peut s’inscrire dans une perspective d’approfondissement et de critique de la méthode.

3.2.4 Etude comparative de la climatologie régionale de l’ozone

L’évolution mensuelle du rapport de mélange en ozone troposphérique (entre 3 km et 16 km) a été calculée à partir des données lidar, des données de radiosondages entre 1998 et 2006 ainsi que de 9 ans de données MOZAIC (figure 3.5).

La limite basse de 3 km d’altitude est imposée par la nature des données lidar (annexe D), et la limite haute de 16 km se situe au niveau de la tropopause thermique d’après Sivakumar et al. (2006).

Observations

Le maximum de printemps est observable dans toute la troposphère pour chacun des jeux de données. Les valeurs les plus fortes apparaissent dans les données de radiosondages (figure 3.5 b,d). Les données d’Irene présentent des valeurs supérieures à 90 ppbv au dessus de 10

km d’altitude au printemps austral. Les données lidar et MOZAIC présentent également un pic de printemps mais les rapports de mélange en ozone ont des valeurs rarement supérieures à 80 ppbv en basse et moyenne troposphère, en particulier pour les données de Johannesburg. Le rapport de mélange en ozone troposphérique calculé à partir des données lidar présente en janvier des valeurs plus importantes que les valeurs calculées à partir des radiosondages de La Réunion. Les données lidar présentent des valeurs comprises entre 80 ppbv et 90 ppbv entre 9 km et 12 km. Dans cette tranche d’altitude, les données de radiosondages présentent des valeurs comprises entre 50 ppbv et 70 ppbv. Ce résultat est concordant avec les observations précédentes faites sur la comparaison des profils d’été austral issus des données lidar et des données de radiosondages.

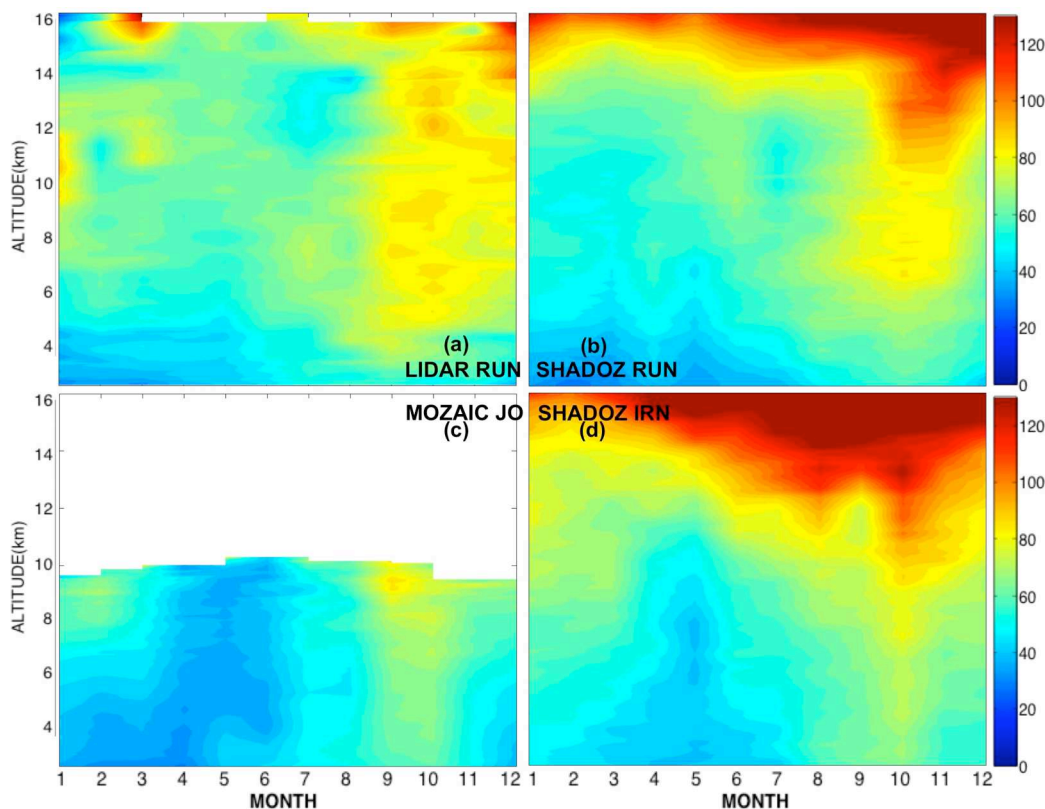


Figure 3.5 Distribution mensuelle du rapport de mélange en ozone troposphérique (0-130 ppbv) entre 3 km et 16 km d’altitude pour différents sites de mesures et types de données : (a) données lidar de La Réunion, (b) données de radiosondages de La Réunion, (c) données mozaic de Johannesburg et (d) données de radiosondages d’Irene. Figure extraite de Clain et al., 2009.

Le rapport de mélange en ozone à Irene en haute troposphère est plus important que celui observable à La Réunion et ce, durant toute l'année. Pendant l'hiver austral, l'ozonopause est située à une altitude plus basse à Irene qu'à La Réunion : à cette saison, l'isocontour 100 ppbv est situé entre 1 km et 2 km d'écart entre les deux sites (figures 3.5b,d).

En été austral et au delà de 10 km d'altitude, on observe des valeurs moyennes dépassant 70 ppbv à Irene. A La Réunion pour la même période, des telles valeurs sont observables à partir de 11 km.

Les données MOZAIC et SHADOZ d'Afrique du sud présentent une augmentation de l'ozone en moyenne troposphère (> 60 ppbv) à la fin de l'été austral (janvier).

Discussions

Durant l'hiver et le printemps, l'ozonopause est située à un niveau plus bas à Irene qu'à La Réunion. Irene est localisée à 25.9 °S de latitude alors que la latitude de La Réunion est plus au nord à 21°S. Par conséquent, le site d'Irene est plus fortement soumis à l'influence du courant jet subtropical que La Réunion. En outre, selon James et al. (2003) les intrusions stratosphériques dans l'hémisphère Sud sont à leur maximum à la latitude de 30° S et en hiver austral. Ainsi une ozonopause climatologique plus basse à Irene est en concordance avec l'hypothèse d'une activité importante des échanges stratosphère – troposphère durant l'hiver et le printemps en Afrique du Sud.

En été, la haute troposphère à Irene présente des valeurs de rapport de mélange en ozone plus importantes qu'à La Réunion. Irene est localisée plus près des sources de précurseurs que La Réunion. De plus, en été austral, l'Afrique du sud subit l'influence des flux d'est chargés d'humidité. L'activité convective est ainsi favorisée et rend possible l'advection et le mélange des masses d'air troposphériques (Ziemke et al., 2009). Enfin, d'après Collier et al. (2006) la production de NOx par activité électrique en Afrique du Sud est maximum en été austral. La redistribution rapide des polluants de surface par convection et la production de NOx sont des conditions susceptibles de favoriser une augmentation d'ozone en moyenne et haute troposphère.

Les données d'Afrique du sud présentent des valeurs d'ozone autour de 60 ppbv en moyenne troposphère en Janvier. Ces valeurs semblent s'inscrire dans la continuité du pic de printemps apparent depuis le mois d'octobre. D'autre part, Selon Diab et al. (2004), Irene est localisée

dans une région fortement urbanisée et industrialisée. L’usage domestique et industriel de sources d’énergie fossiles couplé à la convection peut aussi contribuer au phénomène observé.

3.2.5 Tendances de l’ozone troposphérique

Les tendances linéaires de l’ozone troposphérique ont été calculées à partir de l’ensemble des données ozone de radiosondages de La Réunion (1992-2008) et d’Irene (1990-2008). Les mesures d’ozone par radiosondages à Irene ayant été interrompues entre 1994 et 1998, les tendances d’Irene seront donc calculées sur deux jeux de données, à savoir les périodes 1990-2008 et 1998-2008. Les discussions seront cependant focalisées sur les périodes les plus longues. Les tendances linéaires ont été calculées sur la colonne totale, puis pour différentes couches troposphériques et les tendances saisonnières ont également été calculées. La tendance linéaire est calculée par régression linéaire en utilisant la méthode des moindres carrés. L’erreur statistique est calculée par le test de Student avec un intervalle de confiance de 95%, ce qui donne une estimation statistique de l’influence de la variabilité des données ozone sur l’estimation de la tendance linéaire (Montgomery et al., 2006). Les tendances de l’ozone sont reportées en table 3.1 en DU (Dobson Units, $1\text{DU} = 2.69 \times 10^{-16} \text{ moléc./cm}^2$) par décennie et en pourcentage par décennie. Une tendance est considérée comme statistiquement significative lorsque la valeur de l’erreur est strictement inférieure à la valeur de la tendance. Ainsi, les tendances non significatives sont reportées en italique dans la table 3.1.

Altitude (km), Saison	Reunion 1992-2008		Irene 1990-2008		Irene 1998-2008	
	tendance (DU/décennie)	tendance (%/décennie)	tendance (DU/décennie)	tendance (%/décennie)	tendance (DU/décennie)	tendance (%/décennie)
L-16	1.94 +/- 1.81	5.67 +/- 5.28	1.81 +/- 0.97	5.21 +/- 2.78	<i>2.47 +/- 3.01</i>	<i>6.93 +/- 8.44</i>
2-4	<i>0.01 +/- 0.37</i>	<i>0.12 +/- 6.91</i>	0.93 +/- 0.26	14.37 +/- 4.01	2.08 +/- 0.86	30.45 +/-12.52
4-10	<i>0.70 +/- 0.93</i>	<i>4.37 +/- 5.81</i>	0.63 +/- 0.52	3.99 +/- 3.31	<i>1.11 +/- 1.56</i>	<i>6.91 +/- 9.67</i>
10-16	1.31 +/- 0.62	12.34 +/- 5.82	<i>0.24 +/- 0.44</i>	<i>1.92 +/- 3.51</i>	<i>-0.61 +/- 1.45</i>	<i>-4.82 +/- 11.43</i>
L-16, DJF	<i>1.38 +/- 3.12</i>	<i>4.55 +/- 10.32</i>	2.41 +/- 1.95	7.16 +/- 5.79	<i>1.60 +/- 6.13</i>	<i>4.61 +/- 17.62</i>
2-4, DJF	<i>-0.40 +/- 0.65</i>	<i>-9.34 +/- 15.20</i>	1.31 +/- 0.57	20.53 +/- 9.03	2.04 +/- 1.83	29.48 +/-26.46
4-10, DJF	<i>0.45 +/- 1.66</i>	<i>3.15 +/- 11.76</i>	<i>0.99 +/- 1.17</i>	<i>6.22 +/- 7.39</i>	<i>0.16 +/- 3.65</i>	<i>0.96 +/- 22.33</i>
10-16, DJF	1.58 +/- 1.32	16.07 +/-13.43	<i>0.25 +/- 0.63</i>	<i>2.19 +/- 5.49</i>	<i>-0.25 +/- 1.96</i>	<i>-2.14 +/- 16.86</i>
L-16, MAM	<i>0.20 +/- 2.47</i>	<i>0.69 +/- 8.57</i>	<i>0.43 +/- 1.10</i>	<i>1.46 +/- 3.70</i>	<i>1.22 +/- 3.37</i>	<i>4.08 +/- 11.25</i>
2-4, MAM	<i>-0.18 +/- 0.45</i>	<i>-4.00 +/- 10.13</i>	0.71 +/- 0.31	12.99 +/- 5.67	2.12 +/- 1.24	36.38 +/-21.17
4-10, MAM	<i>0.38 +/- 1.32</i>	<i>2.84 +/- 9.93</i>	<i>-0.11 +/- 0.68</i>	<i>-0.85 +/- 5.14</i>	<i>-1.16 +/- 2.115</i>	<i>-8.71 +/- 15.88</i>
10-16, MAM	<i>0.38 +/- 0.93</i>	<i>4.12 +/- 10.15</i>	<i>-0.14 +/- 0.61</i>	<i>-1.25 +/- 5.58</i>	<i>0.54 +/- 2.14</i>	<i>5.02 +/- 19.80</i>
L-16, JJA	4.14 +/- 3.70	11.95 +/-10.67	3.12 +/- 1.74	9.18 +/- 3.70	14.98 +/-13.77	5.50 +/- 4.82
2-4, JJA	<i>0.12 +/- 0.88</i>	<i>2.10 +/- 15.69</i>	0.69 +/- 0.52	11.51 +/- 5.67	1.98 +/- 1.63	31.55 +/-25.92
4-10, JJA	2.00 +/- 1.97	12.34 +/-12.17	1.70 +/- 0.88	11.39 +/- 5.14	4.40 +/- 2.17	28.26 +/-13.95
10-16, JJA	1.86 +/- 0.97	18.30 +/- 9.51	<i>0.73 +/-1.08</i>	<i>5.57 +/- 5.58</i>	<i>-1.08 +/- 3.40</i>	<i>-7.99 +/- 25.11</i>
L-16, SON	2.69 +/- 2.47	6.18 +/- 5.69	2.70 +/- 1.66	6.55 +/- 4.02	5.50 +/- 4.82	12.99 +/-11.39
2-4, SON	<i>0.40 +/- 0.50</i>	<i>5.71 +/- 7.21</i>	1.17 +/- 0.49	14.96 +/- 6.22	2.39 +/- 1.49	28.89 +/- 18.08
4-10, SON	<i>0.45 +/- 1.30</i>	<i>2.20 +/- 6.34</i>	<i>0.77 +/- 0.96</i>	<i>4.04 +/- 5.04</i>	2.70 +/- 2.69	13.98 +/-13.95
10-16, SON	1.58 +/- 1.10	11.84 +/- 8.25	<i>0.76 +/- 0.84</i>	<i>5.33 +/- 5.85</i>	<i>0.41 +/- 2.81</i>	<i>2.80 +/- 19.06</i>

Table 3.1 Tendances linéaires calculées à La Réunion et à Irene, en DU par décennie et en pourcentage par décennie, pour la colonne totale troposphérique, pour la basse troposphère (L km – 4 km), moyenne troposphère (4 km – 10 km) et haute (10 km - 16 km) troposphère et à chaque saison. La limite basse L est de 1 km pour La Réunion et de 2 km pour Irene. La période de mesure des données est mentionnée après la désignation du site. Les tendances non significatives sont reportées en italique.

Observations

Les tendances linéaires de l’ozone calculées sur la colonne totale troposphérique sont présentées en figure 3.6. La limite basse de la colonne troposphérique est de 1 km à La Réunion et de 2 km à Irene en raison de la différence d’altitude des deux sites. La limite haute est fixée à 16 km au niveau moyen de la tropopause thermique (Sivakumar et al., 2006). Les tendances troposphériques de la colonne totale à La Réunion (1.94 ± 1.81 DU/décennie) et à Irene (1.81 ± 0.97 DU/décennie) sont positives.

Dans le but d’examiner l’influence potentielle des deux sources principales d’ozone dans la région (i.e. photochimie des précurseurs émis par la pollution anthropique et les feux de biomasse dans les basses couches et les échanges stratosphère - troposphère), la troposphère est divisée en trois couches (figure 3.7) : la première en dessous de 4 km, l’altitude estimée de l’inversion des Alizés (Taupin et al., 1999), les deux autres subdivisant la troposphère libre en deux couches équivalentes en épaisseur : la moyenne troposphère entre 4 km et 10 km, et la haute troposphère entre 10 km et 16 km.

Des différences apparaissent entre les deux sites :

La tendance en basse couche est clairement positive à Irene (0.93 ± 0.26 DU/décennie) et nulle à La Réunion (0.01 ± 0.37 DU/décennie).

La tendance en moyenne troposphère à Irene est positive (0.63 ± 0.52 DU/décennie) mais moins que celle de la couche inférieure. La tendance la plus faible est observée pour Irene en haute troposphère (0.24 ± 0.44 DU/décennie) et n’est pas statistiquement significative. A La Réunion, le comportement des tendances est inversé : la tendance en moyenne troposphère est positive mais pas significative (0.70 ± 0.93 DU/décennie), et la plus forte tendance est observée en haute troposphère (1.31 ± 0.62 DU/décennie).

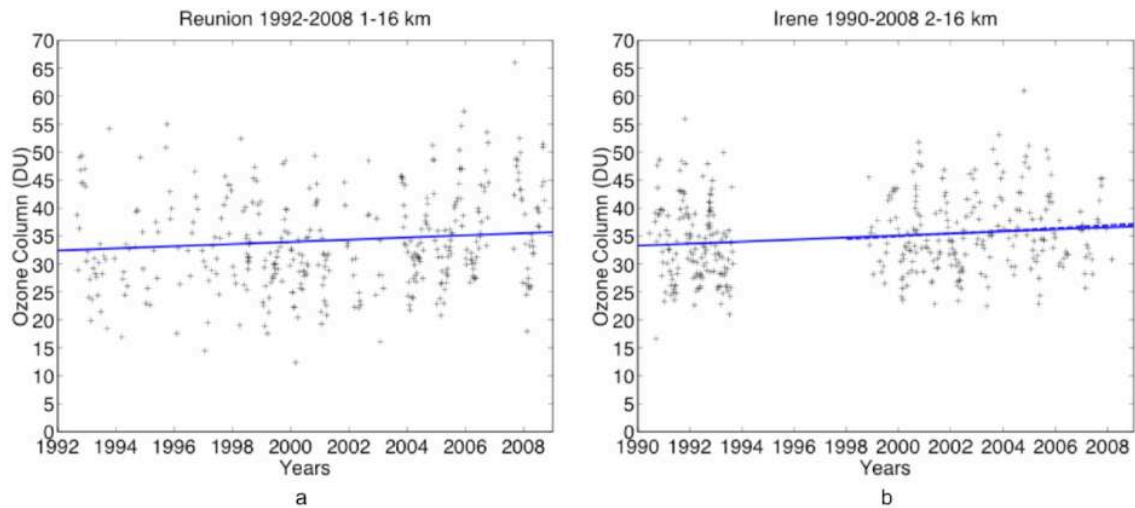


Figure 3.6 Tendances linéaires de l'ozone troposphérique calculées sur l'ensemble de la base de données de radiosondages entre (a) 1 km et 16 km à La Réunion et entre (b) 2 km et 16 km à Irene. La ligne tiretée correspond à la tendance pour Irene calculée entre 1998 et 2006. Figure extraite de Clain et al., 2009.

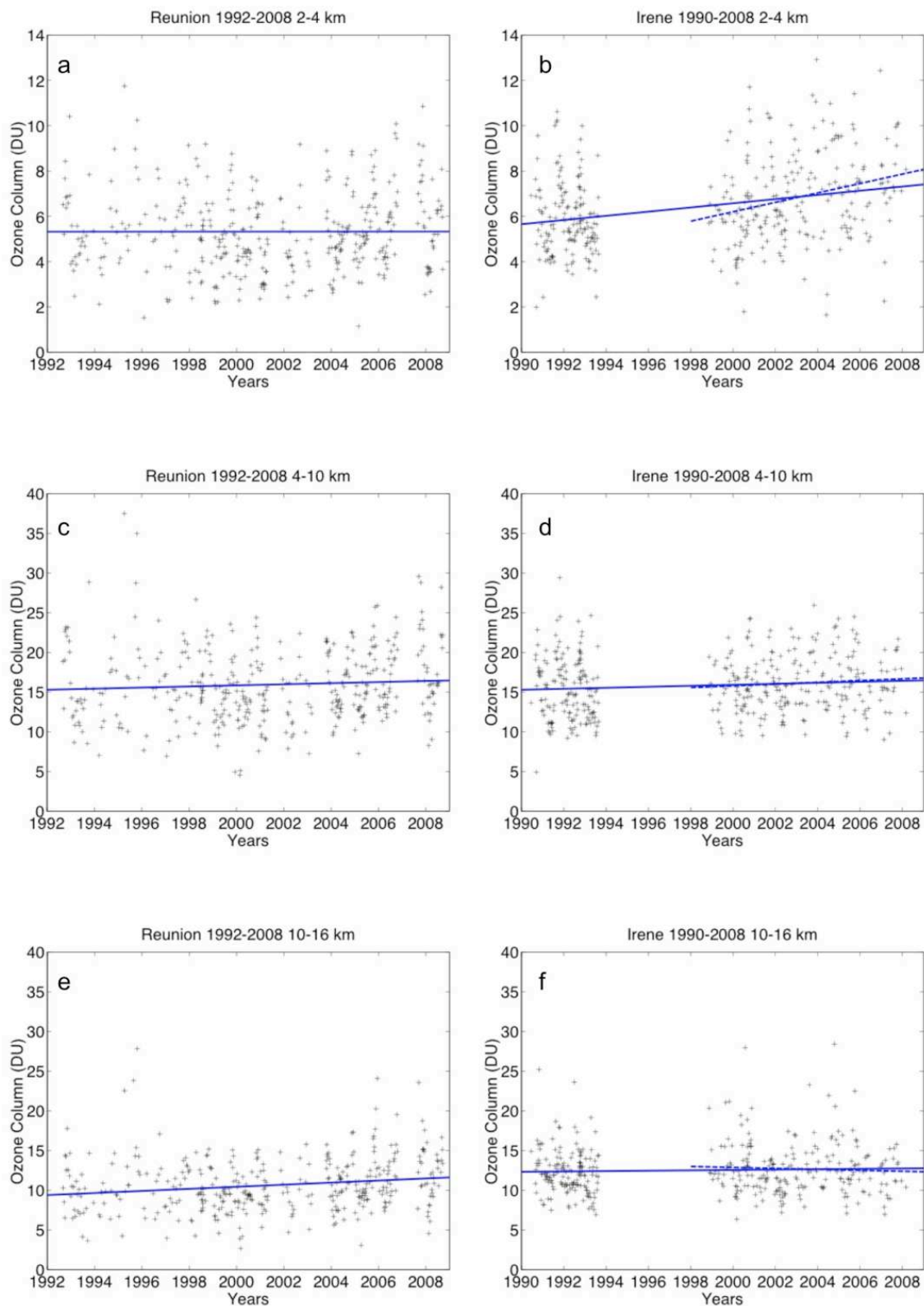


Figure 3.7 Tendances de l'ozone troposphérique entre 2 km et 4 km (a) à La Réunion et (b) à Irene, entre 4 km et 10 km (c) à La Réunion et (d) à Irene, entre 10 km et 16 km (e) à La Réunion et (f) à Irene, La ligne tiretée correspond à la tendance à Irene calculée à partir du jeu de données 1998-2006. Figure extraite de Clain et al., 2009.

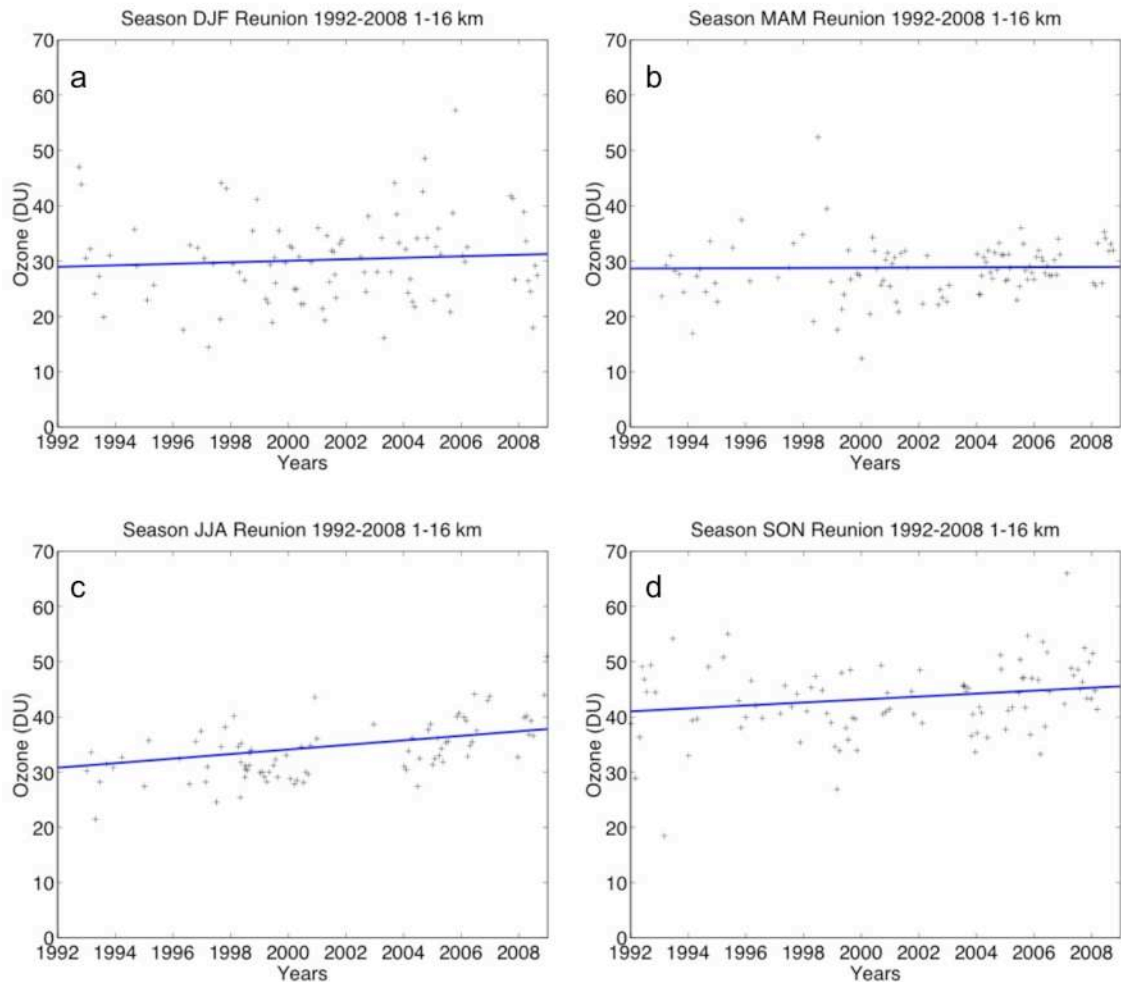


Figure 3.8 Tendances saisonnières de l’ozone troposphérique à La Réunion calculées entre 1 km et 16 km en (a) été austral, (b) automne, (c) hiver et (d) printemps. Figure extraite de Clain et al., 2009.

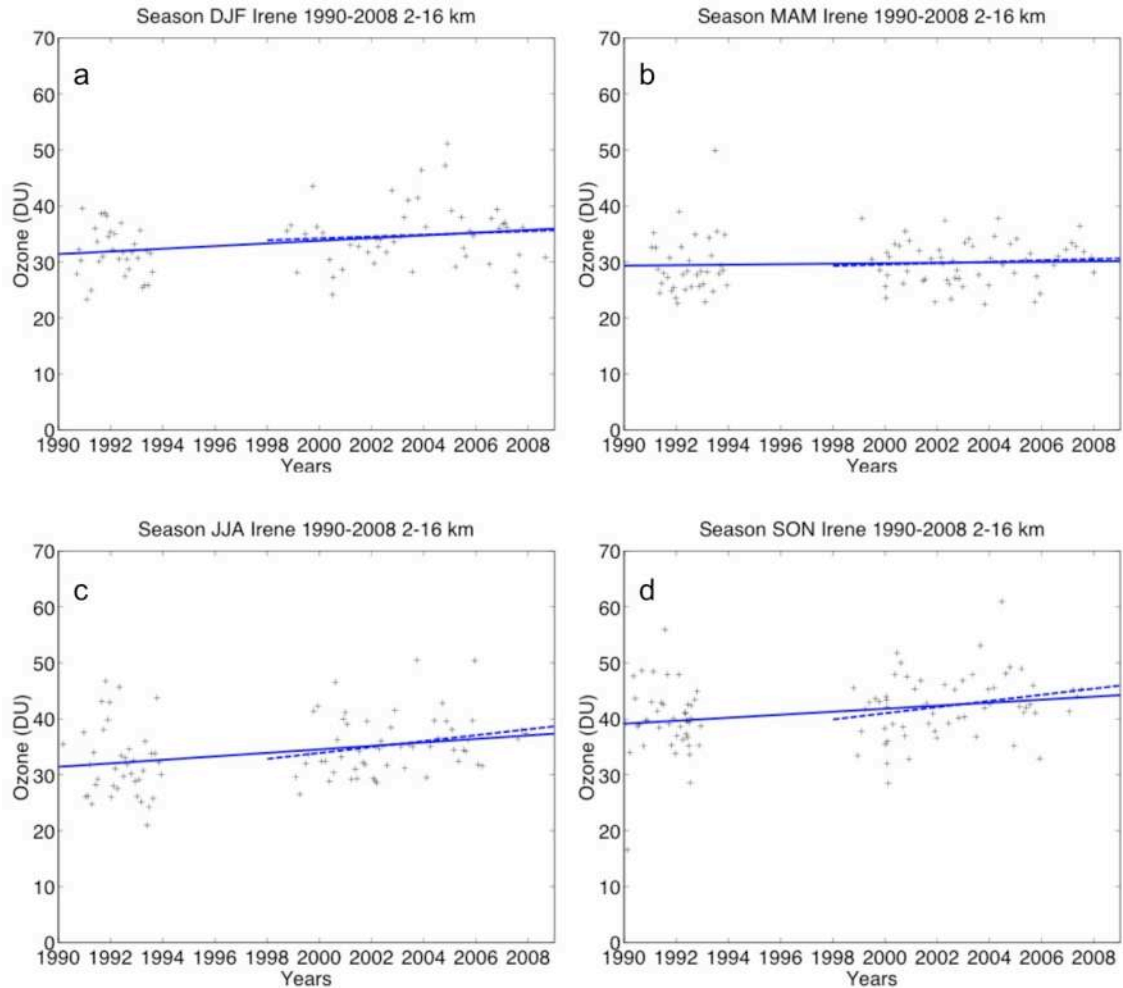


Figure 3.9 Tendances saisonnières de l'ozone troposphérique à Irene calculées entre 2 km et 16 km en (a) été austral, (b) automne, (c) hiver et (d) au printemps. Figure extraite de Clain et al., 2009.

Discussions

A La Réunion, les basses couches (en dessous de 4 km) ne sont pas directement influencées par les feux de biomasse et les échanges stratosphère – troposphère en raison du régime des Alizés (Baldy et al., 1996). Ces couches atmosphériques à La Réunion sont influencées par les sources locales et par le transport en basses couches en provenance de l’Océan Indien. A Irene par contre, les basses couches sont concernées à la fois par la pollution locale anthropique et par les feux de biomasse. Aux deux sites, la moyenne et haute troposphère peuvent être influencées par l’injection de précurseurs produits par les feux de biomasse mais aussi par les échanges stratosphère – troposphère.

La basse troposphère révèle une tendance positive à Irene mais pas à La Réunion. Dans l’hypothèse d’une augmentation des feux de biomasse et de la pollution anthropique en Afrique du Sud, cette tendance positive de l’ozone dans les basses couches de l’Afrique du sud est plausible en raison des circulations synoptiques persistantes au dessus de l’Afrique du sud (Preston Whyte et Tyson, 1988). Néanmoins l’hypothèse d’une augmentation de la pollution anthropique et des feux de biomasse en Afrique du Sud depuis les années 1990 doit être confirmée par des études complémentaires.

En considérant les trois couches troposphériques, on observe que les tendances à Irene décroissent avec l’altitude. Ce résultat suggère que la tendance à Irene est gouvernée par les basses couches troposphériques, en particulier par une évolution croissante de l’activité des feux de biomasse et de la pollution.

A La Réunion, la plus forte tendance est observée entre 10 km et 16 km d’altitude. Cette observation peut être interprétée sous couvert de deux hypothèses : en premier lieu, dans le cadre d’une augmentation de l’activité des feux de biomasse, cette influence peut jouer un rôle sur la tendance en haute troposphère. En effet, les tendances en haute troposphère peuvent être reliées aux mécanismes dynamiques complexes qui sont responsables de l’influence des feux de biomasse sur la troposphère à La Réunion : convection injectant des polluants en troposphère libre, mélange des masses d’air et photochimie au cours du transport vers l’est (Chatfield et Delany, 1990, Baldy et al. 1996). En second lieu, une augmentation des échanges stratosphère – troposphère qui pourrait être induite par les changements climatiques.

Pour les sites de La Réunion et d'Irene, il a été établi que :

- L'influence des feux de biomasse est à son maximum au printemps austral (septembre, octobre, novembre) (Baldy et al., 1996, Randriambelo et al., 2000).
- L'influence des STE induits par le courant jet subtropical est maximum en hiver austral car c'est à cette saison que le jet occupe sa position la plus septentrionale (Baray et al., 1998, Randriambelo et al., 2000).
- A La Réunion, l'influence des STE induits par la proximité d'un système convectif en bordure du courant jet est à son maximum en été austral, saison cyclonique (Leclair de Bellevue et al., 2006).
- L'automne est une saison représentative des valeurs de fond de l'ozone. En effet les sources, photochimique comme stratosphérique, ont une influence mineure à cette saison.

Ces considérations apportent un éclairage sur les tendances calculées (figures 3.8 et 3.9) :

- Aux deux sites, la tendance d'automne est effectivement négligeable.
- A La Réunion, la tendance la plus forte est en hiver. Ce résultat suggère une augmentation de l'influence de la source stratosphérique dont l'activité est supposée importante durant cette saison.
- A Irene, les tendances sont maximales au printemps, en été et en hiver. Les intrusions stratosphériques ainsi que les mécanismes photochimiques peuvent tous deux jouer un rôle dans les tendances décennales calculées. Une étude regroupant les tendances à long terme de l'ozone troposphérique a été publiée par Oltmans et al. (2006). Ce travail s'appuie sur un réseau global de données d'observation dont certaines stations sont situées dans les régions tropicale et subtropicale de l'hémisphère Sud : Les Samoa Américaines, la Nouvelle Zélande, l'Australie et l'Afrique du sud. A Cape Grimm (Afrique du sud) et à Lauder (Nouvelle Zélande), Oltmans rapporte une tendance de surface nulle en été, et une tendance positive entre la fin de l'hiver et le début du printemps austral. A Lauder, la structure verticale des tendances de l'ozone troposphérique est positive en dessous de 500 hPa, et légèrement positive au dessus de ce niveau mais non significative. Cette structure présente des similitudes avec la tendance observée à Irene. A Cape Point, la tendance de surface est positive tout au long de l'année avec un pic entre la fin de l'hiver et le début du printemps austral de même que les tendances observées à Irene dans la présente étude. Pour tous les sites subtropicaux de l'hémisphère Sud, Oltmans et al. (2006) remarquent que les tendances les plus fortes correspondent aux périodes de l'année connaissant une forte activité de feux de biomasse.

3.3 Etude des traceurs de feux de biomasse

Dans le cadre de mon travail de thèse, mes travaux ont surtout porté sur la caractérisation de l’origine stratosphérique des anomalies positives d’ozone. L’objectif de cette section portant sur les traceurs de feux de biomasse tels que le CO et les aérosols carbonés est d’apporter des éléments d’observation et des pistes de développement de l’étude de ces traceurs. En particulier, la thèse de Valentin Duflot débutée en 2008 a pour but d’approfondir l’étude régionale de la variabilité et des sources du monoxyde de carbone, des aérosols et d’autres gaz atmosphériques tels que le CO₂.

3.3.1 Variabilité saisonnière du CO de MOPITT

Les niveaux des données d’observation MOPITT sont représentatifs d’une tranche d’altitude centrée autour des niveaux de pression désignés. Ces niveaux ne décrivent donc pas la concentration du CO à une altitude fixe. En premier lieu, l’algorithme d’inversion des radiances mesurées par le capteur fait intervenir une fonction de poids décrivant, en fonction de l’altitude, la sensibilité des radiances mesurées à une perturbation dans le profil climatologique de référence de CO. De plus, pour chaque niveau de données, une fonction de balayage appelée « averaging kernel » décrit la résolution des données en fonction de l’altitude. Cette fonction de balayage prend en compte la variabilité du profil climatologique de température, la pression et la température de surface. La fonction de balayage sera donc différente pour un même site en période diurne et nocturne, ou à la même latitude pour une surface Océanique ou continentale. Le niveau 350 hPa est plus sensible à la concentration de CO en haute troposphère (pressions inférieures à 500 hPa) et le niveau 700 hPa est plus sensible au contenu en CO des basses couches (Deeter et al., 2003). On considèrera pour l’analyse que le niveau 350 hPa est représentatif du CO dans la tranche d’altitude 400 hPa – 200 hPa et que le niveau 700 hPa est représentatif de la tranche d’altitude 750 hPa – 600 hPa.

Observations

La figure 3.10 présente le CO moyen mensuel mesuré par le capteur MOPITT aux sites d'Irene et de La Réunion entre avril 2001 et décembre 2007 pour les niveaux 350 hPa et 700 hPa.

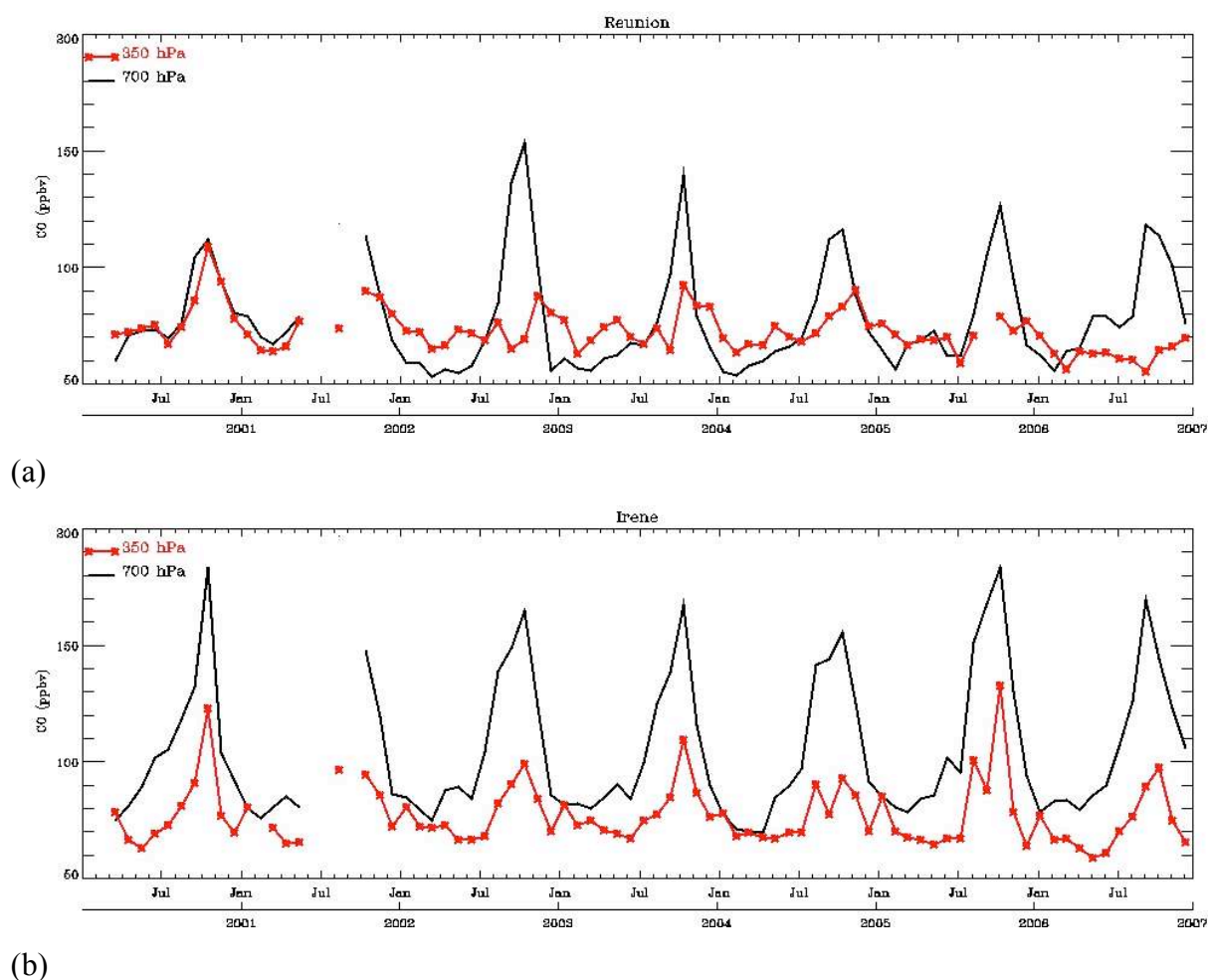


Figure 3.10 Moyennes mensuelles du CO mesuré en ppbv par le capteur MOPITT pour les niveaux 350 hPa (8 km) et 700 hPa (3 km) pour les sites (a) de La Réunion et (b) d'Irene, entre avril 2001 et décembre 2007.

Le cycle saisonnier du CO est visible dans les basses couches pour les deux sites, entre août et septembre, ce qui correspond aux périodes de feux de biomasse en Afrique du Sud. Les pics de CO en basse troposphère atteignent 150 ppbv (Octobre 2002) à La Réunion et environ 180 ppbv à Irene.

Le cycle saisonnier du CO en haute troposphère (niveau 350 hPa) est plus clairement observable à Irene qu'à La Réunion où la variabilité du CO est moins marquée.

Durant les période extérieures à la saison des feux de biomasse (janvier à juillet) le CO mesuré au niveau 350 hPa à Irene est inférieur au CO des basses couches. A l'opposé, à La Réunion, durant ces mêmes périodes, le niveau de CO à 350 hPa présente fréquemment des valeurs moyennes supérieures au niveau des basses couches pendant la période 2000-2007.

Discussions

Irene est située plus près des sources, donc il est cohérent d'y mesurer plus de CO qu'à La Réunion en particulier dans les basses couches de l'atmosphère. Les basses couches à La Réunion sont fortement soumises à l'influence du régime des Alizés. L'inversion des Alizés à notre stade de connaissance, se situe environ à 4 km. On peut supposer que les hautes valeurs de CO mesurées en basses couches à La Réunion sont dues à la sensibilité du capteur à des altitudes où le CO transporté depuis l'Afrique du Sud atteint l'île. La question se pose également sur l'importance des sources locales pour la contribution au CO mesuré par MOPITT au niveau 700 hPa. Cette question sera discutée dans la section suivante.

Le cycle saisonnier du CO est bien reproduit dans les observations du niveau 350 hPa à Irene. D'après Garstang et al, 1996, en Afrique du sud, les perturbations portées par les flux d'Ouest et l'influence des ondes planétaires sont prédominantes au printemps et en été austral. Il est possible que la rupture du système de circulation cyclonique permanent au dessus de l'Afrique du Sud par ces perturbations tende à favoriser le mélange des masses d'air polluées de la basse troposphère vers les plus hauts niveaux.

A l'inverse, en dehors des période de feux, le niveau de CO à 350 hPa à Irene reste inférieur au niveau de CO en basses couches. Durant l'hiver austral, l'Afrique du sud est fortement influencée par l'anticyclone permanent qui fait obstacle au mélange vertical des masses d'air troposphériques et favorise l'accumulation de polluants en basse couches. Cette configuration peut contribuer à expliquer les observations faites pour les niveaux de MOPITT pour la période de janvier à juillet.

Enfin, on observe que le niveau de CO à 350 hPa à La Réunion présente des valeurs supérieures au niveau 700 hPa en dehors de la saison des feux. Cette observation peut être un indice de transport à grande échelle en haute troposphère de masses d'air polluées provenant d'autres parties du globe que l'Afrique du Sud vers La Réunion. A l'appui de cette théorie, on observe que la variabilité du niveau 350 hPa à La Réunion est peu marquée. L'influence de sources autres que l'Afrique du Sud et Madagascar en haute troposphère est donc une question sur laquelle il serait intéressant de mener de plus amples investigations. La thèse de

Valentin Duflot pourra apporter des éléments de réponse pertinents à cette question. Cette thèse vise à approfondir l’étude du monoxyde de carbone dans un premier temps, puis des aérosols et de certains gaz à effet de serre tels que le CO₂. Ce travail pourra développer une meilleure connaissance des mécanismes dynamiques à grande échelle pouvant influencer les concentrations en gaz atmosphériques au niveau de La Réunion. Différents instruments de mesures (FTIR, lidar LEOSPHERE) seront mis en jeu lors de campagnes de mesures spécifiques de différents traceurs atmosphériques (CO, aérosols, CO₂). Des mesures de champs de vent avec le radar UHF permettra de baser l’estimation de la hauteur d’inversion des Alizés sur des données d’observation. L’utilisation de différents outils et données numériques (ECMWF avec Flexpart et Lacytraj, données de surfaces brûlées L3JRC et données satellitaires MODIS et AATSR avec GIRAFE) permettront de diagnostiquer les axes privilégiés de transport atmosphérique qui influencent La Réunion. Les discussions présentées dans ce paragraphe feront l’objet d’une partie d’un article d’exploitation d’une campagne de mesures de CO par FTIR en 2007 (Duflot et al., à soumettre en 2009).

3.3.2 Evaluation des sources locales de monoxyde de carbone

L’observatoire réunionnais de l’air (ORA) procède depuis sa création en 1998 à des mesures en continu de dioxyde de soufre, d’ozone, de dioxyde d’azote et de monoxyde de carbone. Dans le but d’évaluer l’impact de la pollution anthropique locale sur la climatologie du CO troposphérique, un échantillon de données fournies par l’ORA a été analysé. Cet échantillon comprend deux années de mesures de CO sur quatre sites de La Réunion (deux sites à St Denis, et deux à St Pierre) entre janvier 2006 et décembre 2007. Les instruments de mesure de trois des quatre sites ont subi d’importantes pannes durant cette période. Seul un site de mesure dionysien présente un jeu de données exploitables pour l’année 2006 : il s’agit d’un site de mesure urbain localisé dans l’enceinte de l’école de Joinville à St Denis où le monoxyde de carbone est mesuré sur une base quart horaire (figure 3.11).

Observations

Le niveau moyen du CO mesuré est de 112ppbv avec une forte variabilité traduite par un écart type de 76 ppbv.

Il n’apparaît pas de cycle annuel dans les données.

Une analyse spectrale des données révèle une composante périodique principale de l’ordre de 12 heures.

On observe des pics de CO dépassant 500 ppbv, d’une durée extrêmement ponctuelle (inférieure à une heure), comme le traduit la faible valeur de la moyenne globale du jeu de données.

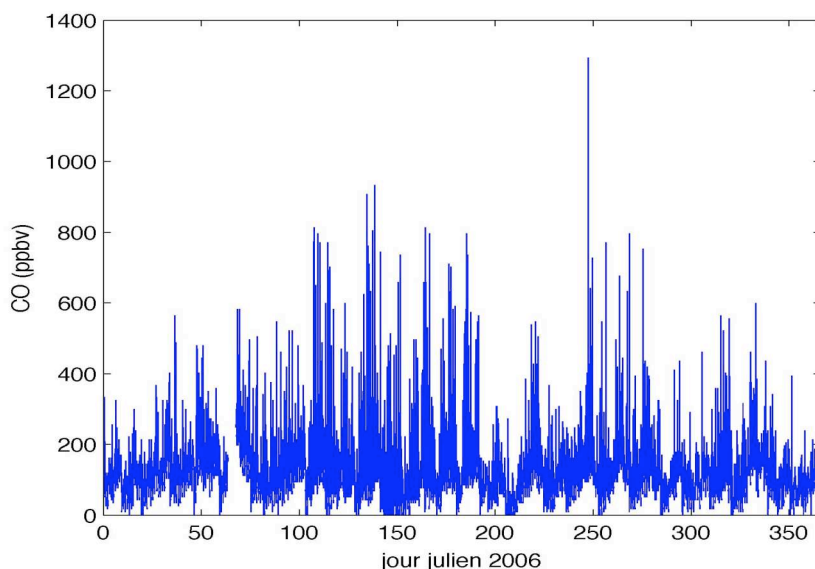


Figure 3.11 Mesures du rapport de mélange en monoxyde de carbone durant l’année 2006 sur le site de Joinville à St Denis de La Réunion. Source ORA.

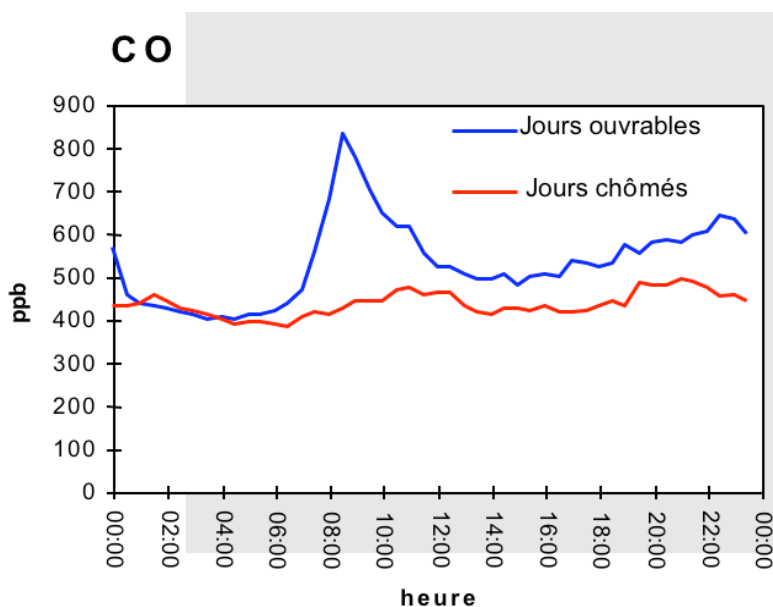


Figure 3.12 Variabilité moyenne du CO (ppbv) lors des jours ouvrables (bleu) et des jours chômés (rouge) calculées à partir de mesures réalisées dans le cadre d’une campagne de mesures à Toulouse en 1998. Le site de mesure est urbain et localisé sur un toit d’immeuble. Le niveau moyen de CO varie entre 450 ppbv les jours chômés et 550 ppbv les jours ouvrables durant la période de mesures (R. Delmas, communication personnelle).

Discussions

Les données de l’ORA étant localisées en milieu urbain, ces mesures de CO sont surtout représentatives du monoxyde de carbone produit par la circulation automobile. De plus l’absence de cycle annuel apparent montre que la variabilité saisonnière du CO troposphérique n’a pas d’influence sur ces mesures. La forte variabilité du monoxyde de carbone mesuré à Joinville montre que la pollution anthropique est rapidement dispersée en milieu urbain. De plus, un niveau moyen annuel de 112 ppbv est assez bas comparé à d’autres villes telles que Toulouse par exemple, où, en 2007, on relève un rapport de mélange moyen de CO de l’ordre de 500 ppbv (source ORAMIP Observatoire Régional de l’Air Midi Pyrénées). De plus, à titre de comparaison, une campagne de mesures de CO a été menée à Toulouse en 1998 (figure 3.12). Les valeurs mesurées de monoxyde de carbone varient autour d’un niveau moyen de 550 ppbv les jours ouvrables et 450 ppbv les jours fériés.

La première conclusion que l’on peut apporter est que le cycle annuel du CO troposphérique n’a pas d’influence sur les mesures de CO en milieu urbain.

A l’inverse, il est difficile de conclure définitivement sur l’impact du CO urbain sur la variabilité troposphérique au vu d’une seule année de mesures sur un site unique et sans s’appuyer sur une étude numérique. En effet, même si les sources locales sont peu importantes, la question se pose de savoir dans quelle mesure ces sources locales peuvent contribuer aux valeurs de fond du CO en basse troposphère en dehors des périodes de feux, le monoxyde de carbone ayant une durée de vie de l’ordre de deux mois.

Cependant, au vu de l’influence importante des Alizés sur les basses couches, de l’absence de cycle annuel sur les données, de la comparaison du rapport de mélange moyen de CO mesuré en site urbain à La Réunion au rapport de mélange de CO d’une ville métropolitaine moyenne telle que Toulouse et de la forte variabilité quotidienne du rapport de mélange de CO mesuré, il paraît recevable de considérer que les sources anthropiques locales ont un impact négligeable sur la variabilité troposphérique du CO à grande échelle.

3.3.3 Champs de carbone suie de ORISAM-TM4

L’objectif de cette section est d’évaluer les performances du modèle ORISAM TM4 dans l’optique d’une utilisation des champs de BC du modèle pour une étude de type RDF. Dans

un premier temps, les champs de BC du modèle sont examinés. Par la suite, nous comparons les champs d’ozone du modèle aux données d’observations de La Réunion et d’Irene.

Le carbone suie est un aérosol intégralement émis par les activités anthropiques et les sources naturelles. La figure 3.13 présente des champs de carbone suie ($\mu\text{g.m}^{-3}$) du modèle ORISAM-TM4 à différents niveaux d’altitude, pour le mois d’octobre 2006 donc en période de feux de biomasse pour l’Afrique du Sud et Madagascar. La résolution du modèle est de 2 degrés en latitude et de 3 degrés en longitude pour 9 niveaux verticaux: 340m, 969 m, 2400 m, 4000 m, 6700 m, 9400 m, 12300 m, 17200 m et 73500 m. La figure 3.13 montre les champs globaux de carbone suie du modèle à 1000 m, 4000 m, 6700 m et 12300m. Les échelles de valeurs pour chaque niveaux ont été ajustées afin d’optimiser la visualisation des panaches.

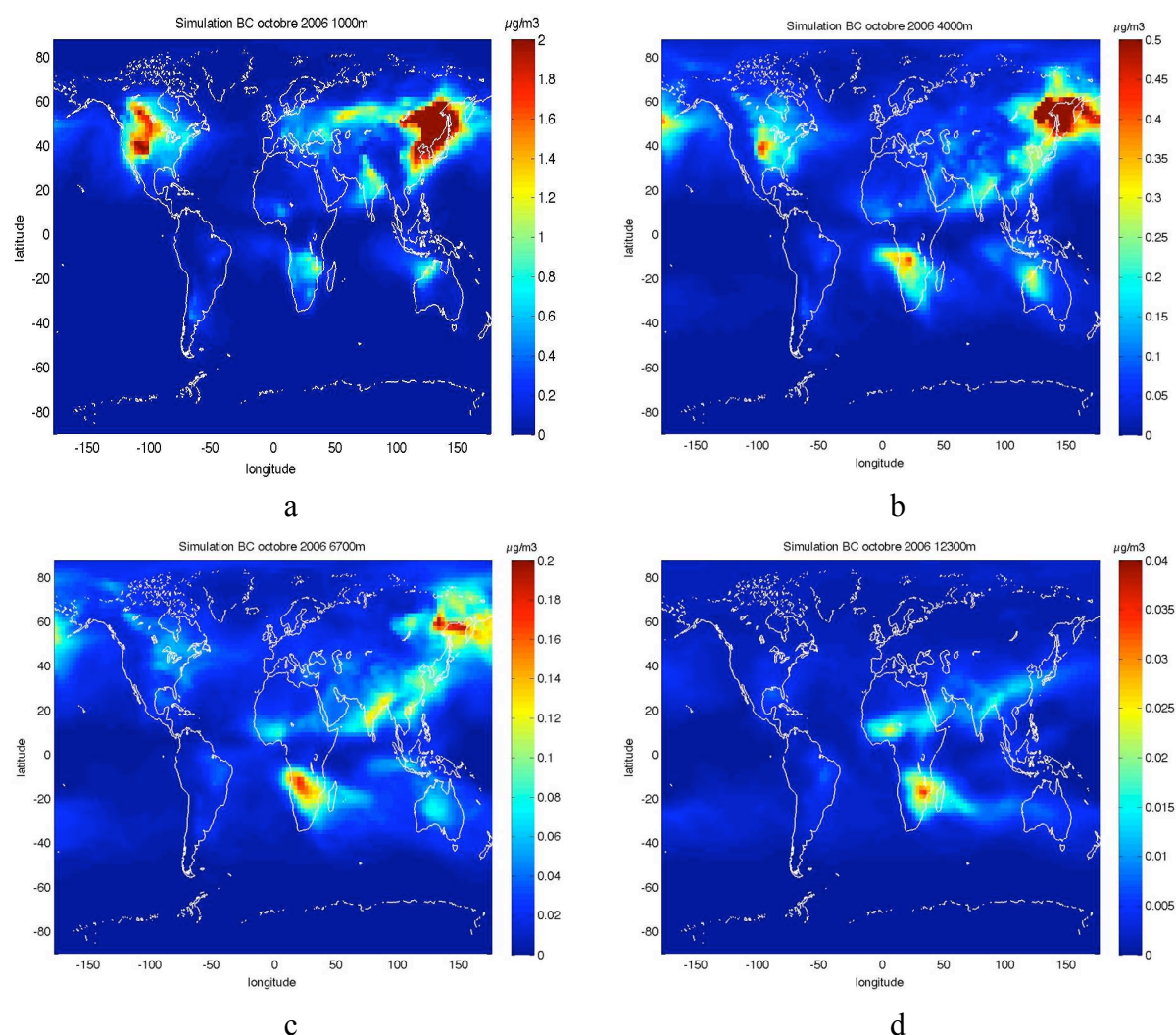


Figure 3.13 Champs de carbone suie (BC, en $\mu\text{g.m}^{-3}$) issus du modèle ORISAM-TM4 pour octobre 2006 à (a)1000m, (b) 4000 m, (c) 6700 m et (d) 12300 m d’altitude. Les échelles de couleur sont ajustées en fonction de l’altitude pour optimiser la visualisation des panaches.

Observations

A 1000 m d'altitude (figure 3.13 a) le champ de carbone suie localisé sur l'Afrique du Sud présente des valeurs de l'ordre de $0.8 \mu\text{g}\cdot\text{m}^{-3}$. A cette altitude, les sources d'Afrique du Sud apparaissent de moindre importance que les sources Asiatiques et Nord Américaines.

On observe le transport en moyenne et haute troposphère (figure 3.13 c,d) du panache d'Afrique du Sud dans le flux d'ouest vers l'Océan Indien et La Réunion.

A l'altitude de 12300 m, le panache de carbone suie d'origine Africaine est encore observable contrairement aux panaches des sources Nord Américaine et nord asiatique.

Discussions

Les champs de carbone suie permettent de visualiser le transport des polluants dans le flux d'Ouest en provenance de l'Afrique du Sud et se dispersant au dessus de l'Océan Indien. Le monoxyde de carbone comme le carbone suie étant des polluants primaires émis par les feux de biomasse, on peut conjecturer que le monoxyde de carbone suit les mêmes axes de transport que ceux empruntés par les panaches de carbone suie.

Les sources africaines apparaissent peu importantes par rapport aux sources nord Asiatique et nord Américaines. Cette observation est à tempérer car le modèle est basé sur des inventaires d'émissions prenant en compte une multitude de paramètres tels que les différents types de combustibles fossiles, et le facteur d'émission pour chaque type de combustible dans ces inventaires est tributaire du niveau de développement du pays considéré (Guillaume et al. 2007). Il existe différents inventaires d'émissions et ces inventaires peuvent présenter des différences importantes principalement dues aux différences de facteur d'émissions (Bond et al. 2004). Par ailleurs les inventaires d'émissions s'appuient fortement sur les données nationales d'observation de la pollution urbaine et de l'utilisation de combustibles fossiles. Ces données provenant de différents organismes, la qualité, la représentativité et l'uniformité des données n'est pas toujours garantie. On peut comprendre la difficulté que représente la mise en place d'un inventaire d'émissions globales au vu de ces différents paramètres. Quatre scénarios d'émissions ont été utilisés en tests pour ORISAM-TM4. L'inventaire d'émission de carbone suie du scénario de référence (Guillaume et Liousse, 2006) utilisé par le modèle est basé sur l'inventaire de Cooke et al. (1999).

La figure 3.13 (d) montre que le modèle reproduit des traces de carbone suie d’origine africaine à 12300 m d’altitude. Les sources africaines sont localisées (figure 3.13 (a)) entre 10°S et 30°S, alors que dans l’hémisphère Nord, les zones de sources importantes de carbone suie sont localisées entre 30°N et 60°N. La hauteur de la tropopause est donc plus basse au niveau des zones de sources de l’hémisphère Nord. L’altitude de 12300 m atteinte par le panache africain se situe en dessous du niveau de la tropopause dans cette tranche de latitude. Par ailleurs, ce champ représente une moyenne sur un mois de modélisation, en octobre 2006. Il est possible que la hauteur du panache de carbone suie africain soit due à des conditions météorologiques circonstancielle comme une persistance dépressionnaire pouvant induire un champ de divergence d’altitude.

3.3.4 Comparaisons des champs d’ozone de ORISAM-TM4 aux données d’observation de La Réunion et d’Irene.

Les moyennes bi hebdomadaires des champs d’ozone de ORISAM-TM4 entre janvier 2005 et février 2007 ont été comparés aux profils climatologiques calculés à partir des radiosondages et aux données d’observations des sites d’Irene et de La Réunion (figures 3.14 et 3.15). Cette étude a pour but d’évaluer la représentativité des champs d’ozone de TM4 par rapport aux données d’observation (radiosondages).

Observations

Pour le site d’Irene, les champs de TM4 présentent une sous-estimation systématique par rapport à la climatologie. On observe cependant une concordance relative avec les valeurs climatologiques. Cette sous-estimation a été évaluée en pourcentage en prenant comme référence les valeurs climatologiques de l’ozone à la même altitude que le niveau du modèle correspondant d’après :

$$\text{sous estimation\%} = 100 \times (\text{O}_3\text{climatologique} - \text{O}_3\text{TM4}) / \text{O}_3\text{climatologique}$$

Les champs d’ozone de TM4 sous estiment globalement les valeurs climatologiques d’ Irene à moins de 50%. Certains mois cependant (février à mai) présentent écart plus réduit avec les valeurs des données d’observation.

Mis à part le mois de janvier, les champs de TM4 sont globalement en accord avec les profils climatologiques pour le site d’Irene.

À La Réunion, la sous-estimation des champs moyens d’ozone de TM4 est systématique et la différence avec les profils climatologiques est plus importante qu’à Irene. La sous-estimation en pourcentage est globalement supérieure à 50% des valeurs climatologiques.

Les champs d’ozone de TM4 sont également inférieurs aux valeurs des données d’observation à La Réunion.

Discussions

On observe que les champs d’ozone d’Irene correspondent mieux aux valeurs climatologiques et aux données d’observation que les champs d’ozone de TM4 pour le site de La Réunion. La proximité d’Irene par rapport aux sources photochimiques peut expliquer ce résultat.

Cependant, la sous-estimation des champs d’ozone du modèle par rapport aux moyennes climatologiques et aux données d’observation reste importante pour les deux sites.

Plusieurs hypothèses peuvent alimenter la discussion sur ces observations. Sans entrer dans des discussions sur les schémas chimiques du modèle on peut faire la remarque que l’objectif de ce modèle est l’amélioration de la modélisation des aérosols carbonés avec un schéma de formation des aérosols carbonés secondaires. Ainsi, la source stratosphérique pour l’ozone troposphérique n’est pas un élément bien appréhendé dans ce modèle, du fait de la complexité et des échelles spatiales mises en jeu dans ces mécanismes dynamiques. La section tendances de l’ozone troposphérique de ce chapitre montre qu’à La Réunion la contribution de la source stratosphérique serait en augmentation alors qu’à Irene, les sources photochimiques seraient en progression. Un manque de prise en compte de la source stratosphérique est la première hypothèse pouvant contribuer à expliquer le fait que les champs d’ozone du modèle TM4 soient moins représentatifs à La Réunion.

La seconde hypothèse que l’on peut évoquer est que l’inventaire d’émission d’aérosols carbonés utilisé pour forcer le modèle (Guillaume et Liousse, 2006) sous-évalue les sources réelles.

Pour conclure sur l’utilisation d’un outil de modélisation du tel que ORISAM-TM4 dans le cadre d’une étude des traceurs de feux de biomasse : bien que la comparaison des champs d’ozone du modèle montre une sous-estimation importante, les champs de carbone suie

présentent un intérêt certain en premier lieu pour un diagnostic climatologique en amont d'une campagne de mesures. Par ailleurs, l'utilisation de GIRAFE peut également jouer un rôle dans la prévision du passage de panaches de polluants au dessus de La Réunion et contribuer au déclenchement de mesures spécifiques sur le site. D'autre part, bien que la résolution du modèle dans la troposphère puisse paraître insuffisante, on peut envisager une étude se basant sur des reconstructions de type RDF de champs de carbone suie, dans l'objectif de déterminer l'influence des feux de biomasse sur des profils d'ozone troposphérique, l'approche RDF permettant de compenser la faible résolution des données d'initialisation par un apport d'information sous grille..

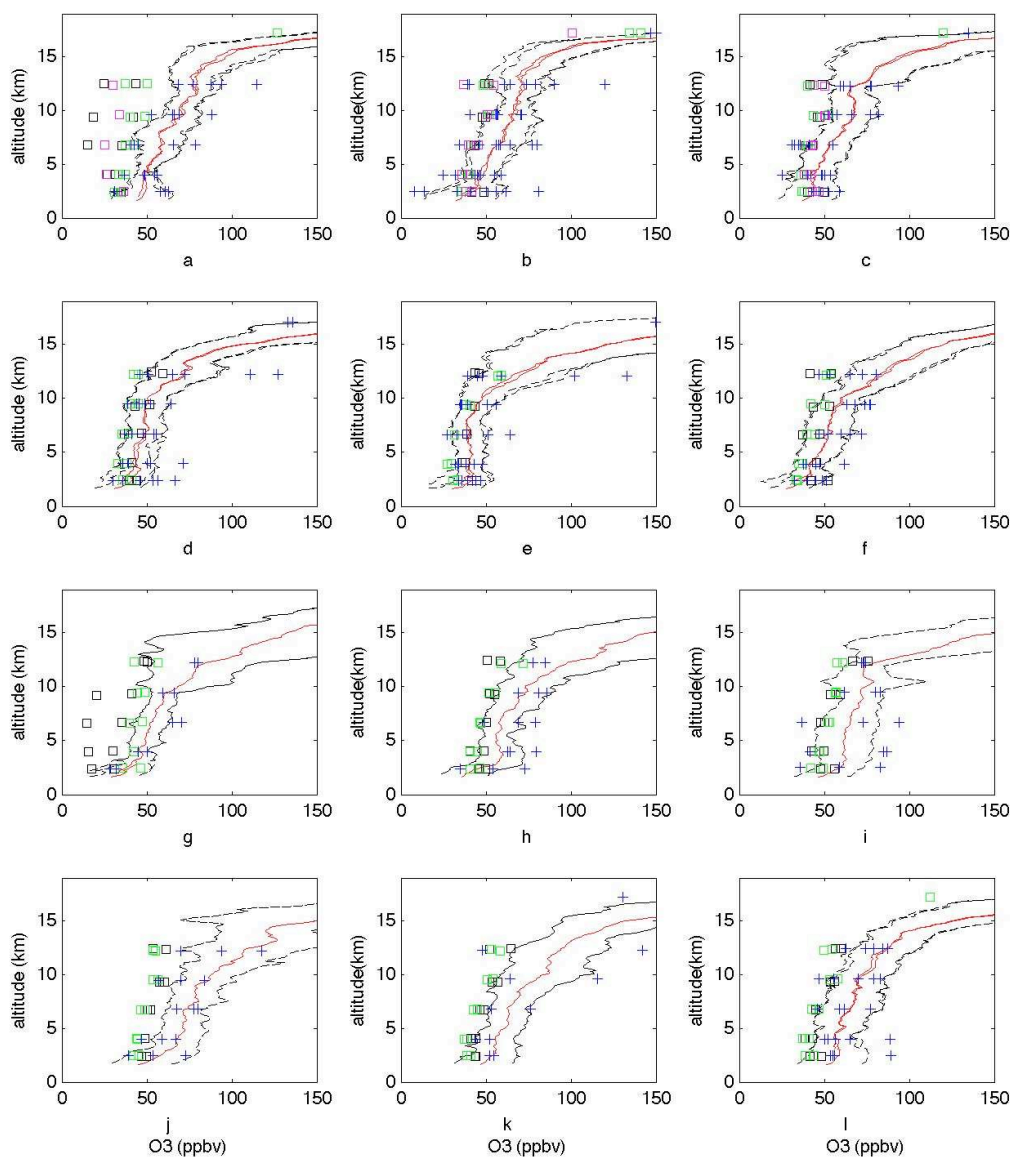


Figure 3.14 Les moyennes bi hebdomadaires des champs ozone de ORISAM TM4 pour le site d’Irene en 2005 (carrés noirs), 2006 (carrés verts), 2007(carrés roses) sont comparées aux moyennes climatologiques mensuelles du site (moyenne courbe rouge et écart type tirets noirs) et aux données d’observation (croix bleues) à la même altitude pour chaque mois de janvier (a) à décembre (l).

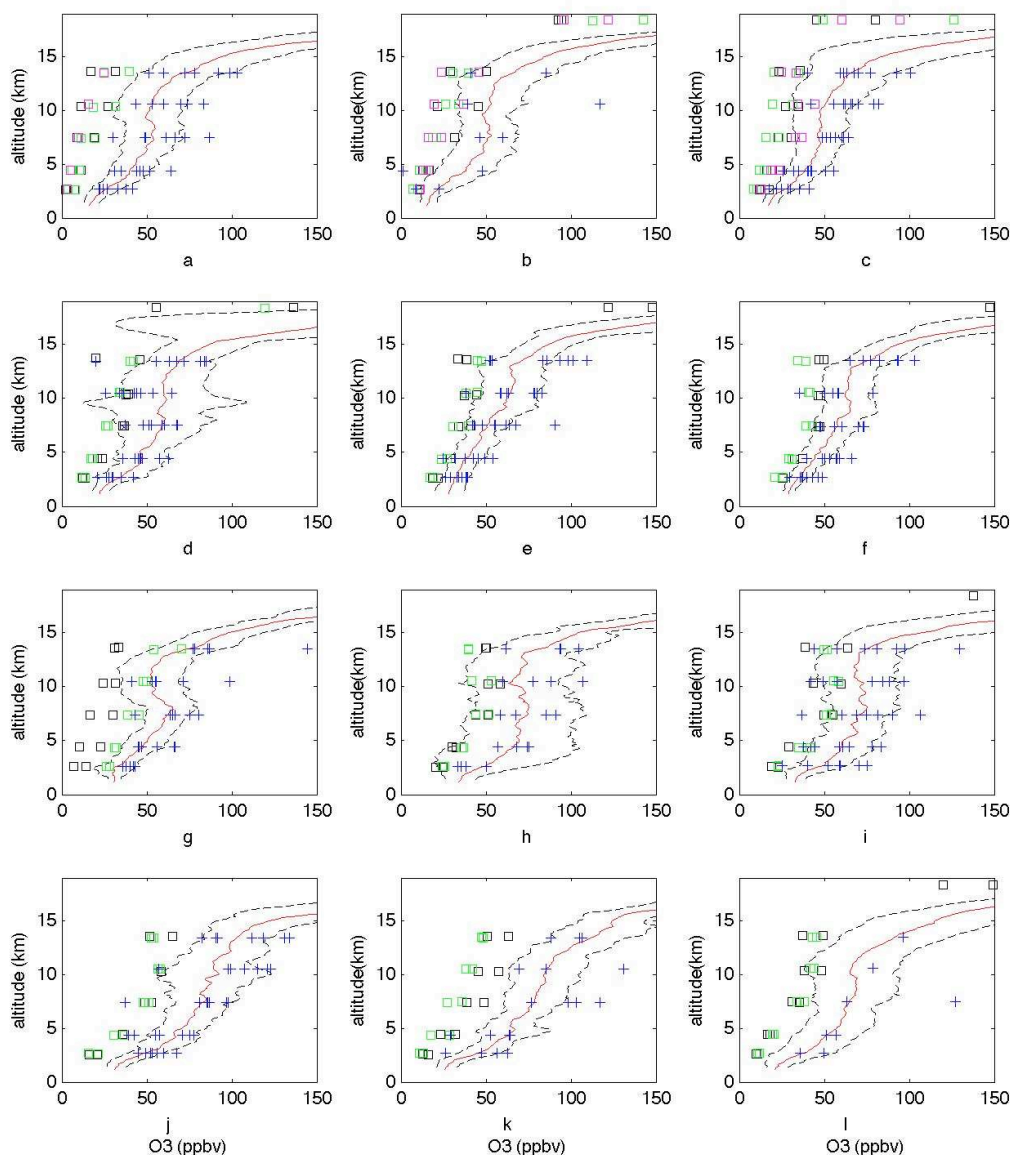


Figure 3.15 Les moyennes bi hebdomadaires des champs ozone de ORISAM TM4 pour le site de La Réunion en 2005 (carrés noirs), 2006 (carrés verts), 2007 (carrés roses) sont comparées aux moyennes climatologiques mensuelles du site (moyenne courbe rouge et écart type tirets noirs) et aux données d'observation (croix bleues) à la même altitude pour chaque mois de janvier (a) à décembre (l).

3.4 Conclusions et perspectives du troisième chapitre

La première partie de ce chapitre a présenté la climatologie et les tendances de l’ozone troposphérique dans la région du sud ouest de l’Océan Indien (Réunion) et de l’Afrique du sud (Irene, Johannesburg). La comparaison des profils saisonniers de l’ozone troposphérique calculés à partir des jeux de données de radiosondages et du lidar à La Réunion montrent que les climatologies sont généralement en bon accord sauf pour l’été austral où les profils lidar présentent des valeurs d’ozone plus importantes en troposphère libre et en haute troposphère où les profils lidar présentent des valeurs inférieures aux profils de radiosondages pour chaque saison. En raison de la nature des mesures lidar menées uniquement de nuit et par ciel clair, on conclut que la climatologie lidar n’est pas représentative de la climatologie de l’ozone réelle dans l’ensemble de la troposphère.

Une comparaison des climatologies de l’ozone troposphériques pour les différents sites de la région et pour différents jeux de données a montré que bien que les climatologies présentent des différences liées au contexte géophysique propre à chaque site, chaque jeu de donnée reproduit le pic de printemps de l’ozone troposphérique correspondant à la saison des feux de biomasse.

Les tendances linéaires de l’ozone troposphérique ont été calculées pour les sites d’Irene et de La Réunion à partir des données de radiosondages. La tendance sur la colonne totale est positive pour les deux sites. Un calcul de tendances séparant la troposphère en trois colonnes et en distinguant chaque saison montre que la tendance positive à Irene est prépondérante dans les basses couches. Oltmans et al. (2006) ont observé des résultats similaires pour d’autres sites de l’hémisphère Sud. Ce résultat pourrait être dû à une augmentation de la pollution et de l’activité des feux de biomasse. Cette étude révèle des différences entre les sites d’Irene et de La Réunion où la tendance la plus forte est observée en haute troposphère particulièrement en hiver austral.

La seconde partie de ce chapitre présente des éléments préliminaires à l’étude des traceurs de feux de biomasse. La variabilité du monoxyde de carbone de MOPITT pour les niveaux 700 hPa et 350 hPa entre 2000 et 2007 pour La Réunion et Irene montre en basse troposphère une saisonnalité marquée correspondant à la période des feux de biomasse d’Afrique du Sud et de Madagascar. Cette saisonnalité, visible en haute troposphère à Irene, est peu marquée à La Réunion. Les données d’observation de MOPITT peuvent servir de base à l’analyse des campagnes de mesures du monoxyde de carbone par FTIR menées en 2002, 2004, 2007 et

2009. Ces développements seront menés dans le cadre de la thèse de Valentin Duflot et en collaboration avec l’équipe de Martine de Mazière de l’IASB (Institut d’Aéronomie Spatiale de Belgique).

L’examen d’un échantillon de données de mesures de monoxyde de carbone de l’ORA montre que ces données ne présentent pas un intérêt déterminant dans l’étude des transports à grande distance des produits émis par les feux de biomasse. D’autre part, le niveau moyen de pollution mesuré à La Réunion est relativement bas et le contexte géophysique des basses couches à La Réunion privilégie une rapide dispersion des polluants.

Enfin, un échantillon des champs de carbone suie issus du modèle ORISAM-TM4 pendant la saison des feux de biomasse 2006 est examiné pour différents niveaux troposphériques. Ces champs permettent de visualiser les mécanismes responsables de l’advection et de la dispersion des polluants primaires issus des feux vers l’Océan Indien et La Réunion.

Ce modèle offre des perspectives d’utilisation dans le cadre de l’étude régionale des traceurs de feux telles que l’étude climatologique des sources ou encore une étude de type RDF basée sur la reconstruction des champs de BC du modèle.

A la suite de cette étude de la climatologie régionale de l’ozone troposphérique, il s’agit, dans le prochain chapitre, de caractériser les anomalies positives d’ozone en fonction de leur origine, stratosphérique ou photochimique.

4 Analyse lagrangienne des anomalies positives d'ozone

4.1 Introduction

La variabilité de l'ozone troposphérique est dépendante de ses sources. De même, la tendance de l'ozone troposphérique à long terme dépend de la contribution relative de chacune de ces sources et aussi de l'évolution de ces dernières. Les échanges stratosphère – troposphère (STE) sont une source importante d'ozone troposphérique. De nombreuses études basées sur des modélisations à l'échelle globale ont été menées dans l'objectif d'estimer l'impact des STE sur l'ozone troposphérique et la climatologie des STE. Récemment, Wild (2007) a publié un inventaire des modélisations portant sur le bilan de l'ozone depuis 1995. L'estimation moyenne entre les différents modèles du flux d'ozone apporté par les STE dans la troposphère est de 636 ± 273 Tg/an. Ce résultat peut varier d'un facteur 4 entre différentes études : Crutzen et al. (1999) estime le flux de STE à 1440 Tg/an et Horowitz et al. (2003) estime ce flux à 343 Tg.an. Depuis 1995, la résolution de ces modèles globaux est de l'ordre du degré. Par conséquent, les mécanismes à méso-échelle responsables d'intrusions stratosphériques tendent à être sous estimés car cette résolution est insuffisante pour appréhender les mécanismes à plus petite échelle. Une manière de retrouver de l'information sous-grille en utilisant des données de modèles globaux est de reconstruire par advection lagrangienne des traceurs de constituants en utilisant l'outil LACYTRAJ basé sur la technique RDF et présenté dans le chapitre 2. La méthode présentée dans ce chapitre est donc basée sur l'analyse de 16 années de mesures in situ (radiosondages) et de télédétection (profils lidar) et sur le calcul de trajectoires lagrangiennes permettant la reconstruction de champs de vorticit  potentielle. Cette m thode permet de d tecter   petite  chelle des filaments de masses d'air d'origine stratosph rique.

Ce chapitre pr sente l'analyse des mesures ozone de La R union, site subtropical de l'h misph re Sud. Dans les subtropiques sud, des cas d' tudes de STE ont  t  identifi s et ont donn  lieu   des publications (Baray et al. 1999, 2003). Cependant aucune climatologie des STE sp cifique   notre r gion d' tude n'a  t   tablie.

Les objectifs de ce chapitre sont d'apporter des  l ments statistiques afin d' valuer la climatologie et l'impact de la source stratosph rique sur l'ozone troposph rique mesur    La R union.

A la suite d'un rappel sur l'utilisation de la vorticité potentielle en tant que traceur stratosphérique, et d'une étude numérique sur la position climatologie du jet subtropical, la méthodologie de classification des anomalies positives d'ozone est présentée. La consistance statistique du jeu de données ainsi que la sensibilité de la méthodes aux différents critères sera discutée. Les résultats de l'étude portent sur la climatologie des intrusions stratosphériques, la distribution verticales des anomalies positives d'ozone et sur les distributions de rapport de mélange en ozone dans les masses d'air. Les travaux présentés dans ce chapitre ont été soumis à Atmospheric Environment fin Mars 2009.

4.2 la vorticité potentielle comme traceur stratosphérique

Le tourbillon absolu $\vec{\xi}_a$ ou vorticité absolue est un champ vectoriel défini par le rotationnel de la vitesse absolue $\vec{\xi}_a = \vec{k} \cdot (\vec{\nabla} \times \vec{U}_a)$. De même le tourbillon relatif est défini par le rotationnel de la vitesse relative $\vec{\xi} = \vec{k} \cdot (\vec{\nabla} \times \vec{U})$ (Holton 2004). Pour des mouvements atmosphériques de grande échelle, les composantes horizontales du tourbillon sont négligeables devant sa composante verticale. Dans un repère cartésien, le tourbillon absolu se définit par rapport au tourbillon relatif $\vec{\xi}$ par :

$$\vec{\xi}_a = \vec{\xi} + 2\vec{\Omega} = \vec{\xi} + f \quad \text{E 4.1}$$

où $2\vec{\Omega} = 2\Omega \sin \phi \cdot \vec{k} \equiv f \cdot \vec{k}$ est le vecteur angulaire de rotation planétaire (Salby, 1996)

D'après Ertel (1942), le tourbillon potentiel ou vorticité potentielle est défini sur une surface isentrope par:

$$PV = (\xi_\theta + f) \left(-g \frac{\partial \theta}{\partial p}\right) = -g(\vec{\xi}_a \cdot \vec{\nabla}_p \theta) \quad \text{E 4.2}$$

Dans un système de coordonnées isentropes (x, y, θ) la vorticité potentielle s'écrit :

$$PV = \frac{-g(f + \vec{k} \cdot \vec{\nabla}_\theta \wedge \vec{U})}{\frac{\partial p}{\partial \theta}} \quad \text{E 4.3}$$

Pour des mouvements adiabatiques et isentropes (réversibles), la vorticité potentielle d'une particule est un paramètre conservatif. L'équation 4.2 montre que la vorticité potentielle est reliée à la stabilité statique $\vec{\nabla}_p \theta$. Les isentropes étant beaucoup plus rapprochées en stratosphère qu'en troposphère, la vorticité potentielle stratosphérique atteint des valeurs 10

fois plus élevées qu'en troposphère où les valeurs typiques de PV sont comprises entre 0.1 et 1 PVU (1PVU = $10^{-6} \text{m}^2 \text{Ks}^{-1} \text{kg}^{-1}$). Ainsi, sous l'hypothèse d'un mouvement adiabatique et isentrope, la vorticité potentielle est un traceur permettant de déterminer l'origine stratosphérique des masses d'air.

La vorticité potentielle prend des valeurs positives dans l'hémisphère Nord et négatives dans l'hémisphère Sud. Dans la suite de cette étude, les valeurs de vorticité potentielle seront ramenées à leur valeur absolue.

4.3 Etude numérique de la climatologie du jet subtropical

Le but de cette section est d'utiliser les champs dynamiques dont nous disposons pour évaluer de façon climatologique, la position climatologique du courant-jet subtropical de l'Hémisphère Sud et donc l'influence qu'il peut exercer sur le site de La Réunion. La première étape de cette étude consiste à déterminer le niveau de pression correspondant le mieux à l'altitude du jet subtropical :

Les champs de vent zonal du centre européen ECMWF entre 1998 et 2008 correspondant à la position de La Réunion (21°S et 55.5°E) ont été moyennés sur trois niveaux de pression adjacents du modèle (300 hPa, 200 hPa et 150 hPa) et sur une base mensuelle (figure 4.1). Les moyennes sont représentées en traits pleins et les médianes correspondent aux marqueurs circulaires. La figure 4.1 permet de visualiser le niveau de pression où le vent zonal moyen est maximal dans les données ECMWF. Le niveau 200 hPa apparaît donc comme le mieux adapté pour le calcul d'une climatologie du jet subtropical. On observe un cycle annuel traduisant le fait que le jet se rapproche de la latitude de La Réunion en hiver austral et s'en éloigne en été austral.

Par ailleurs, l'existence d'un écart entre moyenne et médiane du vent zonal permet d'interpréter la forme de la distribution du module du vent zonal. Lorsque moyenne et médiane sont confondues, la distribution est de forme gaussienne. La médiane sépare la moitié des événements d'un échantillon. Ainsi, une médiane supérieure à la moyenne traduit un nombre important d'occurrences où le module du vent zonal est fortement supérieur à la valeur moyenne. Au niveau 300 hPa, les occurrences de vent zonal supérieur à la moyenne ont lieu entre avril et septembre, à 200 hPa entre mai et août. A 150 hPa les moyennes et médianes mensuelles sont globalement plus proches qu'aux niveaux de pression supérieurs, traduisant des distributions du module du vent zonal au caractère fortement gaussien.

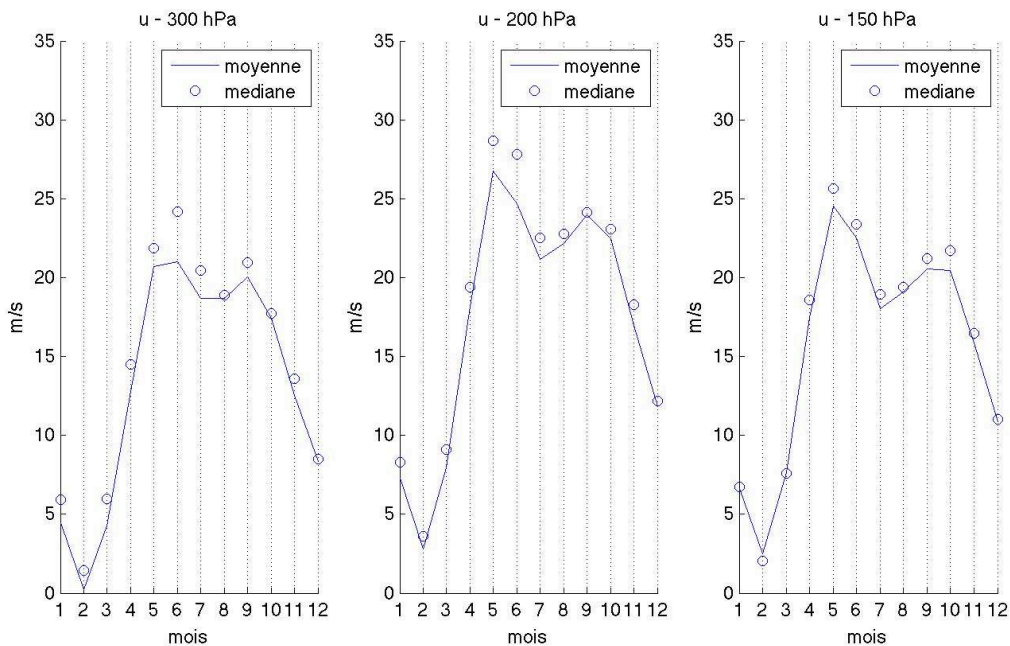


Figure 4.1 Moyenne (traits pleins) et médiane (marqueurs o) mensuelles du vent zonal en m.s-1 pour trois niveaux de pression (300 hPa, 200 hPa, 150 hPa) calculés à partir de 10 années de données ECMWF (1998-2008).

L'altitude de 200 hPa étant déterminée comme la plus appropriée pour l'étude du jet grâce aux champs dynamiques ECMWF, une coupe méridienne à 55.5°E du pourcentage moyen mensuel des occurrences où le module vent zonal dépasse 30m.s-1 ont été calculées (figure 4.2).

Cette figure permet de visualiser la position du jet subtropical dans les deux hémisphères et d'évaluer l'influence du jet à la latitude de La Réunion (21°S). Le module du vent zonal présente de nombreuses occurrences de valeurs fortes en hiver austral. L'influence du jet au printemps austral est également importante. On remarquera une distance méridienne de l'ordre de 20 ° de la position du jet entre l'hiver et l'été boréal. Dans l'hémisphère Sud, Le jet subtropical se distingue par une séparation entre le jet polaire et le jet subtropical de mai à septembre. Le déplacement méridien du jet est de l'ordre de 20°.

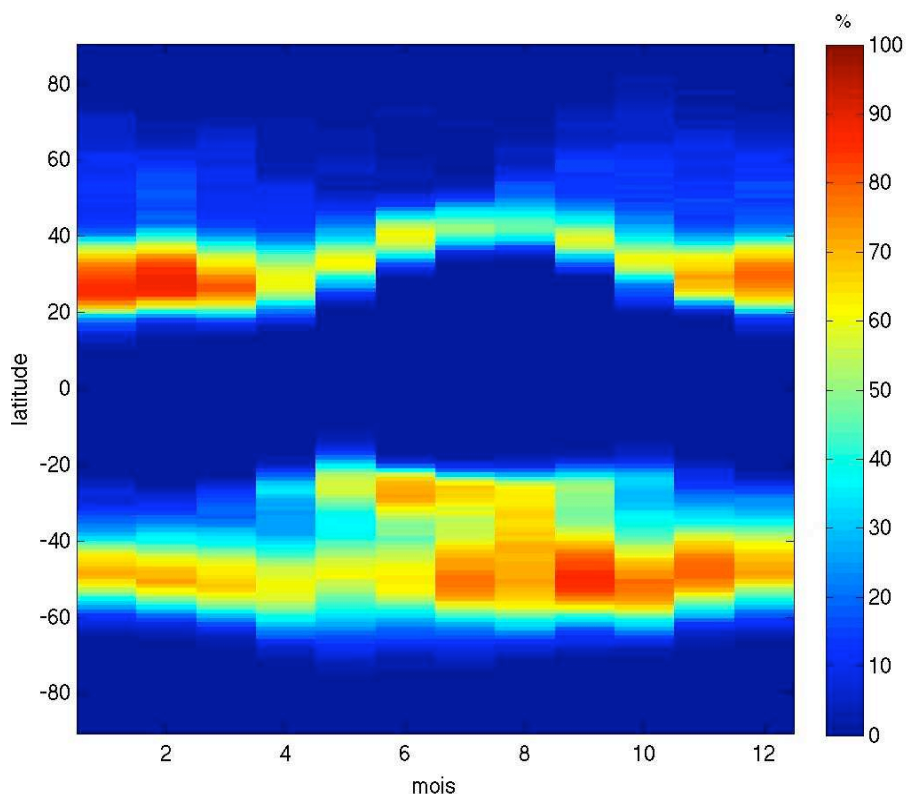


Figure 4.2 Coupe méridienne du pourcentage moyen mensuel des occurrences où le module du vent zonal dépasse les 30m.s-1 sur 10 années de données ECMWF (1998-2008).

4.4 Méthode de classification des anomalies positives d'ozone

Chaque profil de la base de données ozone de La Réunion est comparé au profil climatologique du mois correspondant calculé à partir du même type de données (lidar ou radiosondages). Les valeurs de rapport de mélange en ozone dépassant 130 % de la valeur de la moyenne climatologique sont appelés Anomalies Positives d'Ozone (APO).

La valeur de 30% est choisie pour être globalement inférieure au pourcentage maximum que peut représenter l'écart type par rapport à la moyenne des profils climatologiques. En effet, si l'on considère que l'écart type représente la variabilité naturelle d'une moyenne, les phénomènes de STE participent à cette variabilité. Par conséquent il est nécessaire de fixer un seuil globalement inférieur à l'écart type pour définir les APO à caractériser, et qui lui est indépendant.

Des rétrotrajectoires sont calculées avec le code lagrangien Lacytraj pour toutes les dates pour lesquelles la mesure d'un profil ozone a été effectué par radiosondage ou lidar. Les rétrotrajectoires sont lancées à partir de la position de La Réunion (21°S, 55.5°E). L'heure d'initialisation des rétrotrajectoires pour les dates de radiosondages est 06 UT, 18 UT pour les dates de mesures lidar. La grille de départ est un profil compris entre 900 hPa et 50 hPa avec 5 hPa de résolution verticale.

L'échelle de temps correspondant à la diffusion de la PV dans la troposphère est difficile à déterminer précisément car fortement dépendante de la nature des processus dynamiques mis en jeu lors d'intrusions stratosphériques. Néanmoins, une échelle de temps de l'ordre de quelques jours a souvent été utilisées dans des publications traitant des échanges stratosphère – troposphère (Stohl et al., 2001, Fairlie et al. 1997, Dragani et al., 2002, Brioude et al., 2007) comme étant l'échelle de temps correspondant au passage d'une parcelle d'air dans un système synoptique (Stohl et al., 2001). Dans le cadre de cette étude, trois séries de calculs de rétrotrajectoires ont été lancés avec des durées de deux, cinq et dix jours. La sensibilité de la méthode à la durée des rétrotrajectoires fera l'objet de discussions dans la suite de ce chapitre. La position initiale (d'un point de vue temporel) des rétrotrajectoires est utilisée afin de reconstruire le profil correspondant de vorticité potentielle à partir des champs de PV du centre Européen (ECMWF). Cette reconstruction repose sur l'hypothèse que la PV est conservée et advectée le long des trajectoires comme un traceur stratosphérique passif.

A la suite de cette étape, les profils d'ozone sont comparés aux profils de PV comme l'illustre la figure 4.3. Chaque APO du profil d'ozone est classifiée en fonction de la valeur de la PV à la même altitude :

- Une APO est classifiée comme d'origine stratosphérique (STE, classe bleue, figure 4.3). si la PV reconstruite à la même altitude est supérieure à une valeur critique de PV. Waugh et al. (2000) ont choisi une valeur critique de 2 PVU (1 PVU = $10^{-6} \text{m}^2 \text{Ks}^{-1} \text{kg}^{-1}$) pour leur climatologie des intrusions dans la haute troposphère tropicale. La valeur de 2 PVU est aussi largement utilisée pour distinguer les masses d'air stratosphériques dans les études globales et aux moyennes latitudes (Stohl et al., 2001, Sprenger et Wernli, 2003). Cependant des études expérimentales ont montré qu'aux latitudes subtropicales une faible valeur critique de PV peut être utilisée pour distinguer les masses d'air stratosphériques (Folkins et Appenzeller, 1996, Gouget et al., 1996). Au vu de ces éléments, une série de trois valeurs critiques de PV (i.e. 1 PVU, 1.5 PVU et 2 PVU) sera testée et la sensibilité de la méthode à ce critère sera discutée dans la suite du chapitre.

- Une classe STE-TTL (classe rouge, figure 4.3) est définie pour les APO dans la haute troposphère : les APO qui sont trop proches de la tropopause pour être clairement identifiés comme détachés du réservoir stratosphériques sont classifiés STE-TTL. La hauteur moyenne mensuelle du point froid a été calculée à partir des profils de température de radiosondages (figure 3.2). De plus, Sivakumar et al. (2006) localise le niveau moyen de l'ozonopause à 1.9 km en dessous du niveau moyen de la hauteur du point froid. Par conséquent la marge d'altitude concernant les APO classifiés STE-TTL s'étend sur 2 km en dessous de la hauteur climatologique du point froid calculée pour La Réunion.

- Lorsque la PV reconstruite au niveau d'une APO est inférieure à la valeur critique, l'anomalie est classifiée NON-STE (classe verte, figure 4.3).

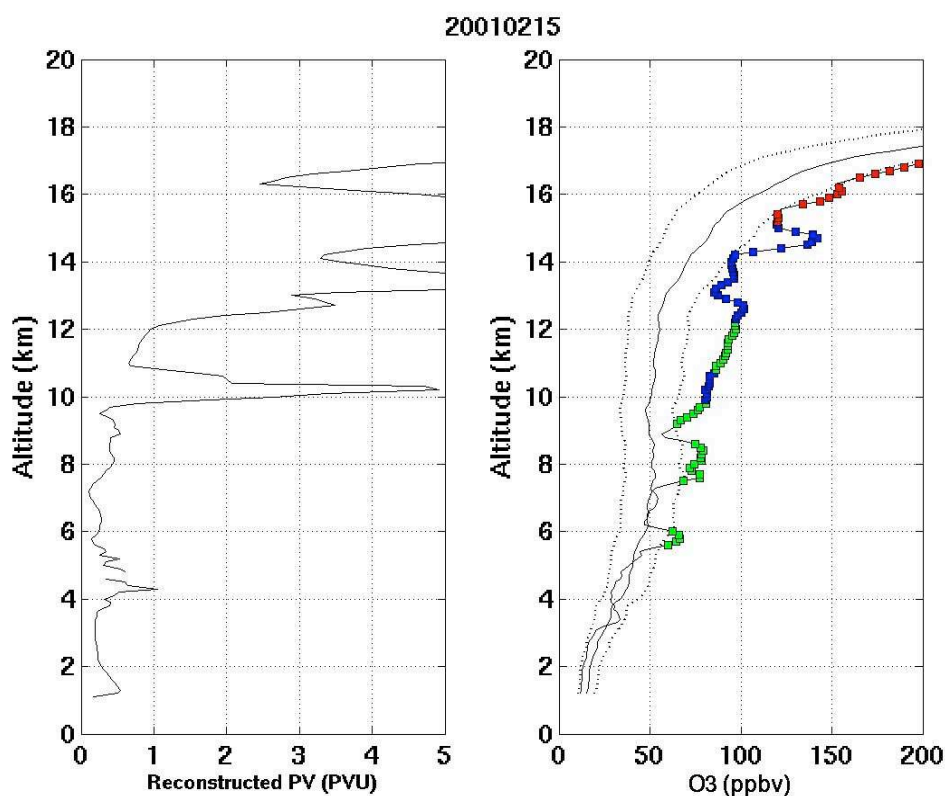


Figure 4.3 Le profil reconstruit de vorticité potentielle (gauche) est comparé au profil d'ozone mesuré le 15 février 2001 (droite). Ce profil d'ozone est lui même comparé au profil climatologique du mois de février afin de mettre en évidence les APO. La classification des APO se traduit par le code couleur bleu (STE) vert (NON-STE) et rouge (STE-TTL).

Si l'origine stratosphérique des APO de classe STE est clairement définie par un rapport de mélange en ozone élevé et par une signature de PV, il est important de mentionner que la

classe NON-STE est composée de masses d'air de différentes catégories. Ces masses d'air présentent un rapport de mélange en ozone élevé mais pas de signature de PV. Différents contextes peuvent expliquer l'origine de ces masses d'air.

- La photochimie de précurseurs d'ozone injectés en troposphère libre par convection couplée au transport à longue distance peut être responsable du rapport de mélange en ozone élevé dans ces masses d'air.
- Les masses d'air de classe NON-STE peuvent aussi provenir de la stratosphère via une intrusion qui a eu lieu à une date antérieure à la date initiale (du point de vue temporel) de calcul des rétrotrajectoires. De plus, la signature stratosphérique sur la PV peut être rapidement altérée par des processus de diffusion. D'après Bithel et al. (1999), la signature chimique des masses d'air d'origine stratosphérique a une durée de vie plus longue que la signature thermodynamique.
- les APO peuvent être dues à l'ozone produit suite à la production de NO_x émis par les éclairs (Bond et al. 2002).
- Enfin, les APO de classe NON-STE peuvent provenir d'une couche limite polluée et avoir été advectées dans la troposphère par la convection tropicale.

4.5 Discussion sur la consistance du jeu de données

Il s'agit dans cette section d'évaluer si la base de données ozone de La Réunion est un échantillon représentatif dans le cadre d'une étude des STE. Dans cette optique, on compare la fréquence cumulée des distributions annuelle et mensuelle des STE détectés dans la base de données ozone à la fréquence cumulée des distributions annuelle et mensuelle des mesures ozone (figure 4.4).

La figure 4.4 présente les courbes de fréquence distinguant les jeux de données radiosondages et lidar et regroupant les deux jeux de données. Que l'on distingue les jeux de données ou pas, les coefficients de corrélation présentent des valeurs proches de 1, signifiant que l'évolution temporelle de l'événement STE est semblable à l'évolution temporelle des mesures ozone, à l'échelle annuelle comme à l'échelle mensuelle. Les résultats sont similaires pour tous les paramètres de PV et de durée de rétrotrajectoires.

Par conséquent ces résultats apportent des éléments validant le jeu de données de mesures ozone de La Réunion comme échantillon statistiquement satisfaisant pour l'étude du phénomène STE à l'échelle annuelle comme à l'échelle mensuelle.

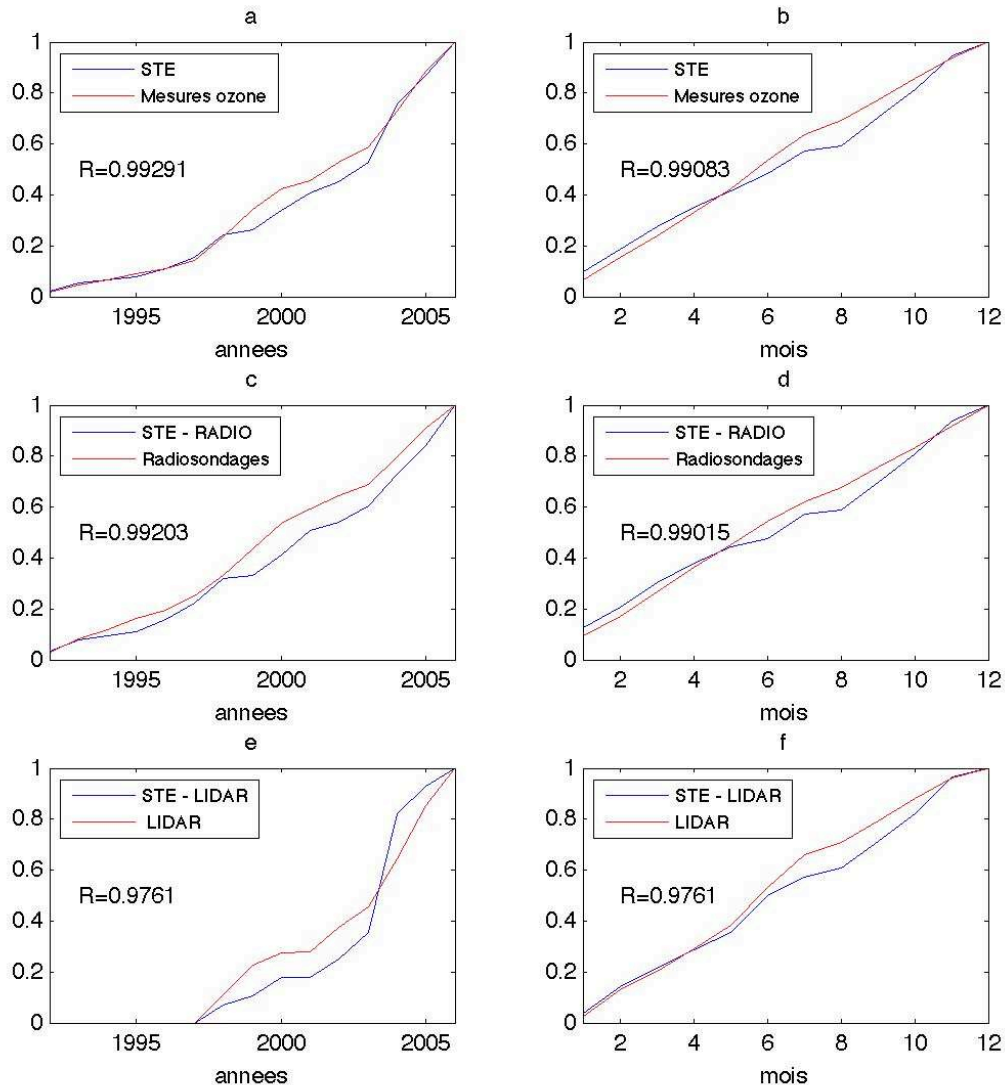


Figure 4.4 La fréquence cumulée de la distribution annuelle (a,c,e) et mensuelle (b,d,f) des occurrences de STE (courbes bleues) est comparée à la fréquence cumulée de la distribution des mesures ozone. Les jeux de données lidar et radiosondages sont confondus en (a) et (b), les vignettes (c) et (d) distinguent les mesures de radiosondages, les vignettes (e) et (f) distinguent les mesures lidar. Le coefficient de corrélation R entre les deux courbes est reporté sur chaque vignette.

4.6 Distributions inter annuelle et mensuelle des STE détectées

Observations

La figure 4.5 présente la distribution inter annuelle du pourcentage de profils présentant une STE parmi les mesures ozone de La Réunion. Les résultats sont présentés pour différents critères de PV et de durée de rétrotrajectoires.

On observe une variabilité inter annuelle importante pour tous les cas d'étude.

Cependant, les courbes correspondant aux différents cas d'étude présentent certaines similitudes : peu de STE détectés en 1994, 1999, 2002 ; augmentation du pourcentage de STE entre 1994 et 1999, en 2001, entre 2002 et 2005.

La figure 4.6 présente la distribution interannuelle en pourcentage des mesures ozone de La Réunion entre 1992 et 2006. Cette distribution montre une augmentation de la fréquence des mesures ozone à partir de 1998. Cette année correspond au début des mesures lidar dial à La Réunion et à l'année où le site a rejoint le réseau SHADOZ.

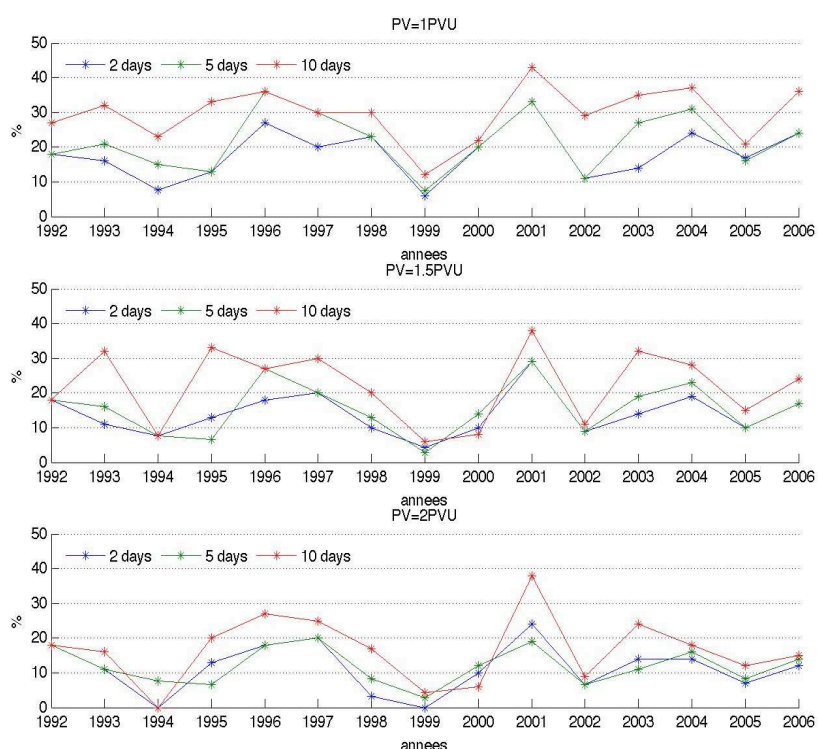


Figure 4.5 Distribution inter annuelle du pourcentage de STE détectés dans les mesures ozone de La Réunion entre 1992 et 2006 pour différents critères de valeur critique de PV et de durée de rétrotrajectoires.

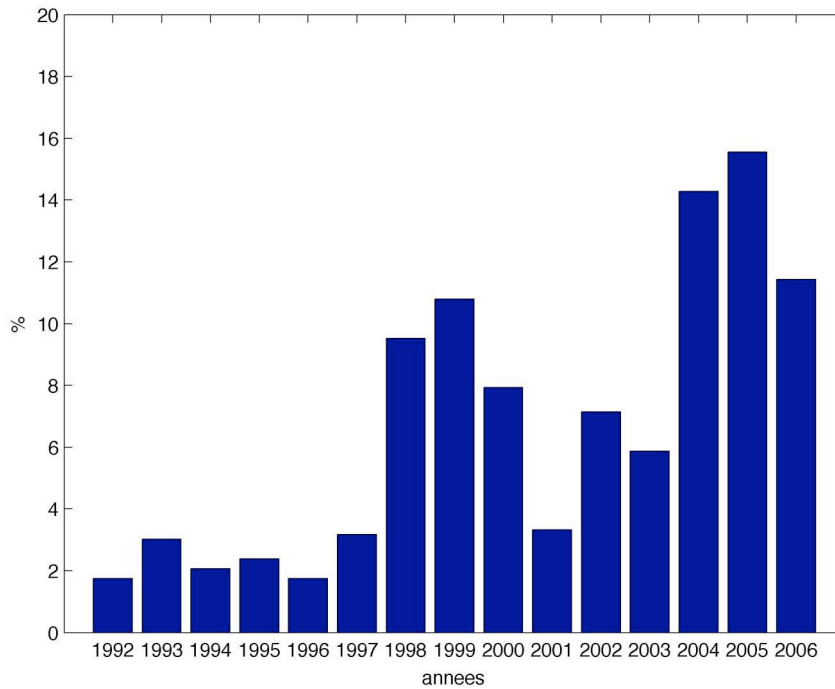


Figure 4.6 Distribution inter annuelle en pourcentage des mesures ozone à La Réunion.

Discussions

Le calcul de la distribution inter annuelle des STE détectés s'inscrit dans la continuité du calcul de tendances de l'ozone troposphérique présenté au chapitre 3. Le résultat des calculs des tendances troposphérique à La Réunion montre une tendance positive en haute troposphère, couche troposphérique a priori la plus concernée par les échanges stratosphère - troposphère. La distribution inter annuelle des STE détectés vise donc à entériner le résultat présenté au chapitre 3.

Cependant, deux raisons s'opposent au calcul d'une tendance sur la période 1992-2006:

La première est la variabilité importante des résultats qui ne permet pas de dégager une tendance statistiquement significative au regard de la variabilité.

D'autre part, il est important de mettre en perspective le nombre d'évènements STE détectés par année de mesures par rapport au nombre de mesures. En effet, la base de données ozone de La Réunion représente 630 profils entre 1992 et 2006. Jusqu'en 1998, le pourcentage total des mesures ozone est inférieur à 5% (une trentaine de profils) par an. Le nombre de profils présentant des STE parmi l'ensemble des profils ozone de La Réunion durant cette période varie entre 10% et 20 % pour le critère 1.5 PVU et 5 jours de rétrotrajectoires, ce qui

représente entre 3 et 6 profils marqués STE. Après 1998, le nombre de mesures ozone peut atteindre une centaine de profils (en 2005) mais le nombre total de profils marqués STE reste insuffisant au regard de l'échelle de temps considérée pour le calcul de tendances.

Par conséquent, ces résultats ne permettent pas de confirmer ou d'infirmer le rôle des échanges stratosphère – troposphère dans la tendance positive de l'ozone en haute troposphère à La Réunion.

Enfin, ce type d'étude soulève l'importance des mesures atmosphériques en continu. En effet, si les 16 années de données traitées à ce jour ne permettent pas de dégager une tendance inter annuelle de l'activité des STE, la réitération de cette étude sur une base de données plus longue est une perspective intéressante mais dépendante de la continuité et de la fréquence des mesures à long terme.

4.7 Distributions mensuelles

Observations

La figure 4.7 présente la distribution mensuelle du pourcentage de STE détectées dans les mesures ozone de La Réunion entre 1992 et 2006. Cette distribution est représentée pour différentes valeurs critiques de PV et pour différentes durées de rétrotrajectoires, soit 9 cas au total.

La climatologie mensuelle des STE détectés par la méthode RDF montre deux caractéristiques importantes :

- Chaque mois de l'année comporte des cas de STE. La valeur minimum est de 2.8% de profils contaminés STE en juin (2PVU, 2 jours de rétrotrajectoires).
- Le pourcentage des STE détectés dans les profils ozone est important durant le printemps austral (septembre – octobre – novembre) et l'été austral (décembre – janvier – février). L'amplitude des courbes (i.e. le pourcentage des STE détectés) durant ces saisons varie en fonction des critères de PV et de durée de rétrotrajectoires.

La figure 4.8 présente la distribution mensuelle en pourcentage des mesures ozone de La Réunion. La distribution mensuelle est assez régulière et varie entre 8 % et 11.5 % au cours de l'année et on observe un peu moins de mesures durant les mois de fermeture universitaire (6.4 % en janvier, 6.2 % en décembre, 5.4% août).

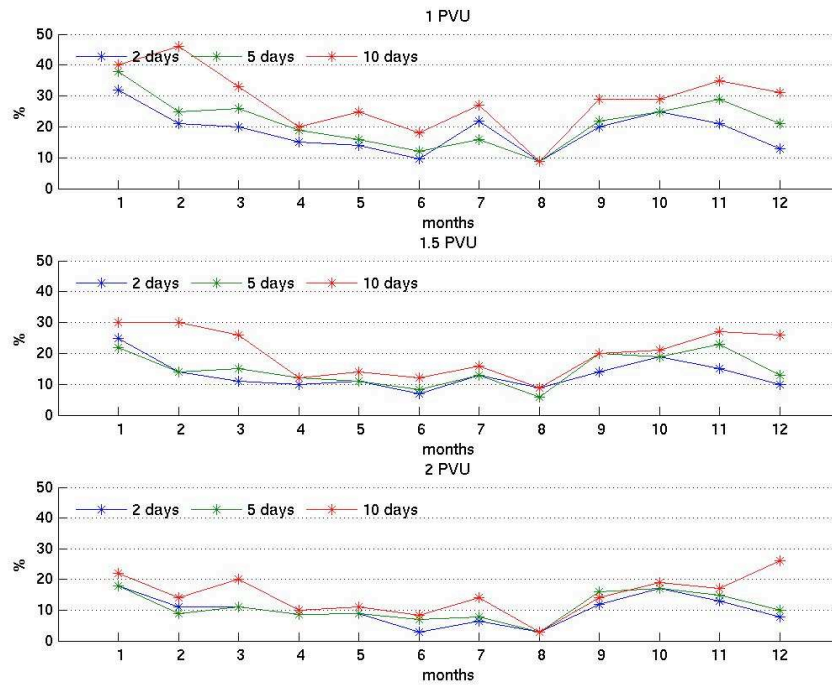


Figure 4.7 Distribution mensuelle du pourcentage de STE détectés dans les mesures ozone de La Réunion entre 1992 et 2006 pour différents critères de valeur critique de PV et de durée de rétrotrajectoires.

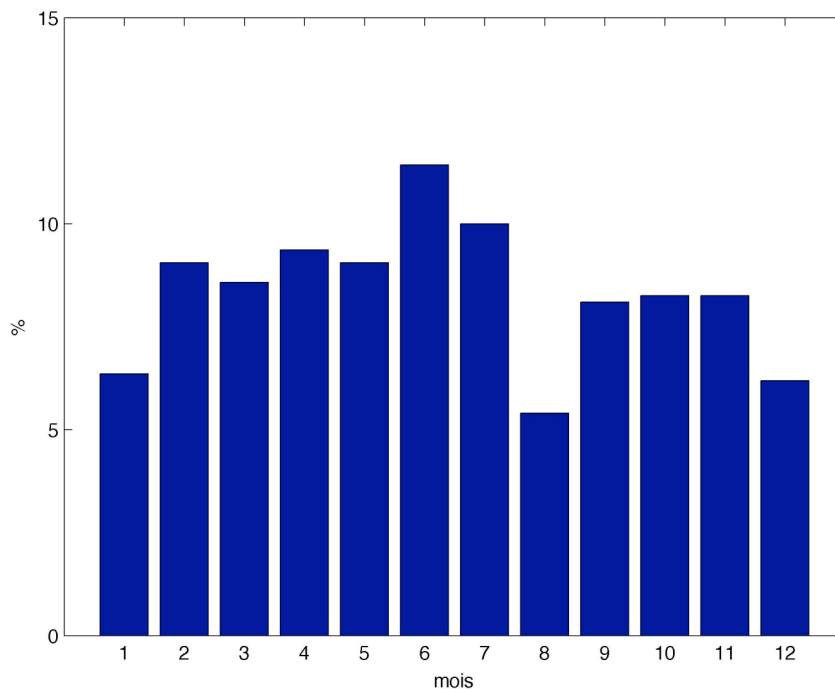


Figure 4.8 Distribution mensuelle en pourcentage des mesures ozone à La Réunion.

Discussions

Les trois objectifs de cette section sont :

- De donner une estimation de la sensibilité de la méthode aux critères de PV et de durée de rétrotrajectoires
- De fournir un ordre de grandeur des occurrences de STE détectées dans la base de données ozone de La Réunion
- D'identifier et de discuter les caractéristiques récurrentes de la climatologie mensuelle des STE ressortant parmi les différents critères de PV et de durée de rétrotrajectoires.

En ce qui concerne la sensibilité de la méthode aux critères de PV et de durée de rétrotrajectoires, la figure 4.5 montre que pour une durée de rétrotrajectoire fixée, le nombre de STE détectés augmente lorsque l'on diminue la valeur critique de PV. A l'inverse, pour une valeur critique de PV donnée, l'extension de la durée des rétrotrajectoires augmente globalement le pourcentage de STE détectés.

Par conséquent il est cohérent de retrouver un nombre minimum de STE pour les critères les plus stricts : 2 PVU , 2 jours de rétrotrajectoires ; et un nombre maximal de STE pour les critères les moins stricts 1 PVU , 10 jours de rétrotrajectoires. Ainsi, le pourcentage moyen annuel de STE détectées dans les données ozone de La Réunion varie entre 9.9% (2PVU, 2jours) et 28.5% (1 PVU, 10 jours).

Le nombre de STE détectés est dépendant du choix de la valeur critique de PV et de la durée des rétrotrajectoires. Cependant certaines caractéristiques de la climatologie des STE sont récurrentes parmi les différents tests de sensibilité. La sensibilité de la méthode et les résultats principaux seront présentés dans les sections suivantes pour les distributions verticales et les distributions de rapport de mélange en ozone. Cependant il est souhaitable de faire un choix parmi les différents critères de valeur critique de PV et de durée de rétrotrajectoires pour la présentation des résultats suivants. Dans la suite de ce chapitre, les distributions présentées correspondent aux critères de 1.5 PVU comme valeur critique et 5 jours de rétrotrajectoires. Ce choix, quelque peu arbitraire, repose sur l'hypothèse que les critères 1PVU - 10jours (2PVU - 2jours) seraient de nature à surestimer (sous estimer) le nombre de STE détectés.

La coupe méridienne à 55.5° E et 200 hPa du pourcentage moyen d'occurrences de vent zonal de module supérieur à 30 m.s-1 est présenté figure 4.2. Le jet subtropical est plus proche de

La Réunion en hiver austral mais exerce également une influence sur l'ozone troposphérique à d'autres saisons. Des cas d'étude d'intrusions stratosphériques dans la région ont été identifiés durant l'hiver austral (Baray et al. 1998) mais aussi durant d'autres saisons, mettant en jeu différents mécanismes dynamiques : influence de la convection tropicale durant l'été austral (Leclair de Bellevue et al. 2006), un cas de goutte froide au printemps austral (Baray et al., 2000). Enfin, d'après Postel et al. (1999) la fréquence des déferlements d'ondes de Rossby (RWB) est maximale durant l'été austral.

La distribution mensuelle des STE montre que les intrusions stratosphériques peuvent avoir lieu à tout moment de l'année. Au regard de la durée temporelle (16 ans) que recouvre la base de données ozone et de la régularité mensuelle de la fréquence des mesures (figure 4.8), il semble que les STE détectées à La Réunion sont un phénomène régulier fortement dépendant de mécanismes locaux à proximité de la tropopause tels que les foliations de tropopause, qui, d'après Elbern et al. (1998) ont une variabilité saisonnière peu marquée.

Cette étude suggère que les intrusions stratosphériques sont prédominantes durant le printemps et l'été à La Réunion, mais pas en hiver austral. Bien que le jet subtropical soit plus proche de La Réunion, son influence en hiver austral sur l'ozone troposphérique est de moindre importance que durant l'été austral, saison où le jet est susceptible d'interagir avec la convection tropicale. La distribution mensuelle montre un nombre important d'occurrences de STE durant l'été austral. Ce résultat est en accord avec la climatologie des déferlements d'ondes de Rossby de Postel et al. (1999). Cette climatologie, localisée le long de la tropopause subtropicale, montre que les déferlements d'ondes de Rossby ont un maximum d'occurrence durant l'été dans les deux hémisphères. Par ailleurs, Chen et al. (1995) avance que le fort gradient de PV au niveau de la tropopause durant l'hiver austral peut jouer un rôle de barrière dynamique conduisant à un nombre réduit d'échanges stratosphère – troposphère durant l'hiver austral.

Le jet subtropical est plus haut en latitude et plus intense (figure 4.2) en hiver austral. Le jet présente également un aspect plus rectiligne à cette saison en raison du nombre réduit de RWB par rapport à l'été austral (Postel et al., 1999). Cette configuration est donc peu favorable aux échanges stratosphère troposphère. Ainsi, le mécanisme de STE planétaire étudié en juillet 1998 semble donc assez atypique (Baray et al., 2000).

4.8 Distribution verticale des anomalies positives d'ozone

Observations

La figure 4.9 présente la distribution verticale entre 1 km et 20 km d'altitude des occurrences d'anomalies positives d'ozone cumulées sur l'ensemble de la base de données ozone de La Réunion. Ces anomalies sont classifiées STE, NON-STE ou STE-TTL.

Le maximum d'occurrences apparaît pour la classe NON-STE et s'étend sur l'ensemble de la troposphère entre 1 km et 15 km d'altitude. Les modes principaux de cette distributions s'étendent entre 4 km et 13 km d'altitude.

Les anomalies positives d'ozone de classe STE sont distribuées entre 8 km et 15 km d'altitude et d'occurrence plus fréquente en haute troposphère. On observe des occurrences individuelles de STE au dessous de 7 km d'altitude.

La distribution verticale saisonnière des anomalies positives d'ozone est présentée en figure 4.10. La classification est similaire à celle de la figure 4.9.

On observe des cas de STE profonds à chaque saison jusqu'à environ 7 km d'altitude. Des cas individuels de STE sont observables en dessous de cette altitude.

Le maximum d'occurrence des STE a lieu pendant le printemps austral alors que le maximum d'occurrence de la classe NON-STE a lieu pendant l'été austral.

Pendant le printemps austral, la classe NON-STE est distribuée plus régulièrement qu'aux autres saisons sur l'ensemble de la troposphère.

Enfin, le nombre total d'anomalies positives d'ozone dans la région de l'UTLS est minimal en hiver austral.

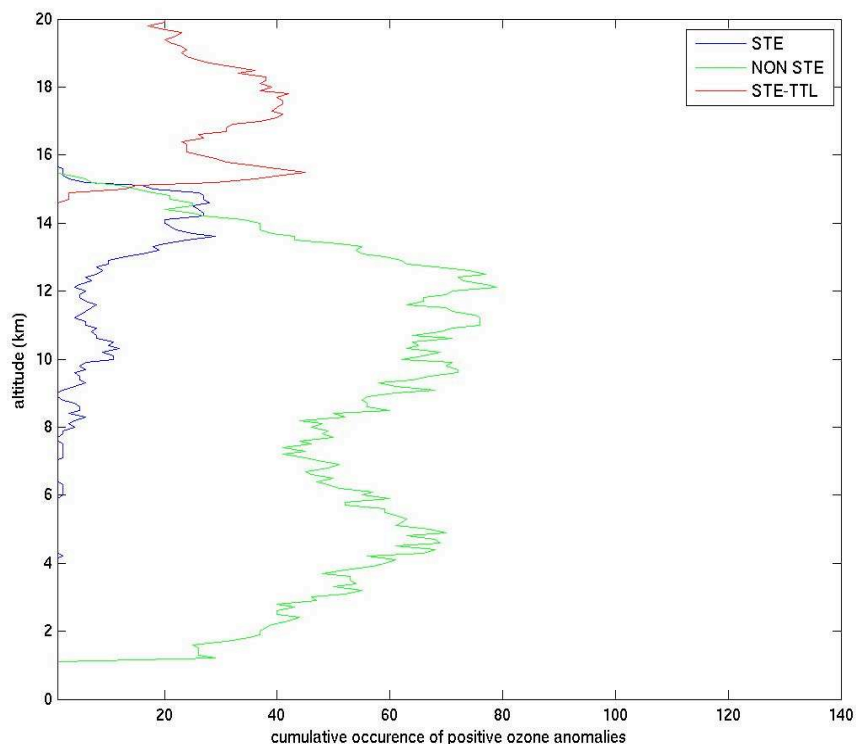


Figure 4.9 Distribution verticale des occurrences d’anomalies positives d’ozone cumulées sur l’ensemble des profils de la base de données de La Réunion (1992-2006) et classifiées STE (bleu), NON-STE (vert) et STE –TTL (rouge).

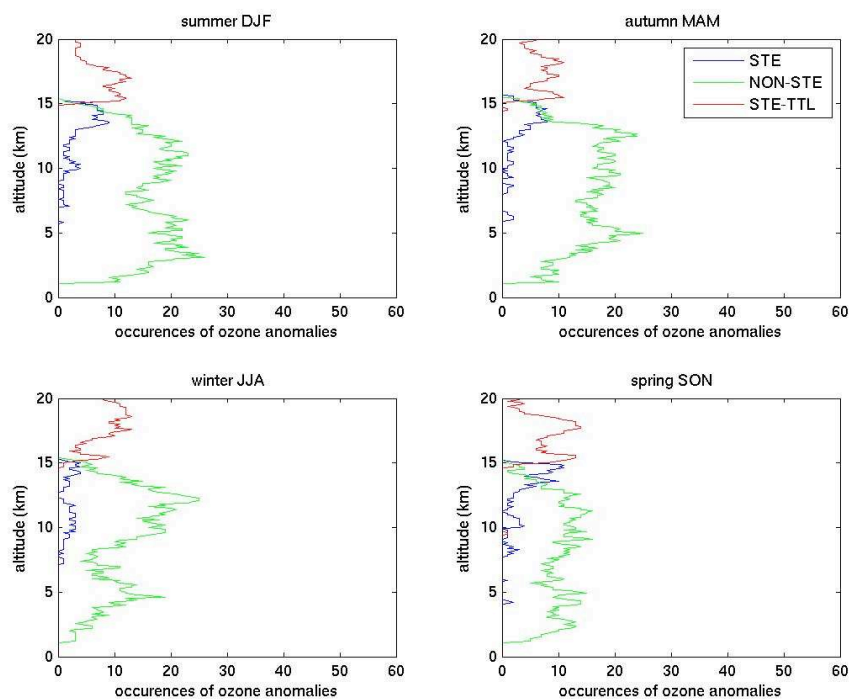


Figure 4.10 Distribution verticale saisonnière des occurrences d’anomalies positives d’ozone cumulées sur l’ensemble des profils de la base de données de La Réunion (1992-2006) et classifiées STE (bleu), NON-STE (vert) et STE –TTL (rouge).

Discussions

La méthode de classification des STE s'appuie sur l'existence d'un rapport de mélange en ozone élevé et d'une signature de PV reconstruite significative à la même altitude. Cependant, lorsque le profil d'ozone présente un enrichissement sur une large partie de la troposphère, la méthode impose souvent de réaliser une troncature dans la classification du profil. La figure 4.3 illustre bien cette particularité : le profil d'ozone présente un enrichissement par rapport à la climatologie à partir de 9 km d'altitude. Cependant, le profil de PV reconstruit présente des filaments de fortes valeurs à 10 km et à partir de 13 km, ce qui conduit à une classification mixte STE et NON-STE à partir de 9 km du profil d'ozone. Cette classification doit être considérée comme juste mais a minima. En effet, l'intrusion stratosphérique détectée sur le profil peut également contribuer au rapport de mélange en ozone de certains points de classe NON-STE à partir de 9 km. Cette troncature systématique conduit probablement à une sous estimation des occurrences de STE sur les profils verticaux. Par conséquent, les résultats de cette section sont à considérer avec précaution.

Cet aspect de la méthode met en évidence de façon générale la difficulté inhérente au traitement systématique et avec des critères communs, d'une base de données ozone présentant une multitude de cas de figure.

Les tests de sensibilité de la méthode appliqués aux distributions verticales montrent que l'augmentation de la valeur de critique de PV diminue le nombre global d'occurrences mais ne change pas les caractéristiques des distributions verticales. Par contre, l'extension de la durée des rétrotrajectoires augmente le nombre d'occurrences apparentes en moyenne et basse troposphère pour toutes les saisons.

4.9 Distribution des rapports de mélange en ozone

Les masses d'air qualifiées d'anomalies positives d'ozone ont été distribuées en fonction de leur rapport de mélange en ozone. Les occurrences sont cumulées par tranches de 10 ppbv entre 0 et 250 ppbv. Les figures 4.11 et 4.12 présentent les distributions saisonnières du rapport de mélange en ozone contenu dans les masses d'air classifiées STE (figure 4.11) et

NON-STE (figure 4.12). La modélisation par une courbe gaussienne permet de mieux visualiser la position du mode principal des distributions. Le coefficient de corrélation entre chaque distribution et sa courbe gaussienne est reporté en table 4.1.

Observations

L'objectif est de décrire le contenu en ozone relatif à chaque classe en fonction des différents mécanismes chimiques et ou dynamiques pouvant être favorisé à une saison donnée.

La distribution saisonnière du rapport de mélange en ozone de la classe STE montre que le mode principal de la distribution du printemps est centrée sur une valeur plus élevée (~140 ppbv) qu'aux autres saisons où le mode principal est centré sur des valeurs inférieures ou égales à 100 ppbv.

La distribution saisonnière du rapport de mélange en ozone de la classe NON-STE montre également que le mode centré sur la valeur de rapport de mélange la plus élevée (100 ppbv) est celui du printemps. Les modes centrés sur les valeurs les plus basses sont ceux de l'hiver et de l'été austral, tous deux proches de 80 ppbv. La distribution d'hiver présente des occurrences de hautes valeurs de rapport de mélange en ozone non prises en compte par la modélisation gaussienne.

La sensibilité des distributions d'ozone par rapport aux critères de PV et de durée de rétrotrajectoires a été examinée. Les caractéristiques discutées sont le nombre d'occurrence et la position du mode principal des distribution. La translation du mode principal n'est mentionnée que si elle correspond à une valeur supérieure ou égale à la résolution de la distribution (i.e. 10 ppbv) et que si elle est récurrente pour un critère fixe (i.e. valeur critique de PV ou durée de rétrotrajectoire).

Les résultats montrent que pour une durée de rétrotrajectoires fixée, l'augmentation de la valeur critique de PV de 1 PVU à 2 PVU a pour conséquence une diminution du nombre d'occurrences de STE. Le mode principal reste centré sur les mêmes valeurs d'ozone pour chaque saison et chaque test.

Lorsque l'on fixe la valeur critique de PV, l'extension de la durée des rétrotrajectoires n'a pas d'effet apparent sur le nombre d'occurrences. Le mode principal reste centré sur la même valeur d'ozone pour l'hiver et l'automne, alors que les modes d'été et de printemps austraux sont translatés vers des valeurs d'ozone plus faibles.

	été - DJF	automne- MAM	hiver - JJA	printemps- SON
STE	0.91	0.84	0.68	0.88
NON-STE	0.95	0.92	0.93	0.83

Table 4.1 Coefficients de corrélation entre la courbe de distribution du rapport de mélange en ozone et la courbe de modélisation gaussienne pour chaque saison et pour les classes STE et NON-STE.

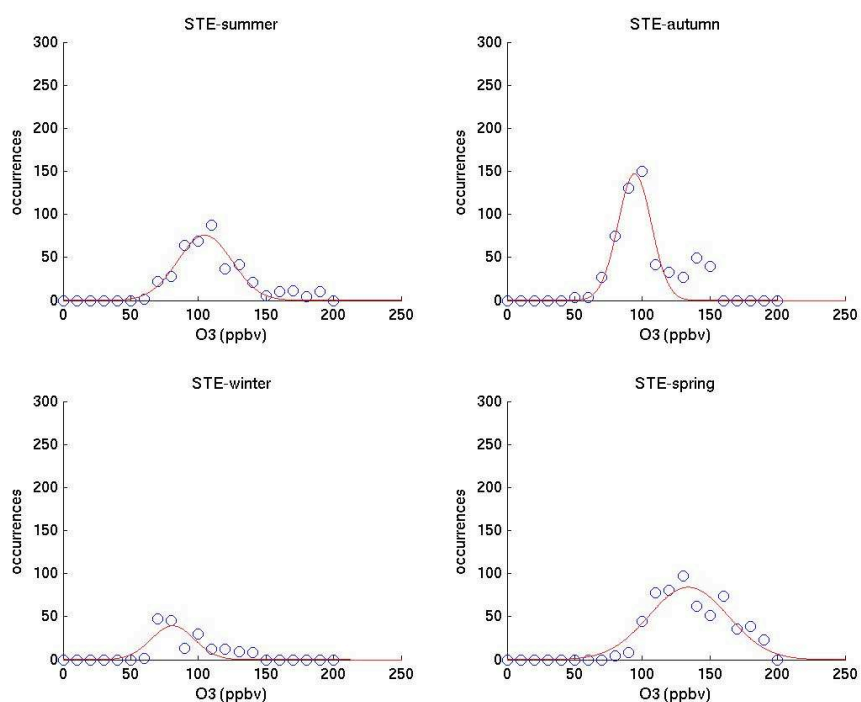


Figure 4.11 Distribution des occurrences du rapport de mélange en ozone (ppbv) dans les masses d'air classifiées STE.

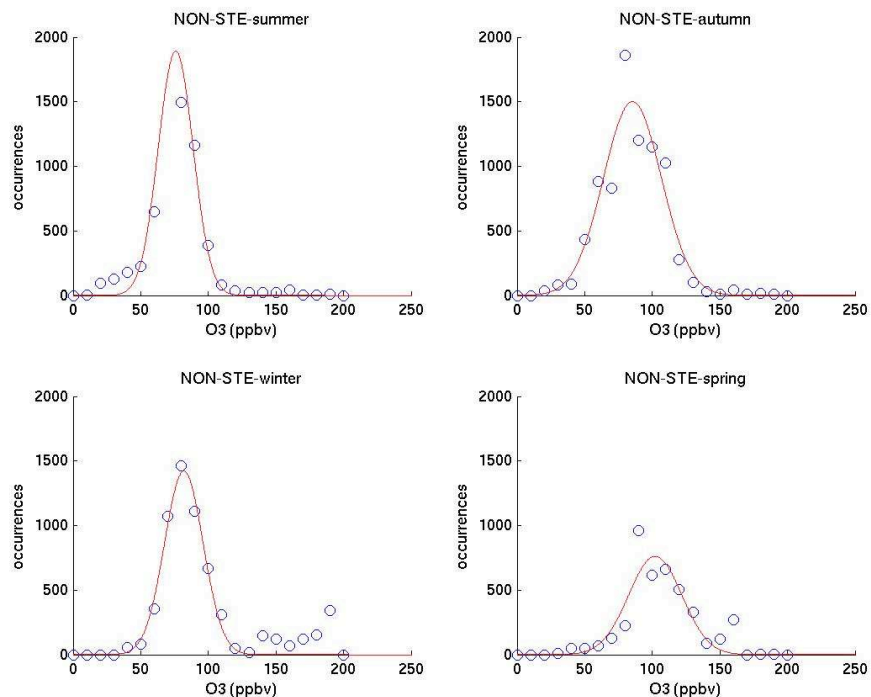


Figure 4.12 Distribution des occurrences du rapport de mélange en ozone (ppbv) dans les masses d'air classées NON-STE.

Discussions

Il est intéressant de comparer le nombre important d'intrusions stratosphériques durant le printemps austral et le pic de printemps observé dans la climatologie de l'ozone troposphérique (Clain et al., 2009). Le pic de printemps de l'ozone troposphérique a largement été attribué aux émissions de précurseurs issus des feux de biomasse d'Afrique du Sud et de Madagascar, couplées au transport à grande échelle vers La Réunion au printemps austral. Le maximum de printemps est apparent dans les distributions de rapport de mélange en ozone des masses d'air classées NON-STE (figure 4.12) : la distribution d'ozone du printemps austral est centrée sur une valeur de rapport le mélange (i.e. 110 ppbv) supérieure aux valeurs centrales des autres distributions. La figure 4.11 montre la même configuration (i.e. distribution centrée sur ~140 ppbv) pour la distribution des anomalies positives d'ozone classées STE au printemps austral. Il est important de comprendre que si une signature stratosphérique est identifiée sur un profil d'ozone, les sources photochimique et stratosphériques peuvent toutes deux contribuer au rapport de mélange en ozone résultant. ce

contexte a été identifié par Randriambelo et al. (1999) sur un cas d'étude à La Réunion où apparaissaient à la fois l'influence des feux de biomasse et une signature stratosphérique.

Les résultats présentés dans ce chapitre concernant la climatologie des STE et la distribution verticale des anomalies positives d'ozone suggèrent que les intrusions stratosphériques sont également susceptibles de contribuer au pic de printemps de l'ozone troposphérique, en particulier en haute troposphère où la distribution des occurrences de STE est maximale.

Les distributions du rapport de mélange en ozone des masses d'air classifiées STE présentent des caractéristiques différentes pour chaque saison. Bien que les résultats présentés ici plaident en faveur d'une participation importante des STE au bilan de l'ozone troposphérique, en particulier en été et au printemps austral, l'ozone troposphérique de background peut également contribuer aux différences observées entre les distributions. Dans le but de comprendre l'influence de l'ozone de background sur ces distributions, il serait nécessaire de déterminer avec précision les mécanismes dynamiques mis en jeu lors de chaque intrusion stratosphérique durant chaque saison. Ces éléments peuvent apporter des informations importantes sur les échelles de temps relatives aux différents mécanismes dynamiques et par conséquent sur les mécanismes de mélange susceptibles d'intervenir avec les masses d'air troposphériques plus anciennes.

4.10 Conclusions et perspectives du quatrième chapitre

Les résultats présentés dans ce chapitre ont été obtenus grâce aux calculs de rétrotrajectoires du code lagrangien Lacytraj. L'advection de la vorticité relative comme traceur stratosphérique passif et la comparaison des profils de PV reconstruite aux profils d'ozone permet de déterminer l'origine stratosphérique des anomalies positives d'ozone. La climatologie des STE, les distributions verticales et les distribution de rapport de mélange en ozone ont été calculés à partir de cette classification.

Les échanges stratosphère – troposphère peuvent avoir lieu à tout moment de l'année : en effet, il n'existe pas de mois ne comportant pas de STE dans la base de données de La Réunion.

La climatologie mensuelle des échanges stratosphère - troposphère présente deux maximums d'occurrence : durant le printemps austral, quand l'activité du jet subtropical reste importante

et durant l'été austral lorsque la fréquence des RWB est maximale et lorsque l'interaction entre le jet et la convection tropicale peut donner lieu à des échanges stratosphère – troposphère.

Les distributions verticales montrent que les occurrences de STE couvrent toute la troposphère libre.

Il est possible que le rapport de mélange en ozone lié aux intrusions stratosphérique soit influencé par le niveau de fond de l'ozone : en effet, le niveau d'ozone lié aux intrusions stratosphériques est plus élevé durant le printemps austral.

Durant le printemps austral, les sources photochimique comme stratosphérique peuvent contribuer au pic de printemps de l'ozone troposphérique.

La source stratosphérique présentant un maximum d'occurrences en haute troposphère, son influence peut contribuer à expliquer la hauteur climatologique de la tropopause au printemps austral (figure 3.2).

Les tests de sensibilité de la méthode montrent que l'extension de la durée des rétrotrajectoires pour une valeur critique de PV fixée conduisent à :

une augmentation du nombre de STE détectées

une augmentation des occurrences de STE en moyenne et basse troposphère.

une translation des modes principaux de rapport de mélange en ozone vers des valeurs plus basses en été et au printemps.

Ce dernier résultat est concordant avec l'augmentation des occurrences de STE en moyenne et basse troposphère où le rapport de mélange en ozone est climatologiquement plus bas qu'en haute troposphère.

L'augmentation de la valeur critique de PV pour une durée fixe de rétrotrajectoires conduit à une diminution du nombre de STE détectées mais ne change pas sensiblement les autres caractéristiques des distributions verticales ni de rapport de mélange en ozone.

En terme de perspectives, le développement d'un module d'advection de la vapeur d'eau dans le code lacytraj permettra une caractérisation plus fine des intrusions stratosphériques conjointement avec l'utilisation des mesures de vapeur d'eau faites par lidar Raman à La Réunion entre 2001 et 2005. Ces dernières mesures sont actuellement en cours de validation dans le cadre de la thèse de Christophe Hoareau au LATMOS.

Par ailleurs, il a été mentionné en section 4.2 que la classe NON-STE est constituée de masses d'air de différentes catégories. Une piste d'approfondissement de cette étude pourrait porter

sur la caractérisation des différentes catégories co-existant dans la classe NON-STE en s'inspirant du travail de Naja et al. (2003). L'étude de Naja et al. porte sur la caractérisation des masses d'air en couche limite et basse troposphère en fonction de la saison et de leur temps de résidence au dessus de l'Europe, assimilée à une zone source de précurseurs d'ozone.

De la même façon, la caractérisation des masses d'air de classe NON-STE peut bénéficier de l'information contenue dans les trajectoires. Cette étude nécessite le calcul de trajectoires suffisamment longues de l'ordre de 10 jours et pourrait consister en la mise en place d'une classe définissant les masses d'air en fonction de leur temps de résidence au dessus des zones régionales de sources photochimiques (Afrique du Sud et Madagascar). Au sein de cette classe, on peut distinguer les masses d'air en fonction de leur temps de résidence au dessous d'un certain niveau d'altitude à déterminer. Ce niveau critique d'altitude est à définir en fonction de la saison et de l'estimation de la hauteur d'injection des précurseurs d'ozone provenant des feux de biomasse et/ou de la pollution anthropique.

La détermination de la réversibilité des masses d'air provenant d'une intrusion stratosphérique est un paramètre important à prendre en compte dans le but de déterminer avec plus de précision l'impact des STE sur le bilan de l'ozone troposphérique.

Enfin, il serait intéressant d'appliquer la méthode à Irene puis à d'autres sites du réseau SHADOZ afin d'étudier la variabilité des intrusions stratosphériques et l'impact des sources d'ozone pour chaque site.

Finalement, cette méthode montre qu'une approche lagrangienne basée sur une étude à haute résolution de mesures in situ révèle des caractéristiques locales qui ne sont pas discernables avec une approche globale. Par exemple, l'application de la méthode à la base de données ozone de La Réunion montre que le maximum de STE est détecté en été et au printemps austraux. La climatologie de James et al. (2003) avance des résultats de modélisation globale favorisant un maximum d'occurrence des STE dans l'hémisphère Sud durant l'hiver.

Conclusion générale

La connaissance des mécanismes qui influencent le bilan de l’ozone troposphérique est un enjeu important. En effet, l’ozone troposphérique a non seulement un impact sur la capacité oxydante de l’atmosphère mais aussi un impact sur le bilan radiatif terrestre. Son activité en tant que gaz à effet de serre est maximale en haute troposphère (Forster & Shine, 1997). L’impact de l’ozone sur le climat est une problématique mondiale. La distribution des précurseurs chimique de l’ozone troposphérique et l’apport de la source stratosphérique sont soumises à une grande variabilité spatiale et temporelle. Ainsi, l’impact de l’ozone troposphérique sur le climat peut s’aborder à la fois à l’échelle globale mais aussi à l’échelle régionale.

L’objectif de cette thèse est d’apporter des éléments permettant d’évaluer, dans la région du Sud ouest de l’Océan Indien et de l’Afrique du Sud, l’impact relatif des sources stratosphérique et photochimique sur l’ozone troposphérique.

Dans cet perspective, les données ozone de La Réunion et d’Afrique du Sud sont exploitées, tout d’abord dans le cadre d’une étude climatologique régionale, d’une comparaison des différents types de données et du calcul de tendances troposphériques. La comparaison des données ozone de radiosondages aux données lidar mettent en évidence un bon accord des profils saisonniers dans la troposphère libre sauf pour l’été austral où les profils lidar présentent plus d’ozone que les profils de radiosondages, et en haute troposphère à toutes les saisons, où les profils lidar présentent moins d’ozone que les profils de radiosondages. L’étude comparative des climatologies de l’ozone troposphérique à La Réunion et en Afrique du Sud révèle des différences liées au contexte géophysique de chaque site. Cette étude suggère que la climatologie de l’ozone troposphérique est fortement influencée par l’émission de précurseurs lors de feux de biomasse en Afrique du Sud et à Madagascar au printemps austral. Enfin, le calcul des tendances linéaires de l’ozone troposphérique révèle une tendance positive sur la colonne totale pour les deux sites, suggère une intensification de l’activité des feux de biomasse en Afrique du Sud et une augmentation des échanges stratosphère – troposphère à La Réunion durant la période 1990-2008.

La seconde partie de ce travail traite de la caractérisation des anomalies positives d’ozone avec une approche Lagrangienne appliquée à la base de données ozone de La Réunion. Cette analyse consiste à comparer de façon systématique, pour chaque profil d’ozone, les valeurs

fortes de rapport de mélange en ozone aux profils de PV reconstruits par la méthode RDF grâce au code trajectographique Lacytraj. Cette approche permet de caractériser les anomalies positives d'ozone d'origine stratosphérique (STE) sur chaque profil d'ozone. Les distributions temporelles, spatiale et les distributions de rapport de mélange en ozone liées aux STE sont présentées. Cette étude montre que les échanges stratosphère – troposphère peuvent avoir lieu à tout moment de l'année et présentent un maximum d'occurrence en été austral et au printemps austral. En été austral, l'interaction du jet avec des systèmes dépressionnaires tropicaux, mais aussi l'interaction du jet avec les déferlements d'ondes de Rossby sont susceptibles d'induire des STE. Au printemps austral, l'activité du jet au niveau de La Réunion est importante et peut donner lieu à des STE. Ces résultats suggèrent que la source stratosphérique est susceptible de contribuer au pic de printemps observé dans la climatologie de l'ozone troposphérique. Nous montrons que les anomalies positives d'ozone de type STE sont principalement localisées en haute troposphère. Ce résultat est important dans la mesure où l'impact radiatif de l'ozone troposphérique est maximal en haute troposphère et dans la mesure où la tendance de l'ozone en haute troposphère est positive à La Réunion.

Ce travail présente plusieurs perspectives de développement directes. Il serait intéressant tout d'abord d'approfondir l'influence des feux de biomasse sur le bilan de l'ozone troposphérique. Ce travail peut être réalisé notamment avec l'exploitation des mesures de CO de MOPITT et des campagnes FTIR à La Réunion, puis sous la forme d'une étude de type RDF avec les champs de carbone suie du modèle ORISAM TM4. Une autre piste d'approfondissement consiste à exploiter l'information contenue dans les trajectoires afin de déterminer le temps de résidence des masses d'air au dessus des zones de sources de précurseurs.

Par ailleurs, la caractérisation des échanges stratosphère – troposphère peut être améliorée avec le développement d'un code microphysique pour l'advection de la vapeur d'eau dans le code lacytraj, et l'exploitation des mesures de vapeur d'eau par lidar RAMAN réalisées à La Réunion entre 2001 et 2005.

Dans le but de compléter l'étude régionale de l'impact des différentes sources sur le bilan de l'ozone, il serait intéressant d'appliquer cette approche à la base de données ozone d'Irene en Afrique du Sud. Ce travail peut aussi être effectué sur tous les sites de mesures du réseau SHADOZ dans le but d'évaluer l'activité des échanges stratosphère – troposphère dans l'hémisphère Sud.

Enfin, une piste de développement de ce travail serait d'apporter une évaluation quantitative de l'influence des STE sur le bilan de l'ozone troposphérique en étudiant la réversibilité des échanges avec le réservoir stratosphérique.

Les travaux effectués dans le cadre de cette thèse abordent deux thématiques : la thématique de l'étude des échanges stratosphère – troposphère et la thématique de la quantification et du transport des polluants dans la troposphère. Ce dernier aspect est en cours de développement au LACy dans le cadre de la thèse de Valentin Duflot portant sur l'influence des feux de biomasse et la dispersion des polluants (ozone, CO, CO₂, aérosols...) dans la troposphère de l'Océan Indien. Son travail s'appuie sur une étude multi instrumentale (FTIR, lidar, MOPITT) et de modélisation (MOCAGE) et bénéficie de collaborations extérieures, notamment le Laboratoire d'Aérodologie et l'IASB.

La thématique de la dynamique et de la physico-chimie troposphériques à La Réunion offrent d'autres perspectives de développement importantes notamment en ce qui concerne l'étude des aérosols d'Afrique du Sud et de Madagascar. Les aérosols influencent significativement le bilan radiatif terrestre. On distingue l'impact radiatif direct des aérosols lié à la réponse des particules aux rayonnements solaire et tellurique, et l'impact radiatif indirect, dû à l'influence des aérosols sur les processus de formation des nuages et leurs propriétés. Les incertitudes sur les effets radiatifs des aérosols sont dus à une connaissance incomplète de leurs propriétés optiques et de leurs concentrations atmosphériques. La station est dotée d'instruments de mesure des aérosols : le lidar Rayleigh-Mie (1064 nm) pour la haute troposphère et la stratosphère mis en service en 1994, le lidar mobile LEOSPHERE (355 nm) mis en service dans le cadre de la campagne ECLAIR 2008, pour la troposphère, ainsi que le photomètre CIMEL qui fonctionne depuis 2004. Le laboratoire bénéficie également depuis 2009 de la présence de Pierre Tulet qui apporte son expertise dans le développement des codes micro physique et chimique de Méso-NH. L'exploitation des données d'observations, couplée à des études numériques permettront de documenter en détail la distribution des aérosols dans la région.

Une autre thématique importante à développer au LACy est celle de l'eau dans l'UTLS. En effet, l'impact radiatif de l'eau sous forme gazeuse ou de glace (cirrus) est important dans la région de l'UTLS. De plus, la tendance positive de la vapeur d'eau stratosphérique jusqu'en 2000 mise en évidence par le rapport SPARC est encore mal comprise du fait de la

complexité des processus mis en œuvre lors des échanges troposphère – stratosphère. En effet, la nature des échanges prend différentes formes, qu'ils soient verticaux entre la troposphère et la stratosphère ou isentropiques entre les tropiques et les moyennes latitudes. La localisation du site de La Réunion est particulièrement privilégiée pour l'étude de ces phénomènes. L'observation de la vapeur d'eau est en cours de développement à La Réunion. L'utilisation du lidar avec la technique Raman permet de sonder la vapeur d'eau et d'observer les cirrus avec une bonne résolution verticale. L'installation d'un télescope de 1.20m de diamètre à la station du Maïdo permettra d'optimiser les mesures de vapeur d'eau et d'atteindre la basse stratosphère. Un radiomètre infrarouge installé en 2007 en collaboration avec le laboratoire d'Aérodologie, permet l'observation des propriétés microphysique et radiatives des aérosols et des nuages. Par ailleurs, le traitement et la validation des mesures de vapeur d'eau faites par lidar Raman entre 2001 et 2005 dans le cadre de la thèse de C. Hoareau permettront de documenter cette période et de caractériser la variabilité de la vapeur d'eau et sa climatologie dans la région de l'UTLS. En terme de modélisation, le code lacytraj gagnera à être enrichi du code microphysique développé pour MIMOSA. Ce développement permettra au laboratoire de disposer d'un outil performant pour l'advection de la vapeur d'eau.

Le parc instrumental de la station connaît depuis quelques années une évolution importante, avec l'augmentation de la fréquence des mesures ozone par radiosondages depuis trois ans, le développement de la mesure de température par lidar, les mesures de constituants trace par radiométrie avec le FTIR, les mesures d'aérosols par lidar et les mesures de vent par sonde GPS, par lidar Doppler et par Radar UHF. L'ouverture prochaine de l'observatoire du Maïdo et l'intégration de l'OPAR à l'Observatoire des Sciences de l'Univers de La Réunion marqueront une nouvelle étape de l'extension de la station et favoriseront son expansion dans le cadre des réseaux globaux tels que NDACC, GEOMON et GAW.

Abstract

Emissions of ozone precursors by biomass burning activity in south Africa and Madagascar and stratospheric intrusions are the two sources controlling tropospheric ozone at Reunion. Located at 21°S, the site is strongly impacted by the subtropical jet stream activity during austral winter and spring.

Ozone measurements at Reunion started in 1992 with the first radiosoundings. The measurements were enriched from 1998 with the installation of a LIDAR at the station. Ozone radiosonde measurements are also performed at Irene (South Africa) since 1990. In 1998, Irene and la Reunion joined the SHADOZ network (Thompson et al. 2003).

The study presented here intends to analyse the ozone database with a lagrangian approach in order to compare the impact of photochemical and stratospheric sources on the tropospheric ozone burden in the region. This work starts with a comparative study of tropospheric ozone climatology and trends at two regional sites: La Reunion and Irene.

The tropospheric ozone trends have been calculated both considering the whole tropospheric column and dividing the troposphere into three atmospheric sections standing for lower, middle and upper troposphere. The examination of data, the climatological studies and the trend calculations revealed specific features of data, the climatological characteristics of tropospheric ozone in the region and allowed to hypothesize on the evolution of regional sources.

The analysis of the ozone database at Reunion with the lagrangian trajectory code Lacytraj revealed the seasonal behaviour of stratospheric intrusions, their seasonal features such as the depth of intrusions, the value of ozone mixing ratio in stratospheric air masses and vertical seasonal distributions of stratospheric intrusions.

Key words: tropospheric ozone, climatology, trends, subtropical jet stream, stratosphere – troposphere exchange.

Annexe A

Tropospheric ozone climatology at two Southern Hemisphere tropical/subtropical sites, (Reunion Island and Irene, South Africa) from ozonesondes, LIDAR, and in situ aircraft measurements

G. Clain¹, J. L. Baray^{1,2}, R. Delmas¹, R. Diab³, J. Leclair de Bellevue⁴, P. Keckhut^{4,5}, F. Posny¹, J. M. Metzger¹, and J. P. Cammas⁶

¹Laboratoire de L'Atmosphère et des Cyclones (LACy), UMR-CNRS 8105, 15, av. René Cassin, BP 7151, 97715 St-Denis Cedex 9, La Réunion, France

²Institut Pierre-Simon Laplace (IPSL), Univ. Versailles Saint Quentin, 5 Boulevard d'Alembert, 78280 Guyancourt, France

³School of environmental science, University of KwaZulu-Natal, Durban, South Africa

⁴Service d'Aéronomie (SA), UMR-CNRS 7620 Univ. Pierre et Marie Curie, 4 place Jussieu, 75252 Paris Cedex 05, France

⁵Service d'Aéronomie (SA), UMR-CNRS 7620 Verrières le Buisson, 91371, France

⁶Laboratoire d'Aérodologie (LA), UMR-CNRS 5560 14, av. Edouard Belin, 31400 Toulouse, France

Received: 12 March 2008 – Published in Atmos. Chem. Phys. Discuss.: 9 June 2008

Revised: 23 January 2009 – Accepted: 23 January 2009 – Published: 6 March 2009

Abstract. This paper presents a climatology and trends of tropospheric ozone in the Southwestern Indian Ocean (Reunion Island) and South Africa (Irene and Johannesburg). This study is based on a multi-instrumental dataset: PTU-O₃ ozonesondes, DIAL LIDAR and MOZAIC airborne instrumentation.

The seasonal profiles of tropospheric ozone at Reunion Island have been calculated from two different data sets: ozonesondes and LIDAR. The two climatological profiles are similar, except in austral summer when the LIDAR profiles show greater values in the free troposphere, and in the upper troposphere when the LIDAR profiles show lower values during all seasons. These results show that the climatological value of LIDAR profiles must be discussed with care since LIDAR measurements can be performed only under clear sky conditions, and the upper limit of the profile depends on the signal strength.

In addition, linear trends have been calculated from ozonesonde data at Reunion and Irene. Considering the whole tropospheric column, the trend is slightly positive for Reunion, and more clearly positive for Irene. Trend calculations have also been made separating the troposphere into

three layers, and separating the dataset into seasons. Results show that the positive trend for Irene is governed by the lower layer that is affected by industrial pollution and biomass burning. On the contrary, for Reunion Island, the strongest trends are observed in the upper troposphere, and in winter when stratosphere-troposphere exchange is more frequently expected.

1 Introduction

Ozone is a major greenhouse gas (Lacis et al., 1990), and tropospheric oxidant (Martin et al., 2003). Understanding the climatological characteristics of tropospheric ozone production and fluxes in subtropical regions is important for assessing ozone's direct effect on climate (Watson et al., 2001; Pachauri and Reisinger, 2007) and its role in atmospheric chemistry on both regional and global scales. The tropospheric ozone budget is influenced by transport from the stratosphere and in situ photochemical production associated with ozone precursors emitted by anthropogenic activity, biomass burning and lightning (Stevenson et al., 2006).

The purpose of this paper is to present a climatology and trends of tropospheric ozone in the Southwestern Indian Ocean (Reunion Island) and South Africa (Irene and Johannesburg).



Correspondence to: G. Clain
(gaelle.clain@univ-reunion.fr)

Reunion island (20.8° S, 55.5° E) is located near the southern limit of the tropics, in the Indian Ocean, 1000 km east of Madagascar. For this region, the dynamical mechanisms influencing tropospheric ozone distribution have been documented, including intrusions of stratospheric air masses via tropopause folds (Baray et al., 1998), Rossby wave breaking (Postel and Hitchman, 1999) and mid latitude cut off lows (Baray et al., 2003). A study of the effect of tropical convection on tropospheric ozone has also been reported (Leclair de Bellevue et al., 2006) and showed some differences between the two sites, Reunion and Irene. In addition, photochemical sources have been identified: biomass burning activity in Southern Africa and Madagascar during austral spring associated with long range transport of air masses are a cause of tropospheric ozone increase over Reunion Island (Baldy et al., 1996; Taupin et al., 2002). At this site, the influence of biomass burning activity has been identified between 5 and 12 km on tropospheric ozone profiles (Randriambelo et al., 2000).

Johannesburg (26.1° S, 28.0° E) and Irene (25.9° S, 28.22° E) are located about 3000 km southwest of Reunion, closer to ozone precursor sources. From a dynamical perspective, the site of Irene is less affected by tropical convection but more affected by the subtropical jet stream activity than Reunion.

A tropical ozone climatology has been established by Thompson et al. (2003) using SHADOZ network data, and Diab et al. (2004) focused their study on Irene and Johannesburg sites. Climatologies of stratospheric intrusions have been conducted over the Pacific and Atlantic Oceans by Waugh and Polvani (2000) and at a global scale by James et al. (2003). However, the ozone climatology and the long term trends have not been analyzed using the same approach at two tropical/subtropical sites in the region of Southern Africa and the Western Indian Ocean; this is the objective of the present study.

A wide range of ozone data is available at Reunion and Irene. In addition to ozonesonde profiles, in-situ measurements from commercial aircraft (MOZAIC data) and vertical ozone profiles from LIDAR will be used. This dataset is presented in Sect. 2. Section 3 focuses on the geophysical context for each site and the regional sources of ozone precursors. In the fourth Section, we 1) examine and compare all datasets in order to ensure the consistency between the various measurement techniques; 2) present the monthly mean ozone distributions and 3) calculate long term ozone trends. In Sect. 5 we discuss the influence of data sampling and bias on LIDAR and ozonesonde ozone values above Reunion, and discuss possible causes of the seasonal ozone variation and long term ozone trends above both sites.

2 Instrumentation and dataset features

2.1 Ozonesondes

An ozonesonde program began in 1992 at Reunion and the dataset now includes 17 years of usable data. At Irene, ozonesondes were regularly launched between July 1990 and October 1993 (Diab et al., 2004). Since 1998, when the two sites joined the SHADOZ program (Thompson et al., 2003), ozonesondes are launched regularly on a weekly basis. At Reunion, profiles are collected regularly each week and the frequency of soundings is less affected by weather considerations than by possible technical issues. At Reunion and Irene, the total number of profiles over the 8-year period ranges, respectively, between 13 and 28 profiles per month and between 13 and 20 profiles per month (Fig. 3).

The SHADOZ program aims to provide a consistent dataset of tropospheric and stratospheric ozone in the Southern Hemisphere. The program originally intended to supplement the sparse amount of tropospheric ozone data in the Southern Hemisphere compared to the abundant data in the Northern Hemisphere. The SHADOZ network involves 15 stations, distributed so as to have good coverage across the tropical and subtropical Southern Hemisphere.

The Irene and Reunion stations use ozonesondes equipped with an Electrochemical concentration cell (ECC) for measuring ozone and Vaisala RS80 radiosondes for measuring temperature, pressure and humidity. The cathode KI solution is 1% buffered at Irene and 0.5% buffered at Reunion. The vertical extension of profiles range from ground level (24 m at Reunion, 1524 m at Irene) up to burst altitude, which is located between 30 km and 35 km in most cases. Smit et al. (2007) evaluate ECC-sonde precision to be better than $\pm(3-5)\%$ and accuracy about $\pm(5-10)\%$ below 30 km altitude. Further details about ozonesonde precision and accuracy can be found in Smit et al. (2007), who compared the performances of SPC-6A and ENSCI-Z ozonesondes. Since 2007, horizontal wind measurements have been made at Reunion by GPS, simultaneously with ozone and PTU measurements.

In this article, the climatological study (Figs. 4, 5) focuses on 8 common years of data (1998–2006, Table 1) for the two sites. With a considerable number of profiles (Table 1), the ozone climatology benefits from a greater regularity in the ozonesonde time distribution during this period. The trend section uses the whole dataset for the two sites in order to examine the longest possible time period.

2.2 LIDAR

Two LIDAR (Light Detection And Ranging) instruments are in operation at Reunion. One of them, devoted to measurement of tropospheric ozone profiles, has been operating since 1998. The approach is to process the differential absorption of two UV wavelengths (289 nm and 316 nm) generated by a

Table 1. Features of the dataset: period of measurements, total number of ozone profiles and altitude range used for climatology and trend studies in Sect. 4.

		Time range/number of years of data	Total number of profiles	vertical range of data
Reunion	Radiosonde – Trends	1992–2008/17 years	399	
	Radiosonde – Climatology	1998–2006/8 years	269	sea level–30 km
Irene	LIDAR – Climatology	1998–2006/8 years	265	3 km–16 km
	Radiosonde – Trends	1990–2008/15 years	384	1524 m–30 km
Johannesburg	Radiosonde – Climatology	1998–2006/8 years	208	
	MOZAIC – Climatology	1995–2003/9 years	577	1 km–12 km

high pressure deuterium cell. LIDAR profiles are taken several times a week with a 150 m vertical resolution between 3 km and the tropical tropopause height of 17 km. The limits of the vertical domain for each profile are closely related to the atmospheric conditions. Details on the DIAL ozone LIDAR at Reunion are given in Baray et al. (1999) and on all the instrumentation of OPAR (Observatoire de Physique de l'Atmosphère de la Reunion) in Baray et al. (2006).

2.3 MOZAIC

The MOZAIC program (Measurement of Ozone and Water Vapour by Airbus In-Service Aircraft) was launched in 1994 by European scientists, Airbus and several commercial airlines in order to collect ozone water vapour, carbon monoxide and total odd nitrogen (NO_x) data to validate global chemistry transport models (Marengo et al., 1998; Thouret et al., 1998). The program uses equipment installed aboard long haul Airbus A340 aircraft flying from Europe, and the data have recently been used to derive an ozone climatology of the upper troposphere (9–12 km) (Thouret et al., 2006). The accuracy of the ozone measurements is evaluated at $\pm 2 \text{ ppbv} \pm 2\%$ (Marengo et al., 1998; Thouret et al., 2006). The MOZAIC data used in this paper include 577 flights to and from Johannesburg between July 1995 and January 2003. The monthly distribution is given in Fig. 3.

MOZAIC and LIDAR datasets contain a great number of profiles, 577 and 265 profiles, respectively (Fig. 3, Table 1), but the profiles are sporadically distributed in time compared to the SHADOZ data.

3 Geophysical context and regional sources of ozone precursors

3.1 Reunion Island

3.1.1 Dynamical context

Reunion is located in the subsidence region of the Southern Hemisphere Hadley cell. The island meteorology is subject to subtropical, tropical and temperate influences of the

general circulation. The South Indian Ocean anticyclone, and perturbations carried in the westerlies affect the island (Randriambelo et al., 2003). The influence of the subtropical jet stream on the island is at a maximum during winter. In Fig. 2a mean zonal wind profiles derived from one year of GPS sonde data between August 2007 and March 2008 at Reunion are presented. A maximum is observed during austral winter. This maximum is consistent with the vicinity of the subtropical jet at this time of year (Fig. 2b). For more details about the dynamical context of the region, Preston-Whyte and Tyson (1988) have documented the circulation patterns in South Africa and the adjacent Atlantic and Indian Oceans.

Ozone increases due to stratospheric intrusions have been detected in South Africa and over the Indian Ocean. These intrusions take place in association with meteorological disturbances such as tropopause folds induced by the subtropical jet stream, cut off lows, tropical cyclones (Baray et al., 1998, 1999, 2003), westerly waves and frontal zones. According to James et al.'s climatology (2003) stratospheric intrusions in the southern subtropical region maximise during austral winter.

3.1.2 Regional sources

Of the two types of ozone sources already described, the photochemical source of ozone influencing the ozone profile over Reunion is mainly due to the long range transport of ozone precursors from biomass burning activity in Southern Africa and Madagascar (Fig. 1). Southern Africa is one of the main biomass burning regions in the Southern Hemisphere. The burning season starts in July and ends in October (Marengo et al., 1990). Measurement campaigns such as TROPOZ (TROPOspheric Ozone) (Marengo et al., 1990), SAFARI (Southern African Fire-Atmosphere Research Initiative) (Andreae et al., 1996), TRACE-A (Transport and Atmospheric Chemistry near the Equator-Atlantic) (Andreae et al., 1996), and SAFARI 2000 (Swap et al., 2003) have been undertaken in order to study the atmospheric photochemistry and the circulation patterns leading to the redistribution of southern African emissions and resulting in an increase over

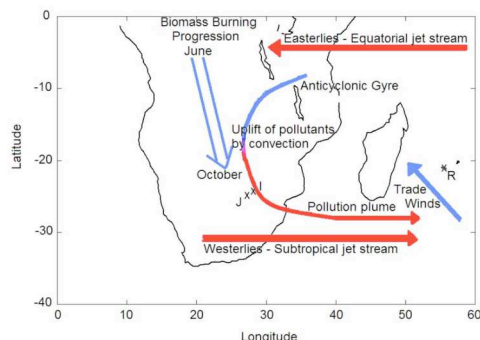


Fig. 1. Schematic representation of meteorological processes affecting tropospheric ozone over subequatorial Africa (Diab et al., 2004). Industrial, biomass burning, and biogenic sources of ozone precursors are also shown. The locations of Johannesburg, Irene, and Reunion are represented by “J”, “I”, and “R”, respectively.

Southern Africa and the South Atlantic and Indian Oceans (Randriambelo et al., 1999). Aghedo et al. (2007) recently determined that 70% of the tropospheric ozone produced by African emissions is exported outside the continent. Meteorological analysis based on trajectory statistics showed that a large part of African emissions might be advected to the Indian Ocean (Garstang et al., 1996; Piketh et al., 2002). Mechanisms responsible for regional dispersion of biomass burning emissions have been documented (Baldy et al., 1996; Taupin et al., 1999, 2002). A climatology by Randriambelo et al. (1999) based on ozonesonde and satellite data focuses on the relative importance of the different mechanisms.

3.2 Irene

3.2.1 Dynamical context

The atmospheric circulation at Irene (25.9° S, 28.22° E) is dominated by the subtropical anticyclone within which subsidence and recirculation cause the accumulation of pollutants on large temporal and spatial scales (Garstang et al., 1996; Tyson et al., 1996; Piketh et al., 2002). As a consequence, a 5 km deep haze layer forms over South Africa, capped by a persistent subsidence inversion (Cosijn and Tyson, 1996). The frequency of this anticyclonic circulation is higher during winter (79% in June, July) than during summer (11% in December) (Tyson and Preston-Whyte, 2000). The system is disrupted when a mid-latitude westerly wave crosses the south of South Africa. As a result trace gases including ozone precursors and aerosols circulate inside the stable layer until they are finally released eastward as a giant plume centred at 31° S along the east coast (Tyson et al., 1996).

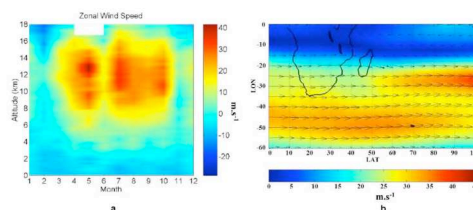


Fig. 2. (a) Zonal wind speed between August 2007 and September 2008 at Reunion from GPS sonde data. (b) Mean austral winter wind fields at 300 hPa derived from NCEP data (1984–2004).

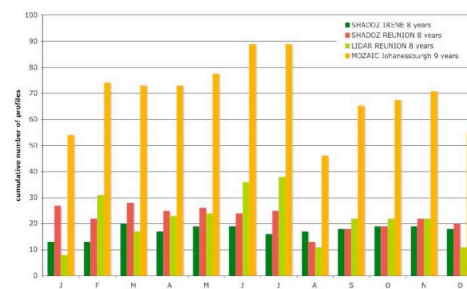


Fig. 3. Cumulative monthly distribution of profiles for each type of data.

3.2.2 Regional Sources

In addition to stratospheric sources, ozone in the region surrounding Irene is produced photochemically from biomass burning, biogenic and anthropogenic emissions as well as lightning NO_x emissions (Aghedo et al., 2007). The emission of VOCs significantly influences atmospheric chemistry because of their high reactivity and result in the formation (or destruction) of tropospheric ozone in high (or low) NO_x conditions (Aghedo et al., 2007). Volatile Organic Compounds (VOCs) are also naturally emitted by vegetation (Kesselmeier and Staudt, 1999).

Irene is located southwards of the main biomass burning region in Africa (Fig. 1). The biomass burning area extends between 10° N and 20° S and eastward, up to 25° E, during the dry season from June to October. Although the strongest ozone enhancement is expected north of Irene, the impact of biomass burning can be detected at the station as a result of long range transport in the anticyclonic gyre. Results of the SAFARI 2000 campaign emphasize the importance of biomass burning in the tropospheric ozone budget of South Africa (Swap et al., 2003).

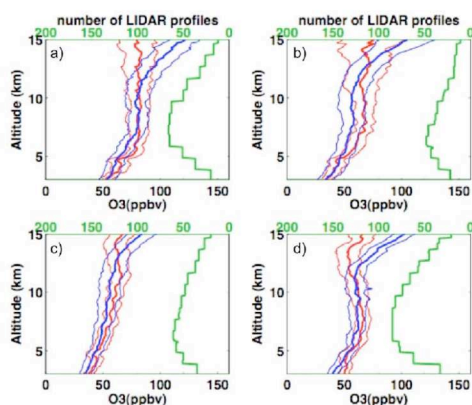


Fig. 4. Seasonal ozone profiles and standard deviation (ppbv) between 3 and 15 km derived from ozonesonde data (blue lines) and from LIDAR data (red lines) at Reunion during (a) spring (SON) (b) summer (DJF) (c) autumn (MAM) and (d) winter (JJA). The number of profiles used for each DIAL LIDAR climatological profile is given on the right in green.

During summer, the tropical easterlies from the Indian Ocean cause moist air to be advected over Irene. Strong convective activity is a daily phenomenon and can promote rapid vertical uplift of surface pollutants, which leads to an ozone enhancement in the mid- to upper troposphere (Ziemke et al., 2009). Lightning from these convective storms can also be responsible for an increase in tropospheric ozone via ozone production from lightning NO_x emissions (Schumann and Huntrieser, 2007). Collier et al. (2006) state that South Africa and Madagascar lightning activity maximise during austral spring and summer.

Anthropogenic emissions of ozone precursors are an important factor in the ozone budget. Irene is located close to two urban-industrial areas: Pretoria and Johannesburg. The station is also 100 km downwind from the main power generating area of South Africa, with 11 large coal-fired power plants (Diab et al., 2004). Domestic use of biofuels also contributes to ozone precursors. The GEIA inventory (Benkovitz et al., 1996) evaluates South Africa's NO_x emissions as 1.8% of global anthropogenic emissions, and according to Wells et al. (1996) and Held and Mphepya (2000), 91% of the South African NO_x emissions originate from industry.

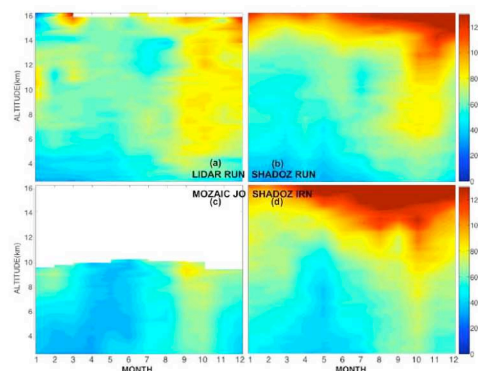


Fig. 5. Monthly distribution of the mean tropospheric ozone mixing ratio (0–130 ppbv) between 3 and 16 km altitude for different sites and different types of data. (a) LIDAR Reunion, (b) SHADOZ Reunion, (c) MOZAIIC Johannesburg, (d) SHADOZ Irene.

4 Climatology and trends: results

4.1 Comparison of LIDAR and sonde climatological ozone profiles at Reunion

The mean seasonal vertical distribution of ozone and standard deviations at Reunion (Fig. 4) have been derived from LIDAR data (red lines) and from ozonesonde data (blue lines). Panels (a) to (d) depict austral spring, summer, autumn and winter seasons, respectively. Seasonal profiles derived from the two datasets have similar values between 3 km and 11 km for winter and spring, and in autumn the greatest agreement is between 3 and 13 km. LIDAR seasonal profiles show lower ozone mixing ratios than ozonesonde profiles above 11 km for spring and winter, and above 13 km for autumn and summer. This difference which appears in the climatology is not found during simultaneous measurements (Baray et al., 1999).

In summer, ozonesonde and LIDAR measurements are consistent in the lower troposphere below 5 km. Above 13 km, in summer (and all seasons) the LIDAR climatology yields smaller values than the ozonesonde profiles. Between 5 km and 13 km in summer, the LIDAR profile shows higher values than the sounding profile. The maximum difference between the two profiles in this altitude range is 13 ppbv at 9.5 km.

4.2 Ozone monthly mean distribution

LIDAR and ozonesonde data from 1998 to 2006 and 9 years of MOZAIIC data have been processed to obtain the mean monthly ozone profile mixing ratios in the troposphere as shown in Fig. 5 between 3 and 16 km. Panels (a) to (d)

Table 2. Trend values calculated at Reunion and Irene, in DU by decade and the equivalent in percentage per decade, for total tropospheric columns, for the lower (2–4 km), middle (2–4 km) and upper troposphere (10–16 km) and for each season. The lower limit *L* is 1 km for Reunion Island and 2 km for Irene. The data time range is mentioned after the site name. Non statistically significant trends are in italic.

Altitude range (km), Season	Reunion 1992–2008		Irene 1990–2008		Irene 1998–2008	
	Slope (DU/decade)	Slope (%/decade)	Slope (DU/decade)	Slope (%/decade)	Slope (DU/decade)	Slope (%/decade)
L-16	1.94±1.81	5.67±5.28	1.81±0.97	5.21±2.78	<i>2.47±3.01</i>	<i>6.93±8.44</i>
2–4	<i>0.01±0.37</i>	<i>0.12±6.91</i>	0.93±0.26	14.37±4.01	2.08±0.86	30.45±12.52
4–10	<i>0.70±0.93</i>	<i>4.37±5.81</i>	0.63±0.52	3.99±3.31	<i>1.11±1.56</i>	<i>6.91±9.67</i>
10–16	1.31±0.62	12.34±5.82	<i>0.24±0.44</i>	<i>1.92±3.51</i>	<i>-0.61±1.45</i>	<i>-4.82±11.43</i>
L-16, DJF	<i>1.38±3.12</i>	<i>4.55±10.32</i>	2.41±1.95	7.16±5.79	<i>1.60±6.13</i>	<i>4.61±17.62</i>
2–4, DJF	<i>-0.40±0.65</i>	<i>-9.34±15.20</i>	1.31±0.57	20.53±9.03	2.04±1.83	29.48±26.46
4–10, DJF	<i>0.45±1.66</i>	<i>3.15±11.76</i>	<i>0.99±1.17</i>	<i>6.22±7.39</i>	<i>0.16±3.65</i>	<i>0.96±22.33</i>
10–16, DJF	1.58±1.32	16.07±13.43	<i>0.25±0.63</i>	<i>2.19±5.49</i>	<i>-0.25±1.96</i>	<i>-2.14±16.86</i>
L-16, MAM	<i>0.20±2.47</i>	<i>0.69±8.57</i>	<i>0.43±1.10</i>	<i>1.46±3.70</i>	<i>1.22±3.37</i>	<i>4.08±11.25</i>
2–4, MAM	<i>-0.18±0.45</i>	<i>-4.00±10.13</i>	0.71±0.31	12.99± 5.67	2.12±1.24	36.38± 21.17
4–10, MAM	<i>0.38±1.32</i>	<i>2.84±9.93</i>	<i>-0.11±0.68</i>	<i>-0.85±5.14</i>	<i>-1.16±2.115</i>	<i>-8.71±15.88</i>
10–16, MAM	<i>0.38±0.93</i>	<i>4.12±10.15</i>	<i>-0.14±0.61</i>	<i>-1.25±5.58</i>	<i>0.54±2.14</i>	<i>5.02±19.80</i>
L-16, JJA	4.14±3.70	11.95±10.67	3.12±1.74	9.18±3.70	14.98±13.77	5.50±4.82
2–4, JJA	<i>0.12±0.88</i>	<i>2.10±15.69</i>	0.69±0.52	11.51±5.67	1.98±1.63	31.55±25.92
4–10, JJA	2.00±1.97	12.34±12.17	1.70± 0.88	11.39±5.14	4.40±2.17	28.26±13.95
10–16, JJA	1.86±0.97	18.30±9.51	<i>0.73±1.08</i>	<i>5.57±5.58</i>	<i>-1.08±3.40</i>	<i>-7.99±25.11</i>
L-16, SON	2.69±2.47	6.18±5.69	2.70±1.66	6.55±4.02	5.50±4.82	12.99±11.39
2–4, SON	<i>0.40±0.50</i>	<i>5.71±7.21</i>	1.17±0.49	14.96±6.22	2.39±1.49	28.89±18.08
4–10, SON	<i>0.45±1.30</i>	<i>2.20±6.34</i>	<i>0.77±0.96</i>	<i>4.04±5.04</i>	2.70±2.69	13.98±13.95
10–16, SON	1.58±1.10	11.84±8.25	<i>0.76±0.84</i>	<i>5.33±5.85</i>	<i>0.41±2.81</i>	<i>2.80±19.06</i>

depict LIDAR data, SHADOZ data from Reunion, MOZAIC data from Johannesburg, and SHADOZ data from Irene respectively. The lower altitude limit of 3 km is imposed by the LIDAR data; and 16 km is below the tropopause height: Sivakumar et al. (2006) located the mean altitudes of the lapse rate tropopause and the cold point tropopause respectively at 17 km and 16 km of altitude at Reunion from 13 years of ozonesonde data.

Each data type shows a springtime maximum. The greatest values are found in the SHADOZ data (Panels b, d), and Irene data shows values greater than 90 ppbv above 10 km. MOZAIC and LIDAR data also exhibit a springtime peak but the ozone mixing ratios are seldom above 80 ppbv in the lower and mid-troposphere above Johannesburg.

The LIDAR ozone mixing ratio at Reunion (Panel a) shows greater values in January than the mixing ratio derived from SHADOZ data. Specifically LIDAR data display ozone values varying between 80 and 90 ppbv between 9 and 12 km. For the same altitude, the SHADOZ ozone mixing ratio has values between 50 and 70 ppbv. This result is consistent with summer seasonal profiles shown in the previous section.

Upper tropospheric ozone mixing ratios at Irene are greater than at Reunion. During winter, the ozonopause is lower at Irene, with the 100 ppbv ozone contour about 1–2 km lower above Irene than Reunion.

During summer, values above 70 ppbv are found at Irene at 10 km altitude and above. At Reunion, such values are not recorded below an altitude of 11 km. The MOZAIC and SHADOZ plots for South Africa show an ozone enhancement in the mid-troposphere where values exceed 60 ppbv up to the end of summer (January–February).

4.3 Long-term Tropospheric ozone behaviour at Reunion Island and Irene based on linear trend calculations

In this section, we examine the linear trends of the complete ozone datasets of Reunion Island and Irene which cover the periods 1992–2008 and 1990–2008 respectively, with a gap of data for Irene between 1994 and 1998. Hence the trends for Irene have been calculated for both the 1990–2008 and the 1998–2008 datasets, however in this paper we focus mainly on the longest time period. We also calculated ozone trends for different tropospheric layers above the two measurement sites (Table 2).

To examine the linear trend, the following equation is used:

$$\text{Ozone} = \tau t + \beta \quad (1)$$

τ is the linear trend calculated by linear regression using the least squares method, t is the time and β is the y -intercept. The error is calculated using the student's t -test with 95%

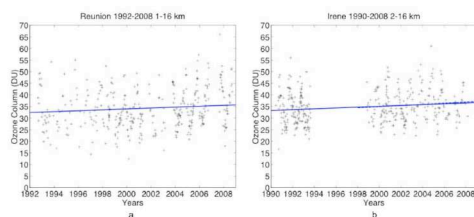


Fig. 6. Ozone trends for the tropospheric layer between 1 and 16 km at Reunion (a) and between 2 and 16 km at Irene (b). The dashed line shows the trend at Irene calculated from the 1998–2008 dataset.

confidence interval. This error gives a statistical estimation of the influence of the variability of ozone data on the estimation of the linear trend (Montgomery et al., 2006). Ozone trends have been calculated in atmospheric layers in DU per decade ($1 \text{ DU} = 2.69 \times 10^{16} \text{ molec/cm}^2$) and in % per decade (Table 2).

Ozone trends calculated at Reunion and Irene are presented in Fig. 6. The lower limit of the tropospheric column is 1 km at Reunion, and 2 km at Irene, because of the different altitudes of the two sites. The upper limit has been fixed at 16 km, below the tropical tropopause height (Sivakumar et al., 2006). Considering the whole column, the tropospheric trend is positive ($1.94 \pm 1.81 \text{ DU/decade}$) for Reunion, and for Irene ($1.81 \pm 0.97 \text{ DU/decade}$).

In order to examine the potential influence of the two main sources of ozone in the region, viz. anthropogenic and biomass burning pollution of the lower layers and stratosphere-troposphere exchange, the troposphere has been separated into three layers: one below 4 km, the altitude where the trade wind inversion occurs (Taupin et al., 1999), and the free troposphere which is separated into two equal parts: the mid-troposphere between 4 and 10 km and the upper troposphere between 10 and 16 km.

Some differences between the two sites appear (Fig. 7, Table 2):

- The trend for the lower layer at Irene is clearly positive ($0.93 \pm 0.26 \text{ DU/decade}$), while at Reunion no trend is observed.
- The trend for the mid-troposphere at Irene is positive ($0.63 \pm 0.52 \text{ DU/decade}$) but less than the layer below. The weaker trend ($0.24 \pm 0.44 \text{ DU/decade}$) observed in the upper troposphere is not significant. For Reunion, the trend behaviour is opposite: the mid-troposphere trend is positive but not statistically significant ($0.70 \pm 0.93 \text{ DU/decade}$). The stronger trend is observed in the upper troposphere ($1.31 \pm 0.62 \text{ DU/decade}$).

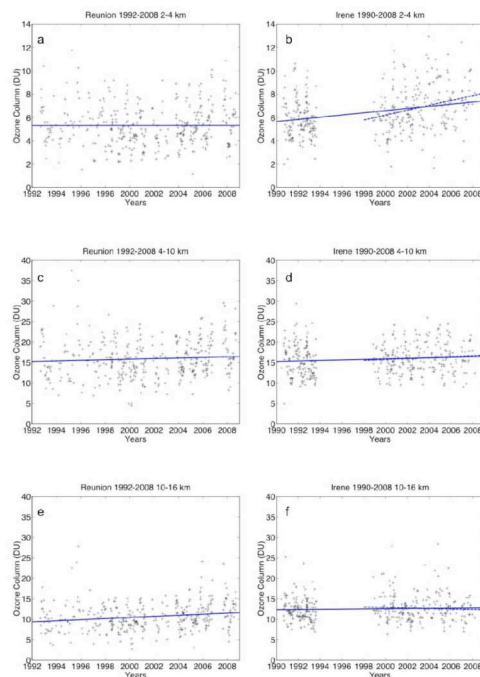


Fig. 7. Ozone trends between 2 and 4 km at Reunion (a) and Irene (b), between 4 and 10 km at Reunion (c) and Irene (d), and between 10 and 16 km at Reunion (e) and Irene (f). The dashed lines show trends at Irene calculated from the 1998–2008 dataset.

To investigate further the influence of the stratospheric and photochemical mechanisms, seasonal trends are presented in Fig. 8 for Reunion and Fig. 9 for Irene. Table 2 shows the seasonal trends for each tropospheric layer at the two sites.

The total tropospheric column shows no significant trend for the two sites during the March–April–May (MAM) season.

For Reunion, the most positive trends have been observed in September–October–November (SON) ($2.69 \pm 2.47 \text{ DU/decade}$) and maximise in June–July–August (JJA) ($4.14 \pm 3.70 \text{ DU/decade}$). The stronger trend during SON is located in the upper troposphere and during JJA, in the mid and upper troposphere.

In contrast, for Irene, the trend is strong in SON ($2.70 \pm 1.66 \text{ DU/decade}$), and also in December–January–February (DJF) ($2.41 \pm 1.95 \text{ DU/decade}$), both with higher values in the lower troposphere, and in JJA ($3.12 \pm 1.74 \text{ DU/decade}$) the trend maximise between 4 km and 10 km.

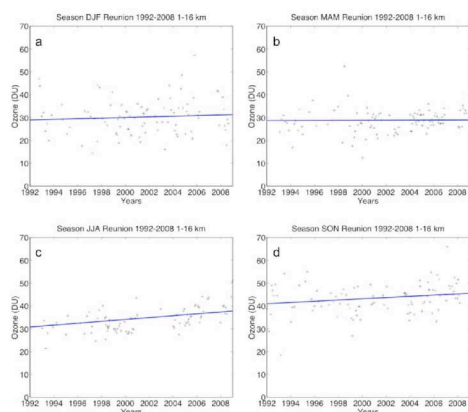


Fig. 8. Ozone trends for the tropospheric layer between 1 and 16 km at Reunion in December-January-February (a), March-April-May (b), June-July-August (c), et September-October-November (d).

5 Discussion

5.1 Comparison of ozone DIAL and sonde climatological profiles at Reunion

Figure 4 shows that apart from the summer case, the seasonal profiles of tropospheric ozone derived from LIDAR and ozonesonde data are in agreement between 3 km and 11 km to 13 km according to the season. Within this range of altitude, LIDAR and ozonesonde data have the same climatological value for austral spring, autumn and winter.

LIDAR profiles show for all seasons lower ozone mixing ratio than the ozonesonde profiles in the upper troposphere. Because of the absorption of the LIDAR beam by ozone molecules, when the LIDAR signal is weakened in the upper part of the profiles, the vertical limits of LIDAR ozone profiles are often below an altitude where high ozone mixing ratios are found. Therefore, the number of profiles used to build the climatological values are fewer in the upper troposphere and profiles with high ozone mixing ratio in the upper troposphere are small in number in the LIDAR dataset. Contrary to the LIDAR technique, the measurement of ozone by ozonesondes is not affected by the amount of ozone. This gives rise to some differences in the upper tropospheric climatology. The upper tropospheric DIAL ozone climatology is not representative of the true ozone climatology, despite individual DIAL profiles extending through the whole troposphere being available.

Finally, we observe that the LIDAR summer profile shows more ozone than the ozonesonde summer profile between 5 km and 13 km. The difference observed is comparable to the difference between the two ozone climatological

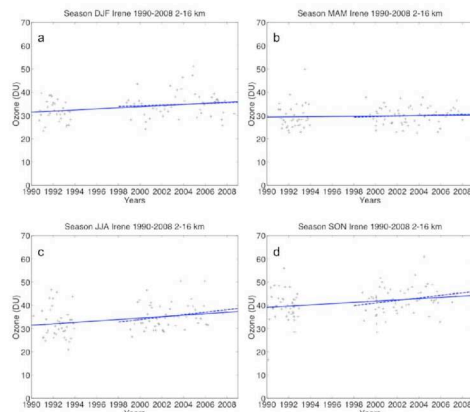


Fig. 9. Same as Fig. 8 but between 2 and 16 km at Irene. The dashed lines show trends at Irene calculated from the 1998–2008 dataset.

profiles obtained in the presence and absence of tropical convection (Fig. 4 of Leclair de Bellevue et al., 2006). While ozonesonde measurements can be performed in broad weather conditions, LIDAR measurements can be performed only during nights and with clear sky conditions. Moreover, summer corresponds to the rainy season at Reunion and convection exerts a complex role on ozone formation and its vertical distribution. Uplift of ozone poor air masses into the troposphere in convective systems results in low values of ozone in the upper troposphere, while deep convection in the vicinity of STE processes along the subtropical jet stream can be associated with ozone enhancement in the mid-troposphere (Leclair de Bellevue et al., 2006).

5.2 Monthly mean distributions

Figure 5 shows evidence of a lower ozonopause at Irene during austral winter. Irene is located at 25.9° S, a more southerly latitude than Reunion (21.0° S), and consequently experiences a greater influence from the subtropical jet stream during winter than Reunion (Fig. 2). In addition, according to James et al. (2003) the stratospheric intrusions maximise at 30° S in the Southern Hemisphere during austral winter. Therefore, the lower position of the ozonopause at Irene is consistent with a strong influence of stratospheric intrusions during winter in South Africa.

During summer, the upper troposphere at Irene shows greater ozone mixing ratios than at Reunion. Irene is located nearer to ozone precursor sources than Reunion. Moreover, during summer South Africa is under the influence of the easterlies, which gives rise to convective activity and allows advection and mixing of tropospheric air masses (Ziemke et al., 2009). Collier et al. (2006) report that lightning NO_x

production in south Africa maximises during summer. The quick redistribution of surface pollutants and lightning NO_x production can be responsible for a mid- and upper tropospheric ozone enhancement.

Considering the South African data for January, the ozone enhancement (above 60 ppbv) in the mid-troposphere appears to be a continuation of the enhanced mid-tropospheric ozone observed since October. This broad mid-tropospheric ozone enhancement may be due to the transition from a strong stratospheric influence in spring to a photochemical influence in summer. According to Diab (2004) Irene is located in an active urban industrial region. Domestic emissions during summer coupled with convection might explain this phenomenon.

5.3 Ozone trends

At Reunion, layers below 4 km are not directly influenced by biomass burning and stratosphere-troposphere exchange because of the easterly trade wind regime. These layers are only impacted by local sources and transport across the Indian Ocean. At Irene, local sources of pollution and biomass burning can both occur. For the two sites, the two layers 4–10 km and 10–16 km can be directly influenced by biomass burning and stratosphere-troposphere exchange.

Irene has a positive trend for the lower layer but this is not the case at Reunion (Table 2). Under the hypothesis of an increase of biomass burning and pollution in South Africa, a positive trend of ozone over South Africa is consistent because of a persistent synoptic recirculation which occurs over South Africa (Preston-Whyte and Tyson, 1988). However, the increase in pollution and biomass burning activity since the 1990s needs to be confirmed by further investigation. On the contrary, lower layers over Reunion are less directly influenced by biomass burning because of the easterly trade wind regime (Baldy et al., 1996).

Regarding the three tropospheric layers, we observe that the trend at Irene decreases with altitude, suggesting that the tropospheric trend at Irene is mainly governed by the lower layers of the troposphere, and specifically by a change in biomass burning and pollution influences.

At Reunion, the strongest trend occurs between 10 km and 16 km. The reason for this positive trend for the upper layer is an interesting issue and we draw two hypotheses: first, the influence of the increase of biomass burning and pollution can play a role: the trend values in the upper troposphere at Reunion could be related to the complex dynamical mechanisms which are necessary for Reunion Island tropospheric ozone to be influenced by biomass burning: injection of pollutants in the free troposphere by convection, mix-then-cook scheme and ozone production during westerly transport (Chatfield and Delany, 1990; Baldy et al., 1996). The second hypothesis is an increase in stratosphere-troposphere exchange which could be induced by climate change.

For the studied sites, it has been established that:

- The influence of biomass burning is at a maximum in SON season (Baldy et al., 1996; Randriambelo et al., 2000).
- The influence of stratosphere-troposphere exchange induced by the subtropical jet stream is at a maximum in JJA, because of the location of the jet stream close to the latitude of Reunion (Baray et al., 1998; Randriambelo et al., 2000).
- For Reunion, deep convection along the edge of the subtropical jet where stratosphere to troposphere exchange occurs is at a maximum in DJF (Leclair de Bellevue et al., 2006).
- The MAM season could be representative of background ozone levels, since the influences of stratosphere-troposphere exchange and biomass burning are weak.

Taking these considerations into account, the total column seasonal trends (Figs. 8, 9) are discussed.

- The two sites effectively show weak and non significant trends for MAM.
- For Reunion, trends maximise in JJA. This suggests that stratosphere-troposphere exchange is the most important influence as it is the most active ozone source during this season.
- At Irene, trends maximise in SON, DJF and JJA. Stratospheric intrusions and photochemical mechanisms can both play a role in the annual trend observed. An overview of long-term changes in tropospheric ozone has recently been published (Oltmans et al., 2006). This study was based on a global network of observations, with some stations located in the tropical and subtropical regions of the Southern Hemisphere: American Samoa, New Zealand, Australia and South Africa. For Cape Grimm (Australia) and Lauder (New Zealand), Oltmans et al. (2006) observe no change in the surface trend in summer, but a significant increase during the late winter and early spring. For Lauder (New Zealand), they show an interesting vertical structure of the ozone trends, positive below 500 hPa, and slightly negative above the 500 hPa level (but not significant), very similar to the vertical structure that we have observed for the ozone trends over Irene. For Cape Point (South Africa) positive surface trends have been observed throughout the year, but the largest trend is again during the late winter and early spring, similar to the trends observed over Irene in our study. For all the sites of the subtropical Southern Hemisphere, Oltmans et al. (2006) point out that the seasonal increase occurs during a time of the year when biomass burning in the Southern Hemisphere is very active.

6 Conclusions

In this study we have presented the climatology of tropospheric ozone in the south-western part of the Indian Ocean (Reunion Island) and South Africa (Irene, Johannesburg), and the tropospheric ozone trends. The comparison of the seasonal profiles of tropospheric ozone of Reunion Island obtained from ozonesondes and LIDAR showed that the two climatological profiles are generally in good agreement, except in austral summer with higher values for the LIDAR profiles in the free troposphere, and lower values in the upper troposphere for all the seasons. Because of the nature of LIDAR retrievals (measurements performed only under clear sky conditions, and an upper limit depending on the signal strength) the LIDAR profile is not representative of the true ozone climatology in the whole troposphere.

Linear trends have been calculated from ozonesonde data at Reunion and Irene. Considering the whole tropospheric column, the trend is positive for the two sites. The trend calculations have been repeated, stratifying the troposphere into three columns, and separating the dataset into seasons. The increase in tropospheric ozone observed over Irene occurs mainly in the lower layers, similar to observations of Oltmans et al. (2006) over other sites of the Southern Hemisphere. It could be associated with an increase in pollution and biomass burning. Our study outlines some differences between Irene and Reunion Island, which has a positive trend in the upper troposphere but not in the lower troposphere, and a stronger trend in winter when stratosphere-troposphere exchange peaks.

Clearly, measurements of other trace gases and detailed modelling studies are required to determine the origin of ozone above these two sites. Our short term intention is to study the temporal and vertical distribution of anomalies in the tropospheric ozone column over Irene and Reunion. In order to discern the influence of different sources, the climatology and trends of tropospheric ozone, as well as CO measurements and the convective transport index from the MOPITT satellite (Deeter et al., 2003) will be analysed. The long term perspective is to provide a complete quantification of all the sources influencing the tropospheric ozone budget in the region using a Lagrangian approach and to compare the results with those obtained from a global chemical transport model.

Acknowledgements. The authors thank the French regional, national (INSU, CNRS) and international (NASA/GFSC) organisations for supporting the OPAR (Observatoire de Physique de l'Atmosphère de la Réunion) station. The regional administration provides funding to G. Clain for her PhD.

We thank the SHADOZ network for the ozonesonde data, in particular G. J. R. Coetzee, Principal Investigator at Irene. We also thank Gérard Ancellet who initiated the tropospheric LIDAR measurements at Reunion. Yann Courcoux, Stéphane Richard and Patrick Hernandez now in charge of LIDAR data also receive our gratitude.

We acknowledge MOZAIC Principal Investigators, Valérie Thouret and Philippe Nédélec for providing the ozone data, as well as the airlines (Lufthansa, Air France and Austria) who carry free of charge the MOZAIC instrumentation and perform the maintenance since 1994.

Finally, we thank the editor Owen Cooper and the two anonymous referees for their constructive remarks which helped us to improve this manuscript.

Edited by: O. Cooper

References

- Aghedo, A. M., Schultz, M. G., and Rast, S.: The influence of African air pollution on regional and global tropospheric ozone, *Atmos. Chem. Phys.*, 7, 1193–1212, 2007, <http://www.atmos-chem-phys.net/7/1193/2007/>.
- Andreae, M. O., Fishman, J., and Lindesay, J.: The Southern Tropical Atlantic Experiment (STARE): Transport and Atmospheric Chemistry near the Equator-Atlantic (TRACE A) and Southern African Fire-Atmosphere Research Initiative (SAFARI): An introduction, *J. Geophys. Res.*, 101, 23519–23520, 1996.
- Baldy, S., Ancellet, G., Bessafi, M., Badr, A., and Lan Sun Luk, D.: Field observations of the vertical distribution of tropospheric ozone at the island of Reunion (southern tropics), *J. Geophys. Res.*, 101(D19), 23835–23850, 1996.
- Baray, J. L., Ancellet, G., Taupin, F. G., Bessafi, M., Baldy, S., and Keckhut, P.: Subtropical tropopause break as a possible stratospheric source of ozone in the tropical troposphere, *J. Atmos. Sol.-Terr. Phys.*, 60(1), 27–36, 1998.
- Baray J. L., Ancellet, G., Randriambelo, T., and Baldy, S.: Tropical cyclone Marlene and stratosphere-troposphere exchange, *J. Geophys. Res.*, 104(D11), 13953–13970, 1999.
- Baray, J. L., Leveau, J., Porteneuve, J., Ancellet, G., Keckhut, P., Posny, F., and Baldy, S.: Description and evaluation of a tropospheric ozone LIDAR implemented on an existing LIDAR in the southern subtropics, *Appl. Optics*, 38(33), 6808–6817, 1999.
- Baray, J. L., Baldy, S., Diab, R. D., and Cammas, J. P.: Dynamical study of a tropical cut-off low over South Africa, and its impact on tropospheric ozone, *Atmos. Environ.*, 37(11), 1475–1488, 2003.
- Baray, J. L., Leveau, J., Baldy, S., Jouzel, J., Keckhut, P., Bergametti, G., Ancellet, G., Bencherif, H., Cadet, B., Carleer, M., David, C., De Mazière, M., Faduillhe, D., Godin Beekmann, S., Goloub, P., Goutail, F., Metzger, J. M., Morel, B., Pommereau, J. P., Porteneuve, J., Portafaix, T., Posny, F., Robert, L., and Van Roozendaal, M.: An instrumented station for the survey of ozone and climate change in the southern tropics: Scientific motivation, technical description and future plans, *J. Environ. Monitor.*, 8, 1020–1028, doi:10.1039/b607762e, 2006.
- Benkovitz, C. M., Scholtz, M. T., Pacyna, J., Tarrason, L., Dignon, J., Voldner, E. C., Spiro, P. A., Logan, J. A., and Graedel, T. E.: Global gridded inventories of anthropogenic emissions of sulfur and nitrogen, *J. Geophys. Res.*, 101, 29239–29254, 1996.
- Chatfield, R. B. and Delany, A. C.: Convection links biomass burning to increased tropical ozone: However, models will tend to overpredict O₃, *J. Geophys. Res.*, 95, 18473–18488, 1990.

- Collier, A. B., Hughes, A. R. W., Lichtenberger, J., and Steinbach, P.: Seasonal and diurnal variation of lightning activity over southern Africa and correlation with European whistler observations, *Ann. Geophys.*, 24, 529–542, 2006, <http://www.ann-geophys.net/24/529/2006/>.
- Cosijn, C. and Tyson, P. D.: Stable discontinuities in the atmosphere over South Africa, *S. Afr. J. Sci.*, 92, 381–386, 1996.
- Deeter, M. N., Emmons, L. K., Francis, G. L., Edwards, D. P., Gille, J. C., Warner, J. X., Khattatov, B., Ziskin, D., Lamarque, J.-F., Ho, S.-P., Yuding, V., Attie, J.-L., Packman, D., Chen, J., Mao, D., and Drummond, J. R.: Operational carbon monoxide retrieval algorithm and selected results for the MOPITT instrument, *J. Geophys. Res.*, 108(D14), 4399, doi:10.1029/2002JD003186, 2003.
- Diab, R. D., Thompson, A. M., Mari, K., Ramsay, L., and Coetzee, G. J. R.: Tropospheric ozone climatology over Irene, South Africa, From 1990 to 1994 and 1998 to 2002, *J. Geophys. Res.*, 109, D20301, doi:10.1029/2004JD004793, 2004.
- Garstang, M., Tyson, P. D., Swap, R., Edwards, M., Kalleberg, P., and Lindsay, J. A.: Horizontal and vertical transport of air over Southern Africa, *J. Geophys. Res.*, 101, 23721–23736, 1996.
- Gettelman, A., Birner, T., Eyring, V., Akiyoshi, H., Plummer, D. A., Dameris, M., Bekki, S., Lefèvre, F., Lott, F., Brühl, C., Shibata, K., Rozanov, E., Mancini, E., Pitari, G., Struthers, H., Tian, W., and Kinnison, D. E.: The Tropical Tropopause Layer 1960–2100, *Atmos. Chem. Phys. Discuss.*, 8, 1367–1413, 2008, <http://www.atmos-chem-phys-discuss.net/8/1367/2008/>.
- Held, G. and Mphahya, J.: Wet and dry deposition in South Africa, Proceedings, XI Congresso Brasileiro de Meteorologia (CDROM), SBMET, Rio de Janeiro, 16–20 Outubro 2000, Paper QA00002, 2824–2833, 2000.
- James, P., Stohl, A., Forster, C., Eckhardt, S., Seibert, P., and Frank, A.: A 15-year climatology of stratosphere-troposphere exchange with a Lagrangian particle dispersion model: I. Methodology and validation, *J. Geophys. Res.*, 108(D12), 8519, doi:10.1029/2002JD002637, 2003.
- Kesselmeier, J. and Staudt, M.: Biogenic volatile organic compounds (VOC): An overview on emission, physiology and ecology, *J. Atmos. Chem.*, 33, 23–88, 1999.
- Lacis, A. A., Wuebbles, D. J., and Logan, J. A.: Radiative Forcing of Climate by Changes in the Vertical Distribution of Ozone, *J. Geophys. Res.*, 95(D7), 9971–9981, 1990.
- Leclair De Bellevue, J., Réchou, A., Baray, J. L., Ancellet, G., and Diab, R. D.: Signatures of stratosphere to troposphere, transport near deep convective events in the southern subtropics, *J. Geophys. Res.*, 111, D24107, doi:10.1029/2005JD006947, 2006.
- Lu, H.-C. and Chang T.-S.: Meteorologically adjusted trends of daily maximum ozone concentrations in Taipei, Taiwan, *Atmos. Environ.*, 39, 6491–6501, 2005.
- Marengo, A., Medale, J. C., and Prieur, S.: Study of tropospheric ozone in the tropical belt (Africa, America) from STRATOS and TROPOZ campaigns, *Atmos. Environ.*, 11, 2823–2834, 1990.
- Marengo, A., Thouret, V., Nédélec, P., Smit, H. G., Helten, M., Kley, D., Karcher, F., Simon, P., Law, K., Pyle, J., Poshmann, G., Von Wrede, R., Hume, C., and Cook, T.: Measurement of ozone and water vapor by Airbus in service aircraft: The MOZAIK airborne programme, an overview, *J. Geophys. Res.*, 103, 25631–25642, 1998.
- Martin, R. V., Jacob, D. J., Yantosca, R. M., Chin, M., and Ginoux, P.: Global and regional decreases in tropospheric oxidants from photochemical effects of aerosols, *J. Geophys. Res.*, 108(D3), 4097, doi:10.1029/2002JD002622, 2003.
- Montgomery, D. C., Peck, E. A., and Geoffrey Vining, G.: Introduction to Linear Regression Analysis, ISBN:978-0-471-75495-4, 4th edition, 640 pp., August 2006.
- Oltmans, S. J., Lefohn, A. S., Harris, J. M., Galbally, I., Scheel, H. E., Bodeker, G., Brunke, E., Claude, H., Tarasick, D., Johnson, B. J., Simmonds, P., Shadwick, D., Anlauf, K., Hayden, K., Schmidli, F., Fujimoto, T., Akagi, K., Meyer, C., Nichol, S., Davies, J., Redondas, A., and Cuevas, E.: Long-term changes in tropospheric ozone, *Atmos. Environ.*, 40, 3156–3173, 2006.
- Pachauri, R. K., Reisinger, A., Albritton, D. L., Barker, T., Bashmakov, I. A., Canziani, O., Christ, R., Cubasch, U., Davidson, O., Gitay, H., Griggs, D., Halsnaes, K., Houghton, J., House, J., Kundzewicz, Z., Lal, M., Leary, N., Magadza, C., McCarthy, J. J., Mitchell, J. F. B., Moreira, J. R., Munasinghe, M., Noble, I., Pachauri, R., Pittock, B., Prather, M., Richels, R. G., Robinson, J. B., Sathaye, J., Schneider, S., Scholes, R., Stocker, T., Sundararaman, N., Swart, R., Taniguchi, T., and Zhou, D.: IPCC, 2007: Climate Change 2007: Synthesis Report, Contribution of Working Groups I, II and III to the Fourth Assessment Report of the Intergovernmental Panel on Climate Change, IPCC, Geneva, Switzerland, 104 pp., 2007.
- Piketh, S. J., Swap, R. J., Maenhaut, W., Annegam, H. J., and Formenti, P.: Chemical evidence of long range atmospheric transport over south Africa, *J. Geophys. Res.*, 107(D24), 4817, doi:10.1029/2002JD002056, 2002.
- Postel, G. A. and Hitchman, M. H.: A climatology of Rossby wave breaking along the subtropical tropopause, *J. Atmos. Sci.*, 56, 359–373, 1999.
- Preston-Whyte, R. A. and Tyson, P. D.: The atmosphere and weather of Southern Africa, Oxford university press Cape Town, South Africa, 1988.
- Randriambelo, T., Baray, J. L., Baldy, S., Bremaud, P., and Cautenet, S.: A case study of extreme tropospheric ozone contamination in the tropics using in-situ, satellite and meteorological data, *J. Geophys. Res.*, 26, N(9), 1287–1290, 1999.
- Randriambelo, T., Baray, J. L., and Baldy, S.: The effect of biomass burning, convective venting and transport on tropospheric ozone over the Indian Ocean: Reunion island field observations, *J. Geophys. Res.*, 105(D9), 11813–11832, 2000.
- Randriambelo, T., Baray, J. L., Baldy, S., Thompson, A. M., Oltmans, S., and Keckhut, P.: Investigation of the short-time variability of tropical tropospheric ozone, *Ann. Geophys.*, 21(9), 2095–2106, 2003.
- Sivakumar, V., Baray, J. L., Baldy, S., and Bencherif, H.: Tropopause characteristics over a southern subtropical site, Reunion Island (21° S, 55° E): Using radiosonde-ozonesonde data, *J. Geophys. Res.*, 111, D19111, doi:10.1029/2005JD006430, 2006.
- Schumann, U. and Huntrieser, H.: The global lightning-induced nitrogen oxides source, *Atmos. Chem. Phys.*, 7, 3823–3907, 2007, <http://www.atmos-chem-phys.net/7/3823/2007/>.
- Smit, H. G. J., Straeter, W., Johnson, B. J., et al.: Assessment of the performance of ECC-ozonesondes under quasi-flight conditions in the environmental simulation chamber: Insights from the Juelich Ozone Sonde Intercomparison Experiment (JOSIE), *J. Geophys. Res.*, 112, D19306, doi:10.1029/2006JD007308, 2007.

- Stevenson, D. S., Dentener, F. J., Schultz, M. G., Ellingsen, K., van Noije, T. P. C., Wild, O., Zeng, G., Amann, M., Ather-ton, C. S., Bell, N., Bergmann, D. J., Bey, I., Butler, T., Co-fala, J., Collins, W. J., Derwent, R. G., Doherty, R. M., Drevet, J., Eskes, H. J., Fiore, A. M., Gauss, M., Hauglustaine, D. A., Horowitz, L. W., Isaksen, I. S. A., Krol, M. C., Lamarque, J.-F., Lawrence, M. G., Montanaro, V., Müller, J.-F., Pitari, G., Prather, M. J., Pyle, J. A., Rast, S., Rodriguez, J. M., Sander-son, M. G., Savage, N. H., Shindell, D. T., Strahan, S. E., Sudo, K., and Szopa, S.: Multimodel ensemble simulations of present-day and near-future tropospheric ozone, *J. Geophys. Res.*, 111, D08301, doi:10.1029/2005JD006338, 2006.
- Swap, R. J., Annegarn, H. J., Suttles, J. T., King, M. D., Plat-nick, S., Privette, J. L., and Scholes, R. J.: Africa burning: A thematic analysis of the Southern African Regional Science Initiative (SAFARI 2000), *J. Geophys. Res.*, 108(D13), 8465, doi:10.1029/2003JD003747, 2003.
- Taupin, F. G., Bessafi, M., Baldy, S., and Bremaud, P. J.: Tropo-spheric ozone above the southwestern Indian Ocean is strongly linked to dynamical conditions prevailing in the tropics, *J. Geo-phys. Res.*, 104(D7), 8057–8066, 1999.
- Taupin, F. G., Beekmann, S., Brémaud, P. J., and Randriambelo, T.: Ozone generation over the Indian Ocean during the South African biomass-burning period: case study of October 1992, *Annales Geophysicae*, 20, 547–557, 2002.
- Thompson, A. M., Witte, J. C., McPeters, R. D., Oltmans, S. J., Schmidlin, F. J., Logan, J. A., Fujiwara, M., Kirchhoff, V. W. J. H., Posny, F., Coetzee, G. J. R., Hoegger, B., Kawakami, S., Ogawa, T., Johnson, B. J., Vömel, H., and Labow, G.: South-ern Hemisphere Additional Ozonesondes (SHADOZ) 1998–2000 tropical ozone climatology, 1. Comparison with TOMS and ground-based measurements, *J. Geophys. Res.*, 108, 8238, doi:10.129/2001JD000967, 2003.
- Thompson, A. M., Witte, J. C., Oltmans, S. J., Schmidlin, F. J., Logan, J. A., Fujiwara, M., Kirchhoff, V. W. J. H., Posny, F., Coetzee, G. J. R., Hoegger, B., Kawakami, S., Ogawa, T., For-tuin, J. P. F., and Kelder, H. M.: Southern Hemisphere ADditional Ozonesondes (SHADOZ) 1998–2000 tropical ozone climatology, 2. Tropospheric Variability and the Zonal Wave-One, *J. Geophys. Res.*, 108, 8241, doi:10.129/2002JD002241, 2003.
- Thouret, V., Marengo, A., Logan, J., Nédélec, P., and Grouhel, C.: Comparisons of ozone measurements from the MOZAIC air-borne program and the ozone sounding network at eight loca-tions, *J. Geophys. Res.*, 103, 25695–25720, 1998.
- Thouret, V., Cammas, J.-P., Sauvage, B., Athier, G., Zbinden, R., Nédélec, P., Simon, P., and Karcher, F.: Tropopause referenced ozone climatology and inter-annual variability (1994–2003) from the MOZAIC programme, *Atmos. Chem. Phys.*, 6, 1033–1051, 2006, <http://www.atmos-chem-phys.net/6/1033/2006/>.
- Tyson, P. D., Garstang, M., and Swap, R.: Large scale recirculation of air over Southern Africa, *J. Appl. Meteorol.*, 35, 2218–2236, 1996.
- Tyson, P. D. and Preston-Whyte, R. A.: *the weather and Climate of Southern Africa*, Oxford Univ. Press, New York, USA, 2000.
- Watson, R. T., Albritton, D. L., Barker, T., Bashmakov, I. A., Canziani, O., Christ, R., Cubasch, U., Davidson, O., Gitay, H., Griggs, D., Halsnaes, K., Houghton, J., House, J., Kundzewicz, Z., Lal, M., Leary, N., Magadza, C., McCarthy, J. J., Mitchell, J. F. B., Moreira, J. R., Munasinghe, M., Noble, I., Pachauri, R., Pittock, B., Prather, M., Richels, R. G., Robinson, J. B., Sathaye, J., Schneider, S., Scholes, R., Stocker, T., Sundararaman, N., Swart, R., Taniguchi, T., and Zhou, D.: IPCC, 2001: Climate Change 2001: Synthesis Report, A Contribution of Working Groups I, II, and III to the Third Assessment Report of the Inte-governmental Panel on Climate Change, IPCC, Cambridge Uni-versity Press, Cambridge, UK, and New York, NY, USA, 398 pp., 2001.
- Waugh, D. W. and Polvani, L. M.: Climatology of intrusions into the tropical upper troposphere, *Geophys. Res. Lett.*, 27, 3857–3860, 2000.
- Wells, R., Lloyd, S., and Turner, C.: National air pollution source inventory, in: *Air pollution and its impacts on the South African highveld*, edited by: Held, G., Gore, B. J., Surridge, A. D., Tosen, G. R., Turner, C. R., and Walmsley, R. D., Environmental Scien-tific Association, Cleveland, USA, 3–9, 1996.
- Ziemke, J. R., Joiner, J., Chandra, S., Bhartia, P. K., Vasilkov, A., Haffner, D. P., Yang, K., Schoeberl, M. R., Froidevaux, L., and Levelt, P. F.: Ozone mixing ratios inside tropical deep convective clouds from OMI satellite measurements, *At-mos. Chem. Phys.*, 9, 573–583, 2009, <http://www.atmos-chem-phys.net/9/573/2009/>.

Annexe B

Principe de fonctionnement du capteur ozone

Le capteur ozone utilisé lors des radiosondages est une pile électrochimique. Le schéma de fonctionnement de la pile est présenté en figure C.1.

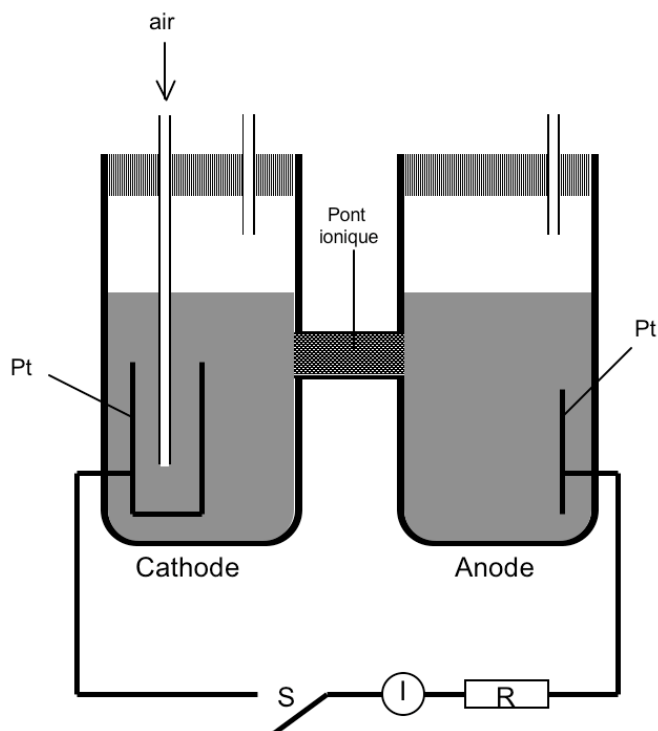


Figure C.1 Représentation Schématique de la pile électrochimique mise en jeu dans la mesure de l'ozone .

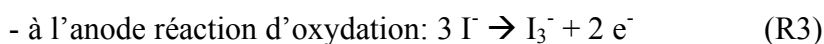
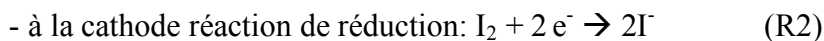
La cathode et l'anode contiennent chacune une électrode de platine (Pt) plongée dans une solution de Iodure de potassium (KI) de concentration différente : la cathode contient une solution de KI tamponnée à 0.5% (1% à Irene) et à l'anode, la solution de KI est saturée. Le pont ionique reliant les deux cellules permet le transfert de charges et empêche le mélange des solutions d'une cellule à l'autre.

Une pompe à air en Teflon permet d'introduire de l'air contenant l'ozone à mesurer dans la solution de la cathode. L'ozone réagit alors chimiquement avec le KI et le courant créé entre les électrodes de platine peut être mesuré lorsque le circuit est fermé en S.

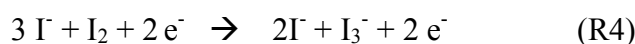
L'interaction de l'ozone avec le KI conduit à la réaction totale suivante (R1) :



I_2 est formé à la cathode et sa concentration augmente dans la solution. La réaction (R1) est suivie par les réactions suivantes (R2) et (R3) :



Par conséquent, la réaction redox qui en résulte est (R4) :



La force électromotrice (fém) induite est donnée par la formule de Nernst :

$$E = E_0 - \frac{0.0591}{2} \log \frac{(a_1) (a_3)^2}{(a_4) (a_2)^3} \quad \text{E C.1}$$

où E est la fém produite par la pile (à 25°C)

E_0 est le potentiel standard du couple redox I_2/I^- . E_0 est négligeable devant E.

a_1 , a_2 sont respectivement les activités de I_3^- et de I^- dans l'anode

a_3 , a_4 sont respectivement les activités de I_2 et de I^- dans la cathode

à l'équilibre,

$$K = \frac{(a_1) (a_3)^2}{(a_4) (a_2)^3} \approx 1 \quad \text{E C.2}$$

En résumé, si une molécule d'ozone est introduite dans la solution de la cathode, la réaction (R1) se produit et les concentrations en ions iodure sont modifiées à l'anode et à la cathode. Les réactions (R2) et (R3) s'ensuivent et K devient différent de 1.

Chaque molécule d'ozone au contact de la solution cathodique provoque la libération de deux électrons. Le courant I ainsi créé permet donc d'accéder au nombre de molécules d'ozone en présence dans la solution.

La pression partielle d'ozone (mPa) mesurée dans une masse d'air au cours du lâcher est définie par :

$$P_{O_3} = 4,307 \cdot 10^{-4} * (I_m - I_b) * T_b * t * \frac{T_p}{\Phi_p} * C_{ef} \quad \text{E C.3}$$

où I_m est le courant mesuré aux bornes de la pile (μA)

I_b est le courant de bruit de fond (μA)

T_p est la « ozone box température » (K)

t est le temps en seconde mis par la pompe pour pomper 100 ml d'air (s)

C_{ef} est la correction du débit de la pompe en fonction de la pression et de la température ambiantes.

La constante numérique fait intervenir la constante des gaz parfaits R ($R = 8.31431 \text{ J.K}^{-1}.\text{mol}^{-1}$) et la constante de Faraday F ($F = 9.6487 \cdot 10^4 \text{ C.mol}^{-1}$)

Annexe C

Principe de fonctionnement du LIDAR DIAL de La Réunion

Le LIDAR est une méthode active de télédétection contrairement aux méthodes passives qui utilisent la source solaire ou l'émission propre de l'atmosphère (e.g. radiomètre, SAOZ).

Le principe du LIDAR repose sur les propriétés de diffusion et d'absorption de l'atmosphère. Une source laser est émise dans l'atmosphère. Les propriétés importantes de la source laser sont la cohérence spatiale et la pureté spectrale. Les particules présentes dans l'atmosphère diffusent le faisceau du laser dans toutes les directions. Le signal rétrodiffusé est collecté par une mosaïque de quatre télescopes paraboliques. Au point de focal de chacun des télescopes, une fibre optique collecte le signal et le transmet à une chaîne de traitement électronique afin de déterminer son intensité. L'équation du LIDAR exprime cette intensité en fonction de différents paramètres et son inversion permet de déterminer la concentration d'une molécule ou d'une particule dans une tranche d'altitude donnée.

La résolution verticale de la mesure est limitée par la durée t_i de l'impulsion du laser ($\Delta Z = c \cdot t_i / 2$) et par la fréquence d'échantillonnage du système d'acquisition.

L'équation du lidar

Pour un signal émis à une longueur d'ondes λ , l'équation du lidar définit l'intensité lumineuse $I_0(\lambda)$ du signal rétrodiffusé par une couche d'épaisseur ΔZ à une distance Z de l'émetteur en fonction de la surface du récepteur A_0 , de l'efficacité de détection $\zeta(Z, \lambda)$, du coefficient volumique de rétrodiffusion $\beta(Z, \lambda)$ et du coefficient d'extinction atmosphérique $\alpha(Z, \lambda)$:

$$I(Z, \lambda) = I_0 * \frac{A_0}{Z^2} * \zeta(Z, \lambda) * \Delta Z * \beta(Z, \lambda) * \exp \left\{ -2 \int_0^Z \alpha(z, \lambda) . dz \right\} \quad \text{E D.1}$$

- $\beta(Z, \lambda)$ est le coefficient volumique de rétrodiffusion
- ΔZ représente l'épaisseur de la couche diffusante et correspond à la résolution du système.
- L'efficacité de détection $\zeta(Z, \lambda)$ traduit l'efficacité optique du système de réception composé de lentilles, miroirs et fibres optiques, ainsi que l'efficacité quantique des Photo Multiplicateurs (les PM transforment un signal lumineux en signal électrique).

- L'atténuation ou l'extinction que subit le faisceau laser à la distance Z est représentée par le dernier terme de l'équation. Cette extinction est due d'une part aux phénomènes de diffusion (Rayleigh et Mie) et d'autre part à l'absorption du faisceau par les molécules atmosphériques. Le coefficient d'extinction atmosphérique $\alpha(R,\lambda)$ comprend donc deux termes de diffusion (Rayleigh, Mie) et une terme d'absorption moléculaire:

$$\alpha = \alpha_{RAY} + \alpha_{MIE} + \alpha_A \quad \text{E D.2}$$

L'absorption moléculaire dépend de la densité volumique N_i des molécules de l'espèce i dans la couche diffusante et de leur section efficace d'absorption $\sigma_i(\lambda)$:

$$\alpha_A = \sum_i N_i \cdot \sigma_i(\lambda) \quad \text{E D.3}$$

C'est l'absorption moléculaire qui permet donc de déterminer un profil de concentration d'une espèce dans l'atmosphère.

Principe de la technique DIAL

Le principe DIAL pour la mesure de l'ozone troposphérique repose sur l'exploitation des caractéristiques du spectre d'absorption de l'ozone. Il consiste à émettre deux faisceaux laser coaxiaux de longueur d'onde différentes. La première longueur d'onde λ_{ON} est fortement absorbée par l'ozone alors que la seconde λ_{OFF} l'est beaucoup moins. La comparaison des signaux rétrodiffusés permet de déterminer la concentration d'ozone à une altitude donnée. Les longueurs d'ondes choisies pour le système DIAL ozone implémenté à La Réunion sont $\lambda_{ON} = 289 \text{ nm}$ (fortement absorbée) et $\lambda_{OFF} = 316 \text{ nm}$ (peu absorbée).

La variation des propriétés de diffusion des deux faisceaux avec l'altitude peut être considérés comme nulle ce qui élimine le terme β de l'équation E D.7. Par ailleurs, un l'alignement géométrique parfait des deux faisceaux rend équivalentes les efficacités de détection ζ_{ON} et ζ_{OFF} .

Ainsi, dans le cas idéal, seule la présence de l'espèce à mesurer crée une différence d'absorption pour les deux canaux.

En écrivant les équations du LIDAR pour les longueurs d'onde λ_{ON} et λ_{OFF} et en faisant le rapport des deux intensités $I(Z,\lambda_{ON}) / I(Z,\lambda_{OFF})$ on obtient :

$$\frac{I(Z, \lambda_{ON})}{I(Z, \lambda_{OFF})} = \chi \cdot \exp \left\{ 2 \int_0^Z (\alpha_A(z, \lambda_{ON}) - \alpha_A(z, \lambda_{OFF})) \cdot dz \right\} \quad \text{E D.4}$$

où χ ne dépend que de λ_{ON} et λ_{OFF} .

Les absorption moléculaires en fonction des sections efficaces s'écrivent:

$$\alpha_A(Z, \lambda_{ON}) - \alpha_A(Z, \lambda_{OFF}) = N(Z) \cdot \Delta\sigma \quad \text{où} \quad \Delta\sigma = \sigma(Z, \lambda_{ON}) - \sigma(Z, \lambda_{OFF}) \quad \text{E D.5}$$

ainsi

$$\int_0^Z N(z) \cdot dz = \frac{1}{2\Delta\sigma} \left(\ln \frac{I(Z, \lambda_{OFF})}{I(Z, \lambda_{ON})} - \ln \chi \right) \quad \text{E D.6}$$

La concentration volumique en ozone à une altitude Z est obtenue en dérivant l'équation précédente :

$$N(Z) = \frac{1}{2\Delta\sigma} \cdot \frac{d}{dz} \ln \frac{I(z, \lambda_{OFF})}{I(z, \lambda_{ON})} \quad \text{E D.7}$$

Erreurs

Dans le cas réel, les coefficients de rétrodiffusion $\beta(R, \lambda_{ON})$ et $\beta(R, \lambda_{OFF})$ doivent être pris en compte. De même, la présence d'aérosols et des molécules atmosphériques doit être prise en compte. Il faut donc tenir compte des coefficients d'extinction moléculaire Rayleigh α et des coefficients de rétrodiffusion β . Par conséquent, la concentration volumique en ozone est donnée par :

$$N(Z) = \frac{1}{2\Delta\sigma} \cdot \frac{d}{dz} \ln \frac{I(z, \lambda_{OFF})}{I(z, \lambda_{ON})} - \frac{1}{2\Delta\sigma} \frac{d}{dz} \ln \frac{\beta_{ON}}{\beta_{OFF}} - \frac{\Delta\alpha}{\Delta\sigma} \quad \text{E D.8}$$

les termes correctifs α et β proviennent d'un profil de densité atmosphérique calculé à partir d'un modèle d'atmosphère standard.

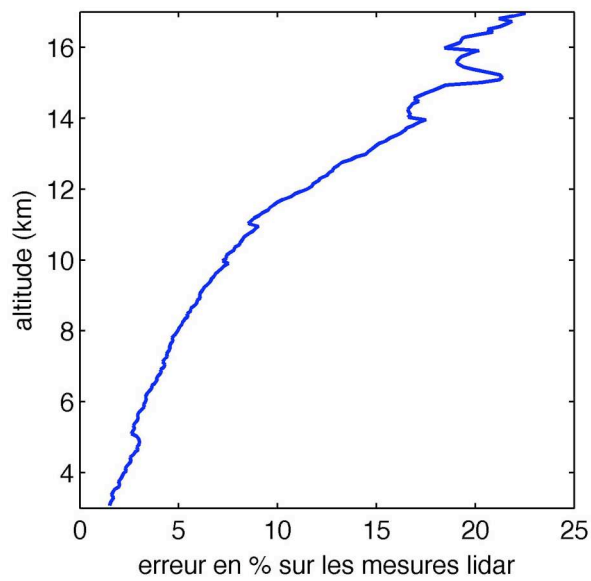


Figure D.1 L'erreur moyenne en pourcentage sur les mesures lidar est inférieure à 10% en dessous de 12 km d'altitude

L'installation lidar de La Réunion

La Figure D.1 présente le schéma de l'installation lidar de La Réunion. La cellule Raman (figure D.1 - 6) est placée de façon adjacente par rapport à l'ensemble des quatre miroirs paraboliques (figure D.1 - 14) qui reçoivent et concentrent le signal rétrodiffusé. Ainsi, le champ du faisceau laser émis n'est entièrement recouvert par le champ des quatre miroirs qu'à partir de l'altitude de 3 km. C'est pourquoi les profils d'ozone mesurés par le lidar sont définis à partir de 3 km d'altitude.

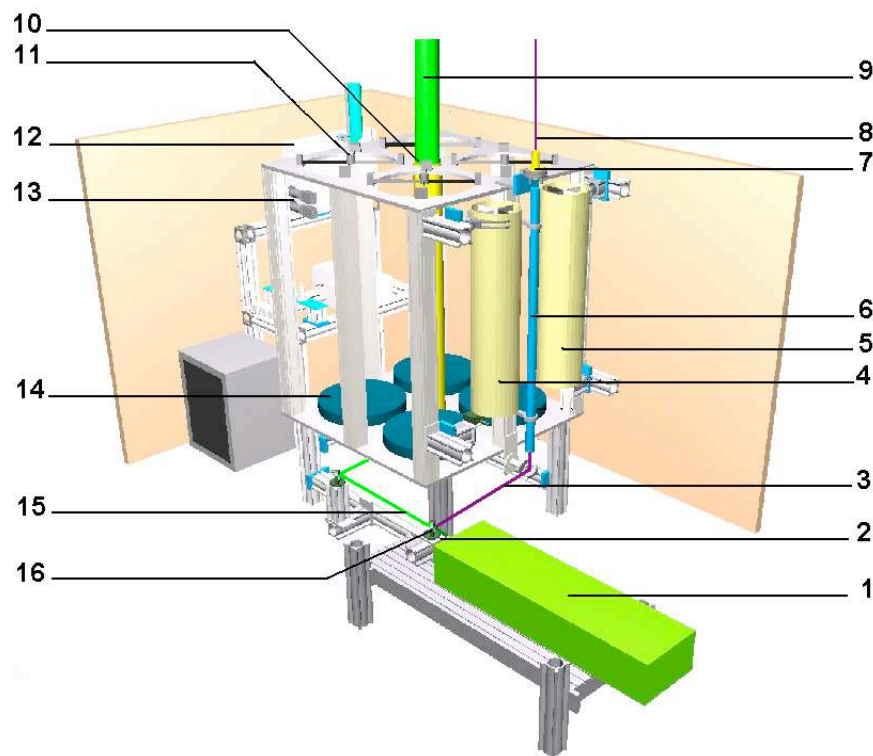


Figure D.1 Schéma de l'installation lidar Raman-Rayleigh-Mie de La Réunion. (1) Laser (2) quadrupleur (3) Faisceau 266 nm (4) Télescope voie polarisée (5) Télescope voie B (aérosols troposphériques) (6) Cellule Raman (7) Optimiseur de divergence (8) Faisceau UV 289 nm+ 316 nm (9) Faisceau visible (10) Afocal Rayleigh-Mie (11) embouts des fibres optiques (12) Bloc spectromètre (13) Photo Multiplicateurs (PM) (14) Miroirs paraboliques (15) faisceau 532-1064 nm (16) Miroir de renvoi 266 nm .

Communication Jacques Porteneuve.

Bibliographie

Aghedo, A.M., Schultz, M.G., and Rast, S.: The influence of African air pollution on the regional and global tropospheric chemistry, *Atmos. Chem. Phys.*, 7, 1193-1212, 2007.

Andreae, M. O., Fishman, J., and Lindsay, J.: The Southern Tropical Atlantic Experiment (STARE) : Transport and Atmospheric Chemistry near the Equator-Atlantic (TRACE A) and Southern African Fire-Atmosphere Research Initiative (SAFARI) : An introduction, *J. Geophys. Res.*, 101, 23519-23520, 1996.

Baldy, S., Ancellet, G., Bessafi, M., Badr, A., and Lan Sun Luk, D.: Field observations of the vertical distribution of tropospheric ozone at the island of Reunion (southern tropics), *J. Geophys. Res.*, 101(D19), 23,835–23,850, 1996.

Baray, J.L., Ancellet, G., Taupin, F. G., Bessafi, M., Baldy, S, and Keckhut, P.: Subtropical tropopause break as a possible stratospheric source of ozone in the tropical troposphere, *Journal of Atmospheric and Solar-Terrestrial Physics*, vol. 60, N° 1, pp. 27-36, 1998.

Baray J.L., G. Ancellet, T. Randriambelo, and S. Baldy, Tropical cyclone Marlene and stratosphere-troposphere exchange, *Journal of Geophysical Research*, 104, D11, 13953-13970, 1999.

Baray, J.L., Leveau, J., Porteneuve, J., Ancellet, G., Keckhut, P., Posny, F., and Baldy, S.: Description and evaluation of a tropospheric ozone LIDAR implemented on an existing LIDAR in the southern subtropics, *Applied Optics*, vol. 38, N° 33, pp. 6808-6817, 1999.

Baray, J.L., Baldy, S., Diab, R.D., and Cammas, J.P.: Dynamical study of a tropical cut-off low over South Africa, and its impact on tropospheric ozone, *Atmospheric Environment*, vol. 37, N° 11 pp. 1475-1488, 2003.

Baray, J.L., Leveau, J., Baldy, S., Jouzel, J., Keckhut, P., Bergametti, G., Ancellet, G., Bencherif, H., Cadet, B., Carleer, M., David, C., De Mazière, M., Faduilhe, D., Godin Beekmann, S., Goloub, P., Goutail, F., Metzger, J.M., Morel, B., Pommereau, J.P., Porteneuve, J., Portafaix, T., Posny, F., Robert, L., and Van Roozendaal, M.: An instrumented

station for the survey of ozone and climate change in the southern tropics: Scientific motivation, technical description and future plans, *J. Environ. Monit.*, doi: 10.1039/b607762e, 2006.

Benkovitz, C. M., Scholtz, M. T., Pacyna, J., Tarrason, L., Dignon, J., Voldner, E. C., Spiro, P. A., Logan, J. A., and Graedel, T. E.: Global gridded inventories of anthropogenic emissions of sulfur and nitrogen, *J. Geophys. Res.*, 101, 29 239–29 254, 1996.

Bessagnet, B., Hodzic, A., Vautard, R., Beekmann, M., Cheinet, S. and co-authors. : Aerosol modelling with CHIMERE- preliminary evaluation at the continental scale. *Atmos. Environ.* 38, 2803–2817, 2004.

Bhugwant C, Riviere E, Keckhut P, Leveau J. : Variability of carbonaceous aerosols, ozone and radon at Piton Textor, a mountain site on Reunion island (south-western Indian Ocean) Context Sensitive Links, *Tellus Series B – Chemical and physical Meteorology*, vol. 53, 5, pp.546-563, 2001.

Bond, T. C., D. G. Streets, K. F. Yarber, S. M. Nelson, J.-H. Woo, and Z. Klimont : A technology-based global inventory of black and organic carbon emissions from combustion. *J. Geophys. Res.*, 109, D14203, doi:10.1029/2003JD003697, 2004.

Bremaud, P.J., Taupin, F., Thompson, A.M., and Chaumerliac, N.: Ozone nighttime recovery in the marine boundary layer : Measurement and simulation of the ozone diurnal cycle at Reunion Island, *J. Geophys. Res.*, vol. 103, no D3, February 20, 1998a.

Bremaud P.J., and Taupin, F., Cloud influence on ozone diurnal cycle in the marine boundary layer at Reunion Island, *Atmospheric Research*, 47-48, 285-298, 1998b.

Brioude, J., Cammas, J.-P., Zbinden, M., Thouret, V.: Evidence of tropospheric layering: interleaved stratospheric and planetary boundary layer intrusions, *Atmospheric Chemistry and Physics Discussions*, 7 , pp.1119-1142, 2007.

Bond, D. W., Steiger,, S., Zhang, R., Tie, X. Orville, R.E.: The importance of NO_x production by lightning in the tropics, *Atm. Env.*, vol. 36, pp. 1509-1519, 2002.

Chatfield, R. B. and Delany, A. C.: Convection links biomass burning to increased tropical ozone: However, models will tend to overpredict O₃, *J. Geophys. Res.*, 95, 18473-18488, 1990.

Chatfield, R., J. Vastano, H. Singh, and G. Sachse: A general model of how fire emissions and chemistry produce African/oceanic plumes (O₃, CO, PAN, smoke) in TRACE A, *J. Geophys. Res.*, 101(D19), 24279-24306, 1996.

Chen, P.: Isentropic cross-tropopause mass exchange in the extratropics, *Journal of Geophysical Research*, 100, No. D8, pp. 16,661-16,673, 1995.

Clain, G., Baray, J. L., Delmas, R., Diab, R., Leclair de Bellevue, J., Keckhut, P., Posny, F., Metzger, J. M., and Cammas, J. P.: Tropospheric ozone climatology at two Southern Hemisphere tropical/subtropical sites, (Reunion Island and Irene, South Africa) from ozonesondes, LIDAR, and in situ aircraft measurements, *Atmospheric Chemistry and Physics*, 9, 1723-1734, 2009.

Collier, A. B., Hughes, A. R. W., Lichtenberger, J. and Steinbach, P.: Seasonal and diurnal variation of lightning activity over southern Africa and correlation with European whistler observations, *Ann. Geophys.*, 24, 529-542, 2006.

Cooke, W. F., Liousse, C., Cachier, H. and Feichter, J. : Construction of a 1° × 1° fossil fuel emission dataset for carbonaceous aerosol and implementation en the ECHAM4 model. *J. Geophys. Res.* 104, 22137–22162, 1999.

Crutzen, P. J., Lawrence, M. G. and Pöschl, U.: On the Background photochemistry of tropospheric ozone, *Tellus*, 51A-B, 123-146, 1999.

Deeter, M. N., Emmons, L.K., Francis, G.L., Edwards, D.P. et al.: Operational carbon monoxide retrieval algorithm and selected results for the MOPITT instrument, *J. Geophys. Res.*, 108(D14), 4399, doi:10.1029/2002JD003186, 2003.

Delmas, R., Mégie, R., Peuch, V.-H.: *Physique et chimie de l'atmosphère*, Editions Belin, Collection Echelles, 2005.

Deshler, T., Mercer, J.L., Smit, H.G.J., Stubi, R., Levrat, G., Johnson, B.J., Oltmans, S.J., Kivi, R., Thompson, A.M., Witte, J., Davis, J., Schmidlin, F.J., Brothers, G., Sasaki, T.: Atmospheric comparison of electrochemical cell ozonesondes from different manufacturers, and with different cathode solution strengths: The Balloon Experiment on Standards for Ozonesondes, *J. Geophys. Res.*, 113, D04307, doi:10.1029/2007JD008975, 2008.

Diab, R. D., Thompson, A. M., Mari, K., Ramsay, L., and Coetzee, G. J. R.: Tropospheric ozone climatology over Irene, South Africa, From 1990 to 1994 and 1998 to 2002, *J. Geophys. Res.*, 109, D20301, doi:10.1029/2004JD004793, 2004.

Dragani, R., Redaelli, G., Visconti, G. et al.: High resolution stratospheric tracer fields reconstructed with Lagrangian techniques: a comparative analysis of predictive skills, *American Meteorological Society*, 59, pp. 1943-1958, 2002.

Dritschel, D. G. : Contour Surgery, A topological reconnection scheme for extended integrations using contour dynamics, *Journal of Computational Physics*, 77, 240-266, 1988.

Drummond, J. R., and G. S. Mand :The Measurements of Pollution in the Troposphere (MOPITT) instrument: Overall performance and calibration requirements, *J. Atmos. Ocean. Technol.*, 13, 314 – 320, 1996.

Duflot V., Clain, G., Baray, J.L., Delmas, R., Attié, J.L., De Mazière, M. : Analysis of the origin of CO vertical distributions in the Southern Indian Ocean, à soumettre en 2009.

Elbern, H., J. Hendricks, and A. Ebel: A climatology of tropopause folds by global analyses, *Theoretical and Applied Climatology*, vol. 59, pp.181–200, 1998.

Ertel, H. : Ein neuer hydrodynamischer Wilbersatz, *Meteor. Z.*, vol. 59, pp. 271-281, 1942.

Fairlie, T. D., Pierce, R. B., Grose, W. L., Lingenfelser, G., Loewenstein, M., and Podolske, J. R.: Lagrangian forecasting during ASHOE/MAESA: Analysis of predictive skill for analyzed

and reverse-domain-filled potential vorticity, *Journal of Geophysical Research*, 102(D11), 13,169–13,182, 1997.

Folkens, I. A., and C. Appenzeller : Ozone and potential vorticity at the subtropical tropopause break, *J. Geophys. Res.*, 101, 18,787 – 18,792, 1996.

Forster, P. M. de F. and Shine, K. P.: Radiative forcing and temperature trends from stratospheric ozone changes, *Journal of Geophysical Research*, 102 (D9), pp. 10841-10855, 1997.

Garrett, A. J.: Orographic cloud over the eastern slopes of Mauna Loa volcano, Hawaii, related to insolation and wind. *Mon. Weather Rev.*, 108, 931-941, 1980.

Garstang, M., Tyson, P. D., Swap, R., Edwards, M., Kalleberg, P., and Lindsay, J. A.: Horizontal and vertical transport of air over Southern Africa, *J. Geophys. Res.*, 101, 23721-23736, 1996.

Gouget, H., J. P. Cammas, A. Marengo, R. Rosset, and I. Jonquière : Ozone peaks associated with a subtropical tropopause fold and with the trade wind inversion: A case study from the airborne campaign TROPOZ II over the Caribbean in winter, *J. Geophys. Res.*, 101, 25,979 – 25,993, 1996.

Guillaume, B. et Lioussé, C. : Development of carbonaceous aerosol emission inventories from fossil fuel over Europe at continental scale with focus on traffic at national and regional scales. Rapport de projet ADEME. Projet 0262050, 2006.

Guillaume, B., Lioussé, C., Rosset, R., Cachier, H., Van Velthoven, P., Bessagnet B. and Poisson, N.: ORISAM-TM4: a new global sectional multi-component aerosol model including SOA formation—focus on carbonaceous BC and OC aerosols, *Tellus B*, 59, pp. 283–302, 2007.

Hauchecorne, A., Godin, S., Marchand, M., Heese, B. and Souprayen, C. : Quantification of the transport of chemical constituents from the polar vortex to middle latitudes in the lower

stratosphere using the high-resolution advection model MIMOSA and effective diffusivity, *J. Geophys. Res.*, 107(D), 10.129/2001JD000491, 2002.

Held, G. and Mphepya, J.: Wet and dry deposition in South Africa, Proceedings, XI Congresso Brasileiro de Meteorologia (CDROM), SBMET, Rio de Janeiro, 16-20 Outubro 2000, Paper QA00002, pp. 2824–2833, 2000.

Holton, J. R., P. H. Haynes, M. E. McIntyre, A. R. Douglass, R. B. Rood and L. Pfister: Stratosphere-troposphere exchange. *Reviews of Geophysics*, 33, 403-439, 1995.

Holton, J. R.: An Introduction to dynamic Meteorology 4th Edition, Elsevier Academic Press, 2004.

Horowitz, L., Walters, S., Mauzerall, D. L., et al.: A global simulation of tropospheric ozone and related tracers: Description and evaluation of MOZART, version 2, *Journal of Geophysical Research*, 108 (D24), 4784, 2003.

James, P., A. Stohl, C. Forster, S. Eckhardt, P. Seibert, and A. Frank: A 15-year climatology of stratosphere-troposphere exchange with a Lagrangian particle dispersion model: 1. Methodology and validation, *Journal of Geophysical Research*, 108(D12), 8519, doi:10.1029/2002JD002637, 2003.

Kesselmeier, J., Staudt, M.: Biogenic volatile organic compounds (VOC): An overview on emission, physiology and ecology, *Journal of Atmospheric Chemistry*, 33, 23-88, 1999.

Leclair De Bellevue, J., Réchou, A., Baray, J. L., Ancellet, G., and Diab, R. D.: Signatures of stratosphere to troposphere, transport near deep convective events in the southern subtropics, *J. Geophys. Res.*, 111, D24107, doi:10.1029/2005JD006947, 2006.

Lessouef, D, Delmas, R., Gheusi, F. : Etude numérique des circulations locales à La Réunion : application aux transports de polluants et à la formation de nuages orographiques, *La Météorologie*, août 2008.

Marécal V., G. Durry, K. Longo, S. Freitas, E. D. Rivière, and M. Pirre : Mesoscale modelling of water vapour in the tropical UTLS two case studies from the HIBISCUS campaign *Atmospheric Chemistry and Physics*, 7, 1471-1489, 2007.

Marenco, A., Medale, J.C., and Prieur, S.: Study of tropospheric ozone in the tropical belt (Africa, America) from STRATOZ and TROPOZ campaigns, *Atmos. Environ.* 11:2823-2834, 1990.

Marenco, A., Thouret, V., Nédélec, P., Smit, H.G., Helten, M., Kley, D., Karcher, F., Simon, P., Law, K., Pyle, J., Poshmann, G., Von Wrede, R., Hume, C., and Cook, T.: Measurement of ozone and water vapor by Airbus In service aircraft : The MOZAIC airborne programme, an overview, *J. Geophys. Res.*, 103, 25,631-25,642, 1998.

Mari, C. H., Cailley, G., Corre, L., Saunois, M., Attié, J. L., Thouret, V., and Stohl, A.: Tracing biomass burning plumes from the Southern Hemisphere during the AMMA 2006 wet season experiment, *Atmos. Chem. Phys.*, 8, 3951-3961, 2008.

Montgomery, D. C., Elizabeth A. Peck, G. Geoffrey Vining, *Introduction to Linear Regression Analysis*, ISBN: 978-0-471-75495-4, 4th Edition, 640 pages, 2006.

Naja, M., H. Akimoto, and J. Staehelin: Ozone in background and photochemically aged air over central Europe: Analysis of long-term ozonesonde data from Hohenpeissenberg and Payerne, *J. Geophys. Res.*, 108(D2), 4063, doi:10.1029/2002JD002477, 2003.

Oikonomou, E. K., et A. O'Neill : Evaluation of ozone and water vapor fields from the ECMWF reanalysis ERA-40 during 1991–1999 in comparison with UARS satellite and MOZAIC aircraft observations, *J. Geophys. Res.*, 111, D14109, doi:10.1029/2004JD005341, 2006.

Oltmans, S.J., Lefohn, A.S., Harrisa, J.M., Galbally, I., Scheel, H.E., Bodeker, G., Brunke, E., Claude, H., Tarasick, D., Johnson, B.J., Simmonds, P., Shadwick, D., Anlauf, K., Hayden, K., Schmidlil, F., Fujimoto, T., Akagi, K., Meyer, C., Nichol, S., Davies, J., Redondas, A., Cuevas, E.: Long-term changes in tropospheric ozone, *Atmospheric Environment*, 40, 3156–3173, 2006.

Palmen, E., Newton, C.W., : Atmospheric Circulation Systems: their Structure and Physical Interpretation. Academic press, New York, London 603pp, 1969.

Piketh, S. J., Swap, R. J., Maenhaut, W., Annegarn, H. J., and Formenti, P.: Chemical evidence of long range atmospheric transport over south Africa, *J. Geophys. Res.*, 107(D24), 4817, doi: 10.1029/2002JD002056, 2002.

Postel, G.A. and Hitchman M. H.: A climatology of Rossby wave breaking along the Subtropical Tropopause, *Journal of Atmospheric Science*, 56, pp. 359–373, 1999.

Preston-Whyte, R.A. and Tyson, P.D.: The atmosphere and weather of Southern Africa, Oxford university press Cape Town, 1988.

Price JD, Vaughan G. : Statistical studies of cut-off low systems. *Ann Geophys* 10: 96– 102, 1992.

Randriambelo, T., Baray, J.L., Baldy, S., Bremaud, P., and Cautenet, S.: A case study of extreme tropospheric ozone contamination in the tropics using in-situ, satellite and meteorological data, *J. Geophys. Res*, vol. 26, N° 9, pp. 1287-1290, 1999.

Randriambelo, T., Baray, J.L., and Baldy, S.: The effect of biomass burning, convective venting and transport on tropospheric ozone over the Indian Ocean : Reunion island field observations, *J. Geophys. Res*, vol. 105, N° D9, pp. 11813-11832, 2000.

Randriambelo, T., Baray, J. L., Baldy, S., Thompson, A.M., Oltmans, S., and Keckhut, P.: Investigation of the short-time variability of tropical tropospheric ozone, *Annales Geophysicae*, Vol. 21, N° 9, pp. 2095-2106, 2003.

Salby, M.L. : Fundamentals of Atmospheric Physics, Academic Press, 1996.

Schumann, U. and Huntrieser, H.: The global lightning-induced nitrogen oxides source, *Atmos. Chem. Phys.*, 7, 3823-3907, 2007.

Shapiro, M.A., T. Hampel and A.J. Krueger, The Arctic tropopause fold. *Monthly Weather Review*, vol. 115, pp. 444–454, 1987.

Shapiro, M. A., and P. J. Kennedy: Research aircraft instruments of jet stream geostrophic and ageostrophic winds. *J. Atmos. Sci.*, 38, 2642–2652, 1981.

Sivakumar, V., Baray, J. L., Baldy, S., and Bencherif, H.: Tropopause characteristics over a southern subtropical site, Reunion Island (21°S, 55°E): Using radiosonde-ozonesonde data, *J. Geophys. Res.*, 111, D19111, doi:10.1029/2005JD006430, 2006.

Smit H. G. J., et al., 2007, Assessment of the performance of ECC-ozonesondes under quasi-flight conditions in the environmental simulation chamber: Insights from the Juelich Ozone Sonde Intercomparison Experiment (JOSIE), *Journal of Geophysical Research*, 112, D19306, doi:10.1029/2006JD007308.

Sprenger, M., and H. Wernli :A Northern Hemispheric climatology of cross-tropopause exchange for the ERA15 time period (1979 – 1993), *J. Geophys. Res.*, 108(D12), 8521, doi:10.1029/2002JD002636, 2003.

Stohl, A., Forster, C., Frank, A., Seibert, P., and Wotawa, G.: Technical note: The Lagrangian particle dispersion model FLEXPART version 6.2, *Atmos. Chem. Phys. Discuss.*, 5, 4739–4799, 2005.

Stohl, A.: Computation, accuracy and applications of trajectories – A review and bibliography, *Atmos. Environ.*, 32, 947–966, 1998b.

Stohl, A.: A 1-year Lagrangian “climatology” of airstreams in the Northern Hemisphere troposphere and lowermost stratosphere, *Journal of Geophysical Research*, 106(D7), 7263–7279, 2001.

Sutton, R. T, Maclean, H., Swinbank, R., O’Neill, A. and Taylor, F. W.: High-Resolution Stratospheric Tracer Fields Estimated from Satellite Observations using Lagrangian Trajectory Calculations, *Journal of Atmospheric Sciences*, 51, 2995-3005, 1994.

Swap, R. J., Annegarn, H. J., Suttles, J. T., King, M. D., Platnick, S., Privette, J. L., and Scholes, R. J.: Africa burning: A thematic analysis of the Southern African Regional Science Initiative (SAFARI 2000), *J. Geophys. Res.*, 108, D13, 8465, doi:10.1029/2003JD003747, 2003.

Tansey, K., J.-M. Grégoire, P. Defourny, R. Leigh, J.-F. Pekel, E. van Bogaert, and E. Bartholomé: A new, global, multi-annual (2000–2007) burnt area product at 1 km resolution, *Geophys. Res. Lett.*, 35, L01401, doi:10.1029/2007GL031567, 2008.

Taupin, F. G. , Bessafi, M. , Baldy, S. , Bremaud, P. J.: Tropospheric ozone above the southwestern Indian Ocean is strongly linked to dynamical conditions prevailing in the tropics, *J. Geophys. Res.*, Vol. 104 , No. D7, p. 8057-8066, 1999.

Taupin, F.G., Beekmann, S., Brémaud, P. J., and Randriambelo, T.: Ozone generation over the Indian Ocean during the South African biomass-burning period: case study of October 1992, *Annales Geophysicae*, 20, 547-557, 2002.

Thompson, A. M., Witte, J. C., McPeters, R. D., Oltmans, S. J., Schmidlin, F. J., Logan, J. A., Fujiwara, M., Kirchhoff, V. W. J. H., Posny, F., Coetzee, G. J. R., Hoegger, B., Kawakami, S., Ogawa, T., Johnson, B. J., Vömel, H., Labow, G.: Southern Hemisphere ADditional Ozonesondes (SHADOZ) 1998-2000 tropical ozone climatology. 1. Comparison with TOMS and ground-based measurements, *J. Geophys. Res.*, 108, 8238, doi:10.129/2001JD000967, 30 January 2003.

Thompson, A. M., Witte, J. C., Oltmans, S. J., Schmidlin, F. J., Logan, J. A., Fujiwara, M., Kirchhoff, V. W. J. H., Posny, F., Coetzee, G. J. R., Hoegger, B., Kawakami, S., Ogawa, T., Fortuin, J. P. F., Kelder, H. M.: Southern Hemisphere ADditional Ozonesondes (SHADOZ) 1998-2000 tropical ozone climatology. 2. Tropospheric Variability and the Zonal Wave-One, *J. Geophys. Res.*, 108, 8241, doi: 10.129/2002JD002241, 31 January 2003.

Thouret, V., Marenco, A., Logan, J., Nédélec, P., and Grouhel, C.: Comparisons of ozone measurements from the MOZAIC airborne program and the ozone sounding network at eight locations, *J. Geophys. Res.*, 103, 25 695–25 720, 1998.

Van Velthoven, P. F. J. and Kelder, H. : Estimates of Stratosphere-Troposphere Exchange: Sensitivity to model formulation and horizontal resolution. *J. Geophys. Res.* 101, 1429–1434, 1996.

Watson, R.T., Albritton, D. L., Barker, T., Bashmakov, I. A., Canziani, O., Christ, R., Cubasch, U., Davidson, O., Gitay, H., Griggs, D., Halsnaes, K., Houghton, J., House, J., Kundzewicz, Z., Lal, M., Leary, N., Magadza, C., McCarthy, J.J., Mitchell, J. F. B., Moreira, J. R., Munasinghe, M., Noble, I., Pachauri, R., Pittock, B., Prather, M., Richels, R. G., Robinson, J. B., Sathaye, J., Schneider, S., Scholes, R., Stocker, T., Sundararaman, N., Swart, R., Taniguchi, T., and Zhou, D.: IPCC, 2001: Climate Change 2001: Synthesis Report. A Contribution of Working Groups I, II, and III to the Third Assessment Report of the Intergovernmental Panel on Climate Change, IPCC, Cambridge University Press, Cambridge, United Kingdom, and New York, NY, USA, 398 pp., 2001.

Waugh, D. W., and Polvani, L. M.: Climatology of intrusions into the tropical upper troposphere, *Geophysical Research Letters*, 27, 3857-3860., 2000.

Wells, R., Lloyd, S., and Turner, C.: National air pollution source inventory, in: Air pollution and its impacts on the South African highveld, (Eds) Held, G., Gore, B. J., Surrridge, A. D., Tosen, G. R., Turner, C. R., and Walmsley, R. D., 3–9, Environmental Scientific Association, Cleveland, 1996.

Wernli, H. et Davies, H. C.: A Lagrangian-based analysis of extratropical cyclones. I: The method and some applications. *Q. J. R. Meteorol. Soc.* , 123: 467-489, 1997.

Wild, O., : Modelling the global tropospheric ozone budget : exploring the variability in current models, *Atmospheric Chemistry and Physics*, 7, 2643-2660, 2007.

Zaveri, R. A., Saylor, R. D., Peters, L. K., McNider, R., and Song, A.: A model investigation of summertime diurnal ozone behaviour in rural mountainous locations, *Atmospheric Environment*, 29(9), 1043-1065, 1995.

Ziemke, J. R., Joiner, J., Chandra, S., Bhartia, P. K., Vasilkov, A., Haffner, D. P., Yang, K., Schoeberl, M. R., Froidevaux, L., and Levelt, P. F.: Ozone mixing ratios inside tropical deep convective clouds from OMI satellite measurements, *Atmos. Chem. Phys.*, 9, 573-583, 2009.

Table des Figures

- Figure 0.1 Augmentation de la température de surface en fonction d'une augmentation constante de l'ozone troposphérique et stratosphérique. La figure de gauche correspond à une augmentation de 10 DU d'ozone par tranche de 1km. La figure de droite correspond à une augmentation de 10 % du contenu en ozone pour chaque tranche atmosphérique de 1km. Ces profils sont issus d'un modèle radiatif convectif et représentent un profil atmosphérique moyen global. D'après Forster et Shine, 1997. 7
- Figure 0.2 Les composantes du forçage radiatif moyen global de l'ère préindustrielle (1750) à nos jours ainsi que l'échelle spatiale type et le niveau de compréhension scientifique. D'après le rapport IPCC 2007. 7
- Figure 0.3 Une illustration de l'inhomogénéité des émissions de polluants : carte globale du NO₂ troposphérique mesuré par l'instrument SCHIAMACHY à bord du satellite ENVISAT de l'ESA. 8
- Figure 0.4 Une autre illustration de la répartition régionale des émissions de polluants. Cette figure, issue du modèle GOCART permet de visualiser la répartition spatiale de panaches de polluants d'origine anthropique et d'aérosols le 3 août 2001. image de J. Vanderlei. 9
- Figure 0.5 Carte globale du rapport de mélange atmosphérique en monoxyde de carbone au niveau 700 hPa moyennée pour le mois de Janvier 2009. 9
- Figure 1.1 Structure schématique de la variation méridienne de la tropopause. Le contour plein noir matérialise la tropopause dynamique définie comme une discontinuité de la vorticité potentielle. Les zones frontales primaires sont représentées par les pointillés. Les lignes tiretées correspondent aux contours isotaches 40m.s⁻¹ et entourent les trois jets stream principaux: Arctique (Ja), Polaire (Jp), et subtropical (Js). La tropopause thermique est matérialisée par les tirets gras. Figure extraite de Shapiro et al. (1987). 15
- Figure 1.2 Illustration de la relation entre le cisaillement vertical du vent géostrophique et un gradient méridien de température. Les surfaces isobares sont tiretées. L'espacement entre les isobares traduit le gradient méridien de température orienté vers l'équateur. Figure adaptée de Holton (2004). 16
- Figure 1.3 Représentation schématique sur un plan isobare pour l'hémisphère Sud et dans le cas d'un jet rectiligne, des circulations agéostrophiques (flèches noires) générées en entrée et en sortie d'un noyau de courant jet (jet streak) et des zones de convergence (C) et de divergence (D) qui y sont associées. Les contours pointillés correspondent aux isotaques, les lignes continues représentent l'altitude géopotentielle de la surface isobare. Figure adaptée de Shapiro et Kennedy (1981). 17
- Figure 1.4 Représentation schématique des circulations verticales induites au dessus des zones de convergence et de divergence dans l'hémisphère Sud. 18
- Figure 1.5 Représentation schématique des circulations agéostrophiques longitudinales (colinéaires au jet) induites par une courbure cyclonique du jet dans l'hémisphère Sud. Les lignes pleines représentent les isohypses et la bande centrale matérialise les zones de maxima de vent. Figure adaptée de Shapiro et Kennedy (1981). 19
- Figure 1.6 Carte tridimensionnelle de la tropopause, matérialisée par la surface 1.2 PVU le 25 Juillet 1998 0 :00 UT. Communication personnelle J.-L. Baray. 20
- Figure 1.7 (a) module du vent zonal entre août 2007 et septembre 2008 mesuré à La Réunion par sonde GPS ; (b) Champ de vent moyen sur l'hiver austral, au niveau 300 hPa et calculé à partir de dix ans de données NCEP (1984-2007). Figures extraites de Clain et al. (2009) 23
- Figure 1.8 Représentation schématique des circulations atmosphériques en Afrique du Sud et les régions adjacentes. La couleur bleue correspond aux flux de basses couches et les flux d'altitude sont représentés en rouge. La flèche jaune indique progression des zones affectées par les feux de biomasses Les positions d'Irene, de Johannesburg et de La Réunion sont indiquées. Figure inspirée de Diab et al. (2004), Chatfield et al. (1996) et Piketh et al. (2002). 25
- Figure 2.1 Carte de la Région et des sites de mesures de La Réunion et d'Afrique du Sud. Les sites A, B, C sur l'île de La Réunion désignent respectivement St Denis, L'aéroport Rolland Garros et le site du Piton Textor. 31
- Figure 2.2 Profils de monoxyde de carbone issus de mesures MOZAIC au départ et vers Johannesburg 35
- Figure 2.3 Comparaison des rétrotrajectoires calculées par Lacytraj (colonne de gauche) aux trajectoires calculées par Flexpart (colonne de droite) pour les cas du 15 février et du 13 février 2002. 41
- Figure 2.4 Trajectoire moyenne calculée par Flexpart pour les cas a) du 15 février (faisceau centré autour de 9 km d'altitude) et b) du 13 février 2002 (faisceau centré autour de 7 km d'altitude). 42
- Figure 2.5 (a) Champ horizontal de PV reconstruite par la méthode RDF à l'aide du code Lacytraj comparé au (b) champ horizontal de PV calculé par le modèle MIMOSA. 45

- Figure 2.6 (gauche) profils de PV reconstruits par la méthode RDF à 24h (rouge) , 48 h (bleu) et 120 h (vert) d'échéance comparés au profil ECMWF du 03 Décembre 2004 (noir). (droite) profils d'ozone mesure par lidar DIAL les 03 et 04 Décembre 2004. 46
- Figure 2.7 Coupes verticales des champs de PV ECMWF [(a), (c)] comparées aux champs de PV reconstruits par la méthode RDF avec le code Lacytraj avec 48 heures de rétrotrajectoires, [(b), (d)] pris à la longitude de La Réunion (i.e. 55.5°E) et pour les dates du 03 [(a), (b)] et 04 [(c), (d)] Décembre 1999. 47
- Figure 2.8 Profil lidar (vert) de rapport de mélange en vapeur d'eau mesuré par lidar Raman le 5 Avril 2002, comparé au profil ECMWF (noir) et aux profils reconstitués par la méthode RDF avec Lacytraj pour 6 heures (bleu) et 12 heures de rétrotrajectoires (rouge). 49
- Figure 2.9 Coupes verticales des champs de rapport de mélange en vapeur d'eau [(a), (c)] comparées aux champs de rapport de mélange en vapeur d'eau reconstruits par la méthode RDF avec le code Lacytraj avec 6 heures de rétrotrajectoires, [(b), (d)] pris à la longitude de La Réunion (i.e. 55.5°E) et pour les dates du 03 [(a), (b)] et 04 [(c), (d)] Décembre 1999. L'échelle de couleurs est logarithmique et s'étend entre 0.001 (bleu) et 3 g.kg-1 (rouge) 49
- Figure 2.10 (a) Image du canal vapeur d'eau de METOSAT du 1er Décembre 2007. (b) Champ ECMWF du rapport de mélange en vapeur d'eau. (c) Reconstruction RDF du champ horizontal de rapport de mélange en vapeur d'eau par la méthode RDF avec 6 heures de rétrotrajectoires. L'échelle de couleurs et logarithmique et s'entend entre 0.001 (bleu) et 3 g.kg-1 (rouge) 51
- Figure 3.1 Variation saisonnière du rapport de mélange en ozone mesuré de jour (vert) et de nuit (rouge) au Piton Textor à 2100 m d'altitude au sud est de La Réunion entre octobre 1998 et octobre 1999 par le photomètre DASIBI, comparé au rapport de mélange en ozone mesuré par radiosondes à St Denis à la même altitude. La courbe noire correspond aux données de radiosondages durant période des mesures DASIBI, la courbe bleue est calculée à partir de l'ensembles des données de radiosondages entre 1992 et 2006. 58
- Figure 3.2 Distributions mensuelles moyennes de la hauteur du point froid et de l'ozonopause calculée à partir des données de radiosondage de La Réunion. 61
- Figure 3.3 Distributions mensuelles moyennes de la hauteur du point froid et de l'ozonopause calculée à partir des données de radiosondage d'Irene. 62
- Figure 3.4 Comparaison des profils saisonniers d'ozone troposphérique entre 3 km et 15 km calculés à partir des données lidar (rouge) et de radiosondages (bleu) pour (a) le printemps austral (SON) , (b) l'été austral (DJF), (c) l'automne austral et (d) l'hiver austral. Les courbes en gras correspondent au profils saisonniers, les courbes fines représentent l'écart type. En vert la distribution verticale du nombre de profils lidar utilisés pour calculer le profil climatologique en fonction de l'altitude. Figure extraite de Clain et al., 2009. 63
- Figure 3.5 Distribution mensuelle du rapport de mélange en ozone troposphérique (0-130 ppbv) entre 3 km et 16 km d'altitude pour différents sites de mesures et types de données : (a) données lidar de La Réunion, (b) données de radiosondages de La Réunion, (c) données mozaïc de Johannesburg et (d) données de radiosondages d'Irene. Figure extraite de Clain et al., 2009. 66
- Figure 3.6 Tendances linéaires de l'ozone troposphérique calculées sur l'ensemble de la base de données de radiosondages entre (a) 1 km et 16 km à La Réunion et entre (b) 2 km et 16 km à Irene. La ligne tiretée correspond à la tendance pour Irene calculée entre 1998 et 2006. Figure extraite de Clain et al., 2009. 71
- Figure 3.7 Tendances de l'ozone troposphérique entre 2 km et 4 km (a) à La Réunion et (b) à Irene, entre 4 km et 10 km (c) à La Réunion et (d) à Irene, entre 10 km et 16 km (e) à La Réunion et (f) à Irene, La ligne tiretée correspond à la tendance à Irene calculée à partir du jeu de données 1998-2006. Figure extraite de Clain et al., 2009. 72
- Figure 3.8 Tendances saisonnières de l'ozone troposphérique à La Réunion calculées entre 1 km et 16 km en (a) été austral, (b) automne, (c) hiver et (d) printemps. Figure extraite de Clain et al., 2009. 73
- Figure 3.9 Tendances saisonnières de l'ozone troposphérique à Irene calculées entre 2 km et 16 km en (a) été austral, (b) automne, (c) hiver et (d) au printemps. Figure extraite de Clain et al., 2009. 74
- Figure 3.10 Moyennes mensuelles du CO mesuré en ppbv par le capteur MOPITT pour les niveaux 350 hPa (8 km) et 700 hPa (3 km) pour les sites (a) de La Réunion et (b) d'Irene, entre avril 2001 et décembre 2007. 78
- Figure 3.11 Mesures du rapport de mélange en monoxyde de carbone durant l'année 2006 sur le site de Joinville à St Denis de La Réunion. Source ORA. 81
- Figure 3.12 Variabilité moyenne du CO (ppbv) lors des jours ouvrables (bleu) et des jours chômés (rouge) calculées à partir de mesures réalisées dans le cadre d'une campagne de mesures à Toulouse en 1998. Le site de mesure est urbain et localisé sur un toit d'immeuble. Le niveau moyen de CO varie

entre 450 ppbv les jours chômés et 550 ppbv les jours ouvrables durant la période de mesures (R. Delmas, communication personnelle).	81
Figure 3.13 Champs de carbone suie (BC, en $\mu\text{g}\cdot\text{m}^{-3}$) issus du modèle ORISAM-TM4 pour octobre 2006 à (a)1000m, (b) 4000 m, (c) 6700 m et (d) 12300 m d'altitude. Les échelles de couleur sont ajustées en fonction de l'altitude pour optimiser la visualisation des panaches.	83
Figure 3.14 Les moyennes bi hebdomadaires des champs ozone de ORISAM TM4 pour le site d'Irene en 2005 (carrés noirs), 2006 (carrés verts), 2007(carrés roses) sont comparées aux moyennes climatologiques mensuelles du site (moyenne courbe rouge et écart type tirets noirs) et aux données d'observation (croix bleues) à la même altitude pour chaque mois de janvier (a) à décembre (l).	88
Figure 3.15 Les moyennes bi hebdomadaires des champs ozone de ORISAM TM4 pour le site de La Réunion en 2005 (carrés noirs), 2006 (carrés verts), 2007 (carrés roses) sont comparées aux moyennes climatologiques mensuelles du site (moyenne courbe rouge et écart type tirets noirs) et aux données d'observation (croix bleues) à la même altitude pour chaque mois de janvier (a) à décembre (l).	89
Figure 4.1 Moyenne (traits pleins) et médiane (marqueurs o) mensuelles du vent zonal en $\text{m}\cdot\text{s}^{-1}$ pour trois niveaux de pression (300 hPa, 200 hPa, 150 hPa) calculés à partir de 10 années de données ECMWF (1998-2008).	97
Figure 4.2 Coupe méridienne du pourcentage moyen mensuel des occurrences où le module du vent zonal dépasse les $30\text{m}\cdot\text{s}^{-1}$ sur 10 années de données ECMWF (1998-2008).	98
Figure 4.3 Le profil reconstruit de vorticit� potentielle (gauche) est compar� au profil d'ozone mesur� le 15 f�vrier 2001 (droite). Ce profil d'ozone est lui m�me compar� au profil climatologique du mois de f�vrier afin de mettre en �vidence les APO. La classification des APO se traduit par le code couleur bleu (STE) vert (NON-STE) et rouge (STE-TTL).	100
Figure 4.4 La fr�quence cumul�e de la distribution annuelle (a,c,e) et mensuelle (b,d,f) des occurrences de STE (courbes bleues) est compar�e � la fr�quence cumul�e de la distribution des mesures ozone. Les jeux de donn�es lidar et radiosondages sont confondus en (a) et (b), les vignettes (c) et (d) distinguent les mesures de radiosondages, les vignettes (e) et (f) distinguent les mesures lidar. Le coefficient de corr�lation R entre les deux courbes est report� sur chaque vignette.	102
Figure 4.5 Distribution inter annuelle du pourcentage de STE d�tect�s dans les mesures ozone de La R�union entre 1992 et 2006 pour diff�rents crit�res de valeur critique de PV et de dur�e de r�trotrajectoires.	103
Figure 4.6 Distribution inter annuelle en pourcentage des mesures ozone � La R�union.	104
Figure 4.7 Distribution mensuelle du pourcentage de STE d�tect�s dans les mesures ozone de La R�union entre 1992 et 2006 pour diff�rents crit�res de valeur critique de PV et de dur�e de r�trotrajectoires.	106
Figure 4.8 Distribution mensuelle en pourcentage des mesures ozone � La R�union.	106
Figure 4.9 Distribution verticale des occurrences d'anomalies positives d'ozone cumul�es sur l'ensemble des profils de la base de donn�es de La R�union (1992-2006) et classifi�es STE (bleu), NON-STE (vert) et STE -TTL (rouge).	110
Figure 4.10 Distribution verticale saisonni�re des occurrences d'anomalies positives d'ozone cumul�es sur l'ensemble des profils de la base de donn�es de La R�union (1992-2006) et classifi�es STE (bleu), NON-STE (vert) et STE -TTL (rouge).	110
Figure 4.11 Distribution des occurrences du rapport de m�lange en ozone (ppbv) dans les masses d'air classifi�es STE.	113
Figure 4.12 Distribution des occurrences du rapport de m�lange en ozone (ppbv) dans les masses d'air classifi�es NON-STE.	114

Index des abbreviations

AATSR	Advanced Along-Track Scanning Radiometer
AMMA	African Monsoon Multidisciplinary Analysis
AERONET	AERosol RObotic NETwork
AURA	« Brise » en latin
BESOS	Balloon Experiment on Standards for Ozonesondes
CNRS	Centre National de la Recherche Scientifique
COBRA	CO ₂ Budget and Rectification Airborne study
COV	Composés organiques Volatiles
DIAL	Differential Absorption Lidar
ECC	ElectroChemical Cell
ECMWF	European Center for Medium range Weather Forecast
ENVISAT	ENVIronment SATellite
EQUAL	Envisat Quality Assesment with Lidar
ESA	European Space Agency
FTIR	Fourier Transform InfraRed spectrometer
GAW	Global Atmosphere Watch
GCTM	Global Chemistry and Transport Model
GEIA	Global Emissions Inventory Activity
GEOMON	Global Earth Observation and Monitoring
GIRAFE	reGlonal ReAl time Fire plumEs
IAGOS	Integration of routine Aircraft measurements Into a Global Observing System
INTEX	INtercontinental chemical Transport EXperiment
IASB	Institut d'Aéronomie Spatiale de Belgique
IPCC	Intergovernmental Panel on Climate Change
JOSIE	Juelich ozone Sonde Intercomparison Experiment
LACy	Laboratoire de l'Atmosphère et des Cyclones
LATMOS	Laboratoire Atmosphères, Milieux, Observations Spatiales
LIDAR	Light Detection And Ranging
LPA	Laboratoire de l'Atmosphère
MIMOSA	Modélisation Isentrope du transport à Méso-échelle de l'Ozone Stratosphérique par Advection
MODIS	Moderate Resolution Imaging Spectroradiometer
MOPITT	Measurement Of Pollution In The Troposphere
MOZAIC	Measurement of OZone by Airbus In-service airCRAFT
NASA	National Aeronautics and Space Administration
NDACC	Network for the Detection of Atmospheric Composition Change
NDSC	Network for the Detection of Stratospheric Change
NMHC	Non-Methane HydroCarbons
OMI	Ozone Monitoring Instrument
OPAR	Observatoire de Physique de La Réunion
ORA	Observatoire Réunionnais de l'Air
ORISAM	ORganic and Inorganic Sectional Aerosol Model
PV	Potential Vorticity
RDF	Reverse Domain Filling
RWB	Rosby Wave Breaking
SAFARI	Southern African Fire-Atmosphere Research Initiative
SAOZ	Système d'Analyse par Observation Zénithale
SCHIAMACHY	SCanning Imaging Absorption SpectroMeter for Atmospheric CHartographY
SHADOZ	Southern Hemisphere ADditional OZonesondes
SPARC	Stratospheric Processes And their Role in Climate
STE	Stratosphere Troposphere Exchange

Index des abbreviations

TES	Tropospheric Emission Spectrometer
TRACE-A	Transport and Atmospheric Chemistry near the Equator-Atlantic -A
TROPOZ	TROPOspheric Ozone
TRMM	Tropical Rainfall Measuring Mission
UHF	Ultra High Frequency
UTLS	Upper Troposphere Lower Stratosphere
UV	Ultra Violet
WMO	World Meteorological Organisation

Abstract

Emissions of ozone precursors by biomass burning activity in south Africa and Madagascar and stratospheric intrusions are the two sources controlling tropospheric ozone at Reunion. Located at 21°S, the site is strongly impacted by the subtropical jet stream activity during austral winter and spring.

Ozone measurements at Reunion started in 1992 with the first radiosoundings. The measurements were enriched from 1998 with the installation of a LIDAR at the station. Ozone radiosonde measurements are also performed at Irene (South Africa) since 1990. In 1998, Irene and la Reunion joined the SHADOZ network (Thompson et al. 2003).

The study presented here intend to analyse the ozone database with a lagrangian approach in order to compare the impact of photochemical and stratospheric sources on the tropospheric ozone burden in the region. This work starts with a comparative study of tropospheric ozone climatology and trends at two regional sites: La Reunion and Irene.

The tropospheric ozone trends have been calculated both considering the whole tropospheric column and dividing the troposphere into three atmospheric sections standing for lower, middle and upper troposphere. The examination of data, the climatological studies and the trend calculations have revealed the specific features of data, the climatological characteristics of tropospheric ozone in the region and allowed to hypothesize on the importance of regional sources.

The analysis of the ozone database at Reunion with the lagrangian trajectory code Lacytraj revealed the seasonal behaviour of stratospheric intrusions, their seasonal features such as the depth of intrusions, the value of ozone mixing ratio in stratospheric air masses and vertical seasonal distributions of stratospheric intrusions.

Key words: tropospheric ozone, climatology, trends, subtropical jet stream, stratosphere – troposphere exchange

ÉTUDE DES SOURCES D'OZONE AVEC UNE APPROCHE LAGRANGIENNE

par Gaëlle CLAIN

Thèse présentée à l'Université de la Réunion le 7 septembre 2009

pour obtenir le titre de Docteur de l'Université de la Réunion

Résumé

Il a été démontré que l'ozone troposphérique mesuré à la Réunion subit à la fois l'influence des feux de biomasse d'Afrique du Sud et de Madagascar, mais aussi l'influence d'intrusions stratosphériques. Situé à 21° Sud, le site est fortement influencé par le courant jet subtropical en hiver austral mais aussi au printemps austral.

Le début des mesures d'ozone troposphérique à la Réunion date de 1992 avec les premiers radiosondages. L'installation d'un lidar dial a permis d'enrichir les mesures d'ozone troposphérique à partir de 1998. Des mesures d'ozone par radiosondages ont également lieu à Irene en Afrique du Sud depuis 1990. En 1998, les sites d'Irene et de la Réunion ont intégré le réseau SHADOZ (Thompson et al., 2003).

Les travaux présentés visent à analyser la base de données ozone de la Réunion avec une approche lagrangienne afin de déterminer l'influence relative des sources photochimique et stratosphérique sur l'ozone troposphérique. Ce travail commence par une étude comparative de la climatologie et des tendances de l'ozone troposphérique pour deux sites de la région : l'île de la Réunion et Irene en Afrique du Sud.

Les tendances de l'ozone troposphérique ont été calculées sur l'ensemble de la base de données de la Réunion et d'Irene à la fois sur la colonne troposphérique totale et aussi en subdivisant la troposphère en couches atmosphériques représentatives de la basse, moyenne et haute troposphère. Ce travail d'examen des données, de bilan climatologique et de calcul de tendances a permis de mettre en évidence les caractéristiques spécifiques des données, les caractéristiques climatologiques de l'ozone troposphérique dans la région et de poser une hypothèse sur l'évolution des sources d'ozone dans la région.

Par la suite, l'analyse de la base de données ozone de la Réunion à l'aide de l'outil trajectographique lagrangien Lacytraj a permis de mettre en évidence la saisonnalité des intrusions stratosphériques ainsi que leurs caractéristiques saisonnières à savoir la profondeur des intrusions, le rapport de mélange en ozone associé aux masses d'air d'origine stratosphérique, les distributions verticales saisonnières des intrusions stratosphériques.

Mots clés : ozone troposphérique, climatologie, tendances, jet subtropical, échanges stratosphère – troposphère.